

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 6 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2017

課題番号：15K13505

研究課題名(和文) 赤外太陽光-可視コヒーレント光直接変換機構の理論的実証

研究課題名(英文) Theoretical study of the conversion mechanism between infrared incoherent sunlight and visible coherent light

研究代表者

石原 一 (ISHIHARA, Hajime)

大阪大学・基礎工学研究科・教授

研究者番号：60273611

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：金属微細構造による光アンテナによって赤外インコヒーレント光を「可視域で発光する分子」に凝集させ、可視「コヒーレント」光に変換する、全く新しい光学過程の機構を理論実証することを目的とし、次の成果を得た。すなわち、アンテナ-分子結合系で分子を直接駆動する形式において非定常過程を利用した放射特性の解析を行い、連続入射光を反転分布形成後、急速に遮断することで、上方変換的な放射に加え、二準位系の数が増大した場合、超蛍光様の協力発光が起こることを明らかにし、当初狙いの効果を理論実証した。さらに分子の具体的空間配置に応じた遅延効果を正しく考慮した超蛍光の計算が出来る手法を初めて開発することに成功した。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this study is to theoretically demonstrate a coherent emission of visible light associated with up-conversion of the incoherent infrared sunlight by using quantum mechanical coupling of optical antennas and molecules. Base on this purpose, we have obtained the following results: Rapid truncation of incident light after the continuous excitation of molecules (that are coupled with the antenna), the up-converted photo-emission occurs from the inversely populated molecules. If the number of molecules is large enough, the emission becomes superfluorescence; namely, the coherent light is emitted, which indicates our achievement of purpose. Further, we have successfully developed a new theoretical method to study the cooperative emission from the spatially dispersed molecular ensemble in the geometrically designed mediators.

研究分野：光物性理論、非線形光学理論、量子光学理論

キーワード：光アンテナ 波長変換 局在プラズモン コヒーレント光 超蛍光

1. 研究開始当初の背景

本提案は、申請者等が独自に見出した光アンテナと分子の量子力学的結合に基づいた現象が基礎になっている。近年、金属微細構造や金属ナノギャップ近辺で強く増強するプラズモン電場を用いた単一分子分光や高感度センサーなどの研究が盛んに行われている。これら金属構造による光アンテナ効果を利用する従来の研究では通常、金属アンテナで増強した光電場が分子や量子ドットなどに一方向的に作用する描像に基づく観点からのものが主流であった。一方、申請者はアンテナと吸収体(発光体)が量子力学的に結合して互いに影響を与えることを考慮した新たな枠組みにより、従来の描像からは予見できなかった特異な光励起過程が生じることを見いだしていた。また初等的モデルにより、アンテナを介し可視域で発光する分子を、赤外光によって反転分布まで励起でき、さらには、これが波長変換を伴って実際に発光することを明らかにしていた。

2. 研究の目的

赤外太陽光エネルギーの効率的利用技術に関しては多様な研究分野で重要な課題となっている。本研究の目的は、金属微細構造による光アンテナによって赤外インコヒーレント光を「可視域で発光する分子」に凝集させ、可視「コヒーレント」光に変換する、全く新しい光学過程の機構を理論実証することである。基礎となる機構は申請者らが独自に見いだした、金属アンテナ-ナノ構造(量子ドット、分子)結合系の量子力学的干渉効果による特異なエネルギー捕集機構と、波長変換を伴う分子の発光現象である。目標の機構が実証されれば、赤外太陽光を高効率捕集して波長変換し、かつ高品質エネルギー流であるコヒーレント光を生成する画期的な赤外利用技術へ結びつくこと期待される。

3. 研究の方法

本研究では、最近申請者のグループで開発に成功した全量子論的な離散双極子近似計算法や遅延効果を含む超蛍光理論を駆使し、金属アンテナや発光体の幾何学的構造を含む現実的物質パラメータを導入して「コヒーレント光変換機構」の理論的実証を行った。

4. 研究成果

[1]これまで申請者は、アンテナ-分子-応答場の三体の自己無撞着相互作用を考えることで、二準位系に反転分布が形成でき、さらに上方変換的な出力が現れることを明らかにしてきた。初年度にはアンテナモデルについて、実験結果を再現可能なパラメータで表し、入射光をパルス光源へと拡張した。その結果、レーザー発振可能な利得がある反転分布状態が形成でき、また、コヒーレント光源素子へのデバイス化の提案に向けて複数分子系への拡張手法を構築した。また二年目には、励起

