

近接場光相互作用を介した分子の二光子励起ダイナミクス

Two-Photon Excitation Dynamics of Molecules via Near-Field Interaction

分子研¹ ○信定 克幸¹, 野田 真史¹

IMS¹ ○Katsuyuki Nobusada¹, Masashi Noda¹

E-mail: nobusada@ims.ac.jp

太陽電池や光触媒等の光エネルギー変換デバイスの機能を高めるためには、高効率かつ広帯域に太陽光を吸収できることが最も理想的な方法である。通常、光吸収の効率はデバイスを構成する物質によって決まってしまう、吸収帯域もバンドギャップに支配されているために、やはり物質に依存していることになる。結果的に、高機能光エネルギー変換デバイスを開発する場合には、多数の物質の組み合わせや異種物質ドーピング、新規材料探索等の材料工学的アプローチに頼る事が多い。材料工学的アプローチは今後も非常に重要な手段であることには変わりはないが、一方でその限界や頭打ちが少なからず露呈していることも事実である。本発表では、ナノ構造体近傍に発生する近接場光の特徴である電場の強度勾配を利用した局所励起に基づく分子の二光子励起に関する理論・計算科学的研究結果を紹介する。

図1は銀クラスターを通常のレーザー光で励起した場合（所謂、双極子近似に基づく光応答）と近接場光局所励起した場合に、銀クラスター内に発生する誘起双極子モーメントをフーリエ変換した量を表す。この量からどのような電子運動のモードが励起されるのかについての情報を引き出すことができる。細かな振動はここでは本質的ではないので無視をする。基本振動数（入射レーザー光の振動数 2.22 eV）の応答はどちらもほぼ同一であるが、二倍波の応答は近接場光励起の方が3桁程度大きくなっていることが分かる。理論計算は、最近、我々が独自に開発した実時間・実空間光励起電子ダイナミクス第一原理計算手法 GCEED (Grid-based Coupled Electron and Electromagnetic field Dynamics) を用いて行った[1]。

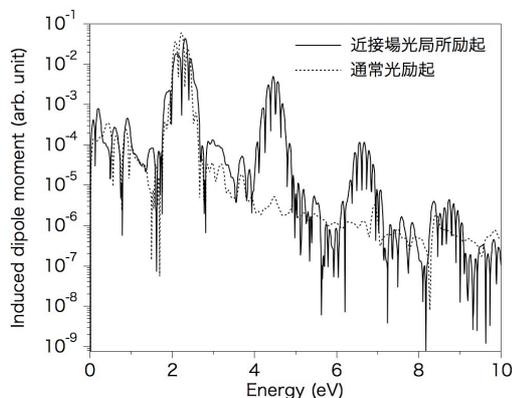


図1 近接場光局所励起と通常光励起の比較

二倍波の応答は二次の非線形光学応答であるために、通常光の励起では二光子励起を利用してワイドバンドギャップを持つ物質を励起することは難しい。一方、貴金属ナノ粒子ではプラズモン励起を利用した近接場光の電場増強の効果も期待でき、上記した様な近接場光の強度勾配を利用した局所励起と電場増強の効果を組み合わせれば、高効率かつ広帯域の光エネルギー変換デバイスの設計が可能になる。当日は近接場光励起ダイナミクスの局所励起と電場増強のメカニズムの解析結果を紹介する。

[1] M. Noda, K. Ishimura, K. Nobusada, K. Yabana and T. Boku, *J. Comp. Phys.*, **265**, 145-155 (2014).