

# 光で操るナノ物質のミクロな状態

- 光エネルギー透過と微弱光非線形応答

# 金属光アンテナの特性と問題

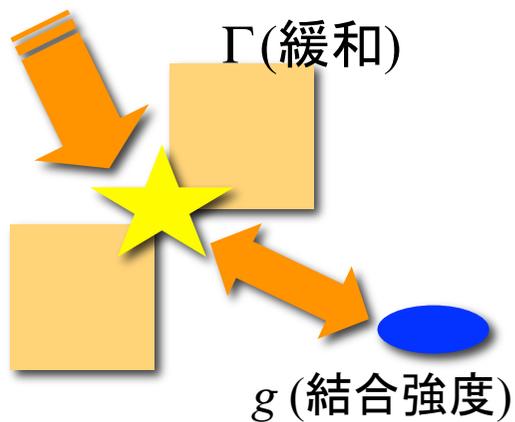
## 光アンテナにおける局在プラズモン共鳴の特徴

- 強い電場増強
- 強い電場勾配
- ナノメータースケールの局在

少数光子で分子を励起する優れた特性

## 金属光アンテナの問題点

- 大きな散乱ロス
- 速い非輻射散逸



直感的には

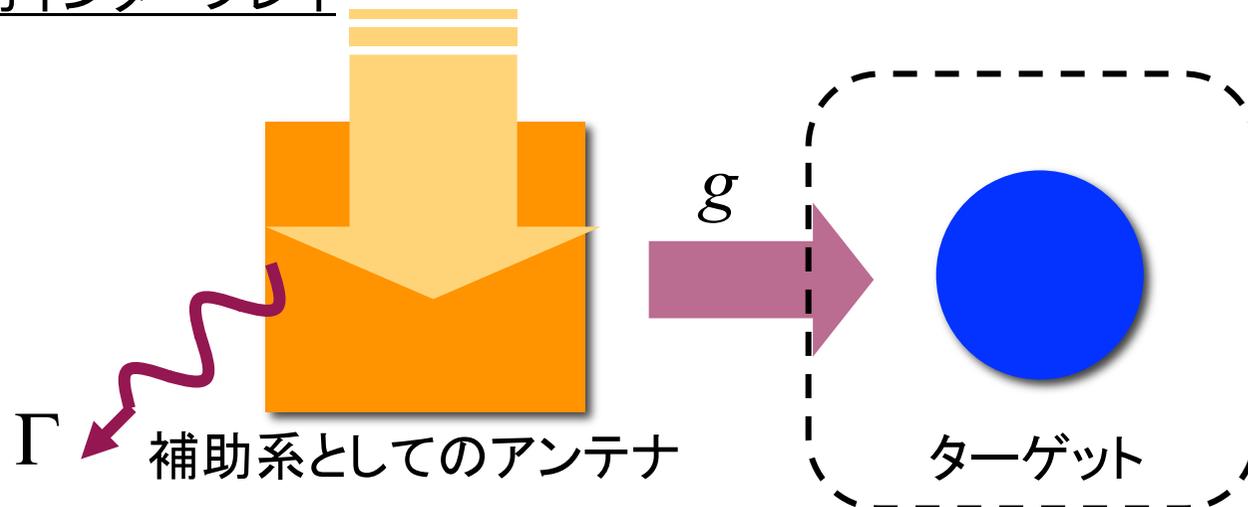
$$\Gamma \gg g$$



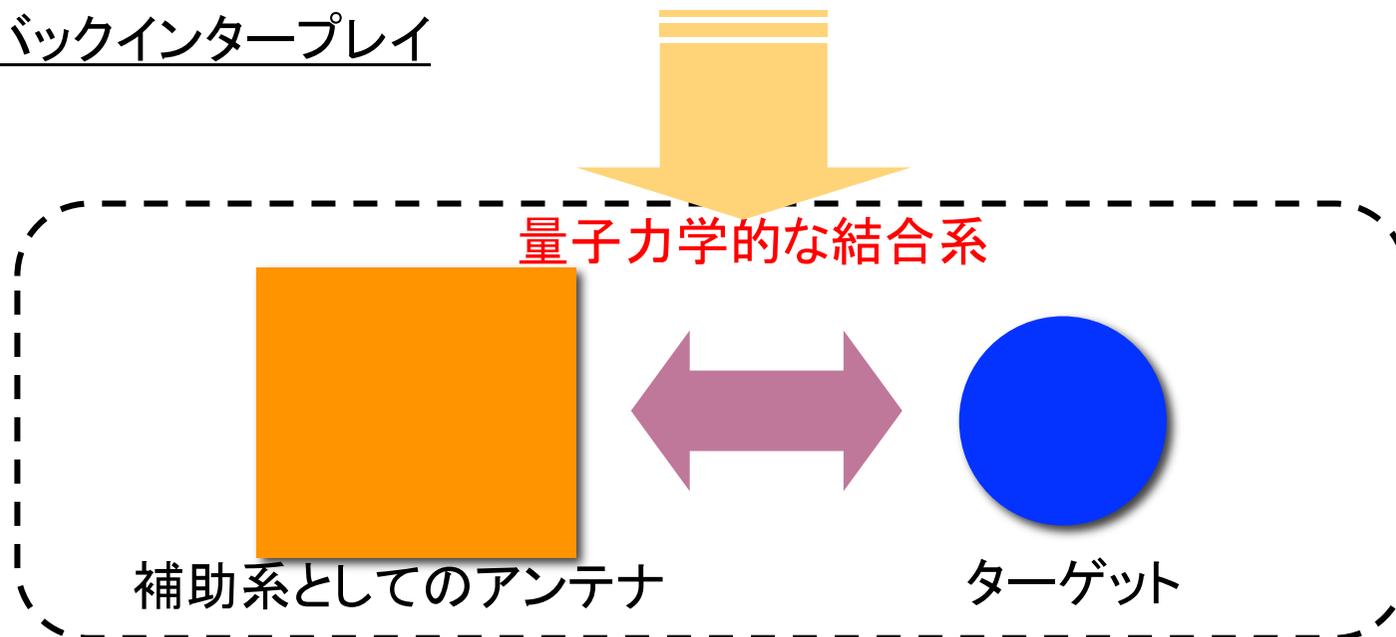
エネルギー移動の阻害

# 光アンテナと分子のフィードバック的インタープレイ

## 一方向的インタープレイ



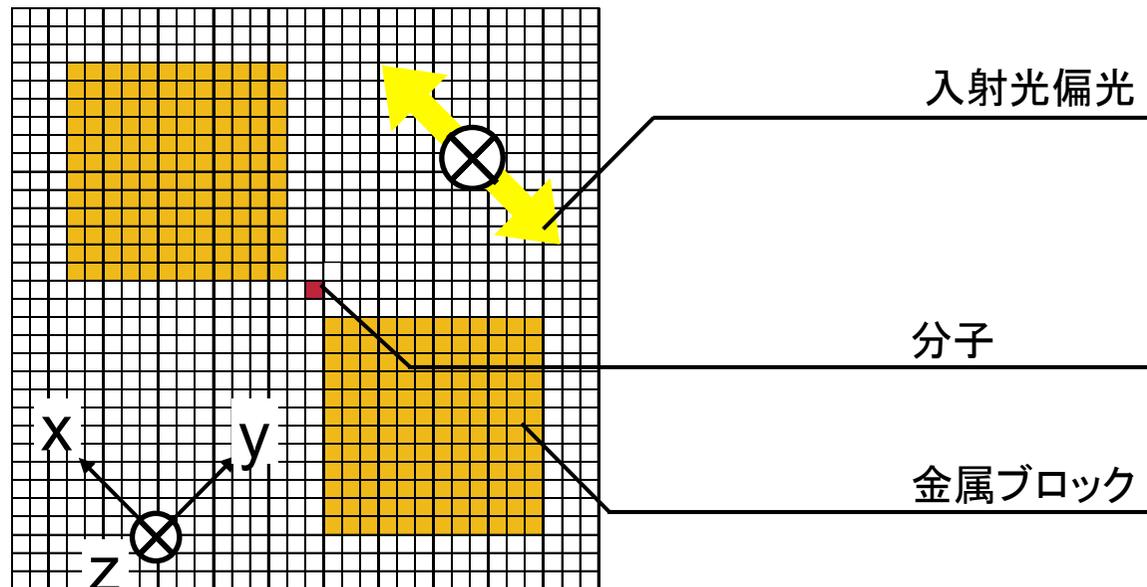
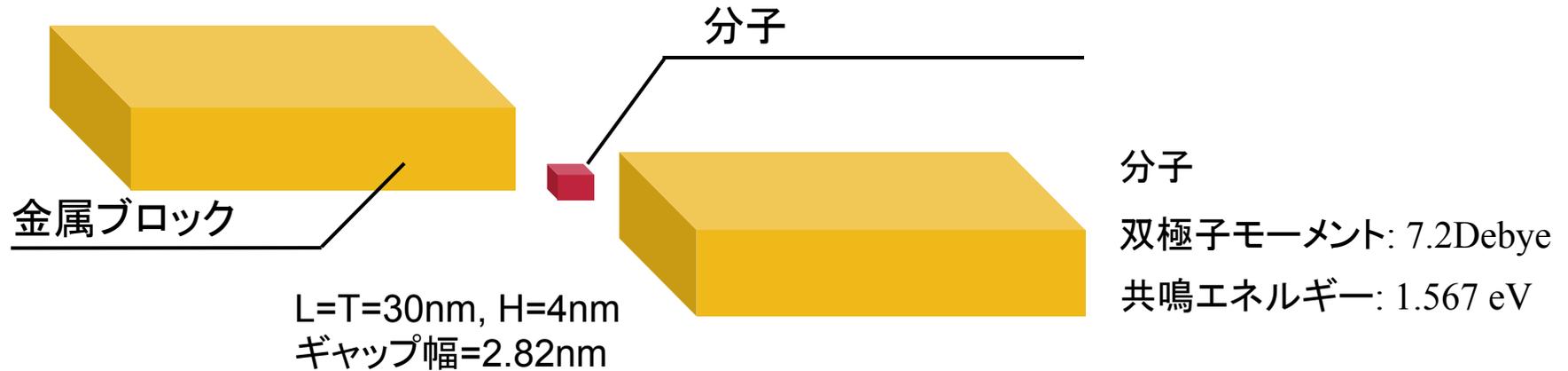
## フィードバックインタープレイ



