

一般セッション(口頭講演) | 3 光・フォトンクス：3.11 ナノ領域光科学・近接場光学

2024年9月18日(水) 13:00 ~ 18:30 会場 A33 (朱鷺メッセ3F)

[18p-A33-1~19] 3.11 ナノ領域光科学・近接場光学

岩長 祐伸(物材機構)、坂野 斎(山梨大)、三宮 俊(リコー)、田中 拓男(理研)

13:00 ~ 13:15

[18p-A33-1]

[第56回講演奨励賞受賞記念講演] エナント選択的光圧のナノ顕微鏡測

○山西 絢介¹、Ahn Hyo-Yong¹、岡本 裕巳¹ (1.分子研)

13:15 ~ 13:30

[18p-A33-2]

フタロシアニン分子対の光誘起力顕微鏡像の理論解析

○田村 守^{1,2}、山根 秀勝³、石原 一¹ (1.阪大院基礎工、2.大阪公大LAC-SYS研、3.大阪技術研)

13:30 ~ 13:45

[18p-A33-3]

銀ナノワイヤーと銀ナノ粒子の接点におけるプラズモン増強2光子励起発光の発生

○伊藤 民武¹、山本 裕子² (1.産総研健医工、2.北陸先端大)

13:45 ~ 14:00

[18p-A33-4]

一価カチオンに依存したアルカンチオール修飾金ナノ粒子二量体の結合様式

○江刺家 恵子¹、齋木 敏治¹ (1.慶大理工)

◆ 奨励賞エントリー

14:00 ~ 14:15

[18p-A33-5]

単一分子測定に対するチップ増強ラマン散乱の自己無撞着・非局所応答理論

○(DC)五十川 弘行¹、田村 守^{1,2}、石原 一¹ (1.阪大院基礎工、2.大阪公大LAC-SYS研)

14:15 ~ 14:30

[18p-A33-6]

SiCナノボイドアレイの作製と光学特性評価

○(M2)丸山 紘矢¹、村井 俊介¹、田中 勝久¹ (1.京大院工)

◆ 奨励賞エントリー

14:45 ~ 15:00

[18p-A33-7]

可視局在表面プラズモン特性を示す規則合金ナノ粒子の創製

○竹熊 晴香¹、佐藤 良太¹、飯田 健二²、寺西 利治¹ (1.京大化研、2.北大触媒科学研)

15:00 ~ 15:15

[18p-A33-8]

白色光照射下における銀フラクタル樹状構造の自己成長

○(D)香川 龍恭¹、武安 伸幸¹ (1.岡大院環境生命自然)

15:15 ~ 15:30

[18p-A33-9]

金属セミシェル構造の構造変形に伴う呈色変化

○(M2)安里 成海¹、鉤 正章^{2,1}、藤村 隆史^{1,3} (1.宇大院、2.堀場エステック、3.東大生研)

15:30 ~ 15:45

[18p-A33-10]

トレンチ形成によるプラズモニック回折光の光閉じ込め効率向上の検証

○上野山 聡¹、吉澤 裕輔¹、田中 和典¹、藤原 弘康¹、渡邊 明佳¹、寺西 信一²、小野 篤史² (1.浜ホト中研、2.静岡大学)

15:45 ~ 16:00

[18p-A33-11]

銀イオンおよび還元剤濃度が銀樹状構造の形状に及ぼす影響

○(M1)川原 知季¹、武安 伸幸¹ (1.岡山大学)

16:00 ~ 16:15

[18p-A33-12]

異方性B8₁構造をもつPtSnナノ粒子の合成と局在表面プラズモン共鳴特性評価

○LEE HYUNJI¹、竹熊 晴香^{1,2}、佐藤 良太²、寺西 利治^{1,2} (1.京大院理、2.京大化研)

16:30 ~ 16:45

[18p-A33-13]

流れが誘導する平衡から遠い量子構造 IV

○坂野 齋¹ (1.山梨大工)

16:45 ~ 17:00

[18p-A33-14]

オフシェル科学と因果性

○西郷 甲矢人¹ (1.長浜バイオ大学)

17:00 ~ 17:15

[18p-A33-15]

ネットワーク量子場からみたドレスト光子

○岡村 和弥¹ (1.中部大工)

17:30 ~ 17:45

[18p-A33-16]

正則グラフ上の量子ウォークの波動関数について

○齋藤 正顕¹ (1.工学院大)

17:45 ~ 18:00

[18p-A33-17]

ドレスト光子の自律的移動経路を決める最適散逸

○大津 元一¹、瀬川 悦生²、結城 謙太³、齋藤 正顕⁴ (1.ドレスト光子研究起点、2.横浜国大、3.Middenii、4.工学院大)

18:00 ~ 18:15

[18p-A33-18]

量子ウォークモデルから見たドレスト光子が自律的に選択するグラフ上のパス

○瀬川 悦生¹、齋藤 正顕³、結城 謙太⁴、大津 元一² (1.横浜国立大学、2.ドレスト光子、3.工学院、4.Middenii)

18:15 ~ 18:30

[18p-A33-19]

物質構造を介したドレスト光子高励起状態の生成

○三宮 俊¹ (1.リコー)

