

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 5 月 31 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20K05412

研究課題名(和文) 近接場光が誘起する双極子近似を超えた光化学反応機構の解明

研究課題名(英文) Theoretical study for near-field induced photochemistry beyond the dipole approximation

研究代表者

岩佐 豪 (Iwasa, Takeshi)

北海道大学・理学研究院・助教

研究者番号：80596685

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、近接場光が誘起する光化学反応の機構解明を目指して、双極子近似を超えた理論手法の開発を行い、伝搬光と近接場光での励起状態の違い、また光STMを用いた際の近接場光励起の選択則を明らかにした。さらにクラスターモデルを用いて金属基板と分子の相互作用を考慮して励起状態を調べた結果、担持分子の励起状態が金属との相互作用によって分布を持つことと、高位励起状態は双極子許容だが、低エネルギー領域は双極子禁制な状態が多数存在することを明らかにした。しかし近接場光を用いた遷移確率も調べたが反応機構の完全解明には至らなかったため、今後は、金属モデルの改良などを行っていきたく考えている。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近接場光は伝搬光にはない局在性という特徴を持ち、回折限界と双極子近似を超えた局所的な分光・イメージングや光化学反応への展開が期待されている。実際、走査型プローブ顕微鏡と組み合わせた光STM実験で、単分子の分子内振動イメージングなどの原子レベルの分解能を持った分光や、単分子の光化学反応の誘起と解析も可能になってきている。近接場光と分子の相互作用から出てくる新しい科学を理解・開拓していくためには、実際の分子系において双極子近似を超えた選択則を議論できる理論化学に基づいた本手法が必要であり、今後も更に発展させていく。

研究成果の概要(英文)：In this study, we developed a theoretical method beyond the dipole approximation to elucidate the mechanism of photochemical reactions induced by localized near-field and clarified the difference between far-field and near-field excitations, as well as the selection rule for a photo-STM experiment. Furthermore, using a cluster model, we investigated the excited states of the supported molecules in consideration of the interaction between the metal substrate and the molecules, and found that the excited states of the supported molecules become broadly distributed according to the interaction with the metal, and that the higher excited states are dipole-allowed, but there are many dipole-forbidden states in the low energy region. Although the transition probabilities were also investigated using near-field light, but the reaction mechanism was not fully elucidated, and we intend to improve the metal model in the future.

研究分野：分子物理学

キーワード：近接場光 双極子近似の破れ 選択則

## 1. 研究開始当初の背景

近接場光は、光源となる物質近傍に局在した伝搬しない電磁場成分であり、回折限界を超えた分光や双極子禁制励起を可能にする。ナノサイエンスの進展に伴って、物質近傍や微小空間に光を局在させる技術も進展し、近接場光と分子の相互作用が積極的に利用されるようになってきた。中でも、走査型トンネル顕微鏡 (STM) の金属探針周りの近接場光を利用した光 STM では、近接場光源の位置がオングストロームレベルで制御可能であり、原子分解能レベルの局所分光・イメージングが実現している。広く知られている金属表面に生成するプラズモンの近接場を利用した表面増強ラマン分光 (SERS) や表面増強赤外分光 (SEIRAS) などの分光手法では、多数の分子からの統計的な応答を観測しているが、光 STM では単分子レベルでの分光が可能になる。その結果として、近接場ラマン分光で、分子振動モードに依存した近接場ラマンの強度分布を示すことが実証された。

また、光 STM を用いた単分子の光化学反応の精密計測も可能になってきた。長らく、表面増強ラマン分光の測定中に化学種の変化が起こることが度々指摘されていたが、そのメカニズムの一つとして、励起されたプラズモン電子の緩和過程に伴う吸着種への電荷移動が化学反応を引き起こすとされていた。関連して、近接場光励起によって、通常進行しないはずの波長で酸素解離などが進行することも知られていたが、詳細な機構は未解明に留まっていた。その理由として、分子がどのような吸着状態を取るのか、近接場光はどのように分布しているのか、その近接場とどのように相互作用しているのかなどがわからなかったことがあげられる。ごく最近になって、光 STM を利用した近接場光化学反応の研究は、電荷移動ではなく近接場光励起に起因することが明確に実証された。また、近年 STM 探針周りの近接場光を利用した実験が複数報告されてきており、微小極限における光化学研究が加速している。興味深い事に、近接場光で励起された分子は、伝搬光では起こらない波長でも反応することや、反応を駆動する機構が分子と基板表面の間の相互作用の強さに応じて異なることなども分かってきた。分子が弱く表面に吸着しているときには、近接場光による分子内光励起が反応を駆動するが、分子と表面が強く化学結合しているときには、表面からの電荷移動が反応を駆動するということが実験から明らかにされた。前者に着目すると、興味深いことに、近接場光励起では伝搬光励起ではほとんど反応しない長波長の光でも反応が効率良く誘起される。

