

信 定 克 幸（准教授）（2004 年 6 月 1 日着任）

A-1) 専門領域：分子物理学、理論化学

A-2) 研究課題：

- a) 電子エネルギーの散逸を伴うナノ構造物質の電子ダイナミクス
- b) 有機分子で保護された金属クラスターの電子物性
- c) 電極反応の理論

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 実在する分子系は通常、有限温度において周りの環境と相互作用していることが多く、必然的に分子系と周りの環境との間では熱的エネルギーの出入り（熱的揺らぎ）や電子のやり取り（電子数の揺らぎ）が起こり得る。我々のグループでは特に電子数の揺らぎを持つ分子、すなわち電子溜めと相互作用している分子系において引き起こされる量子多体系ダイナミクスの理論的解明を目標として研究を進めている。先ずこの研究課題を、多電子ダイナミクスを記述するための方法論の開発と電子エネルギーの量子散逸を取り扱うための理論的手法の開発の問題に大別し、各々の問題点に焦点を絞った研究を進めている。多電子ダイナミクスの研究においては、レーザーパルス光により引き起こされる電子ダイナミクスの詳細な解明を時間依存密度汎関数理論に基づいて行った。最近の成果としては、リング状分子に円偏光レーザーパルスを照射することにより、効率的にリング内に電流を誘起し、同時に磁気モーメントを発生できることを示した。一方、電子エネルギーの量子散逸の研究においては、表面吸着分子系や電極反応を電子レベルで記述するための非平衡定常状態理論の開発とその方法論の適用を行った。最近、表面吸着原子系を記述するための新しい方法論を開発することに成功した。この方法論では表面吸着原子系を有限サイズのクラスターで近似しているが、クラスターの端において適切な境界条件を課すことで半無限系であるはずの表面を正しく記述することが可能となった。
- b) 複数の有機分子で保護（又は修飾）された金属クラスターは、裸の金属クラスターとは異なる化学的・物理的性質（例えば、線形・非線形光学応答、伝導性、磁性、触媒作用、化学反応性など）を示すことから基礎理学・応用科学両方の観点から盛んに研究されている。本研究では、チオラート分子によって保護された様々な金クラスターを対象として、その電子構造と光学的性質の解明を行った。従来チオラート分子は金クラスターの表面を覆うような形で結合すると思われてきたが、我々の研究によると金原子と硫黄原子が1体1で結合した強固な Au-S ネットワークを形成し、このネットワーク構造が金チオラートクラスターの安定化の大きな要因であることを明らかにした。また、金クラスターがチオラート分子と結合することによって、多量体化した金クラスターを形成することができるとを理論的に示した。これはボトムアップ的手法により金クラスターを集積化することが可能であることを意味しており、材料物性科学の観点からも興味深い研究結果を与えることができた。
- c) 電極反応は、電子状態理論、溶液論、表面・界面の理論等の分子科学の主要な理論が関与する極めて複雑な研究対象である。当然、量子論的に正確に電極反応を取り扱うことは非常に難しい。我々は、理論的方法論開発の第一段階として、有限温度密度汎関数理論に基づく化学ポテンシャル一定の電子状態計算と誘電体モデルによる溶媒和記述の手法を組み合わせた方法を開発し、電極反応の量子化学的解明を行った。

B-1) 学術論文

- T. IWASA and K. NOBUSADA**, “Theoretical Investigation of Optimized Structures of Thiolated Gold Cluster $[\text{Au}_{25}(\text{SCH}_3)_{18}]^+$,” *J. Phys. Chem. C* **111**, 45–49 (2007).
- K. NOBUSADA and K. YABANA**, “Photoinduced Electric Currents in Ring-Shaped Molecules by Circularly Polarized Laser Pulses,” *Phys. Rev. A* **75**, 032518 (7 pages) (2007).
- Y. KUBOTA and K. NOBUSADA**, “Efficient Numerical Method for Calculating Exciton States in Quantum Boxes,” *Phys. Lett. A* **369**, 128–131 (2007).
- T. IWASA and K. NOBUSADA**, “Gold-Thiolate Core-in-Cage Cluster $[\text{Au}_{25}(\text{SCH}_3)_{18}]$ Shows Localized Spins in Charged States,” *Chem. Phys. Lett.* **441**, 268–272 (2007).
- K. IKEDA, Y. KOBAYASHI, Y. NEGISHI, M. SETO, T. IWASA, K. NOBUSADA, T. TSUKUDA and N. KOJIMA**, “Thiolate-Induced Structural Reconstruction of Gold Clusters Probed by ^{197}Au Mössbauer Spectroscopy,” *J. Am. Chem. Soc.* **129**, 7230–7231 (2007).
- K. NOBUSADA and T. IWASA**, “Oligomeric Gold Clusters with Vertex-Sharing Bi- and Triicosahedral Structures,” *J. Phys. Chem. C* **111**, 14279–14282 (2007).
- T. YASUIKE and K. NOBUSADA**, “Open-Boundary Cluster Model for Calculation of Adsorbate-Surface Electronic States,” *Phys. Rev. B* 235401 (12 pages) (2007).
- K. SHIRATORI and K. NOBUSADA**, “Finite-Temperature Density Functional Calculation with Polarizable Continuum Model in Electrochemical Environment,” *Chem. Phys. Lett.* **451**, 158–162 (2007).