対象である二準位系が複数存在している場合においても、単一の二準位系の場合と同様に反転分布が形成できることが明らかになった。

[2]ナノギャップに分子が配置され、二光子上方変換が起こる系を多数配置した場合のモデル計算を行った。通常は分子数が増えると少数光子非線形性は減退するが、アンテナ効果による横場を介した強い分子間相互作用により準位分裂が起こることでむしろ広面積を活かした(太陽光程度の入射でも可能な)高効率な上方変換が起こることを明らかにした。また、分子を直接駆動する形式において非定常過程を利用した放射特性の解析を行い、連続入射光を反転分布形後、急速に遮断することで、上方変換的な放射に加え、二準位系の数が増大した場合、超蛍光様の協力発光が起こることを明らかにした。このことから、本課題で目的とした上方変換的なコヒーレント光源を実現する物理機構の存在を理論実証することに成功した。

[3]多数の分子の協力放射が高効率に起こる配置の設計を行い、一例として誘電体球の Whispering Gallery Modes と結合した多分子系が自由空間に比べて桁違いに効率的に協力放射を起こすことを明らかにした。またこの際に、分子の具体的空間配置に応じた遅延効果を正しく考慮した超蛍光の計算が出来る手法を初めて開発した。これにより、遅延効果が存在する場合の協力現象が従来知られた超蛍光と異なる多彩な振る舞いを示すことを明らかにした。

以上の結果の論文化、及び学会発表、さらに実験グループとの実証へ向けた協議が、30年度からの基盤研究(B)の採択に結びついた。具体的には超蛍光の基礎となる物理機構である量子結合系の同期現象を記述する一般的な理論とその応用のデモンストレーションを行った論文が Physical Review Letters に掲載され、関連の発表を、学会、国際シンポジウムで招待講演として行った。同様に、波長を上方変換してコヒーレント光として発光させる機構についても論文投稿し、現在審査中である。また、その結果についても内外学会における招待講演において発表を行った。さらに実験グループとは、超流動ヘリウム中で作成が可能な ZnO 単結晶微小球などを用いて上記物理機構を統合し、微弱光を波長変換的にコヒーレント光に変換する実験計画を策定し、本研究課題で理論実証する事が出来た「赤外太陽光-可視コヒーレント光直接変換機構の理論的実証」へむけての予備実験を開始することにした。

5. 主な発表論文等

(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12件)

- ①. T. Matsuda and H. Ishihara, Proposal of highly efficient photoemitter with strong photon-harvesting capability and exciton superradiance, *Applied Physics Letters*, 査読有, 111, 2017, 063108-1~4
DOI: 10.1063/1.4998444
- ②. N. Yokoshi, K. Odagiri, A. Ishikawa and H. Ishihara, Synchronization Dynamics in a Designed Open System, *Physical Review Letters*, 査読有, 118, 2017, 203601(1~5)
DOI: 10.1103/PhysRevLett.118.203601
- ③. T. Kinoshita and H. Ishihara, Design of nonlinear optical response of multipole-type excitons by film thickness and incident pulse width, *Physical Review B*, 査読有, 95, 2017, 155418(1~6)
DOI: 10.1103/PhysRevB.95.155418
- ④. N. Yokoshi, k. Odagiri, A. Ishikawa and H. Ishihara, Synchronization Dynamics in a Designed Open System, *Physical Review Letters*, 118, 査読有, 2017, 203601(1~5)
DOI: 10.1103/PhysRevLett.118.203601
- ⑤. T. Kinoshita and H. Ishihara, Radiative coupling of A and B excitons in ZnO, *Physical Review B*, 査読有, 94, 2016, 045441(1-9)
DOI: 10.1103/PhysRevB.94.045441
- ⑥. Y. Osaka, N. Yokoshi and H. Ishihara, Two-photon upconversion affected by intermolecule correlations near metallic nanostructures, *Physical Review B*, 査読有, 93, 2016, 155420(1-9)
DOI: 10.1103/PhysRevB.93.155420
- ⑦. T. Matsuda, N. Yokoshi and H. Ishihara, Upconverted photoluminescence induced by radiative coupling between excitons, *Journal of Physical Society of Japan*, 査読有, 93, 2016, 155418(1-11)
DOI: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.93.155418>
- ⑧. A. Ishikawa, K. Miyajima, M. Ashida, T. Itoh and H. Ishihara, Theory of Superfluorescence in Highly Inhomogeneous Quantum Systems, *Journal of Physical Society of Japan*, 査読有, 85, 2016, 034703(1-9)
DOI: <http://doi.org/10.7566/JPSJ.85.034703>
- ⑨. N. Murata, R. Hata and H. Ishihara, Crossover between Energy Transparency Resonance and Rabi Splitting in Antenna-Molecule Coupled Systems, *The Journal of Physical Chemistry C*, 査読有, 119, 2015, 25493-25498
DOI: 10.1021/acs.jpcc.5b08590
- ⑩. Y. Osaka, N. Yokoshi and H. Ishihara, Radiation-Induced Correlation between Molecules Nearby Metallic Antenna Array, *International Journal of Antennas and Propagation*, 査読有, 2015, 2015, 747580(1-6)
DOI: <http://dx.doi.org/10.1155/2015/747580>
- ⑪. M. Hoshina, N. Yokoshi and H. Ishihara,