近接場光励起由来の光化学反応の機構は、伝搬光励起に由来する場合とは異なる電子励起状態を経由すると考えられるが、その詳細については未解明であり、理論化学的な研究が必要である。しかし、近接場光と分子の相互作用は、従来広く用いられている双極子近似を超えた理論的な取り扱いが必要になり、汎用的な第一原理計算プログラムが存在せず、励起状態の詳細やその光化学反応機構の解明には新たな理論的手法が必要になる。そこで、本研究では、応募者がこれまで開発を行ってきた双極子近似を超えた理論手法をベースに、近接場光化学の学理構築を目指した新たな理論手法の開発も行いながら、近接場光化学現象の理論解明に取り組んだ。

## 2. 研究の目的

本研究では、近接場光と分子の間の、双極子近似を超えた相互作用に起因する、特異的な電子励起状態が引き起こす光化学反応機構の解明を目的とする。本研究では、双極子近似を超えた近接場光励起で誘起される化学反応と従来の光化学の本質的な違いは何かを明らかにし、近接場光化学の学理および微小極限における光科学の開拓を目指す。

## 3. 研究の方法

本研究では、近接場光が誘起する光化学反応機構の解明を、第一原理計算に基づいて進めていく。そのために、近接場光と分子の相互作用が誘起する電子励起状態を解析するための理論手法の開発を行い、その具体的な適用先は光 STM 実験による光反応である。光と分子の相互作用には、双極子近似が通常用いられるが、近接場光と分子の相互作用においては、この双極子近似を超える必要がある。通常、双極子近似を補正するために、高次の多重極相互作用を加えていくが、近接場は急峻な強度勾配や、不均一な電場ベクトルを持つため、分子を低次の多重極モーメントとみなす有限の多重極相互作用での記述は困難である。我々はこれまで分子を分極場として扱うことで、無限次までの多重極相互作用をすべて取り込み、近接場光と分子の相互作用を考慮してきた。この手法は、任意の電場の空間構造を完全に考慮できる。これは、多重極ハミルトニアンに基づいた手法であるが、一方で最近最小結合ハミルトニアンにおいて、近接場光が作るスカラーポテンシャルの利用も可能であることが分かってきたので、本研究では主に後者を想定した理論計算に取り組んだ。また、主なターゲットとして考えている光 STM の近接場は、これまでの研究から点双極子放射場が良い近似であることもわかっているので、本研究では、点双極子場が作るスカラーポテンシャルを持って近接場光と分子の相互作用とする。具体的なターゲットとしては、実験での報告がある光 STM での近接場光励起によるジメチルスルフィド (DMDS) 分子の S-S 結合解離反応機構の解明、およびモデル系である Au<sub>20</sub> の近接場光励起に取り組んだ。

#### 4. 研究成果

##### (1) 一般化遷移モーメントおよび一般化振動子強度の計算手法

光励起状態の研究において、最も重要な物理量は遷移モーメントおよび振動子強度である。通常は、電気双極子演算子を用いた遷移双極子モーメントとそれ由来する振動子強度が用いられるが、近接場光と分子の場合には、上述のように双極子近似を超えた光と分子の相互作用が必要になる。ここでは、双極子禁制遷移や、近接場光の光源の位置を変えた際の選択則の変化について議論を可能にするために、一般的な光と分子の相互作用項を用いた一般化遷移モーメント、および一般化振動子強度の計算手法を開発した。

光と分子の相互作用項 $V(\mathbf{r})$ による、基底状態 $\Psi_0$ と $n$ 番目の励起状態 $\Psi_n$ の間の遷移モーメントは次式で定義される。

$$\langle \Psi_n | V(\mathbf{r}) | \Psi_0 \rangle = \int d\mathbf{r} \rho^n(\mathbf{r}) V(\mathbf{r})$$

ここで、 $\rho^n(\mathbf{r})$ は $n$ 番目の励起状態に対応する、遷移密度であり次式で定義される。

$$\rho^n(\mathbf{r}) = \sum_{i,a} C_{ia}^n \phi_i(\mathbf{r}) \phi_a(\mathbf{r})$$