エナンチオ選択的光圧のナノ顕微観測

Nanoscopic Observation of Enantioselective Optical Pressure

分子研[○]山西 絢介, AHN Hyo-Yong, 岡本 裕巳

Institute for Molecular Science

E-mail: yamanishi@ims.ac.jp

物体の構造を鏡写しにした場合、元の構造と同一でない特徴をキラリティという。キラリティの掌性に応じて物質や生体は特異な作用を示すため、物体の持つ重要な特徴として考えられている。また、キラルな物体の特徴の一つに、左円偏光と右円偏光に対する異なる応答(キラル光学効果)を示すというものがある。そのため、物質のキラリティを分析するために、円偏光を用いたマクロな応答を観測する分光測定が広く利用される。一方、遠方場の観測からでは、溶液中に分散した分子や、基板上的整然と並んだ構造体に対して、一様に円偏光を照射した場合でのみ物理的解釈が可能であり、物質のキラル光学効果の本質をより詳細に理解するためには顕微測定が必要不可欠である。しかし、キラル光学効果は一般に信号強度が微弱であるため、単一分子やナノ構造レベルでの応答を観測することには困難を伴う[1]。そこで我々は、微弱な信号であるキラル光学効果を高感度に顕微測定する手法として、円偏光照射による探針-試料間に働く光誘起力(広義には光圧)を観測する円偏光光誘起力顕微鏡法(CP-PiFM)を開発した[2, 3]。CP-PiFMでは探針と試料に円偏光を入射し、探針に働く光誘起の電磁的な力である光誘起力を検出する。この方法を用いて卍型の金ナノ構造体のナノスケールでのキラル光学効果の観測に成功した。当日の講演ではさらに、エナンチオ選択性を持ってキラルなナノ微粒子の顕微観測が実現した例と、その解析結果などについて報告する(Fig. 1)。

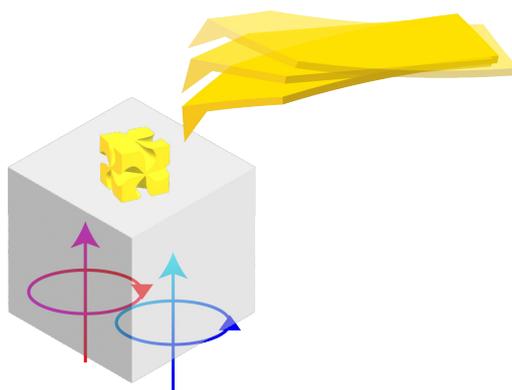


Fig. 1 円偏光光誘起力顕微鏡によるキラル金ナノ微粒子の観測。

[1] T. Narushima, et al., *J. Phys. Chem. C*, **117**, 23964-23969 (2013).

[2] J. Yamanishi, et al., *Nat. Commun.*, **12**, 3865 (2021).

[3] J. Yamanishi, et al., *Nano Lett.*, **23**, 9347-9352 (2023).

フタロシアニン分子対の光誘起力顕微鏡像の理論解析

Theoretical Analysis of Photo-induced Force Microscopy Image of Paired Phthalocyanine Molecules

阪大院基礎工¹, 大阪大LAC-SYS研², 大阪技術研³ ○田村 守^{1,2}, 山根 秀勝³, 石原 一¹

Grad. Sch. Eng. Sci. Osaka Univ.¹, RILACS Osaka Metro Univ.², ORIST³

◦Mamoru Tamura^{1,2}, Hidemasa Yamane³, Hajime Ishihara¹

E-mail: m.tamura.es@osaka-u.ac.jp

光を用いた走査型顕微鏡技術として光誘起力顕微鏡 (PiFM: Photo-induced Force Microscopy) は、光照射下で試料とプローブ探針間に作用する光誘起力を検出することで対象の高解像度な分光イメージングを可能とする。これまでに量子ドットやベンタセン分子を対象とした実験において、サブnmの解像度で構造が可視化された[1,2]。特に、我々のグループでは非局所応答理論に基づく評価手法を確立し、上記の実験系や、六員環分子を想定した構造[3]、単一のフタロシアニン分子[4]などを対象としたPiFM像の理論解析に成功してきた。ところで、実際の実験では複数の分子が同時に存在することも多く、隣接して存在する場合には分子同士の相互作用を無視できない[5]。二量体ナノ粒子を想定したPiFMの理論解析においても分極の結合・反結合に由来する光学応答を確認できる[6]。そこで本研究では、隣接して存在する2つのフタロシアニン分子を対象に、分子同士の電磁気学的な結合の下でどのようなPiFM像を得られるか議論し、その光学応答のより深い理解を目指す。

Fig. 1に計算モデルを示す。銀基板の上に単一、もしくは対の亜鉛フタロシアニン分子(ZnPc)を配置し、その上からプローブ探針として銀の半球を配置した(半球には微小な突起の存在を想定)。Fig. 2は異なる探針のxy座標での光誘起力のz成分のスペクトルを示す。(a)単一分子、(b)二分子のいずれの場合も、探針位置に依存して異なる応答を示し、ピークの有無、位置が変化する。単一分子の場合は割愛するが、Fig. 3に二分子のPiFM像の計算結果を示す。(a)に示すように、分子の中心(x,y=0,0)、または端(x,y=12Å,0)に探針を配置した場合、Fig. 2(b)の青線、緑線のスペクトルが得られる。それぞれ、二分子の分極の反結合・結合モードに由来するピークであり、単一分子の場合に比べて共鳴エネルギーがシフトしたと考えられる。これらの共鳴エネルギーに対し、低エネルギーの2.12 eVと、高エネルギーの2.16 eVでは、Fig. 3(a)(d)に示すように、それぞれ試料に対して引力的、もしくは斥力的な光誘起力となるPiFM像が得られる。更にFig. 2(b)の共鳴エネルギーにおいては、Fig. 3(b)(c)に示すように特徴的な分布が得られ、それぞれのモードを励起可能な探針位置において強く光誘起力が作用することを確認できる。講演では異なる分子数・配置などの場合の結果を含め、詳細を議論する。

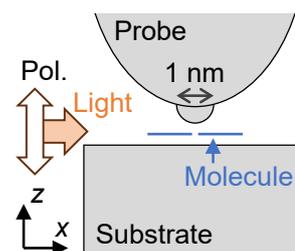


Fig. 1. Calculation model.

