

課題名 (タイトル) :

## Calculation of metamaterial devices and plasmonics devices.

利用者氏名 :

竹田晴信, Zhengli Han, ○時実悠

理研での所属研究室名 :

光量子工学研究センター テラヘルツ光源研究チーム

<p>1. 本課題の研究の背景、目的、関係するプロジェクトとの関係</p> <p>テラヘルツ波の発生・検出においてメタマテリアルデバイス、表面プラズモンデバイス、有機発光デバイスの活用は有望であり、これらの基礎特性の理解が欠かせない。特に有機蛍光分子、また有機非線形光学結晶は発光デバイス開発に非常に重要であるが、その遷移構造の物理的パラメータの詳細を実験的に確認することは容易ではない。特に有機蛍光分子の一種である熱活性遅延蛍光 (TADF) 分子の最低励起一重項 (S1)-最低励起三重項 (T1) 間の遷移過程や、DAST 結晶、BNA 結晶などの高次の非線形分極率などについては未知の部分が多い。そこで本課題では、密度汎関数法 (DFT) を用いた単分子、また結晶構造の量子化学計算を行うことで、それらの物理的パラメータの検討をつけて、デバイス開発への足掛かりとすることを目的としている。</p> <p>2. 具体的な利用内容、計算方法</p> <p>量子化学計算ソフト Gaussian09 および Gaussian16 と、分子モデリングソフト Gaussview6 を利用して DFT 計算を行っていった。分子構造などの情報については文献から調査した値をもとに Gaussview6 でモデリングしたものを使用した。DFT 計算では主に functional として Cam-B3LYP および M06-2X, basis set として 6-311G(d,p) を利用した。TADF 材料 (2CzPN), イポメアマロンについてはそれぞれ以下のような計算を実施した。</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>● TADF 材料</li> </ul> <p>2CzPN について、最低励起一重項状態および三重項状態における分子構造、特に内部のカルバゾール基とシアノベンゼンとがなす偏角の変化を調査するため、S0, S1, T1 それぞれで構造最適化、振動数解析を行い、フランクコンドン項を考慮したテラヘルツ領域における S1-T1 の Absorption と</p>	<p>emission の計算を行った。</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>● イポメアマロン</li> </ul> <p>テラヘルツ領域での吸収、近赤外-中赤外領域における吸収の検討をつけるため、まず基底状態における単分子の構造最適化と振動計算を実施し、また回転定数など単分子回転運動の計算も行った。</p> <p>3. 結果</p> <p>2CzPN について、S1 と T1 それぞれの安定構造、振動構造についての PES (Potential energy surface) が得られた。特にカルバゾール基に関して、その偏角は S1 と T1 とで T1 側が偏角を小さくするような構造へと変化しており、これに付随してテラヘルツ領域における振動スペクトルも低周波数側 (低エネルギー側) へとシフトしていることを見出した。これは分光測定実験の結果とよく一致しており、分子の運動と共鳴周波数との帰属が行えた。</p> <p>イポメアマロンについては、室温のガス分子がどの程度テラヘルツ光を吸収するか検討をつけるため、分子内振動、また単分子の回転運動についての計算を行った。結果として、まず分子内振動構造についてはその吸収ピークをテラヘルツ領域 (1~50 THz) 領域に見出したものの、その吸収強度は低く吸収ピークを見出しづらいことがうかがえた。回転運動に関して、その回転定数は数十 MHz 程度と非常に重い回転であったため、大気中における回転モードをテラヘルツ分光の領域 (イポメアマロンの数十次の回転モード) によって見出すのは難しいことが予想された。</p> <p>4. まとめ</p> <p>DFT を用いた 2CzPN およびイポメアマロンの振動構造にかかる物理的パラメータを計算することができた。</p>
---	--