ここで、 $i/a$ は占有/非占有軌道の番号で、 $C_{ia}^n$ は $n$ 番目の励起状態に寄与する $\phi_i$ から $\phi_a$ へ遷移する励起配置の係数である。一般化振動子強度 $f^n$ は次式のように、遷移モーメントの二乗に励起エネルギー $E_n$ をかけて求めた。

$$f^n = E_n |\langle \Psi_n | V(\mathbf{r}) | \Psi_0 \rangle|^2$$

遷移密度は、通常量子化学計算における励起状態計算から得ることが出来る。遷移密度を実空間グリッドファイルとして保存することで、上記の積分を用意に実行できる。

後ほど述べる実時間法では、光源の位置を変える毎に励起状態計算を行う必要があるが、一般化遷移モーメント/振動子強度の計算では、励起状態計算は一度だけ行えば良いため、様々な解析が非常に高速かつ容易になった。今後は、本手法に基づいてある特定の励起状態を能動的に選択励起して、光励起状態を制御する指針を確立していきたい。

##### (2) Au<sub>20</sub>の近接場励起と群論的解析

遷移密度と励起エネルギーは、TURBOMOLEを用い、PBE/def-SV(P)の精度で行ったTDDFT計算から求めた。電子状態計算には、Au<sub>20</sub>超原子は図1aに示す正四面体( $T_d$ )構造を用いた。ただ実際の計算では、表面に吸着させたモデルと対応させるために $C_{3v}$ 対称性を用いて計算した。

光と分子の相互作用は、伝搬光励起の場合は双極子近似が使えるので原子単位系で、 $V(\mathbf{r}) = \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}$ と書ける。今回はp波が表面にほぼ並行の鋭角で入射すると仮定して、 $\mathbf{E} = (0, 0, 1)$ 、すなわち $V(\mathbf{r}) = z$ とした。近接場光は、光STM実験を想定し、STM探針の先端が光源となる双極子放射場で近似した。近接場光励起のモデルと、超原子近傍の近接場の強度分布を図1a, bに示す。近接場光から受けるポテンシャルは、探針から離れると $r^{-3}$ に比例して急激に強度が減衰する。また、探針と分子の軸に垂直な面内では円対称な分布を示す。図1cに伝搬光励起と探針が分子の重心の真上にあるときの近接場光励起における振動子強度を示す。励起状態の位置も併せて載せた。近接場光励起ではピークの本数や強度比が異なることが分かる。伝搬光と近接場光は共に $C_{3v}$ 対称性で既約表現 $A_1$ に属すが、近接場光では四重極子などの高次の相互作用があるため、許容な励起状態が増えていることが分かる。また、図1e-gに探針の位置を高さを変えずに図1dのグリッド上で動かしたときの振動子強度マップを示す。強度の強い点に探針を置くことで、伝搬光で禁制で

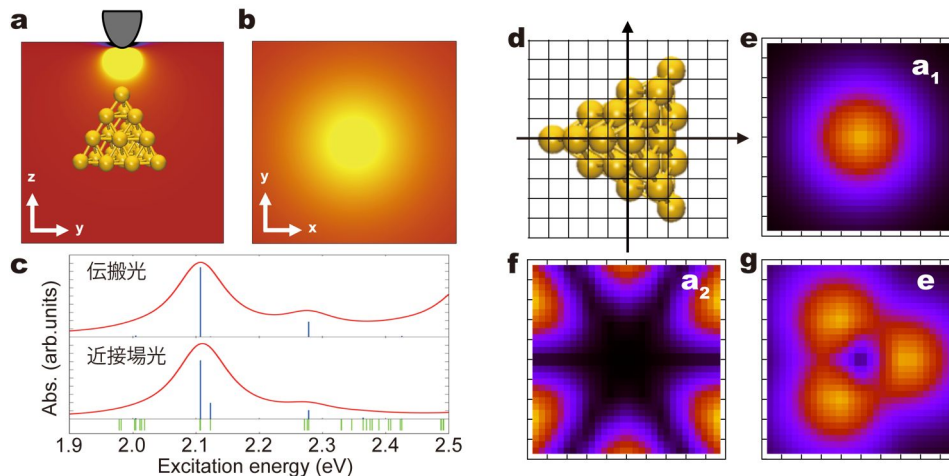


図1. 光STM近接場のポテンシャル分布とAu<sub>20</sub>の(a)側面図と(b)上面図、(c)伝搬光と近接場光励起による吸収スペクトル、(d)近接場イメージングのグリッドおよび(e) a<sub>1</sub>、(f) a<sub>2</sub>、(g) e対称性の励起状態における振動子強度イメージングの結果。