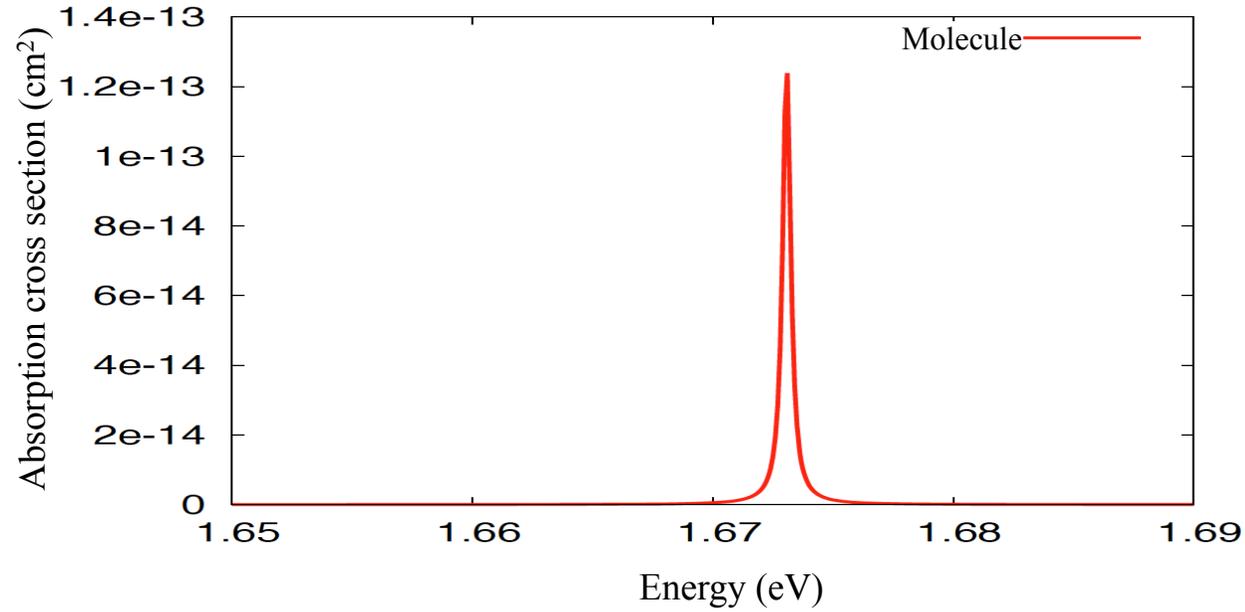
# アンテナ分子結合系のモデル

H. Ishihara, A. Nobuhiro, M. Nakatani and Y. Mizumoto  
J. Photochem. Photobio. A: Chemistry **211**, 148 (2011)

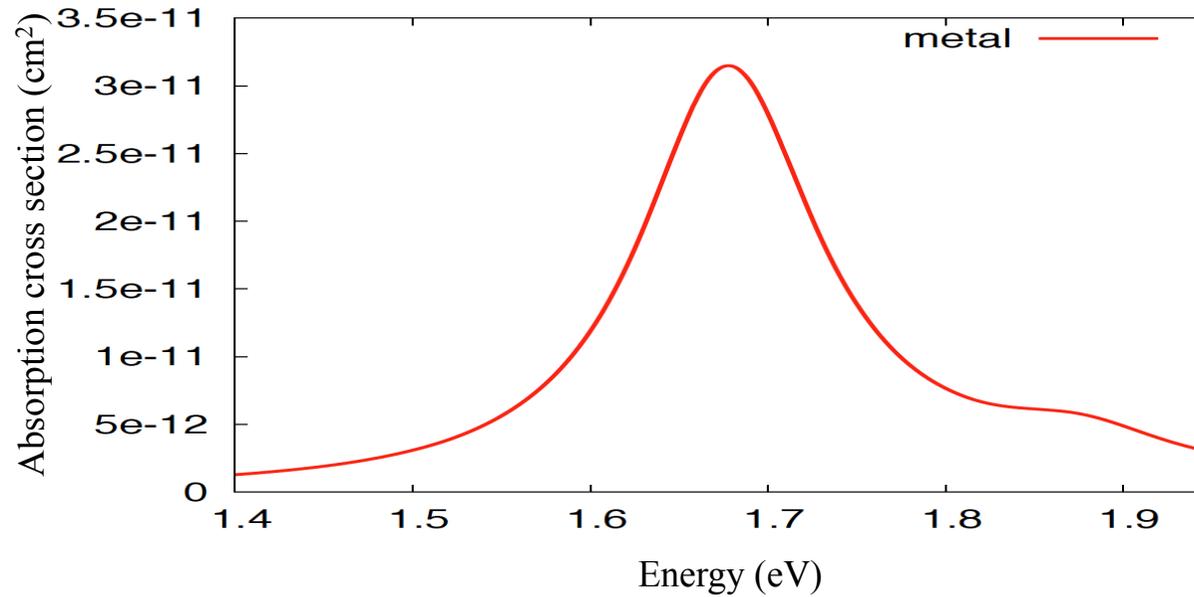
石原一 「応用物理」解説記事 Vol. 80, 779 (2011)