Remarkable nonlinear optical effect in plasmon-assisted radiation force, *Optical Trapping and Optical Micromanipulation XII*, 査読有, 9548, 2015, 954827(1-6)
DOI: 10.1117/12.2187768

⑫. Y. Osaka, N. Yokoshi and H. Ishihara, Induced correlation between molecules in different plasmonic fields, *Journal of Physics: Conference Series*, 査読有, 619, 2015, 012059(1-4)
DOI: 10.1088/1742-6596/619/1/012059

〔学会発表〕(計50件)

- ①. 余越伸彦、藤井良一、石原一, 薄膜多層構造内に配置された多量子ドットからの発光ダイナミクス, 日本物理学会第73回年次大会, 2018年
- ②. 高橋拓也、松田拓也、木下岳、一宮正義、石原一, ZnO 薄膜における多成分励起子混成効果の過渡回折格子分光法による観測, 日本物理学会第73回年次大会, 2018年
- ③. 松田拓也、一宮正義、芦田昌明、石原一, 高品質薄膜の室温発光スペクトルにおける励起子コヒーレンスの顕現, 日本物理学会第73回年次大会, 2018年
- ④. 久宗穂高、石原一, ファイバモードと結合した多量子ドット系における相関の実時間解析, 日本物理学会第73回年次大会, 2018年
- ⑤. 石原一, 光を捉えるナノ構造、光が捉えるナノ物質, 第8回電磁メタマテリアル講演会(招待講演), 2018年
- ⑥. 高橋拓也、松田拓也、一宮正義、石原一、中山正昭、芦田昌明, ZnO 薄膜における光と励起子の空間的インタープレイによる超高速非線形光学応答の観測, レーザー学会学術講演会第38回年次大会, 2018年
- ⑦. 藤井良一、余越伸彦、石原一, 層状の不均一空間構造がある系における超蛍光の理論, 第28回光物性研究会, 2017年
- ⑧. 松田拓也、一宮正義、芦田昌明、石原一, 高品質半導体薄膜の室温発光スペクトルに表出する励起子コヒーレンスの実証, 第28回光物性研究会, 2017年
- ⑨. 余越伸彦、保科政幸、石原一, 多端子金属構造への光照射とナノ光渦生成機構, 日本物理学会2017年秋季大会, 2017年
- ⑩. 藤井良一、小田切和喜、畑遼介、余越伸彦、石原一, 光共振器内に配置された量子ドットからの超蛍光, 日本物理学会2017年秋季大会, 2017年
- ⑪. 木下岳、石原一, 高効率光キャリア生成の実証に向けた金属ナノ構造における非局所応答の理論構築, 日本物理学会2017年秋季大会, 2017年
- ⑫. 御輿晃、余越伸彦、石原一, 短波長域における固体結晶超蛍光の理論, 日本物理学会2017年秋季大会, 2017年
- ⑬. 久宗穂高、余越伸彦、石原一, 無限円柱状散乱体の表面に配置された粒子からの超蛍

光, 日本物理学会 2017 年秋季大会, 2017 年

⑭. 松浦朋輝、興松涼太、福島宏一、中島龍也、東海林篤、石原一, 誘電率非対角項に実部を有する円筒状磁性誘電体の二次元配列構造による光学応答, 日本物理学会 2017 年秋季大会, 2017 年

