



<研究紹介・自己紹介>

研究項目 A02 公募研究

「電子共鳴と構造共鳴のインタープレイによる新奇メタマテリアルの研究」

研究代表者 石原 一 (大阪府立大学)

本年度より公募研究として新たに領域に加えて頂きました大阪府立大学の石原です。これまでメタマテリアルの研究会等への参加機会が少なく、新たに交流させて頂く方が多い領域ですので、研究背景や関連文献なども含めて自己紹介をさせていただきます。

私は大阪大学基礎工学研究科の張紀久夫先生の研究室で研究をスタートさせ、1990年に学位を取得しました。研究テーマは薄膜等のナノ系に閉じ込められた励起子の非局所的光学応答で、光電場と誘起分極を自己無撞着に計算することにより、ナノオーダーの試料サイズ変化に対して敏感な光学応答を議論しました。学位論文では当時盛んに議論されていた三次非線形感受率の試料サイズ依存性や非局所応答理論の非線形への拡張を扱い、結果は学会等で多くの方に議論して頂きました。学位取得後、三菱電機(株)に入社しました。入社後しばらくして幸運にもJSTの「さきがけ研究」に採択され、非局所応答理論を基礎にした非線形光学応答の研究をさらに発展させることが来ました。この時も分野を超えて多くの方と交流する機会を持ち、特に実験グループの方々と共同研究出来たことがその後の自分の研究の進め方に影響を与えたように思います。約5年の企業経験の後、大阪大学の張研究室に教員として戻ることになりました。そこでは閉じ込め励起子系の非線形光学応答理論、微小共振器-励起子結合系の非線形応答理論などの研究を進めました。特に、ナノ系の光学応答解析では、従来はほとんど無視されてきた内部光電場の微視的空間構造の役割に注目し、非線形応答のサイズ共鳴増大など、非局所応答特有の現象を議論しました[H. Ishihara, J. of Phys.: Cond. Mat. **16** R247 (2004)などにレビューがあります]。一連の研究では、多自由度を持つナノ系で光電場と電子系波動関数の空間的インタープレイがもたらす新奇な光学応答を議論し、三菱電機(株)の井須敏郎先生(現徳島大)、理研の瀬川勇三郎先生らとの共同研究により実験的にも実証されました[H. Ishihara et al., Phys. Rev. Lett. **89** 017402 (2002), A. Shouji et al., Phys. Rev. Lett, **92**, 257401 (2004)など]。これらの成果は、企業やさきがけ時代からお世話になった先生方との共同研究が開花したものでした。この



一連の研究が基礎になって 2002 年には JST-CREST 研究に採択されました。阪大伊藤正先生、東北大枝松圭一先生、上記の井須敏郎先生に分担者として御参画頂き、さらに研究を進めることが出来ました。このプロジェクトの研究を通して従来マイクロとマクロの異なる階層に属するものとして独立に取り扱われていた自由度（例えば電子波動関数と光波動の空間自由度など）のインタープレイを強く意識するようになりました。この研究は現在も続いており、最近も阪大伊藤研（現芦田研）との共同研究により、光と励起子の数波長に渡る相互作用体積が fs クラスの超高速輻射緩和を実現することを実証しています[M. Ichimiya et al., *Phys. Rev. Lett.* **103**, 257401 (2009)]。

一方、上記 CREST 研究を契機に量子電磁気学や量子光学関連の研究も増えてきました。CREST では枝松先生のグループと共同で、固体など多自由度系での量子位相ゲート実現を視野に入れた 2 光子非線形の研究も行いました。理論グループでは、2 光子非線形の理論的手法[K. Koshino and H. I., *Phys. Rev. Lett.* **93** 173601 (2004)]や、多原子系で 2 光子非線形を効率的に引き起こすための原理[A. Ishikawa and H. I., *Phys. Rev. Lett.* **100**, 203602 (2008)]などを明らかにしてきました。さらに、高効率な「もつれ光子対」生成技術をターゲットにした枝松先生代表の学術創成研究に参画し、共振器や上記の光電場-励起子空間インタープレイを活用した高効率な生成原理を提案してきました[H. Oka and H. I., *Phys. Rev. Lett.* **100**, 170505 (2008), M. Bamba and H. I. *Phys. Rev. Lett.* **105**, 123906 (2010)]。これらの研究では、従来の単一原子と単一光子の相互作用を越えて、物質が多自由度を持つことが光子の量子的性質にどのような影響を与えるかという問題に注目しました。

上記の一連の研究とは少し毛色の違う研究として、2000 年前後より、共鳴光学応答による輻射力の研究にも力を入れ始めました。ナノ系の共鳴光学応答は、応答が共鳴的に増大すること以外にも、試料のサイズや形状に敏感に依存するという特徴を持ちます。一方、輻射圧や電場勾配が分極に及ぼす力を用いて微粒子を力学的に操作する技術があります。ナノ系の共鳴光学応答の特長をこのような力学的操作に用いれば、通常ナノサイズ試料を動かすには十分ではない輻射による力を増強させるだけでなく、ナノ微粒子個々の量子力学的個性を選別する形で微粒子操作ができます。これは、ナノ構造のマイクロな量子力学的自由度とマクロな運動自由度がリンクする、従来あまり意識されていなかったインタープレイに注目するものです。これに関連した研究では現在大阪府立大学