B-2) 国際会議のプロシーディングス

- Y. KUBOTA and K. NOBUSADA**, “An Efficient Numerical Method for Exciton States in Quantum Boxes,” *Comput. Phys. Commun.* **177**, 43 (2007).
- K. SHIRATORI and K. NOBUSADA**, “Electronic Structure Calculations at Constant Chemical Potential toward the Application to Electrochemistry,” *Comput. Phys. Commun.* **177**, 47 (2007).
- K. NOBUSADA and K. YABANA**, “Electric Currents in Ring-Shaped Molecules Induced by Circularly Polarized Laser Pulses,” *Comput. Phys. Commun.* **177**, 54 (2007).

B-4) 招待講演

- K. NOBUSADA**, “Nonlinear electron dynamics induced by femtosecond laser pulses: Electric currents in ring-shaped molecules,” International Symposium on Molecular Science of Ultrafast Electronic Dynamics, Sendai (Japan), May 2007.
- 信定克幸**, 「金属—分子複合系クラスターの電子物性と散逸系電子ダイナミクス」, コンピューターによる材料開発・物質設計を考える会, 東京, 2007年4月.
- 信定克幸**, 「特異な構造を持つ金チオラートクラスターの電子物性」, 日本物理学会, 札幌, 2007年9月.
- 信定克幸**, 「ナノメートルサイズ金属クラスターの電子物性とダイナミクス」, 科学研究費特定領域研究, 東京, 2007年11月.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員、委員

日本物理学会領域1 (原子・分子分野)世話人 (2003-2004).
科学技術振興機構地域振興事業評価委員会専門委員 (2005-2006).
文部科学省科学技術・学術審議会専門委員 (2006-).

学会の組織委員

分子構造総合討論会プログラム委員 (2001).
日韓共同シンポジウム実行委員 (2005).
総研大アジア冬の学校実行委員 (2005-2006).
理論化学シンポジウム運営委員会代表 (2006-).

B-8) 大学での講義、客員

筑波大学計算科学研究センター, 共同研究員, 2006年6月-.
総合研究大学院大学物理科学研究科, 「計算化学」, 2007年7月18日-7月20日.

B-10) 外部獲得資金

奨励研究 (A), 「ヘムタンパク質に結合した一酸化炭素分子の振動エネルギー緩和の動力学」, 信定克幸 (2000年-2002年).
基盤研究 (C), 「ナノメートルサイズの分子における多電子ダイナミクスの理論的研究」, 信定克幸 (2005年-2007年).
特定領域研究, 「エネルギー散逸を伴う電子ダイナミクスの理論と材料物性」, 信定克幸 (2006年-).
岩崎ファンド海外研究助成, 「DYNAM 2000 REACTIVE AND NON REACTIVE QUANTUM DYNAMICS」, 信定克幸 (2000年).
第1回理学未来潮流グラント, 「有限少数多体系における特異な現象の発見とその解釈」, 信定克幸 (2001年-2002年).
松尾学術研究助成金, 「貴金属クラスターの電子・イオンダイナミクスの理論的研究」, 信定克幸 (2002年-2004年).

C) 研究活動の課題と展望

これまでの分子科学におけるダイナミクスの研究では、多原子系のダイナミクスが主たる研究テーマであったが、最近の実験の目覚ましい進歩により、数フェムト秒からアト秒に至る超高速の多電子ダイナミクスの実時間観測が可能になってきた。しかしながら、多電子ダイナミクスの基礎理学的理解は全く十分ではなく、ましてや多電子ダイナミクスが今後、分子科学一般や応用科学へどのように展開していくのかについて明確な答えを出すことは現状では難しい。そこで我々の研究グループでは、基礎理学的理解を目標として、理論解析・数値解析両方の観点から、多電子ダイナミクスの研究を行っている。これまでのところ、孤立系分子を対象として多電子ダイナミクスの研究を行ってきたが、最近、周りの環境と相互作用している分子系、特に電子エネルギーの量子散逸を含む系の多電子ダイナミクスの理論的研究にも着手した。例えば、表面吸着分子や溶媒と相互作用している分子、ヘテロな分子を多数含む大きな金属クラスター、電極反応などの系において、多電子がどのような振る舞いをするのか、特に非線形光学応答や電荷移行反応に注目して研究を進めたいと考えている。また、現在進めている研究を電子ダイナミクスだけに限定せず、スピンドイナミクスや励起子ダイナミクスも含め、分子系における量子多体系ダイナミクスの実時間解析へと展開する予定である。