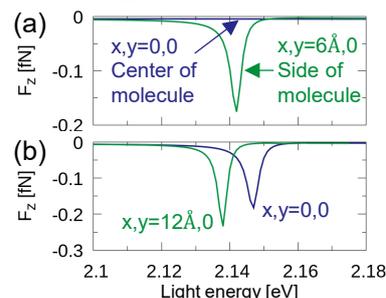


Fig. 2. Spectrum of z-component of force for (a) single and (b) paired ZnPc at different tip xy position. Transition energy between HOMO and LUMO was nearly 2.185 eV.

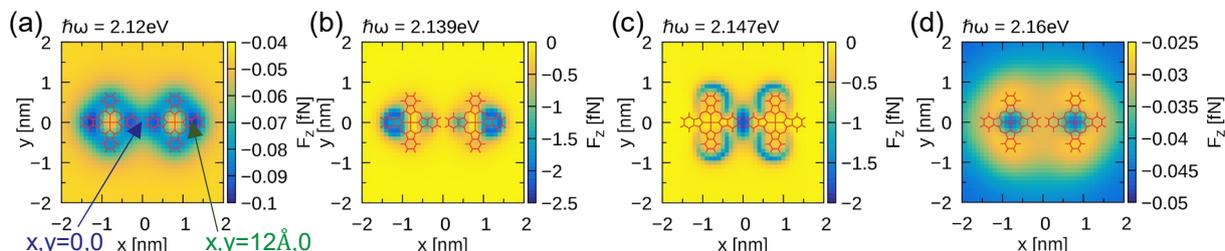


Fig. 3. Calculated PiFM images of paired ZnPc. Light energy was (a) 2.12 eV, (b) 2.139 eV, (c) 2.147 eV and (d) 2.16 eV. Red line indicates the geometry of ZnPc. Incident light intensity 10 kW/cm² was assumed.

References:

- [1] J. Yamanishi, et al., *Nat. Commun.* **12**, 3865 (2021).; [2] T. Yamamoto, et al., *ACS Nano* **18**, 1724–1732 (2024).; [3] H. Yamane, et al., *Appl. Sci.* **11**, 6937 (2021).; [4] H. Yamane, et al., *Opt. Express* **31**, 3415–3426 (2023).; [5] Y. Zhang, et al., *Nature* **531**, 623–627 (2016).; [6] H. Yamane, et al., *Opt. Express* **28**, 34787–34803 (2020).

銀ナノワイヤーと銀ナノ粒子の接点における プラズモン増強 2 光子励起発光の発生

Generation of two-photon excited emission from junctions
between silver nanowires and nanoparticles

産総研健医工¹, 北陸先端大², [○]伊藤 民武¹, 山本 裕子²,

AIST¹, JAIST², [○]Tamitake Itoh¹, Yuko S. Yamamoto²

E-mail: tamitake-itou@aist.go.jp

【序】金や銀のナノ粒子(NP)やナノワイヤー(NW)の 2 量体の間隙の数 nm 領域にはプラズモン共鳴増強電場領域(ホットスポット HS)が存在している[1]。HS では連続(cw)光励起で非線形光学効果が生じる為[2]、従来のパルスレーザー光励起と比較して高波長分解能で非線形分光が可能となる利点がある。今回、NW と NP の接点に形成された HS を近赤外(NIR) cw 光で励起した時、表面に吸着したローダミン色素のハイパーレーリー散乱光、ハイパーラマン散乱光、2 光子蛍光等の増強された 2 光子励起発光が発生する現象を新たに見出したので報告する。

【実験】銀 NW と銀 NP の直径はそれぞれ 70, 100 nm 程度であった。暗視野照明で NW に吸着した NP を見付け(FIG. 1(a1))、HS を形成していることを表面増強ラマン散乱(SERS)光で確認した(FIG. 1(b1))。その HS を NIR cw 光(1064 nm)で励起し、増強二光子発光の画像測定(FIG. 1(c1))と分光測定(FIGs. 1(a2)-1(c2))を行った。

【結果と考察】FIG. 1(a2)は NW 上の NP からのレーリー散乱スペクトルを示している。複雑な形状は NW の伝搬プラズモンモードと NP の局在プラズモンモードが混合モードを形成していることを示唆している。その NP は FIG. 1(a2)に示す様に強い SERS スペクトル発しており、NW と NP の間隙に HS が形成されていることが分かる。その HS に数 10 kW/cm² 程度の NIR cw レーザーを集光すると FIG. 1(c2)の様に増強二光子発光が発生する場合がある。この様な場合はレーリー散乱が広帯域化しており 800 nm 付近にもスペクトル成分を持つ。この長波長側への広帯域化から NW の伝搬型プラズモンであるモノポールモードが NP の双極子モードと強結合して低エネルギー化し NIR 領域に増強電場を発生させたと推測できる。この推測を FDTD 法で検証する。また、増強 2 光子蛍光を用いた増強因子の測定[3]も試みる予定である。

