

平成 22 年 4 月 30 日現在

研究種目：特定領域研究

研究期間：2007～2010

課題番号：19049014

研究課題名（和文）局在電磁場と分子系の空間的インタープレイによる光反応制御の理論に関する研究

研究課題名（英文）Theoretical study of chemical-reaction control via spatial interplay between localized electromagnetic field and molecular systems

研究代表者

石原 一 (ISHIHARA HAJIME)

大阪府立大学・大学院工学研究科・教授

研究者番号：60273611

研究分野：光物性理論

科研費の分科・細目：基礎化学・有機化学

キーワード：近接場、励起子、プラズモン、金属ナノギャップ、光学禁制遷移

1. 研究計画の概要

本課題では、金属ナノギャップ等に局在した光電場と分子或いは量子ドットを対等な立場で取り扱う理論的手法により「光-分子強結合場」における光学応答の様相を解明する。具体的には以下の4項目を中心に研究を行う。(1) ナノ空間構造を持つ局在光電場と分子系波動関数の特異な空間相関に基づく分子状態制御の可能性を解明する。(2) 局在光電場による化学反応場形成手段としての輻射力による分子運動制御の可能性を明らかにする。(3) 局在した光電場が誘起する分子励起状態が、ナノ分極配向構造を持つ分子集合系においてどのように伝達するかを解明する。(4) 量子相関を持つ光が光-分子強結合場でどのように発生し、どのように分子系と相互作用するかを明らかにする。

2. 研究の進捗状況

計画に上げた項目毎に進捗を記載する。

(1) まず、金属ナノギャップと分子系が共存する任意形状の試料の光学応答が自己無撞着に計算できる独自の離散双極子近似法を確立した。特に離散メッシュの刻みを多段階にする手法と分子軌道法による波動関数を計算に導入する手法を新たに開発した。その手法によりナノギャップ近傍のダイマー分子が長波長近似の破れにより強い光学禁制遷移を起こすことが分かった。最近ではこれが会合分子や単一分子においても確認できた。また金属ナノギャップにおける電場増強に円偏光選択則があることを発見し、左右円偏光に違いでキラリティーのない分子であっても応答が著しく異なることを明らかにした。さらに、条件により金属の吸収が極

端に抑制され、分子にエネルギーが集中する金属透明化現象を発見した。(2) 特定条件で光運動量と逆方向に試料に力がかかる負の散逸力を発見した。また励起子共鳴を用いることにより単一カーボンナノチューブが室温においてもトラップできること、またそれがカイラリティー選択的に可能であることを明らかにした。さらに単一分子がナノギャップ近傍では室温でトラップ可能な程度に強い力を感じることも、また禁制遷移に共鳴する光の場合にも配向選択性の強い特異な力が働くことが明らかになった。(3) 光合成細菌の光捕集アンテナ系において、アンテナユニットの円環構造が励起エネルギー移動に重要な役割を果たすことを明らかにし、色素が単独で配置される場合に比べ圧倒的に高効率となることが分かった。また、上記以外に量子相関を持つ光が光-分子強結合場でどのように発生し、どのように分子系と相互作用するかを明らかにする研究を行い、光共振器による物質-光強結合場を構築することにより相関光子対生成が桁違いに増強することや、2光子非線形が多自由度系であっても有意に確保される条件が存在することを明らかにした。

3. 現在までの達成度

①当初の計画以上に進展している。
理由：ナノギャップ近傍分子の光学禁制遷移の可能性をはじめ、各計画項目において予定した研究は順調に進捗して、興味深い成果を得ているが、さらに(2)の項目で予想外の成果(負の散逸力)が米国物理学会オンラインニュースにおいて科学記者に取り上げられたり、当初予定になかった相関光子対と光

