

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) ナノ構造体における電子・電磁場ダイナミクス
- b) 電子エネルギーの散逸を考慮に入れた電子状態理論の開発
- c) 量子ドット列における励起子ダイナミクスの理論

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 1 nm ~ 数十 nm 程度のナノ構造体では，量子性を反映した特異な光誘起電子・核ダイナミクスが見られるが，その基礎理学的理解は十分ではない。ナノ構造体ダイナミクスでは，局所的な空間領域で物質と電磁場が再帰的に相互作用し，更にその相互作用を介したエネルギー移動がナノ粒子間で連鎖的に起こることが重要であり，双極子近似を使った通常の光学応答理論では理解することができないからである。物質系を記述するためのシュレディンガー方程式と電磁場を記述するためのマクスウェル方程式を自己無撞着に解くための理論開発とその理論に基づく実用的な数値計算手法の開発が必須となる。我々は実在系ナノ構造体における光誘起電子・核・電磁場ダイナミクスを記述するための光学応答理論の開発を第一の目標とし，その理論に基づく数値計算によってナノ構造体表面・界面で起こる新しい反応場形成の機構解明とその機構に基づく新規量子デバイス設計へ向けた基礎的知見の獲得を最終的な目標として研究を進めている。最近，我々は近接場光を使った局所電子励起によるナノクラスターの電子ダイナミクスを取り扱うための理論の開発に成功した。特に電場の空間的非一様性が電子ダイナミクスに多大な影響を与え，通常の光学応答では見られない非線形光学応答や分子の対称性を破った光学励起が容易に起こることが分かった。
- b) 表面吸着系の電子物性や電子・核ダイナミクスを分子レベルで理解するためには，吸着種と表面の間で起こる電子エネルギーの散逸を正しく記述することが必須である。従来の表面吸着系に対する一般的な計算方法としてしばしば使われるクラスターモデル (CCM) では，本来半無限系である表面を有限個の孤立クラスターで近似してしまうため，非物理的なクラスターの境界面が存在してしまう。そこで我々は，吸着原子と金属表面との間で起こる電子エネルギーの散逸を考慮に入れた新しいクラスターモデル (OCM) 理論を開発し，金属表面吸着種の光誘起振動励起過程の核波束ダイナミクスの計算を進めてきた。これまでの理論的研究の結果，OCM 理論に基づいて表面吸着モデル系に対する断熱ポテンシャル曲線を描くと，吸着種由来の電子状態と表面電子状態が透熱的に分離しており，少数の透熱ポテンシャル曲線が系のダイナミクスを支配していることが分かっている。前年までの研究に引き続き，少数の透熱ポテンシャルを抜き出し，そのポテンシャル曲線上で核波束ダイナミクスの計算を行い，貴金属表面吸着種の光誘起振動励起メカニズムの解明を行った。
- c) 量子ドット列におけるエネルギー散逸を伴う励起子移動の理論的研究を行った。量子ドット列の各サイト間のエネルギー移動を議論する場合，しばしば個々のサイトの固有状態を基にしたサイト基底表現が用いられる。しかし，厳密には量子ドット列全系のハミルトニアンを対角化した固有値基底表現を使う必要があり，過去の学術論文等で頻繁に使われているサイト基底表現は，固有値基底表現を基に低次の摂動展開の結果導き出されるものである。我々はこのサイト基底表現の適用限界を詳細に調べた。

B-1) 学術論文

T. IWASA and K. NOBUSADA, “Nonuniform Light-Matter Interaction Theory for Near-Field-Induced Electron Dynamics,” *Phys. Rev. A* **80**, 043409 (11 pages) (2009).

Y. KUBOTA and K. NOBUSADA, “Applicability of Site-Basis Time-Evolution Equation for Thermalization of Exciton States in a Quantum Dot Array,” *J. Phys. Soc. Jpn.* **78**, 114603 (7 pages) (2009).

D.-E. JIANG, K. NOBUSADA, W. LUO and R. L. WHETTEN, “Thiolated Gold Nanowires: Metallic versus Semiconducting,” *ACS Nano* **3**, 2351–2357 (2009).

T. YASUIKE and K. NOBUSADA, “Photoinduced Coherent Adsorbate Dynamics on a Metal Surface: Nuclear Wave-Packet Simulation with Quasi-Adiabatic Potential Energy Curves Using an Open-Boundary Cluster Model Approach,” *Phys. Rev. B* **80**, 035430 (8 pages) (2009).

Y. KAWASHITA, K. YABANA, N. NODA, K. NOBUSADA and T. NAKATSUKASA, “Oscillator Strength Distribution of C_{60} in the Time-Dependent Density Functional Theory,” *THEOCHEM* **914**, 130–135 (2009).

B-4) 招待講演

K. NOBUSADA, “Near-Field-Induced Electron Dynamics in Nanostructures,” Japan-Korea Symposium on Molecular Science 2009, Chemical Dynamics in Materials and Biological Molecular Sciences, Awaji (Japan), July 2009.

信定克幸, 「ナノ構造体における光誘起電子・核・電磁場ダイナミクス」第10回エクストリーム・フォトニクス研究会「凝縮系における量子の世界」愛知, 2009年11月.

安池智一, 「界面の分子科学への理論的アプローチ: 開放系電子状態理論の開発」特定領域研究「実在系の分子理論」研究交流会, 金沢, 2009年9月.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

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 (2006–2008).

学会の組織委員等

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 (2006–2008).

理論化学討論会第3期世話人 (2009–).

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」2009年7月.

B-9) 学位授与

岩佐 豪,「Theoretical Investigations of Cluster Compounds on the 1 nm Scale: Geometric, Electronic, and Optical Properties」
2009年3月, 博士(理学)

B-10) 競争的資金

日本学術振興会科研費奨励研究(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).

日本学術振興会科研費基盤研究(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).

文部科学省科研費特定領域研究(計画研究)「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-).

日本学術振興会科研費基盤研究(B),「近接場光励起による金属表面の局所電子ダイナミクスの理論」 信定克幸 (2009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 Grant,「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

最近の実験的手法の著しい進歩により,化学組成や構造を特定した1ナノメートル程度のナノ構造体を生成・単離更には大量合成することも可能になってきたが,未だそれらナノ構造体の電子物性や電子・核・電磁場ダイナミクスの詳細は十分に理解されていない。ましてやナノ構造体を利用した量子デバイスや機能性材料開発等の応用科学的研究への展開には大きな障壁が存在する。物質自体がナノメートルサイズになってしまうことから生じる数値計算上の問題だけではなく,そもそもナノメートルサイズの実在系ナノ構造体の量子ダイナミクス(特に光学応答)を取り扱うための理論がほとんど開発されていないためである。我々はナノ構造体特有の局所的な構造と光との相互作用を理解するための新しい光学応答理論の開発に興味を持っており,具体的には分子の近接場光励起による電子・核・電磁場ダイナミクスの理論的解明を進める予定である。また,ナノ構造体が周りの環境と一切相互作用せずに孤立物質として存在することは通常有り得ず,常に環境との間でエネルギーの散逸が起こっている。実在系ナノ構造体の量子散逸の理論も同様にほとんど開発されていない。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,量子散逸を含むナノ構造体の電子・核ダイナミクスの研究を行っている。ここ最近の我々の研究に基づくと,表面と吸着種の間で起こるエネルギー散逸は厄介者ではなく,多彩な表面ダイナミクスを引き起こす重要な現象であると考えている。