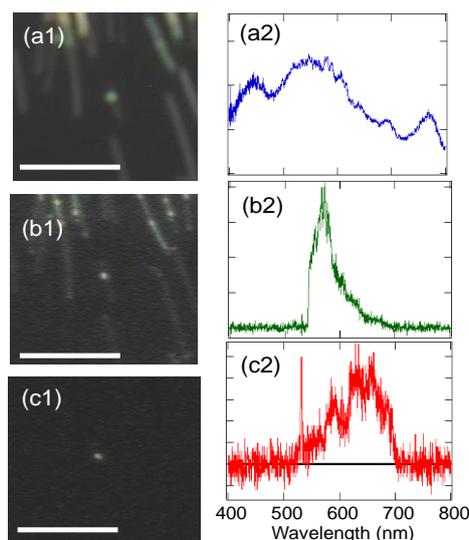


FIG.1(a1)-(c1) and (a2)-(c2) Images and spectra of Rayleigh scattering, SERS and two photon excited emissions, respectively, from a HS composed of NW and NP. Scale bars are 5 μ m.

[1] T. Itoh, Y. S. Yamamoto, et al., *Chem. Rev.* **123**, 1552-1634 (2023).

[2] T. Itoh, Y. S. Yamamoto, *arXiv* 2405.10487.

[3] T. Itoh, Y. S. Yamamoto, *J. Chem. Phys.* **160**, 024703 (2024).

一価カチオンに依存したアルカンチオール修飾 金ナノ粒子二量体の結合様式

Monovalent cation-dependent binding configuration of alkanethiol-modified gold nanoparticle dimers

慶大理工 [○]江刺家 恵子, 齋木 敏治

Keio Univ. [○]Keiko Esashika, Toshiharu Saiki

E-mail: esashika@saiki.elec.keio.ac.jp

金ナノ粒子(AuNP)は、局在表面プラズモン共鳴(LSPR)に基づく光学特性を示し、LSPR 波長はその局所的な誘電環境に敏感である。AuNP 複合体においてはこの特性が顕著に現れ、粒子間ギャップには強い電場増強 (ホットスポット) が発生することから、このホットスポットを利用した表面増強ラマン散乱(SERS)による単一分子検出などの研究が盛んに行われている。

本研究では、50 nm-AuNP に、アルキル鎖の-(CH₂)- ユニット数(n) (n=2, 3, 4, 5, 7, 10) の異なる末端カルボン酸アルカンチオールを TBE/pH8 溶媒中で十分担持し分散させ、この分散溶媒環境を一価カチオン(H, Li, Na, K, Rb, Cs)の金属塩化物溶媒に置換し凝集させることで、粒子間距離を精密に制御した二量体や三量体の作製を行っている。粒子量と粒子間距離を制御した懸濁液は、アガロース電気泳動法により粒子量で分離し、回収することで得ている。この極狭な粒子間距離を持つ二量体 (図 1.a) は光学的特性の違いが顕著に現れ、この二量体化の結合メカニズムを解明することは金界面の機能解明や制御技術などのナノテクノロジー分野で必要となる。ユニット数の違うアルカンチオールと一価カチオンの違いによるそれぞれの二量体化について、アガロース電気泳動により二量体化効率を確認し(図 1.b)、そこから回収した二量体懸濁液の消光スペクトルにおける縦モードからの波長や、粒子間ギャップからのラマンスペクトルを有限要素法による算出スペクトルと比較し評価する。HCl による凝集で得られた二量体の消光スペクトルではアルキル鎖ユニット数とともに粒子間距離が単調増大する(図 1.c)。一方 LiCl、NaCl 他においては、一価カチオンを介した結合様式が考えられ、またアルキル鎖の偶奇依存性を確認した。それぞれのアルカンチオールと一価カチオンによる二量体化による結合様式を議論する。

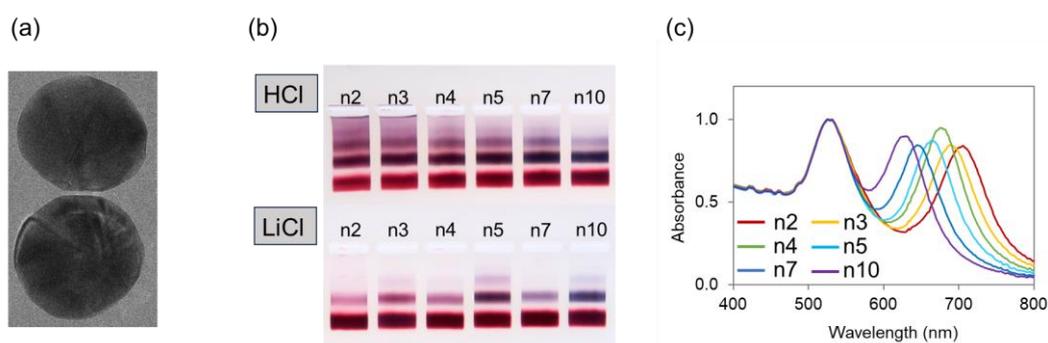


図 1.(a) Cryo-TEM image of dimer in natural state (b) Electrophoresis separation of COOH-alkanethiol-modified AuNP multimers obtained by addition of HCl and LiCl. (c) Extinction spectra of dimer suspensions of HCl processes.

