

複雑な流動・輸送現象の解明・予測・制御に向けた新しい流体科学
2022 年度採択研究代表者

2022 年度
年次報告書

金 賢得

京都大学 大学院理学研究科
助教

量子回転流体科学の創生と多孔性ナノ空間による流動制御

研究成果の概要

(1) これまで開発してきた量子分子動力学法に、フェルミオンの核スピン統計を満たす核量子回転を取り入れることで、量子回転分子動力学法と呼べる新手法を開発した。これにより、フェルミオン水素核ペアが反対称核スピンを持ち対称な核量子回転を有するパラ水素と、対称核スピンを持ち非対称な核量子回転を持つオルソ水素の分子エネルギー差や、遠心力による分子結合長差・振動数差、水素分子種ごとに定性的に異なる比熱や、温度に依存して変化する各水素分子種の存在比までを再現した。特に、カーボンナノチューブ内で吸脱着を繰り返すパラ水素やオルソ水素の実時間ダイナミクスを計算することに初めて成功し、「電子状態は同じであるにも関わらず、核量子回転が励起するほど水素分子の並進・配向ダイナミクスが促進され、分子振動数は赤方シフトしつつ振動強度は増幅する」と結論付けた。このような動的知見は、静的な量子化学計算や従来の経路積分分子動力学法では得ることができない。量子回転分子動力学法は、計算手法自体が確立していなかったオルソ水素の初めての量子動力学法であるだけでなく、電子励起状態ではなく核励起状態において実時間の分子ダイナミクスを追える初めての量子動力学法である。

(2) 水素分子および重水素分子がナノチューブ内の非平衡混相流は、同位体分子輸送を明らかにするための重要な情報を提供する。異なる顕著な核量子効果を有する水素および重水素をモデルポテンシャルや経験的パラメータ無しで記述できる量子分子動力学法を活用して、ナノチューブ内を流れる水素+重水素混相流を様々な温度・密度で追究した。その結果、非平衡流動下で、非局在化した水素分子が重水素分子よりもより効果的に過冷却化され、ナノチューブ壁付近に強く凝縮することを見出した。電子状態は同じで核量子性のみが異なる純粋な同位体分子群の非平衡流動分離は、動的量子ふるいとも呼べる現象である。

【代表的な原著論文情報】

- 1) “Real-time hydrogen molecular dynamics satisfying the nuclear spin statistics of a quantum rotor”, *Communications Chemistry*, Vol. 5, 168, 2022
- 2) “Anomalously supercooled H₂-D₂ mixtures flowing inside a carbon nano tube”, *Physical Chemistry Chemical Physics*, Vol. 25, 3232-3239, 2023