

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開発と光・電子機能物質の理論設計
- 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) 実験技術の飛躍的な進展の結果，最近では，極めて精密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局所ナノ領域での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・電子機能が発現することが期待できる。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) を開発してきた。ナノ構造体の光励起の結果生成する近接場光には，電場の 2 次の高調波成分が含まれていることを理論的に導き，この近接場光を用いると容易にナノ構造体の 2 光子励起過程を誘起できることを明らかにした。また，理化学研究所スーパーコンピュータ「京」を使い，実在系物質の光励起電子ダイナミクスとしては，世界最大規模の計算を進めた。
- 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マイ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，誘電体表面と吸着物質から成るヘテロ界面系を対象として，その光応答の誘電率依存性を明らかにした。
- 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 (カー・パリネロ) 分子動力学計算を用いて，固体表面担持金属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。本年度は，グラフェン上の金クラスター及びその一部を安価な銅原子に代替した担持金属クラスターの CO 酸化触媒反応メカニズムの解明を行った。触媒反応は Langmuir-Hinshelwood 型反応で進行することを明らかにし，金原子を代替した銅原子は，触媒活性サイトとして機能する事も見出した。
- 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。過去の研究でしばしば指摘されている金 25 量体とは異なる新規構造を実験グループが見出し，その理論解析を我々のグループが行った。

B-1) 学術論文

- M. YAMAGUCHI, K. NOBUSADA and T. YATSUI**, “Nonlinear Optical Response Induced by a Second-Harmonic Electric-Field Component Concomitant with Optical Near-Field Excitation,” *Phys. Rev. A* **92**, 043809 (9 pages) (2015).
- C. ZENG, Y. CHEN, C. LIU, K. NOBUSADA, N. L. ROSI and R. JIN**, “Gold Tetrahedra Coil Up: Kekulé-Like and Double Helical Superstructures,” *Sci. Adv.* **1**, e1500425 (6 pages) (2015).
- C. LIU, T. LI, G. LI, K. NOBUSADA, C. ZENG, G. PANG, N. L. ROSI and R. JIN**, “Observation of Body-Centered Cubic Gold Nanocluster,” *Angew. Chem., Int. Ed.* **54**, 9826–9829 (2015).
- K. KOIZUMI, K. NOBUSADA and M. BOERO**, “Reaction Pathway and Free Energy Landscape of Catalytic Oxidation of Carbon Monoxide Operated by a Novel Supported Gold–Copper Alloy Cluster,” *J. Phys. Chem. C* **119**, 15421–15427 (2015).
- K. IIDA, M. NODA and K. NOBUSADA**, “Control of Optical Response of a Supported Cluster on Different Dielectric Substrates,” *J. Chem. Phys.* **142**, 214702 (9 pages) (2015).
- M. YAMAGUCHI, K. NOBUSADA, T. KAWAZOE and T. YATSUI**, “Two-Photon Absorption Induced by Electric Field Gradient of Optical Near-Field and Its Application to Photolithography,” *Appl. Phys. Lett.* **106**, 191103 (5 pages) (2015).
- S. SHARMA, W. KURASHIGE, K. NOBUSADA and Y. NEGISHI**, “Effect of Trimetallization in Thiolate-Protected $\text{Au}_{24-n}\text{Cu}_n\text{Pd}$ Clusters,” *Nanoscale* **7**, 10606–10612 (2015).
- A. DAS, C. LIU, H. Y. BYUN, K. NOBUSADA, S. ZHAO, N. L. ROSI and R. JIN**, “Structure Determination of $\text{Au}_{18}(\text{SR})_{14}$,” *Angew. Chem., Int. Ed.* **54**, 3140–3144 (2015).

B-2) 国際会議のプロシーディングス

- M. NODA, K. ISHIMURA and K. NOBUSADA**, “Program Package of Photoinduced Electron Dynamics: GCEED (Grid-Based Coupled Electron and Electromagnetic field Dynamics),” *JPS Conf. Proc.* **5**, 011010 (7 pages) (2015).

B-4) 招待講演

- K. NOBUSADA**, “Interface Electronic Properties between a Gold Core and Thiolate Ligands: Effects on Absorption Spectra in $\text{Au}_{133}(\text{SPh-}t\text{Bu})_{52}$,” International Symposium on Monolayer Protected Clusters, Yamanaka Dormitory-Naito Seminar House, Yamanashi, July 2015.
- K. NOBUSADA**, “Optoelectronic Functional Fields Induced by Near-Field Light Excitation,” Core-to-Core Sweden-Japan Workshop, KTH (Royal Institute of Technology), Kista (Sweden), November 2015.
- K. NOBUSADA**, “Near Field Excitation Dynamics in Nanostructures Contacting with Environment,” CECAM-Workshop “Open quantum systems computational methods,” The University of Hon Kong, Hong Kong (China), November 2015.
- K. NOBUSADA**, “Nonlinear Optical Response in Nanostructures Induced by Optical Near-Field,” International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (PACIFICHEM) 2015, Hawaii Convention Center, Honolulu (U.S.A.), December 2015.
- 信定克幸, 「近接場光励起に基づく光・電子機能性ナノ物質の理論設計」日本物理学会第70回年次大会, 領域11・領域3・領域9合同シンポジウム『京』が拓いた物性物理, 早稲田大学, 東京, 2015年3月.
- 信定克幸, 「光・電子異方的機能反応場を持つナノ構造体の理論設計」特別企画: 配位シナジー: 融合物質科学の新展開, 日本化学会第95回春季年会, 日本大学理工学部船橋キャンパス, 船橋, 2015年3月.

信定克幸,「ナノ構造体における光磁気応答」分子研研究会&広島大学研究拠点形成事業「スピキラリティを軸にした先端材料コンソーシアム」2015年度第2回トピカルミーティング「キラリ磁性×光学物性研究会」分子科学研究所,岡崎,2015年6月.

信定克幸,「白金代替クラスター触媒の理論設計:触媒活性サイト導入と凝集抑制」触媒・電池元素戦略研究拠点第7回公開シンポジウム,京都大学桂キャンパス,京都,2015年9月.

信定克幸,“Optical near-field excitation in nanostructures with novel functions due to light and electron dynamical correlations,”第2回CMRI研究会,仙台国際センター,仙台,2015年10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(2013-2015).

その他

筑波大学計算科学研究センター共同研究委員会委員(2015-).

ハイパフォーマンスコンピューティング研究運営委員会運営委員(2015-).

ポスト「京」重点課題(7)「次世代の産業を支える新機能デバイス・高性能材料の創成」課題実施準備委員(2015-).

B-8) 大学での講義,客員

総合研究大学院大学物理科学研究科,「基礎理論化学」2015年7月7日-10日.

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–2013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–2017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–2014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高い可能性を持っている。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・電子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。