単一分子測定に対するチップ増強ラマン散乱の 自己無撞着・非局所応答理論

Self-Consistent Nonlocal Response Theory of Tip-Enhanced Raman Scattering for Single Molecule Observation

阪大院基礎工¹, 大阪公大 LAC-SYS 研²

○(DC)五十川 弘行¹, 田村 守^{1,2}, 石原 一¹

Grad. Sch. Eng. Sci. Osaka Univ.¹, RILACS Osaka Metro Univ.²,

°(DC)Hiroyuki Ikagawa¹, Mamoru Tamura^{1,2}, Hajime Ishihara¹

E-mail: ikagawa.h@opt.mp.es.osaka-u.ac.jp



近年、金属プローブチップの微小な先端において電場の局在が生じることを利用した超高空間分解能ラマン測定であるチップ増強ラマン散乱(TERS)に新たな可能性が見出されつつある。局在した電場は単一分子上の波動関数に匹敵する空間分布を示すことがあり、それらの空間的相関から電気多極子的な遷移が生じる[1]。この現象を利用することで、従来の光学的手法では知ることができない、単一分子内の様々な電子・振動状態の詳細な情報にアプローチできる。

一方で、多極子遷移も含めて、TERS により得られる単一分子像を議論するためにはいくつか重要な事項がある。一つは、双極子近似に基づいた記述では電気多極子的な遷移を表現できないために、この近似を超えた光学応答の評価が必要となることである。そのような視点に立った理論はこれまでも提案されてきたが[2]、複雑な構造を持った金属と分子の相互作用を十分には記述し得なかった。特に電子共鳴条件下での測定では分子自身も局在電場に多大な影響を及ぼすことが指摘されているが[3]、そのような要素も含めて TERS 像を適切に理解するためには、分子光学応答と電場との自己無撞着性を適切に取り入れる必要がある。

そこで本研究は非局所応答理論に基づいて、局在場と分子波動関数との空間的相関を考慮し、分子応答と電場を自己無撞着に決定する TERS 理論を構築した。Fig. 1 は pentacene 分子の TERS 像を評価した例である。特に今回は、pentacene の最高被占軌道の一つ下の電子準位(HOMO-1)から最低空軌道(LUMO)への光学禁制な電子遷移と入射光が共鳴する条件下にて、Fig. 1(a)に示すモデルを使用して TERS 像を計算した。その結果 TERS 信号が 4 箇所にて増強される TERS 像が得られた (Fig. 1(b))。この空間分布は単一分子の分極構造を反映したものであり[4]、本理論が光学禁制なモードに対する TERS 像の解析に有用であることを示している。加えて、チップ増強非線形ラマン散乱についても自己無撞着かつ非局所応答に基づいた解析を実施し、散乱強度がより急峻に空間変動する単一分子像が得られた(Fig. 1(c))。その結果と TERS 像との比較から、非線形効果が更なる高空間分解能測定の実現に貢献し得ることが分かる。詳細は当日の講演にて説明する。

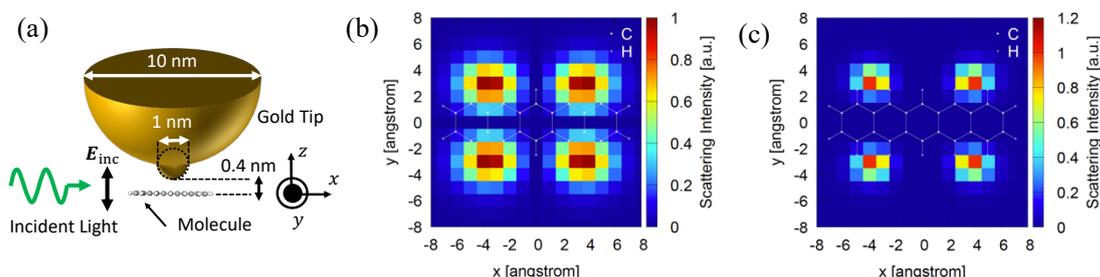


Fig.1 (a) Calculation Model. (b)(c) Calculation Result of TERS and tip-enhanced coherent anti-Stokes Raman scattering images, respectively.

Reference

- [1] C.-F. Wang, et al., J. Phys. Chem. Lett., 11, 2464 (2020).
- [2] Y. Zhang, et al., J. Raman Spectrosc., 52, 296 (2021).
- [3] C. Zhang, et al., J. Phys. Chem. C, 119, 11858 (2015).
- [4] 五十川弘行, 田村守, 石原一, 2024 年第 71 回応用物理学会春季学術講演会, 23a-11F-11.