あった $A_2$ およびE対称性の励起も誘起される。

### (3) DMDS の近接場励起：実時間法

DMDS 単分子の近接場励起の光励起状態を電子ダイナミクス計算から求めた。図 2a に光 STM のモデルを示す。図 2b に探針が DMDS の重心の上にある場合の電場の様子を示す。光のエネルギーは DMDS の  $S_1$  励起状態の励起エネルギーである 4.28 eV を選択した。近接場は  $xy$  面上で放射状に分布するため、分子重心の直上に探針がある場合には  $S_1$  は禁制になる。そこで、探針を  $x$  軸方向に少しずらした時の近接場光励起と伝搬光励起の誘起双極子モーメント  $\mu_{x/y/z}$  を図 2c と 2d に示す。近接場では、 $x$ ,  $y$ ,  $z$  各方向のモーメントが誘起されており、 $\mu_x$  と  $\mu_z$  は同程度の大きさを示すが、伝搬光励起では  $\mu_x$  の方が  $\mu_z$  の倍程度大きい。

### (4) DMDS の近接場光励起：線形応答に基づく一般化遷移モーメント/振動子強度

図 2a に示すように、点双極子場  $V(\mathbf{r})$  によってジメチルジスルフィド (DMDS) を励起するモデルにおいて、上記で開発した一般化遷移モーメントと一般化振動子強度を用いた解析を示す。まず図 2e に示すように、伝搬光と近接場光で吸収スペクトルの選択則が変わっていることが分かる。光源が分子の重心上に来ることで、対称性から  $S_1$  が禁制になる。一方で、図 2f に示すように、光源の位置を変えることによって、その振動子強度が変化しており、先ほど禁制だった  $S_1$  も光源の位置を制御することで、励起が可能になることを示している。

これらを併せて、近接場光励起においては、探針の位置に依存はするものの  $S_1$  および  $S_2$  が同時に励起されていると考えられる。DMDS の  $S_1$  および  $S_2$  はどちらも S-S 結合の反結合性軌道への遷移であり、伝搬光励起では、恐らくより強度が強い  $S_1$  が主に S-S 結合解離に寄与し、近接場光の場合には、 $S_1$  および  $S_2$  の両方が同時に励起されて S-S 結合解離に寄与している可能性が示唆される。

### (5) DMDS/ $M_{20}$ の励起状態

最後に、実際の実験を模倣した系の励起状態を調べた。実際の実験では、DMDS は銀および銅 111 面上に吸着している。本研究では金属表面をクラスターモデルで模倣し、そのクラスター表面に吸着した DMDS の電子基底・励起状態の分布を調べた。銀および銅表面は、図 3a に示す  $T_d$  対称性を持つ 20 量体クラスターでモデル化した。吸着構造は STM 実験の結果を参考に、初期構造を作成した後構造最適化を行い、安定構造であることを確認した。実験と同様に、金属原子上に DMDS の S 原子が結合している。クラスターモデルに対する DFT/TDDFT 計算は TURBOMOLE を使い、Resolution-of-Identity 近似のもと、CAM-B3LYP/def-SV(P)の精度で行った。励起状態に寄与する分子軌道ペアを抽出するために、Lasso によるスパースモデリング解析を行った。

DMDS の HOMO と LUMO は金属と相互作用して、図 3b のように幅を持つ。励起状態を TDDFT 計算から求め、Mulliken 電荷分布解析を用いて DMDS 内遷移の割合とその振動子強度を求めて図 3c と 3d に示す。DMDS 内遷移励起状態は低エネルギー領域にピークを持つが、その振動子強度は高エネルギー領域にピークを持つことがわかった。振動子強度の強弱を理解するために、高エネルギー側の振動子強度、および低エネルギー側の DMDS 励起状態成分の割

