

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，開発した理論に基づく数値計算によってナノ構造体及びその表面・界面で起こる新しいダイナミクス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。これまで開発してきた時間依存密度汎関数理論に基づく電子ダイナミクス法計算プログラムを用いて，最近，我々は近接場光局所電子励起によって，銀ナノクラスターに力を発生させることができ，また光源のレーザー周波数を変えることによって，与える力の大きさを変化し得ることを明らかにした。これらの知見は，原子・分子レベルでの力学的物質操作に応用することが期待できる。
- 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。本年度は実験グループと協力して CS/Cu(111) を対象として，吸着種のコヒーレント核振動メカニズムの詳細を明らかにした。局所的吸着種電子励起，または表面電子励起状態が介在する電子励起の異なる二つの励起に対応して，核振動ダイナミクスが大きく変化することが分かった。実験結果とも定性的に良く一致し，表面吸着種ダイナミクスの詳細に迫る研究を行うことができた。
- 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。昨年度までの研究を継続して，理論的定式化及びその定式化に基づくプログラム開発を更に進めた。本年度は特に，量子ドット列における励起子ポラリトンの伝播メカニズムを明らかにした。また，温度によって励起子ポラリトンの伝播経路をコントロールすることができることも明らかにした。これは，次世代量子デバイス開発に資する重要な基礎的知見になると考えられる。

B-1) 学術論文

T. IWASA and K. NOBUSADA, “Near-Field-Induced Optical Force on a Metal Particle and C_{60} : Real-Time and Real-Space Electron Dynamics Simulation,” *Phys. Rev. A* **82**, 043411 (6 pages) (2010).

Y. NEGISHI, W. KURASHIGE, Y. NIIHORI, T. IWASA and K. NOBUSADA, “Isolation, Structure, and Stability of a Dodecanethiolate-Protected Pd_1Au_{24} Cluster,” *Phys. Chem. Chem. Phys.* **12**, 6219–6225 (2010).

B-4) 招待講演

K. NOBUSADA, “Near-Field and Matter Interaction Theory for Electron Dynamics in Nanostructures,” 2010 Annual Meeting of Asian Core Program “Frontiers of Material, Photo-, and Theoretical Molecular Science,” Taipei (Taiwan), March 2010.

信定克幸, 「ナノ構造体における局所電子励起と機能性発現の分子論」分子研研究会「プラズモン増強光電場の分子科学研究への展開」岡崎市, 2010年6月.

T. YASUIKE and K. NOBUSADA, “Photoinduced coherent dynamics of adsorbates on metal surfaces: Nuclear wave packet simulation with quasi-diabatic potential energy curves obtained by open-boundary cluster model,” Okazaki Conference “New Frontier in Quantum Chemical Dynamics,” Okazaki, February 2010.

安池智一, 「表面吸着分子の電子状態計算のための開放系クラスターモデル: モデルの原理と吸着分子の光誘起コヒーレントダイナミクスへの応用」東京理科大学物性理論セミナー, 2010年11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, 「構造分子基礎理論」2010年7月21日–23日.

総合研究大学院大学物理科学研究科, 「量子分子科学」2010年11月24日–26日.

総合研究大学院大学物理科学研究科, 「分子科学セミナー」2010年(通年)

B-10) 競争的資金

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).

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).

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–2010年).

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).

科研費特別研究員奨励費,「複素座標法による超励起状態の研究」安池智一 (2000年–2003年).

科研費若手研究(B),「表面吸着分子の開放系電子状態理論の開発と応用」安池智一 (2007年–2009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。