

南部伸孝(助手)(1992年7月1日～2005年3月31日)*)

A-1) 専門領域：理論化学、計算化学、分子物理

A-2) 研究課題：

- a) 化学反応の量子力学
- b) 機能分子の理論探索 非断熱遷移を利用した分子設計
- c) 連成シミュレーションの構築と応用 ナノスケール分子の構造解析

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 電子励起状態が関与する化学反応を主な研究対象に理論研究を行ってきた。特に、このような系においては、非断熱遷移が重要であり、量子論に基づく核の運動の取り扱いが重要となる。そこで、比較的計算資源を必要としない時間依存シュレディンガー方程式を解く方法を用い、反応微分断面積の決定が可能となるコードの開発を行っている。一方、三原子分子の光解離過程の研究で特によく現れる非断熱遷移の現象の一つである Renner-Teller効果があるが、その効果を取り入れることが可能なコードの開発を行った。具体的には、 H_2O^+ および SiH_2 分子の振動回転準位を求め、実験的にも未知である電子励起状態に関する分光定数の決定を行い、未帰属な吸収スペクトルの帰属に成功した。
- b) フォトクロミズムや視覚の初期過程におけるレチナルの光異性化過程には、非断熱遷移過程が現れる。そこで、この過程を利用して分子スイッチ・ゲートを作ろうという目論みを行っている。まず、非断熱遷移を起こす一次元系を取り上げる。そのような系には量子現象に特有な完全反射現象と完全透過現象が現れる。この完全反射現象は、まさに今までである入射エネルギーでは物質が透過していたのに、この量子現象が現れることにより、見事にすべて反射されることとなる。一方、完全透過現象は、完全反射現象とは全く異なり、すべてを透過する現象である。そこで、この二つの現象をうまく利用して分子スイッチ・ゲートを実現しようという理論的提案を最近行っている。特に、カーボンナノチューブによる水素吸蔵への応用を目的に、シクロペンタジエン及びホウ素置換したコランニユレニルラジカルと水素原子の系を用いたモデルを基に、可能性を探った。その結果は、約25%程度の透過確率を得ることを見出した。
- c) 現在の理学、工学、社会学の現象は一つのモデルで表すことができるほど単純明快なものではなく、これまでのように単一の手法でシミュレーションを行うには、限界がある。より現実に近い時間経過を追う実験や、複合した現象の解析をシミュレーションしたいという要望に応えるのが、連成シミュレーションである。連成シミュレーションは、シミュレーション対象の全体を複数の部分系に分割し、部分系の計算途中でお互いのデータを変換しながら全体を説く手法である。それは、現象を理解するために全体のシステムを部分に分割して考えてみる手法があり、また全体が複雑に絡み合っているように見える現象の中にも、部分要素間の相互作用が本質的であるとみなせる場合があるためである。現在、連成シミュレーションを分子から構成されるナノスケール構造物に対して行うため、分子軌道法と分子動力学法および構造力学計算と分子動力学計算に関するプログラムの開発を行っている。

B-1) 学術論文

Z. -H. WANG, T. URISU, H. WATANABE, K. OOI, G. R. RAO, S. NANBU, J. MAKI and M. AOYAGI, “Assignment of Surface IR Absorption Spectra Observed in the Oxidation Reactions : $2\text{H} + \text{H}_2\text{O}/\text{Si}(100)$ and $\text{H}_2\text{O} + \text{H}/\text{Si}(100)$,” *Surf. Sci.* **575**, 330–342 (2005).

H. TAMURA, S. NANBU, T. ISHIDA and H. NAKAMURA, “Ab Initio Potential Energy Surfaces for the Cyclohexadiene/Hexatriene Photochemical Interconversion,” *Chem. Phys. Lett.* **401**, 487–491 (2005).

I. TOKUE, K. YAMASAKI, S. MINAMINO and S. NANBU, “Theoretical Transition Probabilities for the $A^2A_1-X^2B_1$ System of H_2O^+ and D_2O^+ and Related Franck-Condon Factors Based on Global Potential Energy Surfaces,” *J. Theor. Comput. Chem.* **4**, 225–245 (2005).

