PR0232

第一原理計算によるドップラー幅を考慮した一酸化炭素同位体分子種の光吸収断面積

○冬月世馬[1]、藤原 綾香[1]、南部 伸孝[1]
([1]上智大学)

太陽系の始原的隕石にはごく少量に同位体異常を持ったプレソーラー粒子が含まれている。一方で太陽系固体物質中の主要元素の同位体組成は極めて一様である。太陽系を作った元素はもともと同位体的に不均質な状態にあったものが太陽系形成時やそれに先んじて著しく拡販したと考えられている。地球での大部分の同位体交換反応に伴う同位体分別は質量差に依存しており、$\delta^{18}O$ は $\delta^{17}O$ の約 2 倍変化する。また、火星大気における炭素同位体比は大気進化史や表層有機物の起源を制約するための重要なトレーサーとして提案されている。CO_2 の光解離による同位体分別効果の影響も強く受けることが Schmidt et al,[1] の理論計算で示されている。強い紫外線大気で CO 分子も光かい離反応も生じると考えられる。一方で一酸化炭素分子の光吸収断面積は実験で得られているデータが多くない。

一酸化炭素分子について、電子基底状態および 励起状態について結合距離に対する大域的ポテンシャルエネルギーと、基底状態と各励起状態の一酸化炭素分子について、電子基底状態および 励起状態について結合距離に対する大域的ポテンシャルエネルギーと、基底状態と各励起状態の 遷移双極子モーメントを計算した。電子状態計算には MRCI/AVDZ 法を用いた。ポテンシャルエ ネルギー曲線の計算のため 1.5-8.1 a0 の間の 158 の座標について電子状態計算を行った。光吸収 断面積は、この電子状態を用いて非断熱遷移を考慮しR-matrix 伝播法を用いて波動関数を数値 的に得ることで算出した。過去に得られた実験測定値から Voigt プロファイ ルを用いることで波長ごとのドップラー幅を算出した。このドップラー幅を自然幅光吸収断面積に与えて最終的な光吸収断面積とした。

電子状態は $X^1\Sigma^+$、$A^1\Pi$、$D^1\Delta$ について得られた。これらの状態を用いて光吸収断面積を得た。 ドップラー幅に関しては Chan et al.,[2] による実験の低波長側のデータから波長ごとの数値を得た。波長とドッ プラー幅には指数関数的関係がみられた。比較のため、Chan et al.,[2] の用いた実験装置の分解能 (0.048 eV FWHM)をドップラー幅として与えた計算と比較し計算結果の妥当性を検討しました。

[1] Schmidt et al., PNAS., 110(44), 17691-17696(2013), [2] W.F. Chan et al., Chem. Phys., 170, 123-138(1993)

Absorption Spectrum of Carbon Monoxide Molecule by First Principle Calculations: Isotopic and Doppler Width Effects

* S. Fuyutsuki[1], A. Fujiwara[1], S. Nanbu[1] ([1]Sophia Univ.)