

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) ナノ光応答理論及びその理論に基づく超並列プログラムの開発
- b) 金属クラスターにおけるプラズモン励起の解明
- c) 電極反応の理論
- 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) ナノ構造体の柔軟な電子構造や化学的性質の多様性を活かし，更には光との相互作用の自由度を取り込んだ量子デバイスは，従前の電子デバイスや光デバイスとは異なる光・電子機能性を併せ持った有望な次世代量子デバイスと考えられる。しかし，その機能発現のメカニズムは複雑であるために実験的研究は未だ試行錯誤の連続であり，ましてや理論的研究では，極端に単純化した理論モデル系を対象として，実在系とかけ離れた定性的議論をしているだけである。この現状を打破するためには，実在に即したナノ構造体を対象としてその機能性発現のメカニズムを基礎的な観点から明らかにしつつ，その知見を踏まえた上で物質に任意の機能性を付加する計算科学的観点に立った指導原理を見出すことが必須である。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，昨年度に引き続き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超並列第一原理計算プログラムの開発を行い，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。本年度は特に世界最大規模の光励起電子ダイナミクス計算プログラムを開発することに成功した。
- b) 電子の集団励起（プラズモン励起）に起因する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，貴金属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いて追跡し，表面増強ラマン散乱（SERS）のメカニズム解明を行った。また，金属クラスターの幾何学的配置を制御することによって SERS の強度を変化させることができることを示した。
- c) 電気化学反応は非常に古くから研究されている化学における最も重要な研究課題の一つであるが，最近ではその素過程を電子レベルで詳細に切り込もうとする実験的研究も盛んに行われている。一方，対応する量子論的取り扱いが極めて難しい。本研究課題では，Ag 電極 / Au 又は Ag 吸着系を対象としてその電圧印加環境下での電子状態の詳細を議論するための理論開発を行った。
- 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, C. ZENG, N. L. ROSI and R. JIN, "Nonsuperatomic [Au<sub>23</sub>(SC<sub>6</sub>H<sub>11</sub>)<sub>16</sub>]<sup>-</sup> Nanocluster Featuring Bipyramidal Au<sub>15</sub> Kernel and Trimeric Au<sub>3</sub>(SR)<sub>4</sub> Motif," *J. Am. Chem. Soc.* **135**, 18264–18267 (2013).

**T. IWASA, K. NOBUSADA and A. NAKAJIMA**, “Electronic and Optical Properties of Vertex-sharing Homo- and Hetero-Biicosahedral Gold Clusters,” *J. Phys. Chem. C* **46**, 24586–24591 (2013).

**Y. NEGISHI, W. KURASHIGE, Y. NIHORI and K. NOBUSADA**, “Toward the Creation of Stable, Functionalized Metal Clusters,” *Phys. Chem. Chem. Phys.* **15**, 18736–18751 (2013).

**K. IIDA, T. YASUIKE and K. NOBUSADA**, “Development of Open-Boundary Cluster Model Approach for Electrochemical Systems and Its Application to Ag<sup>+</sup> Adsorption on Au(111) and Ag(111) Electrodes,” *J. Chem. Phys.* **139**, 104101 (7 pages) (2013).

**W. KURASHIGE, K. MUNAKATA, K. NOBUSADA and Y. NEGISHI**, “Synthesis of Stable Cu<sub>n</sub>Au<sub>25-n</sub> Nanoclusters (*n* = 1–9) Using Selenolate Ligands,” *Chem. Commun.* **49**, 5447–5449 (2013).

**T. YASUIKE and K. NOBUSADA**, “Raman Enhancement by Plasmonic Excitation of Structurally-Characterized Metal Clusters: Au<sub>8</sub>, Ag<sub>8</sub>, and Cu<sub>8</sub>,” *Phys. Chem. Chem. Phys.* **15**, 5424–5429 (2013).

#### B-3) 総説, 著書

**K. NOBUSADA**, “Near-Field Excitation Dynamics in Molecules: Nonuniform Light-Matter Interaction Theory Beyond a Dipole Approximation,” in *Progress in Nanophotonics 2*, M. Ohtsu, Ed., Springer-Verlag; Berlin Heidelberg, Chapter 1 (2013).

#### B-4) 招待講演

**K. NOBUSADA**, “Toward unified first-principles calculations based on explicit light and matter interaction at nanoscale,” Sweden-Japan Collaboration Symposium: Exploring the Future of Light, Matter, and Information on the Nanoscale, Lund (Sweden), June 2013.

**K. NOBUSADA**, “Enhanced Raman Spectra by Plasmonic Excitation in Nearby Metal Clusters,” Japan-Korea Molecular Science Symposium: From Quantum to Life, Kobe (Japan), July 2013.

**K. NOBUSADA**, “Time-Dependent Density Functional Theory for Electron and Electromagnetic Field Coupled Dynamics in Nanostructures,” Gordon Research Conference on Time-Dependent Density-Functional Theory, Biddeford (U.S.A.), August 2013.

**K. NOBUSADA**, “Theory of Electron and Electromagnetic Field Coupled Dynamics in Nanostructures,” 2013 JSAP-MRS Joint Meeting, Nanoscale Materials Modification by Photon, Ion and Electron Beams II, Kyoto (Japan), September 2013.

**K. NOBUSADA**, “Unified first-principles calculations of near-field excitation dynamics in nanostructures,” Swiss-Japan Workshop on Light and Matter on the Nanoscale, Lausanne (Switzerland), October 2013.

信定克幸, 「ナノクラスターの高次構造と光・電子動的機能」分子理論化学セミナー, 京都, 2013年6月.

信定克幸, 「近接場光励起ダイナミクスの第一原理計算」応用物理学会シンポジウム: 計算科学・数理物理とナノフォトニクスの新たな融合の可能性, 京都, 2013年9月.

信定克幸, 「ナノ構造体の超並列第一原理計算と近接場光励起ダイナミクスへの展開」ナノフォトニクスオープンセミナー, 東京大学, 2013年11月.

信定克幸, 「ナノ物質における光と物質の相互作用理論」第9回励起ナノプロセス研究会, 東京, 2013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).

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, 「基礎理論化学」2013年7月23日-26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-2012年).

科研費基盤研究(B), 「光エネルギー変換のナノ光学理論と広帯域可視光応答ナノ構造体設計への展開」 信定克幸 (2013年-2016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

柔軟な電子構造と化学的性質の多様性を持つナノ構造体は新規機能性を生み出す有力候補である。更にナノ構造体が光と相互作用することによって、光の自由度を露に取り込むことができれば、従前の電子デバイスや光デバイスとは異なる光・電子機能性を併せ持った有望な機能物質の開発へと繋がると期待できる。既にこのような期待の下に実験・理論研究が進められているが、その機能発現のメカニズムは複雑であるために実験的研究は未だ試行錯誤の連続であり、ましてや理論的研究では、極端に単純化した理論モデル系を対象として、実在系とかけ離れた定性的議論をしているだけである。この現状を打破するために、実在に即したナノ構造体を対象としてその光応答特性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超並列第一原理計算手法の開発が急務である。これらの理論と計算科学的手法から得られた知見を踏まえた上で物質に任意の機能性を付加する指導原理を見出すことが必須である。