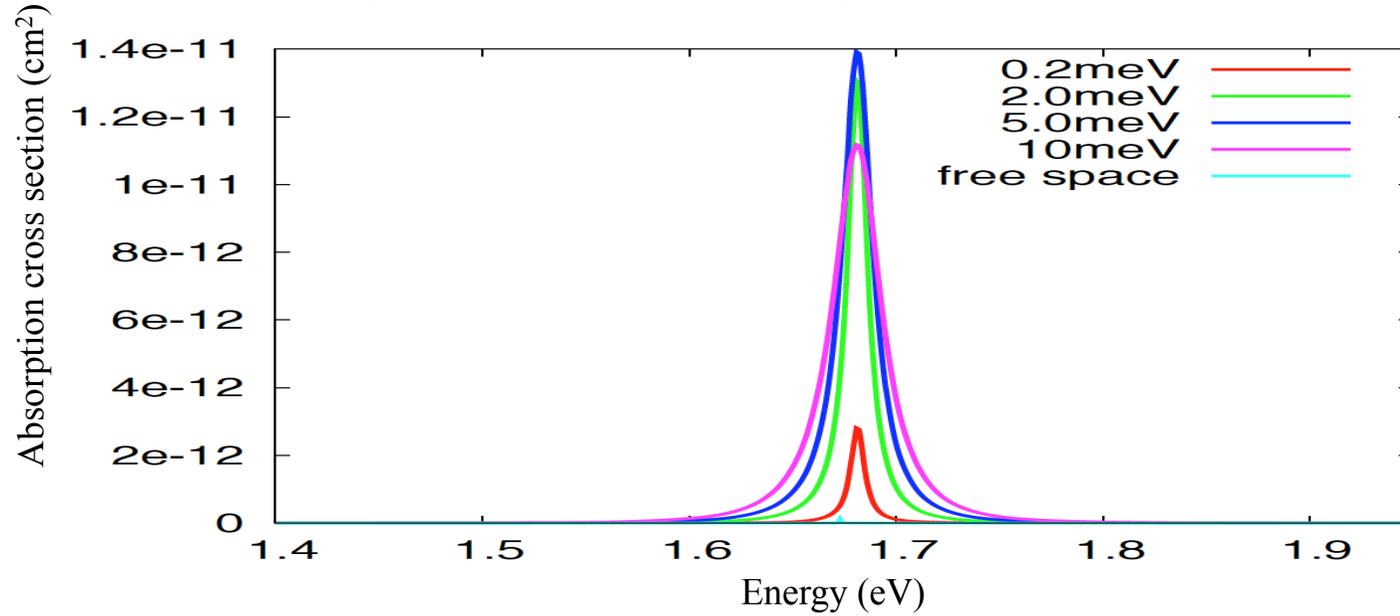
## 自由空間における分子の吸収スペクトル



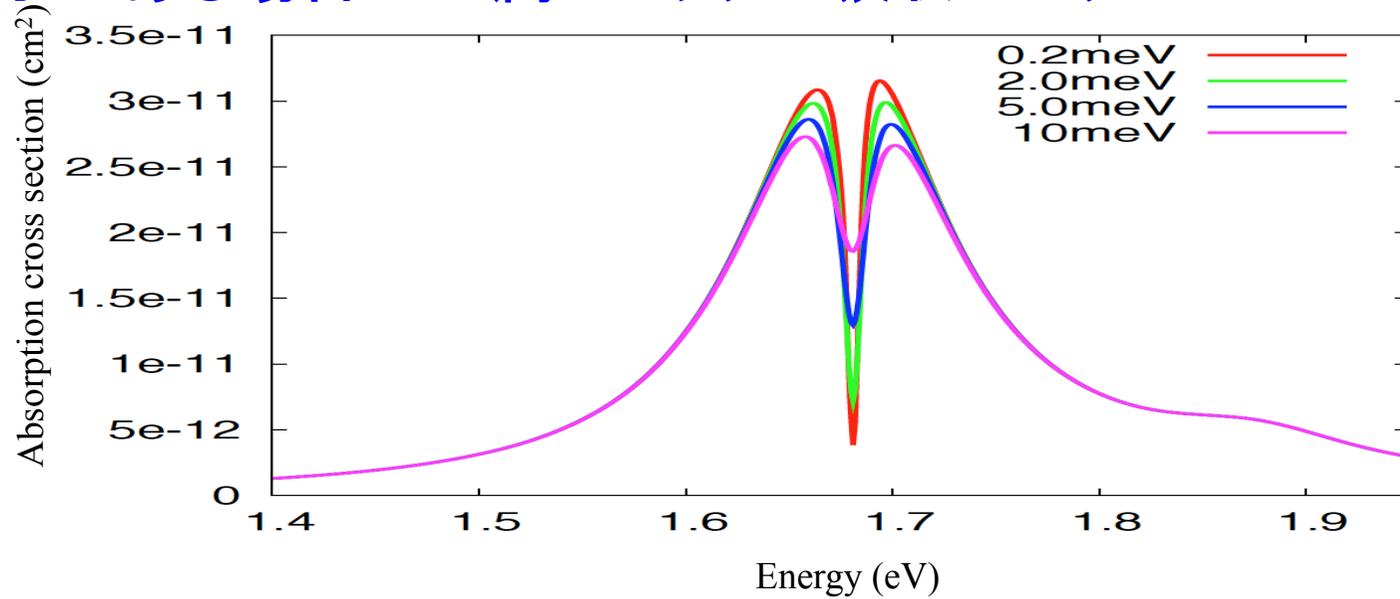
## 分子が無い場合の金属ブロックの吸収スペクトル



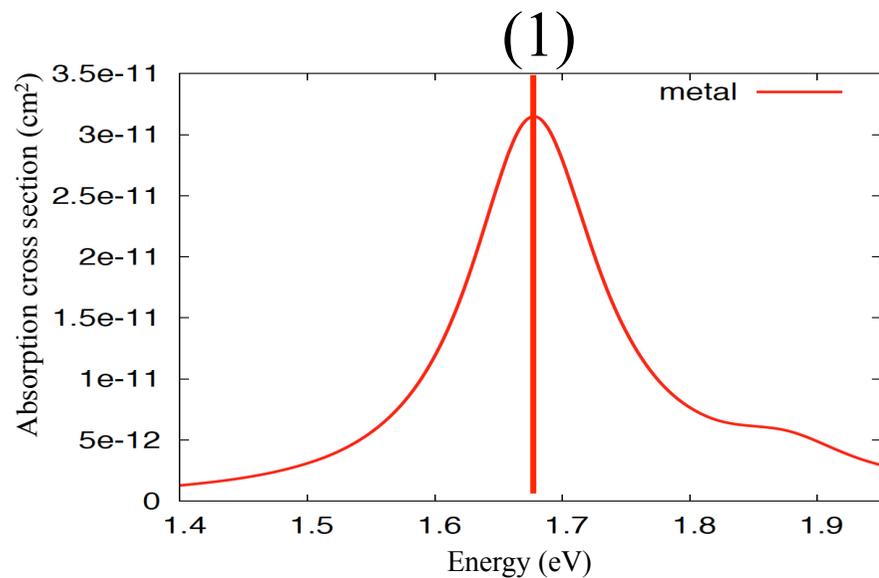
## ナノギャップ近傍における分子の吸収スペクトル



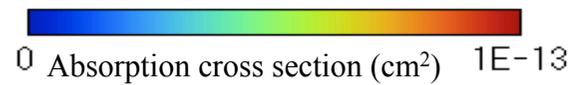