⑮. 松田拓也、高橋拓也、一宮正義、芦田昌明、石原一, 光と励起子の長距離結合による室温超高速発光の観測, 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会, 2017 年

⑯. T. Matsuda and H. Ishihara, Optical properties in exciton-light-plasmon coupled system in a metal- CuCl heterostructure, 18th International Conference on Physics of Light-Matter Coupling in Nanostructures (国際学会), 2017 年

⑰. T. Matsuda, T. Takahashi, M. Ichimiya, M. Ashida and H. Ishihara, Ultrafast-photoluminescence-decay modes surviving up to room temperature due to strong nonlocal correlation between exciton and light, The 6th Hsinchu Summer Course & Workshop (国際学会), 2017 年

⑱. H. Ishihara, Designed photoemission processes by anomalous light-matter coupling, The Second A3 Metamaterials Forum (招待講演) (国際学会), 2017 年

⑲. 高橋拓也、松田拓也、一宮正義、石原一、芦田昌明, ナノとバルクのクロスオーバー領域におけるCuCl励起子発光の温度依存性, 日本物理学会2017年春季大会, 2017年

⑳. 湯川大輝、余越伸彦、後藤佑太郎、石原一, 半導体中の電子スピン伝導における定常光渦照射の影響, 日本物理学会2017年春季大会, 2017年

㉑. 藤井良一、小田切和喜、余越伸彦、石原一, モデル化した光検出器による超蛍光の強度分布解析, 第27回光物性研究会, 2016年

㉒. 松田拓也、石原一, 光捕集と励起子超放射による金属-誘電体多層膜における高効率発光素子構造の提案, 第27回光物性研究会, 2016年

㉓. 木下岳、松田拓也、石原一, 薄膜中の面欠陥に局在した束縛励起子と自由励起子の光結合, 第27回光物性研究会, 2016年

㉔. T. Matsuda, T. Yanoa and H. Ishihara, Drastic energy concentration in plasmonic-excitonic composite multilayered structure, 13th International Workshop on Nonlinear Optics and Excitation Kinetics in Semiconductors (NOEKS13), 2016 年

㉕. T. Kinoshita, T. Matuda and H. Ishihara, Radiative coupling of free and bound excitons, 13th International Workshop on Nonlinear Optics and Excitation Kinetics in Semiconductors (NOEKS13), 2016 年

㉖. R. Hata, H. Ajiki, N. Yokoshi and H. Ishihara, Second-order coherence of radiation field from population-inverted two-level systems with frequency up-conversion, 13th International

Workshop on Nonlinear Optics and Excitation Kinetics in Semiconductors (NOEKS13), 2016 年

㉗. N. Yokoshi, K. Odagiri, A. Ishokawa and H. Ishihara, Cooperative fluorescence of optical emitters exposed by whispering gallery modes, 13th International Workshop on Nonlinear Optics and Excitation Kinetics in Semiconductors (NOEKS13), 2016 年

㉘. 湯川大輝、余越伸彦、石原一, 軌道角運動量を持つ光渦による半導体GaAsのキャリア励起選択則, 日本物理学会2016年秋季大会, 2016年

㉙. 藤井良一、小田切和喜、余越伸彦、石原一, 遅延効果を取り入れた超蛍光理論による実空間解析, 日本物理学会2016年秋季大会, 2016年

㉚. 興松涼太、福島宏一、中島龍也、東海林篤、石原一, 円筒状磁性・非磁性誘電体の二次元配列構造体における集光ビームの伝搬, 日本物理学会2016年秋季大会, 2016年

㉛. 後藤佑太郎、余越伸彦、石原一, 磁気秩序系の物性に対する光渦照射の影響, 日本物理学会2016年秋季大会, 2016年

㉜. 松田拓也、高橋拓也、一宮正義、芦田昌明、石原一, CuClの励起子コヒーレント光結合効果による高次閉じ込め準位からの超高速発光ダイナミクス, 日本物理学会2016年秋季大会, 2016年

㉝. 畑遼介、余越伸彦、安食博志、石原一, 波長変換的に反転分布した二準位系による出力光の二次コヒーレンス特性, 日本物理学会2016年秋季大会, 日本物理学会2016年秋季大会, 2016年

㉞. H. Ishihara, Manipulation of nanostructures by resonant optical responses, The First Symposium of Chiral Molecular Science and Technology in Chiba University (招待講演), 2016 年