SiC ナノボイドアレイの作製と光学特性評価

Fabrication and optical characterization of SiC nanovoid arrays

京大院工, °(M2)丸山 紘矢, 村井 俊介, 田中 勝久

Kyoto Univ. °Hiroya Maruyama, Shunsuke Murai, Katsuhisa Tanaka

E-mail: murai@dipole7.kuic.kyoto-u.ac.jp

近年ナノフォトニクスにおいて、高屈折率誘電体ナノ構造に生じる Mie 共鳴を活用した Mionics が注目を集めている。これまで Si の吸収波長帯が存在する可視域においては主に TiO_2 ($n=2.5$) が利用されてきた。3C-SiC は TiO_2 よりも屈折率が高く ($n=2.7$)、近紫外域を含む広い波長帯でより低い消衰係数を有する (Fig. 1(a))。また SiC は様々な結晶構造を有するが、3C-SiC は Si と同じ立方晶であるため、Si ウェハ上にエピ成長することで単結晶薄膜を得られる。本研究では、この 3C-SiC 単結晶薄膜を加工しナノボイドアレイを作製した。また、この構造を Si 基板から光硬化性樹脂および dimethylpolysiloxane (PDMS) に転写する手法を確立した。転写後の構造について光学特性評価を行い、強い光閉じ込め効果を有することを確認した。

まず、ナノインプリントと反応性イオンエッチング (RIE) により Si 基板上に SiC ナノボイドアレイを作製した。次にスピコートにより構造を樹脂で被覆し、その上にガラス基板を静置した。この状態で樹脂を硬化させることで、樹脂を接着剤として構造をガラス基板に固定した。その後、ボッシュプロセスと呼ばれる RIE の手法により、裏面から Si 基板を除去した。この転写プロセスを経て、樹脂 (厚さ 120 nm) とガラス基板に支持された SiC ナノボイドアレイが得られた (Fig. 1(b))。この構造について透過配置で消光測定を行った結果、Mie 共鳴を構成要素とした表面格子共鳴 (SLR) である Mie-SLR によるシャープなピークが複数の波長帯に見られた (Fig. 1(c))。この手法は、3C-SiC ベースの高性能な光学デバイスを作製する際に広く応用できると考えられる。

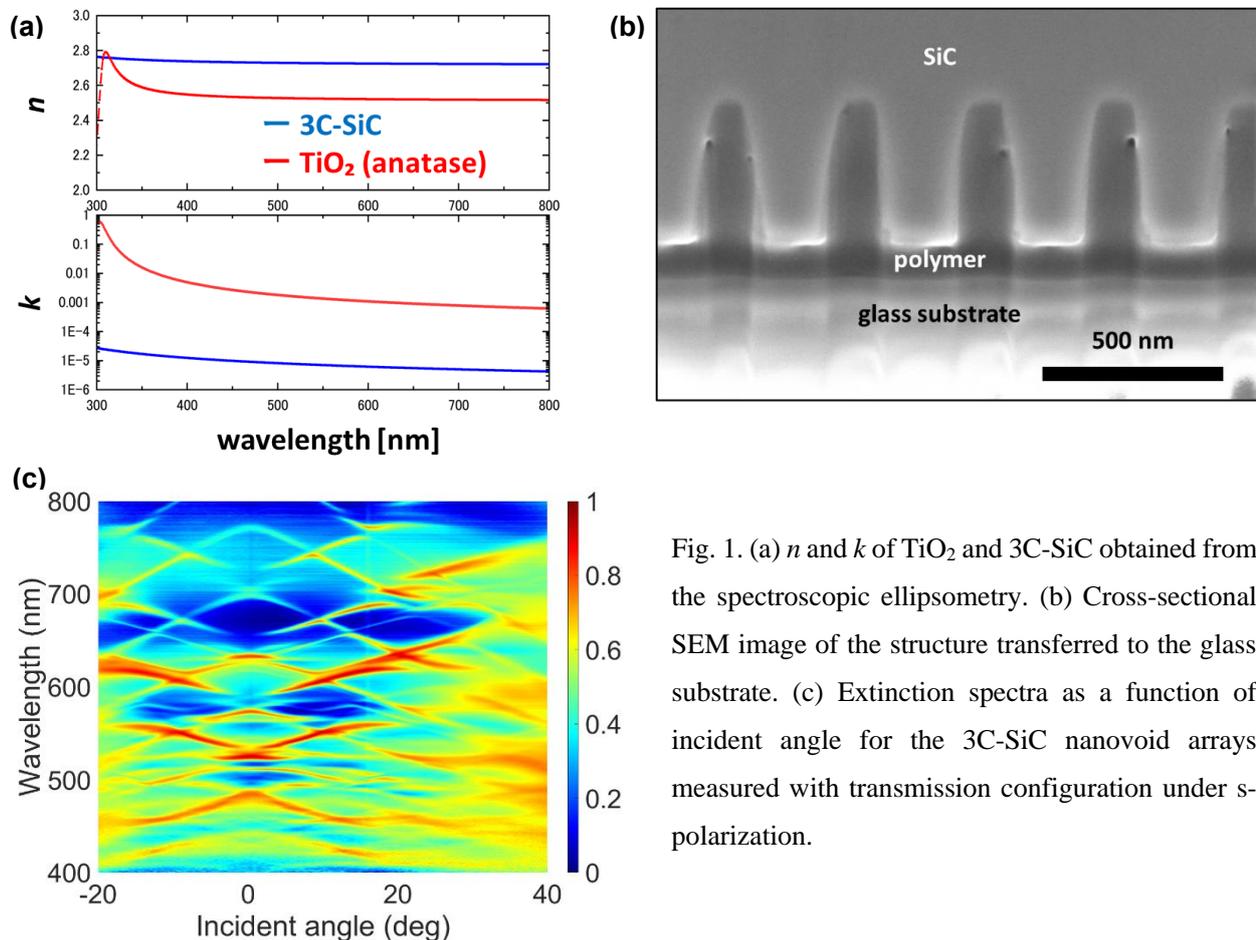


Fig. 1. (a) n and k of TiO_2 and 3C-SiC obtained from the spectroscopic ellipsometry. (b) Cross-sectional SEM image of the structure transferred to the glass substrate. (c) Extinction spectra as a function of incident angle for the 3C-SiC nanovoid arrays measured with transmission configuration under s-polarization.

