

金属内自由電子の古典的運動方程式を組み込んだ分子シミュレーションの開発：水溶液中ナノ粒子の光吸収とエネルギー緩和

(筑波大計セ¹) ○山田 篤志¹

Molecular simulation that incorporates classical equation of motion for free electrons in metal: Photo-absorption and energy relaxation of nano-particle in solution (¹Center for Computational Sciences, University of Tsukuba) ○Atsushi Yamada¹

Molecular simulation that incorporates oscillating electric field and classical free electron dynamics in the framework of the force-field model has been developed to enable us to describe the optical response of metal materials in visible region. As numerical examples, we demonstrate metal-charge interaction that reproduces the classical image charge potential, calculations of dielectric functions of bulk metal, absorption spectrum of a metal nano-particle, and solvation effect on the spectrum, and simulation of visible light absorption by the plasmon resonance and succeeding thermal relaxation for metal nano-particles in the water solvent.

Keywords : light-metal interaction, molecular simulation, classical electron dynamics, optical response, metal nano-particle

金属は光科学分野に於いて重要な物質である。例えば金属ナノ粒子が光と相互作用することで起こるプラズモン共鳴や近接場光などの現象は基礎から応用まで幅広く研究されている。こうした系の光応答を原子レベルで解析する計算科学アプローチは第一原理手法により行われているが、高い計算コストのため小さい系に適用性が限られる。第一原理以外の実用的な計算手法の選択肢を確立することを目指し、本研究では可視領域での溶液内金属の光応答を記述することができる分子シミュレーションを開発した[1]。金属の光学特性は自由電子に由来するため、固定点電荷や断熱的な電子分極を表現する従来の力場モデルでは吸収を伴う可視光との相互作用を記述することができない。そこで本研究では、力場による分子シミュレーションの枠組みに金属内自由電子の古典運動ならびに光振動電場を組み入れることによる新たな計算手法を構築する。さらに分極可能モデルの溶媒分子を配置することで、溶液との相互作用を含む光応答を記述可能にする。計算例として、(i)金属の表面電荷と鏡像ポテンシャルの再現、(ii)バルク金属の誘電関数の計算、(iii)水溶液中の金属ナノ粒子の吸収スペクトル、(iv)可視光照射によるプラズモン共鳴励起とエネルギー緩和過程、を示す。

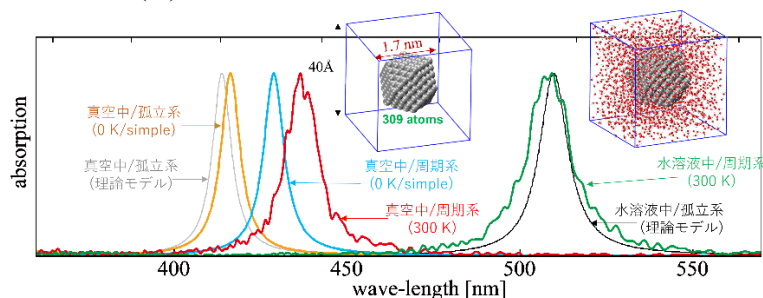


図1. 本手法で計算した真空中と水溶液中の金属ナノ粒子の可視吸収スペクトル

1) Atsushi Yamada, *J. Chem. Phys.*, **155**, 174118 (2021).