㉟. 余越伸彦、小田切和喜、石川陽、石原一, 誘電体球上の 2 準位粒子の協力発光現象, 日本物理学会 2016 年春季大会, 2016 年

㊱. 保科政幸、余越伸彦、石原一, 金属光のアンテナ近傍におけるナノ粒子の非線形光学応答を利用した運動制御, 日本物理学会 2016 年春季大会, 2016 年

㊲. 畑遼介、余越伸彦、安食博志、石原一, 反転分布した二準位系の波長変換的な協力放射, 日本物理学会 2016 年春季大会, 2016 年

㊳. Y. Osaka, N. Yokoshi and H. Ishihara, Two-photon up-conversion affected by intermolecule correlations near metallic nanostructure, American Physical Society March Meeting 2016 (APS 2016), 2016 年

㊴. 保科政幸、余越伸彦、石原一, 金属ナノ構造体を用いたプラズモン光マニピュレーションの輻射力理論-非線形光学効果-, 第 26 回光物性研究会, 2015 年

㊵. 小田切和喜、余越伸彦、石川陽、石原一, 誘電体球上に配置した多粒子における超蛍光の解析, 第 26 回光物性研究会, 2015 年

- ④1. 畑遼介、余越伸彦、安食博志、石原一、
離調共振器中の二準位系の上方変換的な協力
放射, 第 26 回光物性研究会, 2015 年
- ④2. 逢坂良樹、余越伸彦、石原一、分子間相
関を考慮したアンテナ増強 2 光子上方変換,
第 26 回光物性研究会, 2015 年
- ④3. 逢坂良樹、余越伸彦、石原一、分子間相
相互作用を考慮したアンテナ-分子結合系にお
ける上方変換, 日本物理学会 2015 年秋季大会,
2015 年
- ④4. 保科政幸、余越伸彦、石原一、金属アン
テナ近傍のナノ粒子に誘起される輻射力の理
論, 日本物理学会 2015 年秋季大会, 2015 年
- ④5. M. Hoshina, N. Yokoshi and H. Ishihara,
Noticeable nonlinear optical effect in
plasmon-assisted radiation force, SPIE is
Metamaterials, Metadevices, and Metasystems
2015 "NanoScience + Engineering", 2015 年
- ④6. R. Hata and H. Ishihara, Population inversion
and Up-converted Luminescence of a Two-level
System Coupled with an Anharmonic Auxiliary
System, The 10th Principles and Applications of
Control in Quantum Systems Workshop
2015(PRACQSYS 2015), 2015年
- ④7. R. Hata, H. Ajiki, N. Yokoshi and H. Ishihara,
Luminescent Activities of a Two-level Molecule
with Population Inversion, 11th International
Conference on Excitonic and Photonic Processes
in Condensed Matter and Nano Materials
(EXCON2015), 2015 年
- ④8. Y. Osaka, N. Yokoshi and H. Ishihara Optical
frequency conversion dynamics affected by
inter-molecule correlations near a metallic
nanostructure, 11th International Conference on
Excitonic and Photonic Processes in Condensed
Matter and Nano Materials (EXCON2015), 2015
年
- ④9. M. Hoshina, N. Yokoshi and H. Ishihara,
Strong nonlinear effect in optical radiation force
induced by localized surface plasmons, Optical
Manipulation Conference (OMC '15), 2015 年
- ⑤0. R. Hata, N. Murata and H. Ishihara,
Crossover Behavior Between the Molecular
Absorption Spectra of Rabisplitting and Energy
Transparency, Optical Manipulation Conference
(OMC '15), 2015 年

〔図書〕(計 2 件)

著者名：石原一、余越伸彦、逢坂良樹
出版者：日本工業出版(株)
書名：光アンテナ効果による分子励起過程の
制御と新奇光機能の創出 =分子による超高
効率光吸収をめざして=
発行年：2015 年
総ページ数：64(24-29)

著者名：石原一、余越伸彦、逢坂良樹
出版者：S&T 出版
書名：光アンテナによる微弱な光の高効率波
長変換

発行年：2016 年
総ページ数：212(142-154)

〔産業財産権〕
○出願状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究代表者

石原 一 (ISHIHARA, Hajime)
大阪府立大学・工学研究科・教授
研究者番号：60273611

(2)研究分担者