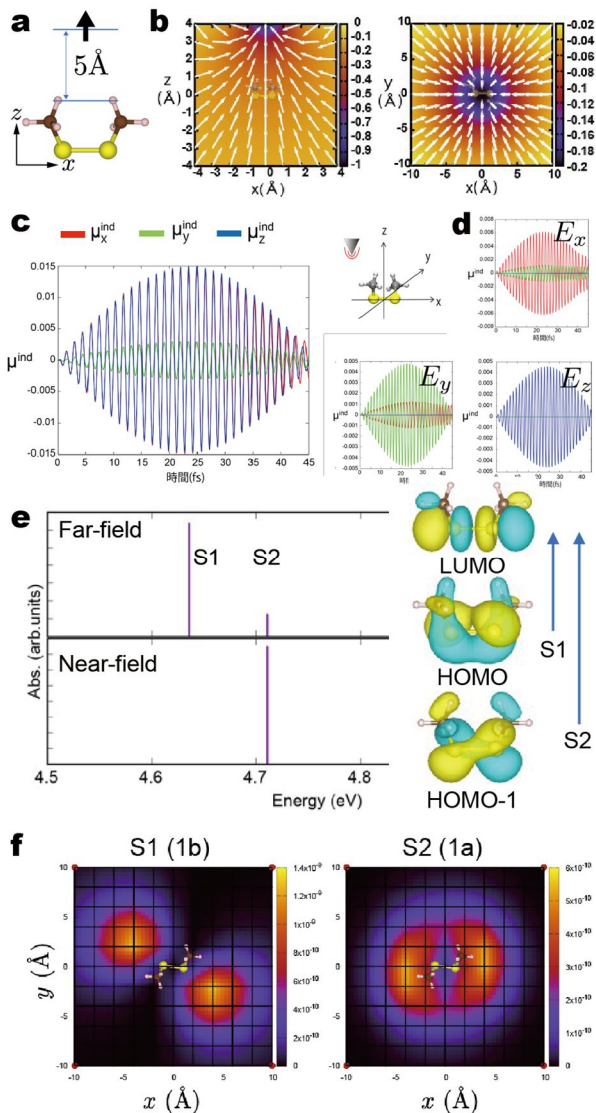


図 2. (a) 近接場励起のモデルと (b)  $xz$  および  $xy$  面上の近接場の強度と電場分布、(c) 近接場、および(d) 一様電場励起 による誘起双極子モーメント。DMDS の(e) 伝搬光励起および探針が分子重心の真上にあるときの近接場励起の吸収スペクトルとその帰属、(f) 近接場光源の位置を変えたときの  $S_1$  と  $S_2$  の振動子強度マップ。

合を目的変数とした Lasso 解析を行い、これらの状態に強く寄与する分子軌道ペアを抽出した。高エネルギー側の光吸収は図 3e 下に示す 3 つの軌道ペアで主に構成されている一方で、低エネルギー側の励起状態は図 3f に示す軌道ペアに分散しているという違いがあることがわかった。また、低エネルギー領域の励起状態は四重極子モーメントを持つ状態も多く、非一様な分布を持つ近接場光でこれらの低位励起状態を効率よく励起されれば、S-S 結合解離反応が誘起されると期待できる。しかし、これまで用いてきたモデル近接場光を用いた一般化振動子強度からは、低エネルギー側の励起状態の振動子強度は依然として小さく、実験結果と整合する結果は得られなかった。その理由として小さなクラスターモデルによる吸着状態のモデル化や、近接場光を簡略化しすぎた可能性を考えており、今後はこれらの問題点を詳細に検討していきたい。

以上のように、一般化遷移モーメントおよび一般化振動子強度を用いることで、近接場光励起が非常に高速かつ容易に解析できるようになった。また実際の実験を解析するためには、金属吸着状態の励起状態を精度良く求める必要もあり、大きなクラスターモデルの利用、あるいは連続状態内の一部を記述する開放系クラスターモデルの開発や周期境界条件を満足する系における励起状態計算手法の開発など、非常に計算化学的には挑戦的な課題に取り組む必要がある。また、近接場光と分子の相互作用として、電場を念頭に置いて理論手法を開発・応用してきたが、これまで無視してきた磁場の効果についても近年重要性が指摘されており、光の扱いについても更なる進展が必要である。

