

研究項目 A02：公募研究

「多重共鳴型メタマテリアルの研究」

石原一（大阪府立大学）

平成23年度に引き続き公募研究に採択していただき、表題の課題で研究を進めています。本稿では、前回までの研究の概要と、それを今回、どのように発展させようとしているのかについて、簡単にご紹介致します。



本領域での公募研究以前、我々のグループでは、物質系の波動関数と光電場の両方の微視的な空間自由度をセルフコンシステントに取り扱い、両者の特徴的なインタープレイを議論してきました。例えば、線形・非線形光学現象の特異なサイズ依存性、ナノ構造のサイズ選択的な輻射力（光が物質に及ぼす力学的作用）、あるいは単一光子や相関光子と物質の特異な相互作用などを研究対象にして、光とナノ物質の微視的相互作用における興味深い問題を見いだしてきました(News Letter Vol.11, No.1 をご参照下さい)。そのような研究を基に、さらに本新学術領域公募研究においては、試料のサブ波長構造による構造共鳴と電子的共鳴のインタープレイによる新奇なメタマテリアル現象の探索を計画しました。

前回の公募研究では、上記のような多重共鳴型のメタマテリアルの構成ユニットとして期待される、「ナノギャップのある金属構造と分子（量子ドット）が結合した系」の光学応答を調べてきました。このような系では、ナノギャップ近傍での局在プラズモン共鳴（サブ波長共鳴）と分子の電子遷移による共鳴のインタープレイにより興味深い現象が生じます。例えば、ナノギャップのある金属構造は光アンテナとして働き、ギャップ近傍に強い振動電場を誘起して、分子と光が強く相互作用します。一方で、このような金属構造は光の散乱や散逸も大きいため、分子に十分に光エネルギーを受け渡すには、直感的にはプラズモンを介したアンテナと分子間の結合が、緩和に負けない程度に大きくなければならないような気がします。しかし、実際には、最適な結合強さは緩和定数よりずっと小さく、その条件下では金属での吸収が強く抑制され、分子にエネルギーが集中します。これはアンテナ-分子結合系において新たに生じた固有モードの干渉による現象で、



電磁誘導透明化や Fano 共鳴と呼ばれる現象の類似例と見ることが出来ます。我々はこれを金属透明化と呼び、その詳細を研究してきました[1-3]。また、金属ナノギャップ近傍では電場の急峻な勾配のため長波長近似が破れ、非双極子的な分極パターンを伴う光学禁制遷移が、単分子レベルでも起こると期待されます[4]。実際、同じ A02 班の北大、村越先生との共同研究でこのことが実証されました[5]。さらに光アンテナ-分子結合系は非線形応答についても様々な新奇現象が期待され、例えば上方変換的に二準位系分子に反転分布が出来たり[6]、単一光子レベルの極微弱光で上方変換が可能になったりすること[7]を明らかにしています。

本応募課題では上記研究をさらに進め、「金属透明化ユニットの配列効果」、及び「磁性誘電体配列構造における二重共鳴メタマテリアル効果」を追求することで、多重共鳴効果がもたらす新奇メタマテリアル特性を明らかにしたいと考えています。具体的には以下のような研究を進めています。

金属透明化ユニットの配列効果

電子的共鳴とプラズモン共鳴のインタープレイによりエネルギー透明化を起こすナノユニットを配列した場合のメタマテリアル効果を明らかにします。特にユニット間相互作用が全体の共鳴構造にもたらす効果と、吸収体が発光する場合の（超蛍光等の）協力現象の相乗効果が系全体の光学現象に及ぼす効果を系統的に調べ、多重共鳴型メタマテリアルの可能性を明らかにしたいと考えています。プラズモン共鳴のユニット間相互作用は各ユニットにおける分子間の相関を強く引き起こすため、二重共鳴と協力現象の著しい発現が期待されます。

磁性誘電体配列構造における二重共鳴メタマテリアル

ウィスパリング・ギャラリー・モード (WGM) 共鳴を有する磁性誘電体を配列した場合、コットンムートン効果がフォトリック結晶効果で特異的に増強する可能性があります。本課題では、このことを利用した新奇な光伝播制御システムの提案を試みます。我々はこれまで、幾何学的共鳴である WGM において、コットンムートン効果に非相反性が生じること、誘電率非対角項実部があれば 2D フォトリック結晶のバンドに非相反性が生じること、さらに誘電率非対角項実部を有する円筒を配列させ、幾何学的共鳴と結晶構造共鳴を組み合わせることにより、光の進路を非相反的に曲げることが可能であることを理論的に示してきました。今



回は、さらに吸収に抗して誘電率非対角項実部を増大させ、非相反性を増幅するためのエネルギー印可型メタマテリアルの可能性を議論します。具体的には、カイラル電流に対する回転ドップラー効果に着目した、新しい偏光選択的光増幅過程の可能性を理論提案します。

以上の研究提案の特徴は、メタマテリアルの構成に、電子共鳴と構造共鳴等、異種共鳴間のセルフコンシステントなインタープレイを導入しようとする試みです。このようなインタープレイは、それぞれだけが存在する場合の共鳴構造を大きく変調し、予想しなかった現象や機能を発現することが期待されます。本課題では、量子ドットや分子など電子的離散準位系がもつ共鳴と、金属等の配列系が示す構造共鳴のインタープレイ、また、WGM 的共鳴とフォトニック構造的共鳴のインタープレイが磁気光学効果に及ぼす効果の追及を計画しています。またこれらの研究から、以下のような新奇現象の実現が期待されます。例えば、量子ドット、分子の励起過程を広域な配列構造上で定在波共鳴を起こすプラズモンにより増強し、単一ユニットの場合で示したのと同様な反転分布が広域に実現できれば、超蛍光等を発生する新しいタイプの微弱光駆動のコヒーレント光源が実現できるかもしれません。また、二重共鳴型磁気光学効果の研究からは、非相対的にビームを伝播させる、新しいタイプの幾何光学的デバイスの実現が期待できます。

[1] H. Ishihara, A. Nobuhiro, M. Nakatani and Y. Mizumoto:

J. Photochem. Photobio. A : Chemistry, 211, 148 (2011)

[2] T. Yano, M. Nakatani, K. Osono and H. Ishihara: J. Phy. Chem. C, 117, 2559 (2013)

[3] S. Uryu, H. Ajiki and H. Ishihara: Phys. Rev. Lett. 110, 257401 (2013)

[4] T. Iida, Y. Aiba and H. Ishihara: Appl. Phys. Lett. 98, 053108 (2011)

[5] M. Takase, H. Ajiki, Y. Mizumoto, K. Komeda, M. Nara, H. Nabika, S. Yasuda,
H. Ishihara and K. Murakoshi: Nature Photonics, 7, 550–554 (2013)

[6] M. Nakatani, A. Nobuhiro, N. Yokoshi and H. Ishihara:

Phys. Chem. Chem. Phys. 15, 8144 (2013)

[7] Y. Osaka, N. Yokoshi, M. Nakatani and H. Ishihara: Phys. Rev. Lett. in press.
