

学歴

1968年4月 ～ 1971年3月 大阪府立天王寺高校
1972年4月 ～ 1976年3月 京都大学工学部石油化学科
1976年4月 ～ 1978年3月 京都大学大学院工学研究科石油化学専攻修士課程
1978年4月 ～ 1981年3月 京都大学大学院工学研究科石油化学専攻博士課程

職歴

1981年4月 ～ 1982年10月 日本学術振興会奨励研究員
1982年11月 ～ 1984年9月 日本学術振興会海外特別研究員(カリフォルニア大学バークレー校)
1984年10月 ～ 1991年6月 岡崎国立共同研究機構 分子科学研究所理論研究系助手
1991年7月 ～ 1994年3月 (財)基礎化学研究所 主任研究員
1994年4月 ～ 1996年12月 東京大学工学部応用化学科 助教授
1997年1月 ～ 2018年3月 東京大学大学院工学系研究科化学システム工学専攻教授
2018年4月 ～ 現在に至る 東京大学大学院工学系研究科 特任研究員

社会活動等

1996年4月 ～ 2000年3月 日本化学会 Bull. Chem. Soc. Japan 編集委員
2002年4月 ～ 2007年3月 日本化学会研究会(理論化学研究会)世話人代表
2006年4月 ～ 2010年3月 自然科学研究機構分子科学研究所運営会議委員
2006年10月 ～ 2011年3月 日本化学会ディビジョン(理論化学・情報化学・計算化学)主査
2007年10月 ～ 現在に至る 日本コンピュータ化学会理事
2012年10月 ～ 2018年3月 CREST「エネルギー高効率利用のための相界面科学」研究代表者
2012年10月 ～ 2018年3月 京都大学触媒・電池元素戦略研究拠点ユニット拠点教授

受賞

第6回(2015年度)分子科学会賞
「化学反応ダイナミクスとエネルギー変換の分子理論」

研究成果

これまで一貫して、分子論・量子論に基づいた理論・計算化学が化学反応研究において欠くことの出来ない重要な貢献ができるという信念に基づいて、従来個別に研究されてきた理論的方法、すなわち電子状態理論、反応動力学理論、化学統計力学論を融合させて、化学反応を分子論的に理解し、さらに非経験的に予測する基礎理論・計算手法の開発に取り組んできた。気相、クラスター、凝縮系、表面といった様々な相における反応化学全般に亘る理論・計算化学研究を展開し、化学事象の説明・解釈に止まらず、化学事象を予測・制御し、実験研究を先導できる「*ab initio* ケミストリー」を目指し、新たな物質・機能を生み出す物質変換科学、さらにクリーンエネルギー創生の鍵となるエネルギー変換科学に取り組んできた。これまでの研究の概要として、(1) 化学反応ダイナミクス of 分子理論、(2) エネルギー変換の分子論として以下にまとめる。

(1) 化学反応ダイナミクス of 分子理論

理論化学、計算化学は、化学反応遷移状態の構造や、反応核波束の時間発展ダイナミクスなど実験的に検証困難な化学事象について、実験と相補的な情報を与え、多種多様な化学反応の非経験的かつ本質的な理解と設計指針をもとに、新たな物質・機能を生み出す物質変換科学の発展に不可欠である。そこで、まずポテンシャル曲面上の始原系から遷移状態を通り生成系に達する反応の固有の道筋である福井(謙)による極限的反應座標を化学反応の定量的理解へ展開し、遷移状態領域を通過する核波束を用い、遷移状態理論を越える量子力学的に厳密な反応速度定数をファインマン経路積分法も用いて非経験的に計算する手法を開発した。1980年代はレーザー技術の急速な進歩により、化学反応がまさに高速で起こっている過程の実時間観測を目的とした「フェムト秒化学」、反応の遷移状態を直接観測しようとする「遷移状態分光」、さらに「化学反応レーザー制御」といった実験研究分野が開花した。そこで高精度電子状態計算による反応ポテンシャル面の構築と、ポテンシャル面上を高速に時間発展する核の運動を量子波束計算により追跡し、先進的な時間分解レーザーを駆使して得られた実験スペクトルに潜む反応過程における核運動についての完全な理解を可能にし、化学反応レーザー制御の可能性を予測した。また「連続状態に埋まった共鳴状態」といった化学反応論的に新しい概念を提出し、「遷移状態分光」の新たな実験研究対象の理論的提案を行った。特にオゾン分子のハートレー吸収帯に現れる微細構造が、光解離反応の遷移状態領域に束縛された有限寿命の核振動運動に起因することを高精度 *ab initio* 理論解析により明らかにすることに成功した。

