

ナノマテリアルの非線形光学特性の分子設計に向けて

Title: Toward Rational Design of Nonlinear Optical Properties of Nanomaterials

重田育照

Y. Shigeta

大阪大学大学院基礎工学研究科物質創成専攻

Department of Material Engineering Science, Graduate School of Engineering Sciences,
Osaka University, Toyonaka, Osaka 560-8531, Japan

物質にレーザー光のような強い光が照射されると、物質に分極が誘起されるが、その分極は光電場のべき級数に展開できる。この高次の項に起因して起きる光学現象を非線形光学応答といい、3次元光メモリなどへ応用が期待されている。これまで我々は電子状態の開殻性を指標に、大きな第二超分極率を持つ非線形光学応答特性の優れた様々な物質の設計を行ってきた[1]。従来のターゲットは有限サイズの小分子が主であったが、新たなターゲットとして周期系である固体や、ナノマテリアルのサイズ効果に着目しており、それらが非線形光学特性にどのような影響を与えるかは非常に興味深い。光学応答は電子のゆらぎである分極に起因しているため、たとえばグラフェンナノリボンなどのエッジ状態では電荷移動が起こり光学応答特性の変化が誘起される。また、量子ドットに電荷を注入した系などでも、非局在化した余剰電荷は大きな電荷揺らぎが見込まれる。これにより、より優れた光学応答特性をもつ物質の設計、及び光学応答特性の制御が期待される。

ある方向に電場を印可した場合、その方向の周期性は無くなる。電場と平行方向に対しては周期境界条件を用い、電場方向にはクーロンカットオフ法[2]を採用することで、その問題を回避した。上記の手法を実空間密度汎関数 (RSDFT) 法[3]に実装し、グラフェンなどの表面の分極率・超分極率を算出し、分子の結果と比較することでその妥当性を示す。

本研究では交換相関汎関数に局所密度近似 (PZ81) を採用し、 xy 方向には通常周期境界条件を、 z 軸方向にはクーロンカットオフ法を用いることで、2次元グラフェン(以後グラフェンと呼ぶ)、一次元グラフェン(グラフェンナノリボン)の1種であるポリアセンの(超)分極率を有限場法 (finite field 法) により数値的に算出した。また比較のためにそれぞれ C_6H_6 、 $C_{24}H_{12}$ 、 $C_{54}H_{18}$ 及びポリアセン系分子(ベンゼン環数 2-12) の分極率についても算出した。ベンゼンから順に炭素の数が増えていくに従って1炭素原子あたりの分極率は $\alpha = 3.0$ a.u.程度に収束していくが、RSDFTの結果はその値に近い値を与える。ポリアセンにおいてもグラフェンの場合と同様に分子モデルの分極率によく一致した結果が得られており、本手法において分極率などが正しく見積もられたことがわかる。結果の詳細は当日報告する。

[1] M. Nakano, R. Kishi, S. Ohta, H. Takahashi, T. Kubo, K. Kamada, K. Ohta, E. Botek, B. Champagne *Phys. Rev. Lett.* **99**, 033001 (2007).

[2] C. A. Rozzi D. Varsano, A. Marini, E. K. U. Gross, A. Rubio, *Phys. Rev. B* **73**, 205119 (2006).

[3] J.-I. Iwata D. Takahashi, A. Oshiyama, T. Boku, K. Shiraiishi, S. Okada, K. Yabana, *J. Comp. Phys.* **229**, 2339 (2010).