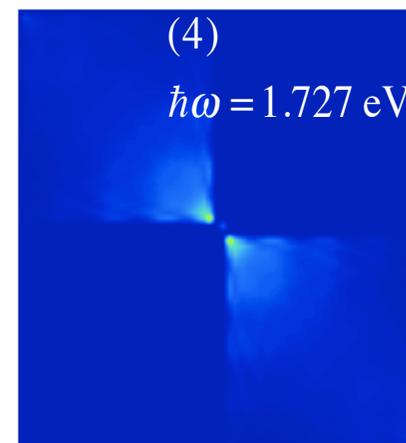
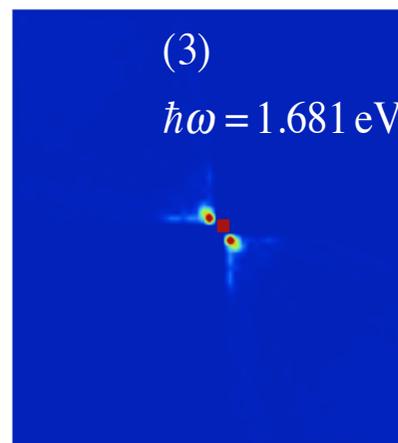
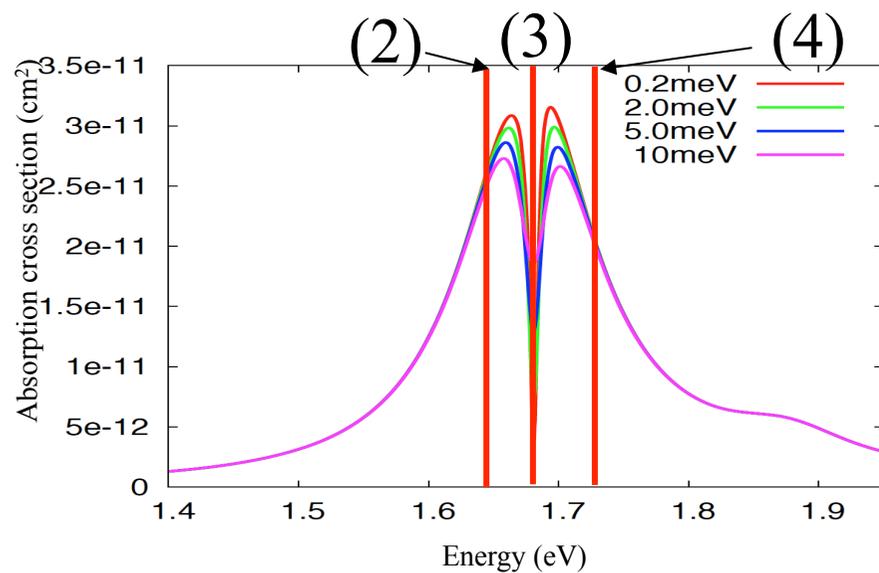
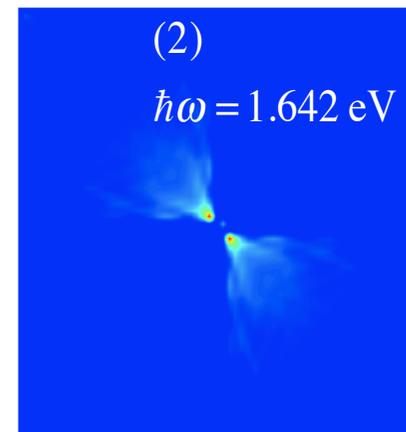
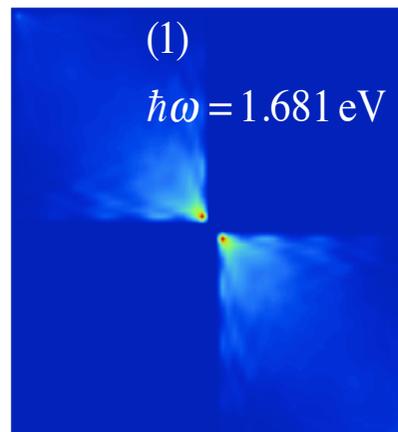
## 分子がある場合の金属ブロックの吸収スペクトル