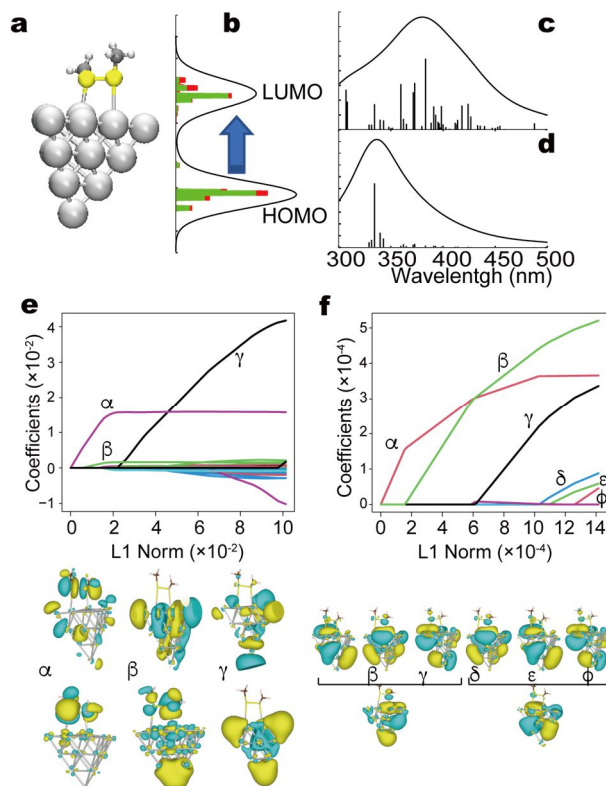


図 3. (a) DMDS/Ag<sub>20</sub> のモデル、(b) DMDS の状態密度、(c) DMDS/Ag<sub>20</sub> の励起状態の DMDS 分子内励起状態成分、および (d) これらの分子内遷移の励起状態成分に対する振動子強度。占有-非占有軌道ペアを説明変数としたときの、(e)振動子強度、および(f) 分子内遷移の割合を目的変数とした Lasso 解析の結果と、重要な割合を示す占有・非占有軌道のペア。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計15件（うち査読付論文 14件／うち国際共著 2件／うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 Miyajima Sayuri, Hossain Sakiat, Ikeda Ayaka, Kosaka Taiga, Kawawaki Tokuhisa, Niihori Yoshiaki, Iwasa Takeshi, Taketsugu Tetsuya, Negishi Yuichi	4. 巻 6
2. 論文標題 Key factors for connecting silver-based icosahedral superatoms by vertex sharing	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Communications Chemistry	6. 最初と最後の頁 57(1-10)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s42004-023-00854-0	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Toda Keijiro, Hirose Yoshihiro, Kazuma Emiko, Kim Yousoo, Taketsugu Tetsuya, Iwasa Takeshi	4. 巻 126
2. 論文標題 Excited States of Metal-Adsorbed Dimethyl Disulfide: A TDDFT Study with Cluster Model	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry A	6. 最初と最後の頁 4191 ~ 4198
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpca.2c02354	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Hirai Haru, Takano Shinjiro, Nakashima Takuya, Iwasa Takeshi, Taketsugu Tetsuya, Tsukuda Tatsuya	4. 巻 61
2. 論文標題 Doping Mediated Energy Level Engineering of M@Au <sub>12</sub> Superatoms (M=Pt, Rh, Ir) for Efficient Photoluminescence and Photocatalysis	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Angewandte Chemie International Edition	6. 最初と最後の頁 e202207290(1-8)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/anie.202207290	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Li Ya-Ke, Babin Mark C., Debnath Sreekanta, Iwasa Takeshi, Kumar Sonu, Taketsugu Tetsuya, Asmis Knut R., Lyalin Andrey, Neumark Daniel M.	4. 巻 125
2. 論文標題 Structural Characterization of Nickel-Doped Aluminum Oxide Cations by Cryogenic Ion Trap Vibrational Spectroscopy	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry A	6. 最初と最後の頁 9527 ~ 9535
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpca.1c07156	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Takano Shinjiro, Hirai Haru, Nakashima Takuya, Iwasa Takeshi, Taketsugu Tetsuya, Tsukuda Tatsuya	4. 巻 143
2. 論文標題 Photoluminescence of Doped Superatoms M@Au12 (M = Ru, Rh, Ir) Homoleptically Capped by (Ph2)PCH2P(Ph2): Efficient Room-Temperature Phosphorescence from Ru@Au12	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of the American Chemical Society	6. 最初と最後の頁 10560 ~ 10564
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/jacs.1c05019	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Imada Hiroshi, Imai-Imada Miyabi, Miwa Kuniyuki, Yamane Hidemasa, Iwasa Takeshi, Tanaka Yusuke, Toriumi Naoyuki, Kimura Kensuke, Yokoshi Nobuhiko, Muranaka Atsuya, Uchiyama Masanobu, Taketsugu Tetsuya, Kato Yuichiro K., Ishihara Hajime, Kim Yousoo	4. 巻 373