一方、固体表面上では種々の機能発現に繋がる化学事象が期待され、工業的応用の観点からも発現機構の解明が不可欠である。これら表面での機能的な化学事象の多くは、表面と吸着原子・分子の特異的な相互作用に起因するが、吸着系から無限に広がった固体表面への電子移動やエネルギー緩和、また反応系全体の電子数や粒子数が保存しないことを考慮する

と、従来の理論化学的手法では取り扱いが困難である。そこで特に光照射、あるいは外部電場などによる表面励起過程における表面光反応と電極表面で重要な電子移動などの化学反応素過程について、密度汎関数法を中心とした第一原理電子状態計算と、非平衡グリーン関数法、リウビルーフォン・ノイマン方程式など、種々の動力的あるいは統計力学的理論を組み合わせた新規な理論的手法を開発し、従来の理論化学的アプローチでは取り組めなかった固体表面に吸着した分子の光誘起化学反応、相界面での電子輸送過程について理論的解析をおこなった。

(2) エネルギー変換の分子理論

分子系や化学反応系は、加えた熱や光を、化学エネルギー、電気エネルギー、熱に変換し得るという特質を有し、それらエネルギー変換過程の本質的理解と設計はクリーンエネルギー創生の鍵となる。太陽光利用・光エネルギー変換過程のメカニズムを分子論的に明らかにするには、これまで培ってきた反応動力学の理論体系の応用が不可欠であることに着目し、相界面での光誘起エキシトンのダイナミクス解明をターゲットに、より高効率な分子デバイス、材料創製に向けた理論化学研究に取り組んだ。具体的には、酸化チタンを代表とする光触媒材料の光触媒活性の本質に迫る電子論的機構の解明、太陽電池透明導電膜としてのニオブドープ酸化チタン材料の新規開発、色素増感型太陽電池における酸化チタンと色素間の界面直接電子移動型遷移の予測による高効率化、といった課題についての理論的説明と予測を実験研究者との緊密な連携により実施した。最近ではペロブスカイト太陽電池の高効率の主要因と考えられるキャリア伝導の双方向性に関して、電子状態論の観点から明らかにし、またペロブスカイト材料における光誘起キャリアのバンド内緩和過程について、キャリアーフォノン相互作用を考慮した多体摂動論に基づいて、その本質を説明することに成功している。