可視局在表面プラズモン特性を示す規則合金ナノ粒子の創製

Creation of Ordered Alloy Nanoparticles

Exhibiting Localized Surface Plasmon Properties in Visible Region

京大化研¹, 北大触媒科学研² ◯竹熊 晴香¹, 佐藤 良太¹, 飯田 健二², 寺西 利治¹

ICR, Kyoto Univ.¹, ICAT, Hokkaido Univ.²,

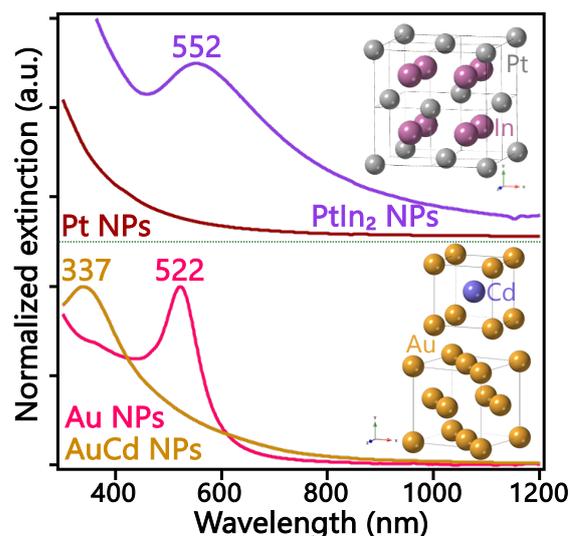
◯Haruka Takekuma¹, Ryota Sato¹, Kenji Iida², Toshiharu Teranishi¹

E-mail: takekuma.haruka.2k@kyoto-u.ac.jp

M. Faraday による Au コロイドの着色原理解明以降、局在表面プラズモン共鳴 (LSPR) に関する研究は、面心立方格子 (*fcc*) 構造の 11 族元素 (Au, Ag, Cu) ナノ粒子を中心に進められてきた。11 族元素ナノ粒子は、他の金属とは異なり、特異的に可視域で LSPR を示す。LSPR 波長制御のため、11 族元素同士の合金化や、11 族元素ナノ粒子への他の金属のドーピングが試みられてきたが、いずれも可視領域に LSPR を示す *fcc* ベースの結晶構造のナノ粒子であった。先行研究¹において、LSPR 波長と吸収強度は、「自由 (*sp*) 電子の集団振動」と「バンド間遷移」に加え、集団振動に誘起された「*d* バンドに局在する束縛電子の振動(スクリーニング)」の影響を受けることが理論的に示されている。このことを踏まえ、当研究室では、「可視 LSPR を達成する 11 族元素を含まない規則合金ナノ粒子」の設計・合成を行った。*B2* (CsCl 型) 構造の PdIn 規則合金ナノ粒子²と、*C1* (CaF₂型) 構造の PtIn₂ ナノ粒子³に着目し合成を行なったところ、いずれも可視域に LSPR を示した。また、LSPR 波長が規則合金ナノ粒子の結晶構造と電子構造に由来することが明らかとなった。

さらに、このような規則合金ナノ粒子の候補材料として、「11 族元素を含み、可視域以外に LSPR をもつ合金ナノ粒子」が考えられる。本研究では、多くの合金の結晶構造と電子構造を照らし合わせて検討した結果、*B2* 構造の AuCd ナノ粒子に着目した。Au 種粒子と Cd 前駆体をオレイルアミン溶媒中で反応させ、*B2*-AuCd ナノ粒子を合成した。Au ナノ粒子の可視 LSPR は吸収極大波長が 525 nm であるのに対し、*B2*-AuCd ナノ粒子は紫外域 (322 nm) に明瞭な吸収ピークを示した。また、この吸収波長は、サイズ依存性及び分散溶媒の屈折率依存性を示した。このことから *B2*-AuCd の吸収は LSPR 由来であると考えられる。合成過程を追跡し、反応途中のナノ粒子の LSPR 特性とその結晶構造を調べたところ、結晶構造が *fcc* ベースの構造から *B2* 構造へ変化した際に共鳴波長が不連続的に変化する様子を確認した。

以上の結果は、プラズモニクス分野における合金材料群という新たな提案であり、プラズモニクスの発展に寄与すると期待している。



[1] K. Iida, M. Noda, K. Nobusada *et al.*, *J. Phys. Chem. A* **2014**, *118*, 11317–11322. [2] R. Sato, H. Takekuma, T. Teranishi *et al.*, to be submitted. [3] H. Takekuma, R. Sato, T. Teranishi *et al.*, *Adv. Sci.*, **2024**, *11*, 2307055.