2. 論文標題 Single-molecule laser nanospectroscopy with microelectron volt energy resolution	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Science	6. 最初と最後の頁 95 ~ 98
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1126/science.abg8790	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Miyamoto Maho, Taketsugu Tetsuya, Iwasa Takeshi	4. 巻 155
2. 論文標題 A comparative study of structural, electronic, and optical properties of thiolated gold clusters with icosahedral vs face-centered cubic cores	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 094304 ~ 094304
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0057566	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Sato Katsutoshi, Miyahara Shin-ichiro, Tsujimaru Kotoko, Wada Yuichiro, Toriyama Takaaki, Yamamoto Tomokazu, Matsumura Syo, Inazu Koji, Mohri Hirono, Iwasa Takeshi, Taketsugu Tetsuya, Nagaoka Katsutoshi	4. 巻 11
2. 論文標題 Barium Oxide Encapsulating Cobalt Nanoparticles Supported on Magnesium Oxide: Active Non-Noble Metal Catalysts for Ammonia Synthesis under Mild Reaction Conditions	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ACS Catalysis	6. 最初と最後の頁 13050 ~ 13061
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acscatal.1c02887	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Takenaka Masato, Taketsugu Tetsuya, Iwasa Takeshi	4. 巻 154
2. 論文標題 Theoretical method for near-field Raman spectroscopy with multipolar Hamiltonian and real-time-TDDFT: Application to on- and off-resonance tip-enhanced Raman spectroscopy	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 024104 ~ 024104
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0034933	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hinokuma Satoshi, Iwasa Takeshi, Kon Yoshihiro, Taketsugu Tetsuya, Sato Kazuhiko	4. 巻 149
2. 論文標題 Effects of support materials and Ir loading on catalytic N <sub>2</sub> O decomposition properties	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Catalysis Communications	6. 最初と最後の頁 106208 ~ 106208
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.catcom.2020.106208	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Hinokuma Satoshi, Iwasa Takeshi, Kon Yoshihiro, Taketsugu Tetsuya, Sato Kazuhiko	4. 巻 10
2. 論文標題 N <sub>2</sub> O decomposition properties of Ru catalysts supported on various oxide materials and SnO <sub>2</sub>	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 21605 ~ 21605
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-020-78744-x	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Hossain Sakiat, Suzuki Daiki, Iwasa Takeshi, Kaneko Ryo, Suzuki Taiyo, Miyajima Sayuri, Iwamatsu Yuki, Pollitt Stephan, Kawawaki Tokuhisa, Barrabes Noelia, Rupprechter Gunther, Negishi Yuichi	4. 巻 124
2. 論文標題 Determining and Controlling Cu-Substitution Sites in Thiolate-Protected Gold-Based 25-Atom Alloy Nanoclusters	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 22304 ~ 22313
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.0c06858	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する