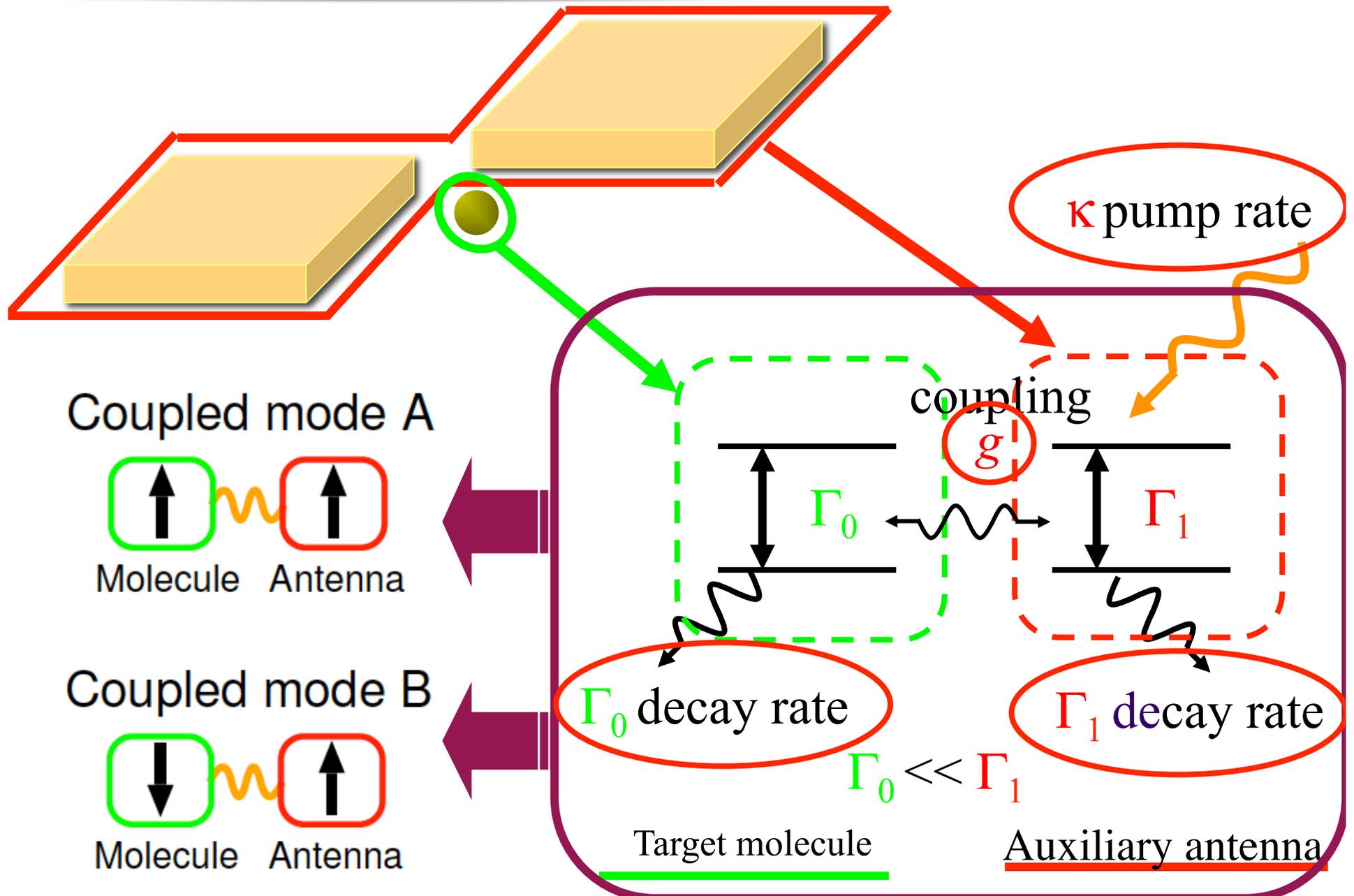
# 吸収断面積の空間マップ

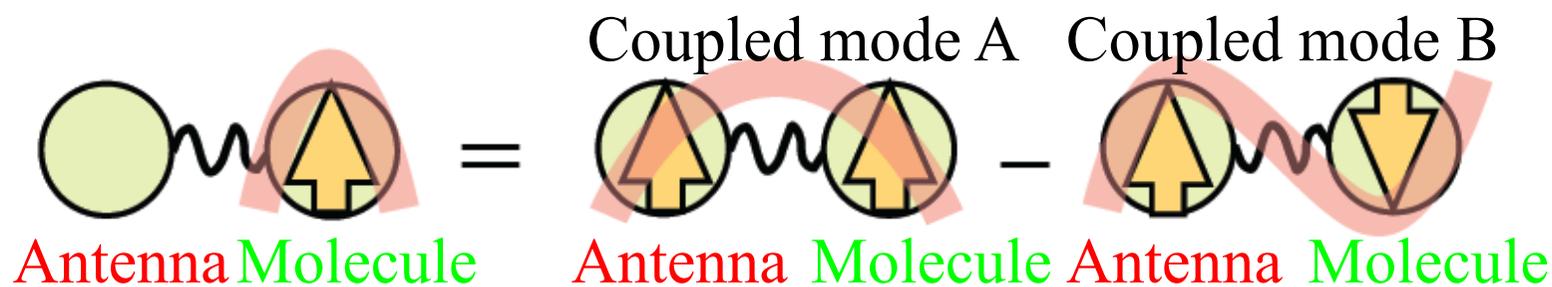
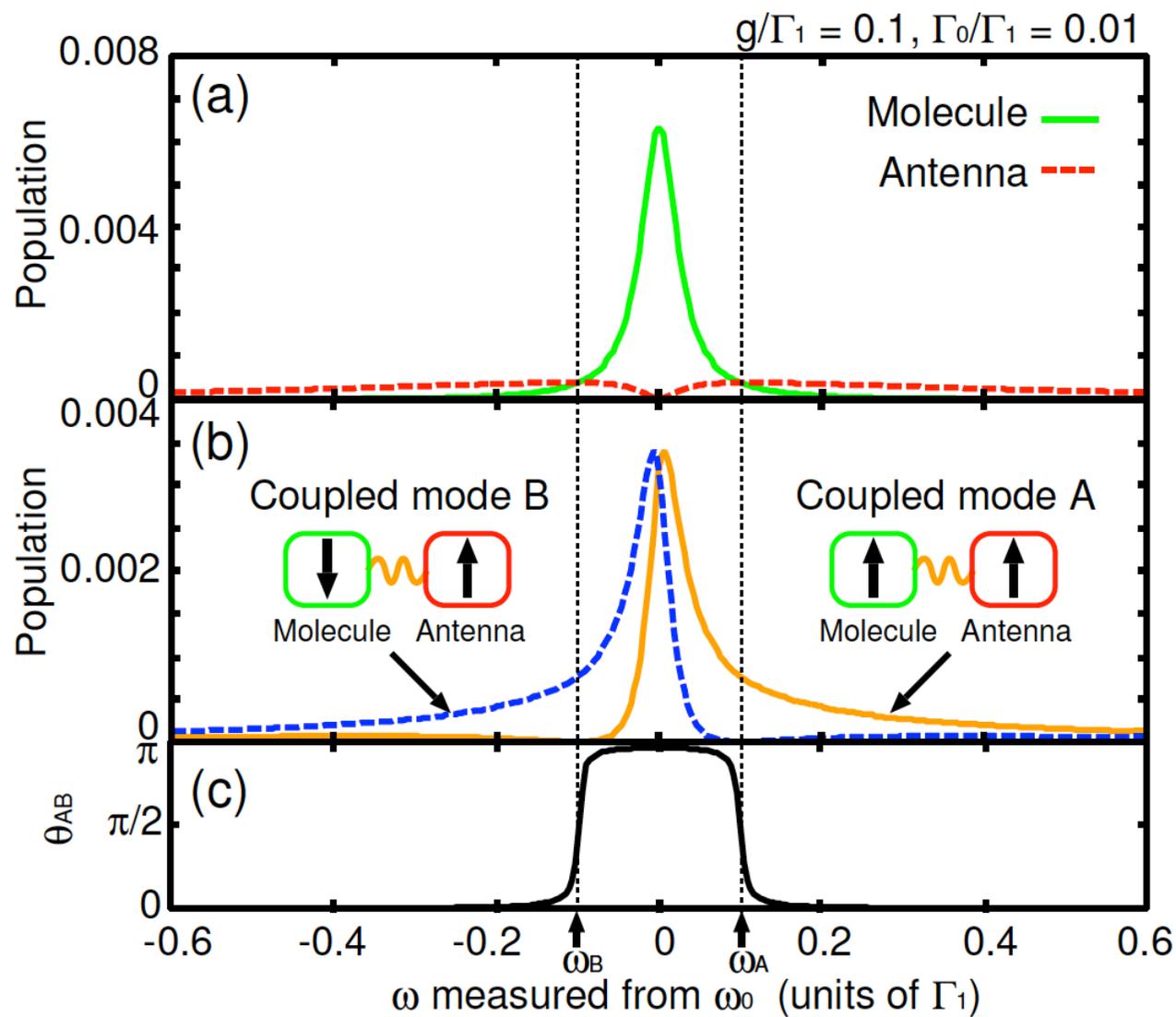


