

## 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とそのデバイス科学への展開
- 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
- d) 金属クラスターの電子物性

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 理論や計算手法の開発と計算機能力の飛躍的な向上のおかげで、次世代量子デバイス候補となり得るナノ構造体の個々の物性の理解は格段に進んでいる。しかしその一方で、大容量，超高速，超極小，高効率，新規化学反応性等，次世代量子デバイスに課せられた要求レベルは非常に高く，個々の物性の理解と機能性量子デバイス開発の間には未だ大きな隔たりがあることも事実である。この溝を埋めるためには，機能性発現のメカニズムの解明を行い，任意の機能性を物質に付加する方法を見出す必要がある。我々は，ナノ構造体における機能性発現には光誘起電子ダイナミクスが極めて重要な鍵を握ると考える。本研究課題では，ナノ構造体における実時間・実空間電子・電磁場ダイナミクスの第一原理計算を行い，ナノ構造体機能性発現のメカニズムを根源から理解することを目標として研究を進めた。本年はナトリウムクラスターにおけるプラズモン励起の詳細を明らかにした。また，電子ダイナミクス法の超並列化計算に向けたプログラム開発を集中的に行った。
- 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，吸着系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。昨年に引き続き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。更に，OCM 法を第一原理計算と組み合わせ，より実在系に近い表面吸着系の励起状態を含む電子状態を記述することに成功した。
- 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。本年は特に理論計算プログラムの開発を進め，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の詳細を明らかにした。我々の理論では熱緩和の効果を取り込む事ができるが，温度によって励起子ポラリトンの伝播経路が変わるだけでなく，経路そのものをコントロールすることにも成功した。
- d) 金ナノクラスターの超高速電子的緩和過程の詳細を実験グループと共同で明らかにした。対象とする金ナノクラスターの幾何学的構造の影響を受けた特異な緩和過程が起こることを見出した。

#### B-1) 学術論文

**T. YASUIKE and K. NOBUSADA**, “Open-Boundary Cluster Model Implemented in First-Principles Calculations for Electronic Excited States of an Adsorbate-Surface System,” *Phys. Rev. B* **84**, 245408 (8 pages) (2011).

**T. YASUIKE, K. NOBUSADA and M. HAYASHI**, “Collectivity of Plasmonic Excitations in Small Sodium Clusters with Ring and Linear Structures,” *Phys. Rev. A* **83**, 013201 (7 pages) (2011).

**Y. KUBOTA and K. NOBUSADA**, “Exciton–Polariton Transmission in Quantum Dot Waveguides and a New Transmission Path due to Thermal Relaxation,” *J. Chem. Phys.* **134**, 044108 (8 pages) (2011).

**K. WATANABE, Y. MATSUMOTO, T. YASUIKE and K. NOBUSADA**, “Adsorbate-Localized versus Substrate-Mediated Excitation Mechanisms for Generation of Coherent Cs–Cu Stretching Vibration at Cu(111),” *J. Phys. Chem. A* **115**, 9528–9535 (2011).

**M. Y. SFEIR, H. QIAN, K. NOBUSADA and R. JIN**, “Ultrafast Relaxation Dynamics of Rod-Shaped 25-Atom Gold Nanoclusters,” *J. Phys. Chem. C* **115**, 6200–6207 (2011).

**H. HIMENO, K. MIYAJIMA, T. YASUIKE and F. MAFUNE**, “Gas Phase Synthesis of Au Clusters Deposited on Titanium Oxide Clusters and Their Reactivity with CO Molecules,” *J. Phys. Chem. A* **115**, 11479–11485 (2011).

#### B-4) 招待講演

**K. NOBUSADA**, “Photoinduced Electron Dynamics in Nanostructures: Nonuniform and Self-Consistent Light-Matter Interactions,” The Seventh Congress of the International Society for Theoretical Chemical Physics (ISTCP-VII), Waseda University, Tokyo (Japan), September 2011.

**K. NOBUSADA**, “Nonuniform and Self-Consistent Light-Matter Interaction Theory for Electron Dynamics in Nanostructures,” The 2nd France-Japan Workshop on Nanophotonics, Toba, November 2011.

信定克幸, 「表面吸着系のコヒーレント核振動ダイナミクスの理論」自然科学における階層と全体シンポジウム, 名古屋市, 2011年1月.

信定克幸, 「ナノ構造体における電子・電磁場ダイナミクスの大規模並列化計算」スーパーコンピューターワークショップ 2011, 岡崎市, 2011年1月.

安池智一, 「金属表面吸着種の光誘起コヒーレント振動の誘起メカニズム」第2回表面科学若手研究会, 理化学研究所, 2011年11月.

安池智一, 「複素対称行列の固有値問題に帰着する分子の諸現象について」日本応用数理学会2011年若手の会単独研究会, 早稲田大学, 2011年12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–).

The Seventh Congress of the International Society for Theoretical Chemical Physics, Local Organizing Committee (2010–2011).

#### 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–.

#### 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 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).

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–2010年).

科研費若手研究(B),「開放系電子状態理論による界面光分子科学の基礎研究」安池智一 (2011年–).

#### C) 研究活動の課題と展望

理論や計算手法の開発と計算能力の飛躍的な向上のおかげで、次世代量子デバイス候補となり得るナノ構造体の個々の物性の理解は格段に進んでいるが、その一方で、次世代量子デバイスに課せられた要求レベルは非常に高く、個々の物性の理解と機能性量子デバイス開発の間には未だ大きな隔たりがあることも事実である。この溝を埋めるためには、機能性発現のメカニズムの解明を行い、任意の機能性を物質に付加する方法を見出す必要がある。我々は、ナノ構造体における機能性発現には光誘起電子ダイナミクスが極めて重要な鍵を握ると考え、ナノ構造体機能性発現のメカニズムを根源から理解するとともに、光エネルギー伝播、超高速スイッチング、量子データ転送、光触媒作用等の光・電子機能を持つ量子デバイスを計算により提案し設計することを目指している。また、より実在系に近い物質系を対象とするためにも、スーパーコンピュータを駆使した数値計算的研究も極めて重要な研究課題と考える。超並列計算に向けた数値計算プログラムの開発も同時に進めている。ナノ構造体が周りの環境と一切相互作用せず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、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進めている。