1. 著者名 HINOKUMA Satoshi, IWASA Takeshi, ARAKI Kento, KAWABATA Yusuke, MATSUKI Shun, SATO Tetsuya, KON Yoshihiro, TAKETSUGU Tetsuya, SATO Kazuhiko, MACHIDA Masato	4. 巻 63
2. 論文標題 Ammonia Combustion Properties of Copper Oxides-based Honeycomb and Granular Catalysts	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of the Japan Petroleum Institute	6. 最初と最後の頁 274 ~ 281
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1627/jpi.63.274	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Takenaka Masato, Taketsugu Tetsuya, Iwasa Takeshi	4. 巻 152
2. 論文標題 Combined computational quantum chemistry and classical electrodynamics approach for surface enhanced infrared absorption spectroscopy	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 164103 ~ 164103
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5143855	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 岩佐豪	4. 巻 50
2. 論文標題 第一原理計算による近接場光と分子の相互作用	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 光学	6. 最初と最後の頁 120-126
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計21件 (うち招待講演 6件 / うち国際学会 3件)

1. 発表者名 Takeshi Iwasa
2. 発表標題 Near-field spectroscopy and photochemistry from first principles beyond the dipole approximation
3. 学会等名 APATCC10 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 加賀紗里奈、岩佐豪、武次徹也
2. 発表標題 Au20超原子における近接場光励起の選択則
3. 学会等名 化学系学協会北海道支部2023年冬季研究発表会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 加賀紗里奈、武次徹也、岩佐豪
2. 発表標題 近接場光励起の選択則
3. 学会等名 シンポジウム「化学反応経路探索のニューフロンティア2022」
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 加賀紗里奈、武次徹也、岩佐豪
2. 発表標題 超原子における近接場光励起の選択則
3. 学会等名 第16回分子科学討論会2022 横浜
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 岩佐豪、戸田敬二郎、廣瀬善大、数間恵弥子、金有洙、武次徹也
2. 発表標題 ジメチルジスルフィド近接場光解離反応の理論研究
3. 学会等名 第16回分子科学討論会2022 横浜
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Takeshi Iwasa, Masato Takenaka, Teppei Zengyo, Tetsuya Taketsugu
2. 発表標題 Theoretical Near-field Vibrational Spectroscopy beyond the Dipole Approximation
3. 学会等名 APNF013 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 岩佐豪、戸田敬二郎、廣瀬善大、数間恵弥子、金有洙、武次徹也
2. 発表標題 近接場光によるジメチルジスルフィド光解離反応の理論研究
3. 学会等名 第24回理論化学討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 岩佐豪
2. 発表標題 近接場光と分子の相互作用：双極子近似を超えた分子理論手法の開発と応用
3. 学会等名 「自然科学における階層と全体」シンポジウム (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Takeshi Iwasa
2. 発表標題 First principles studies for optical near-field spectroscopy and photochemistry beyond the dipole approximation
3. 学会等名 Pacifichem2021 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 岩佐豪、竹中将斗、武次徹也
2. 発表標題 双極子近似を超えた光学応答理論と光STM-TERSへの応用
3. 学会等名 第7回北大・部局横断シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 岩佐豪、竹中将斗、武次徹也
2. 発表標題 近接場ラマンのための理論開発と光STM-TERSへの応用
3. 学会等名 第23回理論化学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 戸田敬二郎、岩佐豪、武次徹也
2. 発表標題 近接場光によるジメチルジスルフィドのS-S結合解離反応に関する理論的研究
3. 学会等名 シンポジウム「化学反応経路探索のニューフロンティア2021」
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 戸田敬二郎、岩佐豪、武次徹也
2. 発表標題 近接場光によるジメチルジスルフィド光解離反応の理論研究
3. 学会等名 第15回分子科学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 善行哲平、竹中将斗、武次徹也、岩佐豪
2. 発表標題 近接場赤外吸収分光法の理論計算手法の汎用化
3. 学会等名 第23回理論化学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 善行哲平、竹中将斗、岩佐豪、武次徹也
2. 発表標題 近接場IRの計算化学的手法開発
3. 学会等名 シンポジウム「化学反応経路探索のニューフロンティア2021」
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 善行哲平、竹中将斗、岩佐豪、武次徹也
2. 発表標題 汎用量子化学計算プログラムを利用した近接場赤外吸収分光法の理論手法開発
3. 学会等名 第15回分子科学討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 善行哲平、竹中将斗、武次徹也、岩佐豪
2. 発表標題 近接場赤外吸収分光法の理論計算手法開発
3. 学会等名 第7回北大・部局横断シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 岩佐豪
2. 発表標題 第一原理計算による近接場振動分光
3. 学会等名 日本物理学会第 76 回年次大会(2021 年) (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 岩佐豪
2. 発表標題 双極子近似を超えた近接場光と分子の多重極相互作用と励起状態制御に向けて
3. 学会等名 分子研 研究会「ナノ空間で光が織りなす分子操作・化学反応制御の新展開」(招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 岩佐豪
2. 発表標題 反応経路自動探索法を用いたクラスター触媒の理論研究
3. 学会等名 IQCE 量子化学探索講演会 2020「量子化学で探る化学の最先端」(招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 竹中将斗、岩佐豪、武次徹也
2. 発表標題 銀表面に吸着した酸素分子のプラズモン誘起解離反応の 理論解析
3. 学会等名 シンポジウム「化学反応経路探索のニューフロンティア 2020」
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 岩佐豪、小林正人、武次徹也、他執筆者：52名、技術情報協会	4. 発行年 2023年
2. 出版社 技術情報協会	5. 総ページ数 657
3. 書名 ケモインフォマティクスにおけるデータ収集の最適化と解析手法	

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------