$\Gamma = 0.2 \text{ meV}$



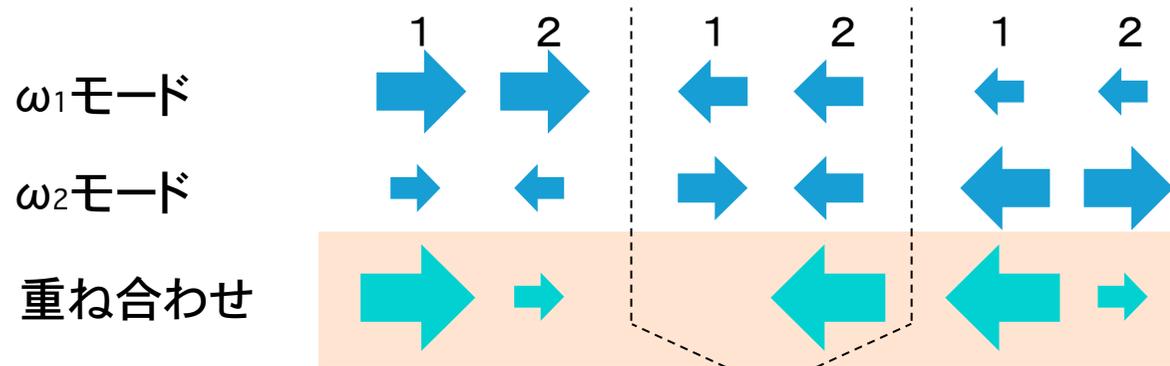
# 結合二準位系モデルでの解析



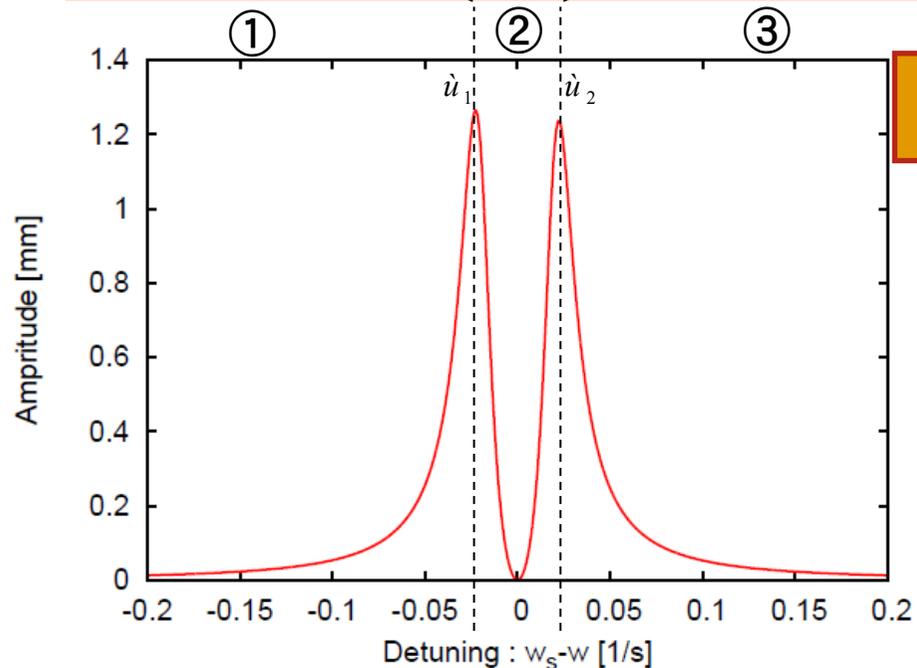


# 連成振動系の振動モード

## 重ね合わせによる各振動子の振幅



各モード  
共振周波数を境に  
位相が反転



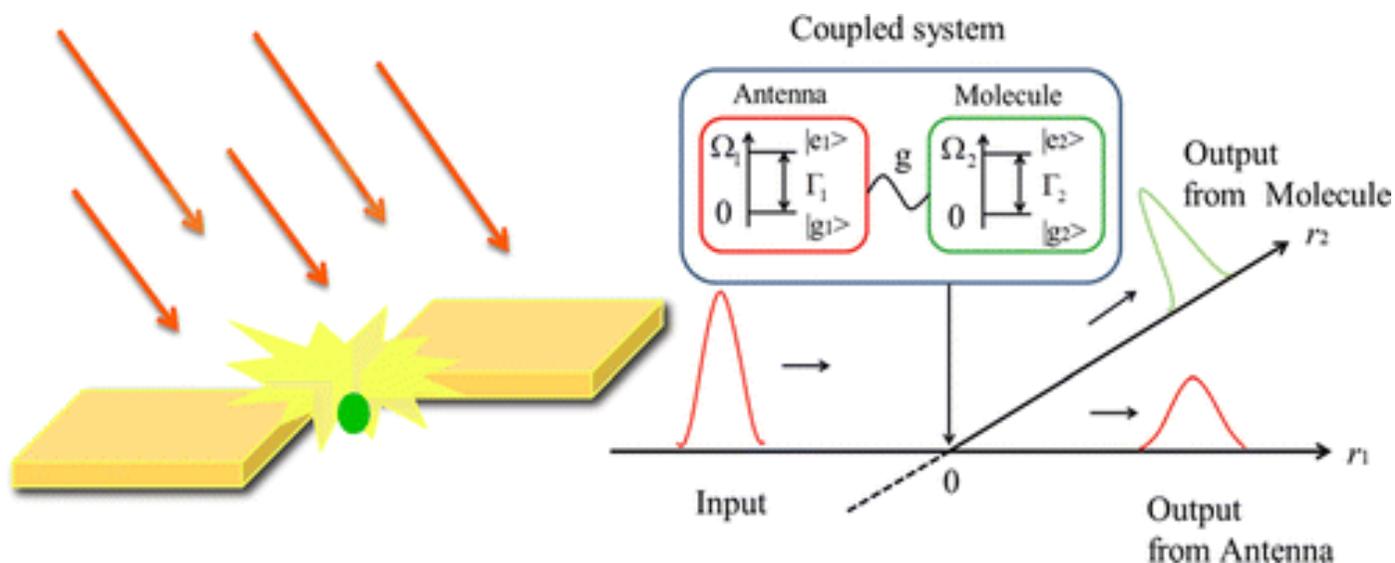
$\omega_1 < \omega < \omega_2$  のとき

振動子1の振幅は  
弱められる

振動子2の振幅は  
強められる

# 単一光子パルスによるエネルギー透過

T. Yano, M. Nakatani, K. Osono, H. Ishihara  
*J. Phys. Chem. C* 117, 2559 (2013)



Duration time of the photon pulse  $>$  Build-up time of the coupled mode