主な論文

1. “Direct Calculation of Quantum Mechanical Rate Constants via Path Integral Methods: Application to the Reaction Path Hamiltonian, with Numerical Test for the H+H₂ Reaction in 3D”, K. Yamashita and W. H. Miller, *J. Chem. Phys.* **82**, 5475-5484 (1985).
2. “*Ab Initio* MO and Dynamics Study of Transition State Spectroscopy”, K. Yamashita and K. Morokuma, *Faraday Discuss. Chem. Soc.* **91**, 47-61(1991).
3. “Theoretical Study of the UV Photodissociation of Ozone. Comparison with Experiments”, C. Leforestier, F. LeQuere, K. Yamashita, and K. Morokuma, *J. Chem. Phys.* **101**, 3806-3818 (1994).
4. “A Theoretical Study on Laser Control of Molecular Non-adiabatic Processes by Ultrashort Chirped Laser Pulses”, K. Mishima and K. Yamashita, *J. Chem. Phys.* **109**, 1801-1809 (1998).
5. “Effects of Vibrational Relaxation on the Photodesorption of NO from Pt(111): A Density Matrix Study”, A. Abe and K. Yamashita, *J. Chem. Phys.* **119**, 9710-9718 (2003).
6. “Electron tunneling of photochemical reactions on metal surfaces: NEGF-DFT approach to photon energy dependence of reaction probability”, H. Nakamura and K. Yamashita, *J. Chem. Phys.* **122**, 194706 (2005).
7. “Theoretical Study of Structure and Optical Properties of Carbon-doped Rutile and Anatase Titanium Oxides”, H. Kamisaka, T. Adachi, and K. Yamashita, *J. Chem. Phys.* **123**, 84704(2005).
8. “Efficient molecular orbital approach to the self-consistent calculation of molecular junctions”, H. Nakamura and K. Yamashita, *J. Chem. Phys.* **125**, 194106(12pp) (2006).
9. “Systematic Study on Quantum Confinement and Waveguide Effects for Elastic and Inelastic Currents in Atomic Gold Wire: Importance of the Phase Factor for Modeling Electrodes”, H. Nakamura and K. Yamashita, *Nano Lett.*, **8**, 6-12 (2008).
10. “DFT-based First-principle Calculation of Nb-doped anatase TiO₂ and its Interactions with Oxygen Vacancies and Interstitial Oxygen”, H. Kamisaka, T. Hitosugi, T. Suenaga, T. Hasegawa, K. Yamashita, *J. Chem. Phys.* **131**, 034702(10pp) (2009).
11. “Excitons at the (001) surface of anatase: Spatial behavior and optical signatures”, G. Giorgi, M. Palumbo, L. Chiodo, K. Yamashita, *Phys. Rev. B*, **84**, 073404 (2011).
12. “Study of interfacial charge transfer bands and electron recombination in the surface complexes of TCNE, TCNQ, and TCNAQ with TiO₂”, S. Manzhos, J. Fujisawa, R.

- Jono, H. Segawa and K. Yamashita, *J. Phys. Chem. C*, **115**, 21487-21493 (2011).
13. “The nature of radiative transitions in TiO₂-based nanosheets”, M. Palumbo, G. Giorgi, L. Chiodo, A. Rubio, K. Yamashita, *J. Phys. Chem. C*, **116**, 18495-18503 (2012).
 14. “Small Photocarrier Effective Masses Featuring Ambipolar Transport in Methylammonium Lead-Iodide Perovskite: Density Functional Analysis”, G. Giorgi, J. Fujisawa, H. Segawa, K. Yamashita, *J. Phys. Chem. Lett.*, **4**, 4213-4216 (2013).
 15. “Multi-wall effects on the thermal transport properties of nanotube structures”, T. Hata, H. Kawai, R. Jono, K. Yamashita, *Nanotechnology* **25**, 245703 (8pp) (2014).
 16. “The origin of slow hot-hole cooling in lead-iodide perovskite: First-principle calculations on electron-phonon carrier lifetimes”, H. Kawai, G. Giorgi, A. Marini, K. Yamashita, *Nano Lett.*, **15**, 3103-3108 (2015).
 17. “Photon-absorbing charge-bridging states in organic bulk heterojunctions consisting of diketopyrrolopyrrole derivatives and PCBM”, M. Fujii, W. Shin, T. Yasuda, K. Yamashita, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **18**, 9514-9523 (2016).
 18. “The Effects of the Organic–Inorganic Interactions on the Thermal Transport Properties of CH₃NH₃PbI₃”, T. Hata, G. Giorgi, K. Yamashita, *Nano Lett.*, **16**, 2749-2753 (2016).
 19. “Thermal Effect on Morphology and Performance of Organic Photovoltaics”, E. Kawashima, M. Fujii, K. Yamashita, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **18**, 26456 – 26465 (2016).
 20. “Charge Carrier Trapping at Surface Defects of Perovskite Solar Cell Absorbers: A First-Principles Study”, H. Uratani, K. Yamashita, *J. Phys. Chem. Lett.*, **8**, 742-746 (2017).
 21. “First-principles study of the band diagrams and Schottky-type barrier heights of aqueous Ta₃N₅ interfaces”, E. Watanabe, H. Ushiyama, K. Yamashita, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **9**, 9559-9566 (2017).
 22. “Revealing the Chemistry between Bandgap and Binding Energy for Pb/Sn-based Trihalide Perovskite Solar Cell Semiconductors”, A. Varadwaj, P. R. Varadwaj, K. Yamashita, *ChemSusChem*, **11**, 449-463 (2018).