

ホウ素窒素含有アントラセンの一重項分裂誘起三次非線形光学特性に関する理論研究

(阪大院基礎工¹・阪大 CSRN²・阪大 QIQB³) ○杉森亮太¹・當波孝凱¹・中野雅由^{1,2,3}

Theoretical Study on Singlet Fission Induced Nonlinear Optical Property of Boron Nitrogen-Containing Anthracenes (¹*Graduate School of Engineering Science, Osaka University*, ²*Center for Spintronic Research Network, Osaka University*, ³*Quantum Information and Quantum Biology Division, Osaka University*) ○Ryota Sugimori,¹ Takayoshi Tonami,¹ Masayoshi Nakano^{1,2,3}

On the basis of diradical-character-based design principles for highly-efficient nonlinear optical (NLO)^{1a,b)} and singlet fission (SF)^{1c)} substances, we have theoretically proposed a novel class of third-order NLO systems (SF-induced NLO systems) utilizing the correlated triplet pair generated by SF process²⁾. Anthracene satisfies the energy level matching condition for efficient SF by boron-nitrogen (BN) substitution³⁾. In addition, an increase in the second hyperpolarizability (γ) can be expected due to the spin polarization in the longitudinal direction. Therefore, BN-anthracenes are expected to have excellent SF-induced NLO properties. In this study, we have focused on BN-anthracenes [Fig. 1(b), (c)] as new SF-induced NLO candidates, and γ of their singlet and triplet states were calculated by quantum chemical calculations. The γ values have been found to strongly depend on the BN substitution position.

Keywords : Third-order nonlinear optics: Singlet fission: Second hyperpolarizability: Quantum chemical calculation

我々は、開殻性に基づく高効率な非線形光学(NLO)系^{1a,b)}および一重項分裂(SF)系^{1c)}の設計原理に基づき、SF 過程により生成する相関三重項対を利用した新奇な三次 NLO 系(SF 誘起 NLO 系)を提案した²⁾。一方、アントラセンはホウ素窒素(BN)置換により、高効率 SF に対するエネルギー準位整合条件を満たす³⁾。また、通常のアセン系で見られない長軸方向のスピンの分極により、第二超分極率(γ)の増大が期待できる。従って、BN 含有アントラセンは優れた SF 誘起 NLO 特性を有する可能性があると推測される。本研究では、新たな SF 誘起 NLO 候補系として BN 含有アントラセン [Fig.1(b), (c)]に着目し、それらの一重項および三重項状態の γ を量子化学計算に基づき算出した。その結果、BN 置換位置により大きく異なる γ 値が得られた。この原因を γ 密度と遷移密度等を用いて解明した。詳細は当日報告する。

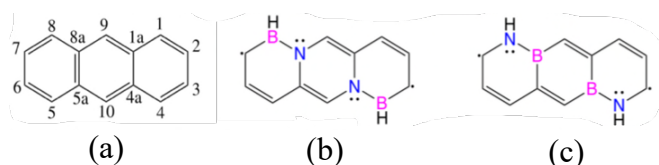


Fig.1 Anthracene (a) and BN containing anthracenes (b) and (c).

1) (a) M. Nakano et al. *J. Phys. Chem. Lett.* **2015**, 6, 3236. (b) H. Matsui et al. *Phys. Rev. A*, **2016**, 94, 042515. (c) T. Minami et al. *J. Phys. Chem. Lett.* **2012**, 3, 145. 2) T. Tonami et al., *ACS Omega*, **2019**, 4, 16181. 3) T. Nagami et al., *J. Phys. Chem. C*, **2020**, 124, 11800.