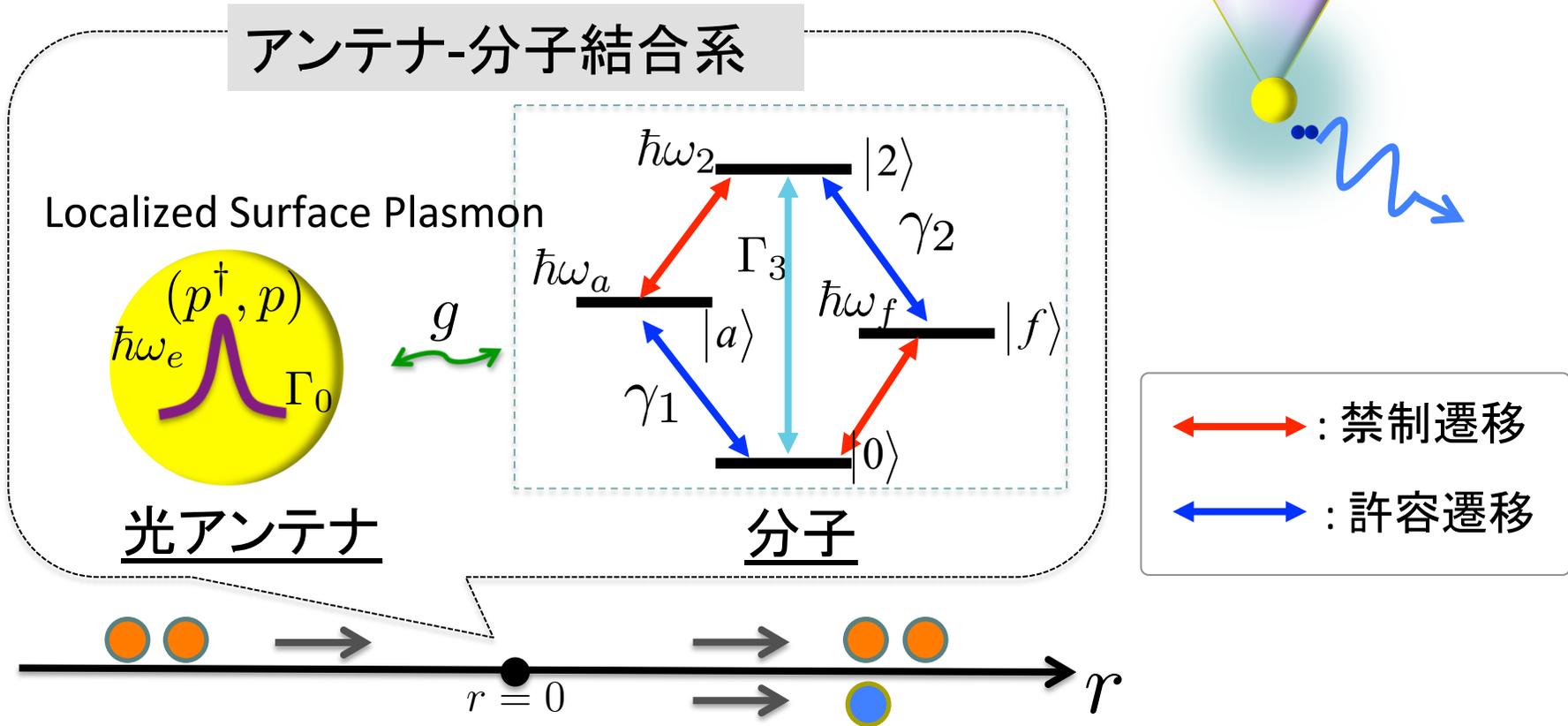
(Width of the photon pulse spectrum  $<$  Coupling constant  $g$ )

# 太陽光によるエネルギー透過

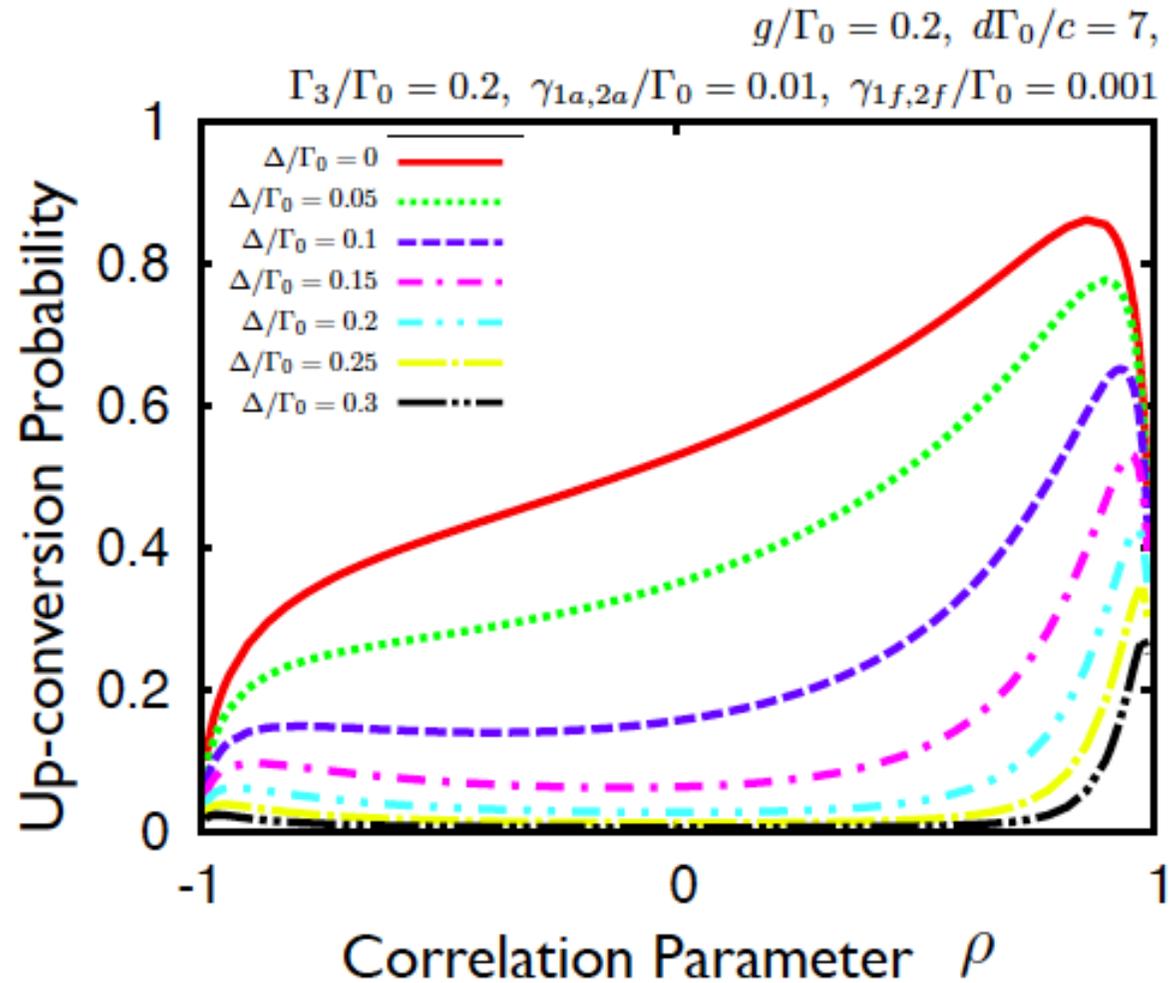
# アンテナ増強型二光子上方変換

Y. Osaka, N. Yokoshi, M. Nakatani and H. Ishihara:  
*Phys. Rev. Lett.* **112**, 133601 (2014)

## 理論モデル



# 上方変換確率



アンテナによりアップコンバージョン確率が増強！

太陽光でも通常技術で集光すれば1つの分子からほぼ確実に色の変換された光子を放出する効率

# まとめ



- **電子励起における遷移選択則の破れ**

電場の局在性による禁制遷移の発現

- **エネルギー透過現象**

結合系の量子干渉によるエネルギー透過  
新奇的な光励起過程

- **アンテナ誘起型の特異な非線形応答**

2準位分子の反転分布  
高効率二光子上方変換

