

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) ナノ構造体の光応答理論と機能性物質理論設計への展開
- b) 界面光励起ダイナミクスの理論
- c) 固体表面担持金属クラスター触媒の第一原理分子動力学計算
- d) 金属クラスターの光電子物性

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 最近のナノテクノロジーの飛躍的な進展のおかげで、極めて精緻な高次ナノ構造体を数 nm 程度以下の精度で作成することが可能となってきた。この様なナノ構造体と光が相互作用すると、従前の光応答では見られなかった光励起ダイナミクスが起こり、そのダイナミクスに起因する新たな光機能が発現することが期待されている。そこで我々は、数～数十 nm サイズの実在系ナノ構造体の光応答理論とその理論に基づく実時間・実空間光励起電子ダイナミクス法 (GCEED: Grid-Based Coupled Electron and Electromagnetic field Dynamics) を開発した。理化学研究所スーパーコンピュータ「京」を使った超大規模並列計算 (66 万並列) にも成功し、実在系物質の光励起ダイナミクスでは世界最大規模の計算 (金クラスターのプラズモン励起) を実行した。この研究により、プラズモン励起のクラスターサイズ依存性の詳細を明らかにした。
- b) 電極表面やバルク表面での分子の光励起ダイナミクスでは、分子系と電極やバルク表面との間、すなわち界面領域での電子や核のダイナミクスのミクロレベルでの解明が重要である。しかしヘテロな領域での光励起ダイナミクスの理論研究は非常に遅れている。我々は、ナノ構造体の光応答の研究において開発してきた計算手法 GCEED を、界面での光励起ダイナミクスに適用できるように拡張し、電極表面での分子の表面増強ラマン散乱の解明を行った。
- c) 数 nm 程度以下の固体表面担持金属ナノクラスターは、有用な触媒として働くことが多くの研究において指摘されている。しかし、貴金属やレアメタル等の非常に高価な原子を使っていることが多く、豊富に存在する安価な原子で代替した触媒の開発が望まれている。本研究課題では、第一原理分子動力学計算を用いて、金や白金などの固体表面担持クラスターの触媒反応メカニズムの解明とその代替クラスターの理論設計の研究を行った。
- d) 金とチオラートから構成されるクラスターは、その安定性と機能性材料への応用の期待から盛んに研究が行われている。昨年に引き続き本年も国内外の実験グループと共同で、金チオラートクラスターの構造や光電子物性の研究を行った。

B-1) 学術論文

K. IIDA, M. NODA, K. ISHIMURA and K. NOBUSADA, "First-Principles Computational Visualization of Localized Surface Plasmon Resonance in Gold Nanoclusters," *J. Phys. Chem. A* **118**, 11317–11322 (2014).

S. YAMAZOE, W. KURASHIGE, K. NOBUSADA, Y. NEGISHI and T. TSUKUDA, "Preferential Location of Coinage Metal Dopants (M = Ag or Cu) in $[\text{Au}_{25-x}\text{M}_x(\text{SC}_2\text{H}_4\text{Ph})_{18}]^-$ ($x \sim 1$) As Determined by Extended X-Ray Absorption Fine Structure and Density Functional Theory Calculations," *J. Phys. Chem. C* **118**, 25284–25290 (2014).

K. IIDA, M. NODA and K. NOBUSADA, “Theoretical Approach for Optical Response in Electrochemical Systems: Application to Electrode Potential Dependence of Surface-Enhanced-Raman Scattering,” *J. Chem. Phys.* **141**, 124124 (7 pages) (2014).

W. KURASHIGE, S. YAMAZOE, M. YAMAGUCHI, K. NISHIDO, K. NOBUSADA, T. TSUKUDA and Y. NEGISHI, “Au₂₅ Clusters Containing Unoxidized Tellurolates in the Ligand Shell,” *J. Phys. Chem. Lett.* **5**, 2072–2076 (2014).

A. DAS, T. LI, G. LI, K. NOBUSADA, C. ZENG, N. L. ROSI and R. JIN, “Crystal Structure and Electronic Properties of a Thiolate-Protected Au₂₄ Nanocluster,” *Nanoscale* **6**, 6458–6462 (2014).

M. NODA, K. ISHIMURA, K. NOBUSADA, K. YABANA and T. BOKU, “Massively-Parallel Electron Dynamics Calculations in Real-time and Real-Space: Toward Applications to Nanostructures of more than Ten-Nanometers in Size,” *J. Comput. Phys.* **265**, 145–155 (2014).

R. JIN and K. NOBUSADA, “Doping and Alloying in Atomically Precise Gold Nanoparticles,” *Nano Res.* **7**, 285–300 (2014).

B-4) 招待講演

K. NOBUSADA, “TDDFT Approach to Near-Field Excitation Dynamics in Molecular Nanostructures,” Quantum Dynamics Research Meeting, Vanderbilt University, Nashville (U.S.A.), March 2014.

K. NOBUSADA, “First-Principles Calculations for Near-Field Excitation Dynamics: Toward Computational Design of Functional Materials,” Computational approaches to light-matter interaction at the nanoscale: Sweden-Japan Workshop, Stockholm (Sweden), June 2014.

K. NOBUSADA, “Theoretical Design of Optical Near-Field and its Application to Functional Nanodevices,” JSPS Core-to-Core Japan Workshop 2014, Nanoscale electron-photon interactions via energy dissipation and fluctuation, The University of Tokyo, Tokyo, November 2014.

K. NOBUSADA, “Spatiotemporal Near-Field Excitation Dynamics in Nanostructures,” The 8th Energy, Materials, and Nanotechnology (EMN) Meeting, Orland (U.S.A.), November 2014.

信定克幸, 「光近接場領域における電子・電磁場ダイナミクス」公益財団法人山田科学振興財団山田研究会「電磁応答理論の新展開と先端マテリアルサイエンス」ホテル北野プラザ六甲荘, 神戸, 2014年10月.

信定克幸, 「光近接場の理論と機能性ナノデバイスの計算科学的設計への展開」第30回スーパーコンピューティング・セミナー, 機械振興会館, 東京, 2014年10月.

信定克幸, 「ナノ光応答理論と高機能光近接場の計算科学的設計」ISSP ワークショップ機能物性融合科学研究会シリーズ (1) 「光機能」東大物性研, 柏, 2014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).

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 (2009–2011).

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

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 (2007–2009).

日本学術振興会科学研究費委員会専門委員 (2013–).

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–.

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).

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し, 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・電子融合機能を併せ持った高機能物質の開発へ繋がると期待できる。理論的研究の立場から言えば, 実在系に即したナノ構造体を対象として, 光と物質(電子系)の露な相互作用を記述するナノ光応答理論の開発を行い, その理論に基づく実用に耐え得る超並列第一原理計算手法の開発が急務である。今後は, 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, 物質に任意の光機能を付加する指導原理を見出すことが極めて重要になると考える。