一分子強結合場の関係で重要な示唆を与える結果が得られ有力ジャーナルに掲載されたことなどから計画以上の進展と言える。

4. 今後の研究の推進方策

今後は特に、これまで得られた成果の実験実証が進むべく実験グループと協同した作業に注力していく。特に以下の項目に力を入れる予定である。(1) 金属ナノギャップにおける禁制遷移などの特異な光学応答について、具体的実験提案を行っていくが、特に、カーボンナノチューブを用いた実験で観測され始めており、実験サポートに向けて対応するモデルでの計算を進める。(2) 金属ナノギャップを用いた量子ドットや分子のトラップ実験が始まっており、対応するモデルを用いた計算による実験サポートを行っていく。その他、幾つかの実験グループとの共同作業を進めるが、いずれも共著論文にまとめることを目標とする。

5. 代表的な研究成果

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 29 件)

- ① M.Ichimiya, M.Ashida, H.Yasuda, H. Ishihara and T.Itoh, Observation of Superradiance by Nonlocal Wave Coupling of Light and Excitons in CuCl Thin Films, Physical Review Letters, 103, 257401 (2009) 査読有
- ② H.Ajiki, T.Iida, T.Ishikawa, S.Uryu and H.Ishihara, Size- and orientation-selective optical manipulation of single-walled carbon nanotubes: A theoretical study, Physical Review B80, 115437 (2009) 査読有
- ③ T.Iida, and H.Ishihara, Unconventional control of excited states of a dimer molecule by a localized light field between metal nanostructures, phys. stat. sol. 206, 980 (2009) 査読有
- ④ T.Iida and H.Ishihara, Theory of resonant radiation force exerted on nanostructures by optical excitation of their quantum states: From microscopic to macroscopic descriptions, Physical Review B77, 245319 (1-16) (2008) 査読有
- ⑤ H.Oka and H.Ishihara, Highly efficient generation of entangled photons by controlling cavity bipolariton states, Physical Review Letters, 100, 170505 (2008) 査読有
- ⑥ A.Ishikawa and H.Ishihara, Design of Many-Atom Cavity QED Systems for Strong Two-Photon, Physical Review Letters, 100, 203602 (2008) 査読有

[学会発表] (計 91 件)

- ① H.Ishihara, Anomalous radiative correction of multinode-type excitons in nano-to-bulk crossover regime, The First International Conference on Material and Information Sciences in High Technologies, Baku Azerbaijan, September 28, 2007 [invited]
- ② H.Ishihara, Light-exciton coupling in nano-to-bulk crossover regime, 8th International Conference on Excitonic Processes in Condensed Matter (EXCON'08), Kyoto, June 27, 2008 [invited]
- ③ H.Ishihara, T.Iida and H.Ajiki, Theory of optical nano trapping, International Conference Organic Nanophotonics (ICON2009), St. Petersburg, Russia, June 23, 2009 [invited]
- ④ 石原一, 局在光電磁場と分子空間構造のインタープレイを通じた励起状態制御, 第56回応用物理学関係連合講演会シンポジウム講演会「ナノ・マイクロ構造を利用した効率的な光エネルギー変換」, 筑波大学 筑波キャンパス 2009年4月1日
- ⑤ 石原一, 局在光電場による分子の励起状態及び力学的運動の操作, 第57回応用物理学関係連合講演会シンポジウム講演会「プラズモニクスと分子制御」, 東海大学 湘南キャンパス 2010年3月17日

[図書] (計 2 件)

著者名:T. Iida and H. Ishihara
出版社:Springer-Verlag
書名:Nano-Optical Manipulation Using Resonant Radiation Force", in Progress in Nano-Electro-Optics VI: Nano Optical Probing, Manipulation, Analysis, and Their Theoretical Bases
総ページ数:54, 発行年:2008

著者名:石原一
出版社:JILS(強光子場科学研究懇親会)出版
書名:光科学研究の最前線 2
総ページ数:258, 発行年:2009

[産業財産権]

- 出願状況 (計 3 件)
名称:キラル物質の異性体分離方法及びその装置
発明者:石原一, 飯田琢也, 江口弘樹
権利者:大阪府立大学, 科学技術振興機構
種類:特願 2007
番号:322384
出願年月日:2007年12月13日
国内外の別:国内
- 取得状況 (計 1 件)