21世紀科学研究機構の一員として独立している飯田琢也先生が活躍し、関連論文[T. Iida and H. I. Phys. Rev. Lett. **90** 057403 (2003), Phys. Rev. Lett. **97**, 117402 (2006), Phys. Rev. **B77**, 245319 (2008)など]のいくつかが米物理学会HPのonline記事として紹介されました[Phys. Rev. Focus **11**, Story 6, 11 Feb. (2003), Phys. Rev. Focus **21**, Story 21, 25 Jun. (2008)]。また昨年、関連する解説記事が物理学会誌に掲載されています[日本物理学会誌 **65**, 12, 938 (2010)]。原理の一部は大阪大学伊藤（芦田）研との共同研究で実験実証され[K. Inaba et al., phys. stat. solid. (b) **243**, 3829 (2006)]、最近では研究室のポスドクや学生の協力を得て、主に有機光化学を専門とするグループとナノギャップや集光ビームを用いた分子トラップの共同研究を進めています[例えば北大坪井泰之先生と Y. Tsuboi et al., J. of Phys. Chem. Lett. **1**, 2327 (2010)など]。

ここ数年は北大三澤弘明先生を代表とする特定領域研究「光・分子強結合場」で局在光電場と分子（量子ドット）の相互作用の研究に力を入れてきました。金属ナノギャップではプラズモン共鳴により局在光電場が生じることが知られていますが、特長として、その増強度、局在性、また局在性ゆえ電場のナノスケールな空間変動も重要になります。特に最後の性質のため、通常の長波長近似を基にした光学選択則が破れ、光と分子波動関数の空間的インタープレイが重要となる場合が想定されます[応用物理 **80**, 9, 779

(2011)に解説記事]。本研究ではその様な分子励起の特異な選択則も議論しましたが[T. Iida, Y. Aiba and H. I., Appl. Phys. Lett **98**, 053108 (2011)など]、さらに興味深いことは、ナノギャップにおける局在モードを介して、単分子レベルで物質と光が効率よくエネルギーを交換する現象です。これは表現を変えれば、金属アンテナ系と分子が一つのコヒーレントな結合系として振る舞うということで、そのような場合は、強い光電場が一方的に分子に影響を与えるだけでな

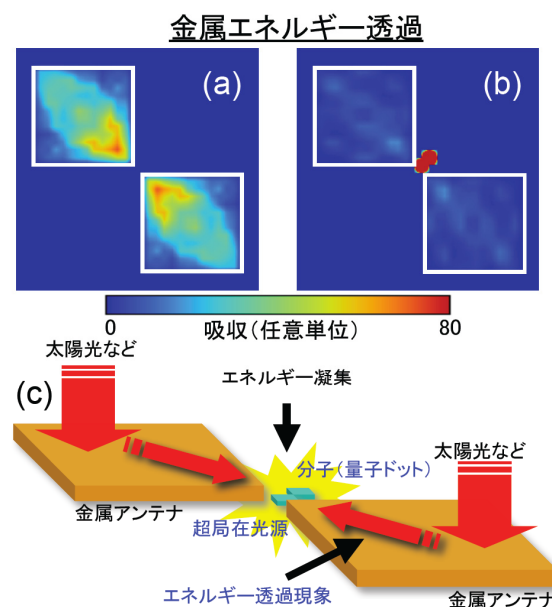


図1:
(a):金属アンテナに光照射した際の吸収(分子(ドット)無し)。
(b):ギャップ位置に量子ドットが配置され時、金属でエネルギー透過が起こり、ドットでエネルギー凝集が起こる。
(c):計算モデルの模式図



く、分子もまた光との結合を通してプラズモンスペクトルに影響を与えます。例えば図1は金属ナノ構造で作製された光アンテナを励起することによって、局在プラズモンにより結合した分子に吸収が起こっている状況を示したものです[J. Photochem. Photobio. A: Chemistry **211**, 148 (2011)]。興味深いのは、想定している共鳴条件では、通常は強い吸収や散逸のある金属構造に吸収がほとんど無くなり、光エネルギーが分子に集中している点です。このような金属でのエネルギー透過は、アンテナ・分子のコヒーレントな結合状態間の干渉効果により説明されますが、電磁誘導透過(EIT)類似の物理現象が金属のエネルギー透過として起こっていると見ることも出来ます。この現象は全量子論で太陽光のコヒーレント長を想定した計算でも確かめられ、また相関光子対のアップコンバージョンなどでも顕著な役割を果たすことが分かっています。さらに励起強度を上げることにより、分子が二準位系であっても反転分布を起こすことなどが明らかになってきました。今後、このような現象が、新しい光機能の議論に結びつけばと期待しています。

さて、ここまで長々と研究背景を説明してきたにも関わらず、メタマテリアル研究に直結しそうな要素があまり出てきませんでした。一つ関連して、本公募研究では以下のことに注目したいと考えています。すなわち、最後の例にもあるようにフォトニック結晶やメタマテリアルの研究で良く議論される、いわゆる幾何学的構造共鳴とナノ系で現れる電子共鳴のインタープレイ、とくにこれらのコヒーレントな結合を通じた現象です。よく知られる共振器フォトンと量子ドットの結合も幾何学的構造共鳴と電子共鳴のインタープレイの典型例と見る事が出来ますが、幾何学的構造にはさらに多彩な自由度があり、電子共鳴とのインタープレイは多様です。二つの共鳴のインタープレイは、単なる足し合わせではなく、線を掛け合わせて面になる以上の自由度の拡張があると期待されます。メタマテリアル研究には幾何学的な構造自由度を如何に活用して新しい機能を造り出すかという側面も有ることを考えると、電子共鳴とのインタープレイを導入することにより、一層多様な可能性が追求できるのではないかと考えています。今回採択していただいた課題では、このようなインタープレイが積極的な役割を果たす例として、例えばメタマテリアル的な入出力にアクティブな要素が付加された新しい光機能を提案することが出来ればと考えています。今後、本領域の先生方と様々な方面から議論させて頂ければ幸いです。
