

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) 金属クラスターにおけるプラズモン励起の解明
- 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) 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、その一方で依然として個々の物性の理解と機能性量子デバイス開発の間には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を解明するためのナノ光応答理論の開発とその理論に基づく第一原理計算手法の開発を行い、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。本年度は、実在系ナノ構造体の電子・電磁場ダイナミクスを扱うための超並列計算プログラムの開発を中心に進め、京コンピュータ（神戸理研）において約 20 万コアの計算にも成功した。引き続き、ナトリウムクラスターや C_{60} 分子から構成されるナノ構造体の電子・電磁場ダイナミクスの計算を行った。
- 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）理論を開発してきた。本年度は、OCM 理論と有限温度密度汎関数理論を融合し、電極反応の解明を行った。
- c) プラズモンと呼ばれる電子の集団運動に対応する電子励起を持つプラズモニック物質が注目を浴びている。電子運動の集団性に起因してプラズモニック物質は極めて鋭敏な光応答特性を持ち、様々な光学過程の増感剤として働くことが期待されている。本研究課題では、ナトリウムクラスターにおける電子の集団ダイナミクスを時間依存密度汎関数理論に基づく電子ダイナミクス法によって追跡し、遷移密度に基づく集団性指標を用いて集団性の発現機構を定量的に明らかにした。また、ピラジン分子をナトリウムクラスターに吸着させると、クラスターのプラズモン励起によってピラジン分子のラマン散乱が著しく増強されることを見出した。従来のナノ粒子に対するプラズモン増強機構の議論では、増強度の振動モード依存性を説明できなかったが、分子振動とプラズモンに対応する電子ダイナミクスの相関の観点から明快な説明を与えることにも成功した。
- d) 金ナノクラスターや金・銅複合ナノクラスターの電子物性の研究を、国内外の実験グループと共同で行った。より具体的には、金クラスターへの銅原子ドーピングやリガンドの変化に対するクラスターの安定性に関する詳細な研究を行った。

B-1) 学術論文

A. DAS, T. LI, K. NOBUSADA, Q. ZENG, N. L. ROSI and R. JIN, “Total Structure and Optical Properties of a Phosphine/Thiolate-Protected Au₂₄ Nanocluster,” *J. Am. Chem. Soc.* **134**, 20286–20289 (2012).

W. KURASHIGE, M. YAMAGUCHI, K. NOBUSADA and Y. NEGISHI, “Ligand-Induced Stability of Gold Nanoclusters: Thiolate versus Selenolate,” *J. Phys. Chem. Lett.* **3**, 2649–2652 (2012).

M. NODA, T. YASUIKE, K. NOBUSADA and M. HAYASHI, “Enhanced Raman Spectrum of Pyrazine with the Aid of Resonant Electron Dynamics in a Nearby Cluster,” *Chem. Phys. Lett.* **550**, 52–57 (2012).

Y. NEGISHI, K. MUNAKATA, W. OHGAKE and K. NOBUSADA, “Effect of Copper Doping on Electronic Structure, Geometric Structure, and Stability of Thiolate-Protected Au₂₅ Nanoclusters,” *J. Phys. Chem. Lett.* **3**, 2209–2214 (2012).

Y. NEGISHI, K. IGARASHI, K. MUNAKATA, W. OHGAKE and K. NOBUSADA, “Palladium Doping of Magic Gold Cluster Au₃₈(SC₂H₄Ph)₂₄: Formation of Pd₂Au₃₆(SC₂H₄Ph)₂₄ with Higher Stability than Au₃₈(SC₂H₄Ph)₂₄,” *Chem. Commun.* **48**, 660–662 (2012).

B-3) 総説、著書

安池智一, 「開放系電子状態理論の開発と応用：界面分子の光励起過程研究に向けて」, 分子シミュレーション研究会会誌 アンサンブル **14**, 6 (2012).

B-4) 招待講演

K. NOBUSADA, “Near-Field Excitation in Nanostructure Arrays: Electron and Electromagnetic Field Fully-Coupled Dynamics,” The 2nd Sweden-Japan Workshop on Nanophotonics and Related Technologies, Kista (Sweden), June 2012.

K. NOBUSADA, “Near-Field Excitation Dynamics in Nanostructures: Nonuniform and Self-Consistent Light Matter Interaction,” Material Simulation in Petaflops era 2012, ISSP, Kashiwa (Japan), July 2012.

信定克幸, 野田真史, 「超並列計算に向けた電子・電磁場ダイナミクス法のプログラム開発」, 先駆的計算科学に関するフォーラム2012 (京コンピュータ利用に向けた分子科学分野での取り組み), 九州大学情報基盤研究開発センター, 2012年2月.

信定克幸, 「近接場光ナノ空間反応場形成と光エネルギー変換」, TCCI 第2回実験化学との交流シンポジウム, 京都大学福井謙一記念研究センター, 2012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).

理論化学討論会第3期世話人 (2009–).

次世代スーパーコンピュータ戦略プログラム 運営委員会委員, 戦略課題小委員会 (第2部会) 委員, 人材育成・教育小委員会委員 (2011–).

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).

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-.

総合研究大学院大学物理科学研究科, 「構造分子基礎理論」, 2012年7月23日-25日.

京都大学実験と理論計算科学のインタープレイによる触媒・電池の元素戦略研究拠点ユニット, 拠点准教授, 2012年9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-).

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-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

半導体シリコンに代表される電子デバイスではなく, 光と電子のダイナミクスに起因する光・電子機能性を持ったデバイスは, 次世代量子デバイス候補の一つになると期待できる。我々のグループでは, ナノ分子構造体を持つ合成柔軟性と高機能多様性発現の可能性に注目し, 理論的・計算科学的な観点から光・電子機能性量子デバイスの開発を行うことを目標としている。そのためには, 双極子近似に基づく従前の光応答理論を超えたナノ光応答理論の構築と, 実在系ナノ分子構造体を扱う為の大規模計算プログラムの開発が必須である。これらの理論と計算科学的手法を用いて, ナノ分子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, 広帯域・高効率太陽光エネルギー変換, 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す。また, より実在系に近い物質系を対象とするためには, スーパーコンピュータを積極的に利用した超並列数値計算的研究への展開も極めて重要な研究課題である。一方, 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は, 現状ではほとんど開発されていない。この現状を踏まえ, 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・電磁場・核ダイナミクスの研究も進めている。