I. TOKUE, K. YAMASAKI and S. NANBU, “Vibrational Energies for the X^1A_1 , A^1B_1 , and B^1A_1 States of $\text{SiH}_2/\text{SiD}_2$ and Related Transition Probabilities Based on Global Potential Energy Surfaces,” *J. Chem. Phys.* **122**, 144307–144316 (2005).

J. -I. CHOE, S. -K. CHANG, S. LEE and S. NANBU, “Ab Initio Calculated Structures of Conformers for 1,3-Dimethoxy-*p*-tert-Butylcalix [4] crown-5-Ether Complexed with Potassium Cation,” *THEOCHEM* **722**, 117–123 (2005).

R. TERO, N. MISAWA, H. WATANABE, S. YAMAMURA, S. NAMBU, Y. NONOGAKI and T. URISU, “Fabrication of Avidin Single Molecular Layer on Silicon Oxide Surfaces and Formation of Tethered Lipid Bilayer Membranes,” *e-J. Surf. Sci. Nanotech.* **3**, 237–243 (2005).

H. WATANABE, S. NANBU, Z. -H. WANG, J. MAKI, T. URISU, M. AOYAGI and K. OOI, “Theoretical Study of the Oxidation Reaction for the H Atom-Induced Water-Terminated Si Surface $2\text{H} + \text{H}_2\text{O}/\text{Si}(100)-(2\times 1)$,” *Chem. Phys. Lett.* **412**, 347–352 (2005).

B-3) 総説、著書

南部伸孝, 「 N_2O の光分解と同位体効果」, 「大気の化学 分子科学によるアプローチ」, 第一章 (2005) (特定領域研究「大気化学・燃焼における新規ラジカル連鎖反応」平成13年度～15年度, 代表 豊橋技術科学大学(元京大理学部) 驚田伸明(2005年)における研究成果の一つとして総説を執筆した)

B-4) 招待講演

S. NANBU, “A new proposal of the molecular design with the aggressive use of the non-adiabatic phenomena,” The 9th East Asian Workshop on Chemical Reactions, Seoul (Korea), March 2005.

B-7) 学会および社会的活動

学会の組織委員

The 9th East Asian Workshop on Chemical Reactions 2005年3月, ソウル(韓国), プログラム委員 (2004-2005).

学会誌編集委員

量子化学文献データベース(QCLDB)編集委員 (2003-).

C) 研究活動の課題と展望

研究課題(a)については、四原子反応への拡張を中心に研究を進める。六自由度系でもあることから、今まで使われてきた超球座標を用いた緊密結合微分方程式を数値的に解くのではなく、量子波束の時間発展方法を用いる。また、Trotter公式に基づく時間発展の方法ではなく、チェビシェフ次数発展法を用い、数値計算における丸め誤差の皆無や計算コストの削減を行い、六自由度系の化学反応動力学を行う。その一方で同じ系を使い、半古典論である凍結ガウス関数波束発展法の可能性を探る。扱う系は、研究課題(b)とも関係する電子励起状態が反応に関与するものを選び、その反応に関するポテンシャルエネルギー面も自ら決定する。このような系を取り上げることにより、反応の特異性がどのようにして起こるのか？ また、レーザー制御などによってその特異性を変化させ、化学反応が制御できるかを探り、実験への指針を与える。

研究課題(b)を特に推進する。非断熱トンネル現象を利用した分子機能の制御と開発を目的とする。その中で特に最近、環状分子にその機能をうまく発現させる可能性を見出している。つまり、まさに分子スイッチ・ゲートとして提案したモデルに対する現実系としての可能性を持つ結果を得はじめている。そこで、この分子とその類似系について同様な理論計算を行い、分子スイッチ・ゲートの実現を目指す。一方、モデル計算ではあるが、中空のフラーレンに金属を内包させるには、この分子スイッチ・ゲートがとてもよいモデルとなるのでなからうかと考えている。従って、どこまで可能か分からないが、フラーレンやカーボンナノチューブ等の中空分子にものを入れるという化学を、化学反応動力学の基礎理論を使って挑みたい。具体的には水素吸蔵方法を理論計算により最近見出し、提案している。今後が楽しみである。

研究課題(c)については、開発を始めたばかりであり、未知数である。

* 2005年4月1日九州大学情報基盤センター助教授