図 *fcc*-Pt (茶色)、*C1*-PtIn₂ (紫)、*fcc*-Au (ピンク)、*B2*-AuCd (黄色) ナノ粒子の消衰スペクトル [挿入: 上から *C1*-PtIn₂、*B2*-AuCd、*fcc*-Au の結晶構造]

白色光照射下における銀フラクタル樹状構造の自己成長

Self-growth of silver tree-like fractal structures under irradiation of a white light

岡大院環境生命自然 ○(D)香川 龍恭, 武安 伸幸

Okayama Univ., °Ryusuke Kagawa and Nobuyuki Takeyasu

E-mail: kagawa_ryusuke@s.okayama-u.ac.jp

【背景】 表面張力の小さい溶媒中で銀イオンを急速に還元すると、その先端には約20 nmの微細構造を有し、全体の大きさが10 μm を超える「銀樹状構造」が成長する。本構造は、スケールの異なる自己相似形を数多く含有するフラクタル構造であるため、可視から少なくとも近赤外域に渡って光と強く相互作用する^[1-3]。これまで、温度や溶媒の種類など成長環境が形状やサイズに及ぼす影響について調べてきた。その成長過程では、針状成長と枝分かれを異なるスケールで繰り返しながら成長するため、どの瞬間においても構造先端にナノ微細構造が見られる。したがって、成長途中の銀樹状構造に光を照射すると、先端で常に表面プラズモンが励起され、本構造の形状・サイズに影響を及ぼすと考えられる。溶液中では、ランダムに配向した多数の構造が同時に成長するため、それらの構造を均一に照射するために、ここでは白色光（可視域）を照射下で成長する銀フラクタル樹状構造のサイズ・形状について調査した。

【実験】 白色光（ハロゲンランプ）照射下で、アスコルビン酸/エタノール溶媒（ $7.7 \times 10^{-2} \text{ M}$ ）と硝酸銀/エタノール溶媒（ $3.8 \times 10^{-2} \text{ M}$ ）を混合し、銀樹状構造を成長させた。銀樹状構造を含んだ溶液を、ガラスフィルターを用いて濾過した後、エタノールで洗浄した。ガラスフィルター上部の銀樹状構造を真鍮基板上に移し取り、乾燥後、走査型顕微鏡(SEM)で観察した。

【結果】 図1に白色光未照射で作製した銀樹状構造の凝集体(a)と単体(b)のSEM像を示す。Fig. 1 (a) より、全体サイズが約10 μm 以上の銀樹状構造が多数成長することがわかる。また、Fig. 1 (b) に示すような単体の銀樹状構造のSEM像を、ボックスカウンティング法にてフラクタル次元解析したところ、平均して1.783のフラクタル次元を有する構造ができていたことが分かった。講演では、白色光照射下で成長させた銀樹状構造のサイズ・形状についても述べる。

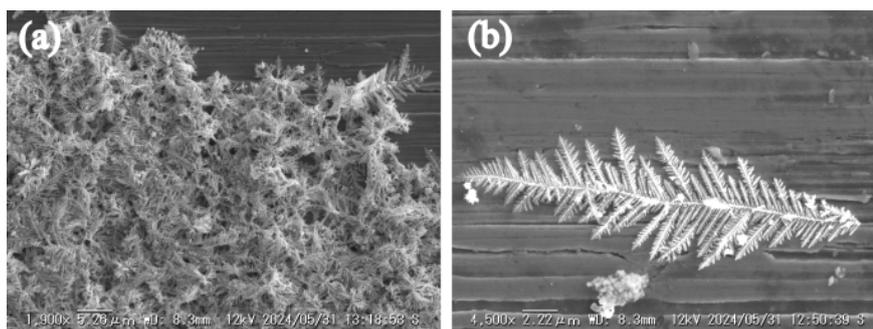


Fig.1 SEM image of silver tree-like fractal structure (a)aggregates, (b)single

【謝辞】 本研究の一部は科研費（23K26574）により支援されました。

【参考文献】

- [1] N. Takeyasu, et al., APL Photon. 1, 050801 (2016).
- [2] N. Taguchi, et al., Appl. Phys. Express. 11, 025201 (2018).
- [3] K. Nogami, et al. Appl. Phys. A. 128, 860 (2022).

金属セミシェル構造の構造変形に伴う呈色変化

Color change with structural deformation of metal semi-shell structure

宇大院¹, 堀場エステック², 東大生研³ ◯(M2)安里 成海¹, 鉤 正章^{1,2}, 藤村 隆史^{1,3}

Utsunomiya Univ.¹, HORIBA STEC², IIS, Univ. of Tokyo³

◯Narumi Asato¹, Masaaki Magari^{1,2}, Ryushi Fujimura^{1,3}

E-mail: mc236518@s.utsunomiya-u.ac.jp

1. はじめに

近年金属ナノ構造でのプラズモン共鳴を利用した構造色に注目が集まっている。しかしこれらの多くは電子線描画により構造が作製されているため大面積での構造作製が難しい。そこでわれわれはボトムアッププロセスで容易かつ大面積で作製が可能なセミシェル構造を作製した。さらに構造作製後にレーザー照射やアニール処理することでシェルを融解変形させ呈色変化が可能である。本研究では融解変形させたセミシェル構造での呈色の変化を加熱実験により確認したので報告する。

2. 試料作製と実験方法

本研究で作製した構造の模式図を Fig.1 に示す。Ag セミシェル-Ag ミラー構造(Fig. 1)ではガラス基板上に Ag を約 100 nm スパッタした上にコア直径約 76 nm の SiO₂ 微小球をランダムに固定した。微小球が固

定されたガラス基板に Ag を約 20 nm スパッタし Ag セミシェル構造を作製した。作製した Ag セミシェル構造は電気炉で加熱した。加熱温度は 100~300 °C で変化させ加熱時間はそれぞれ 1 h とした。それぞれ加熱後のセミシェル構造

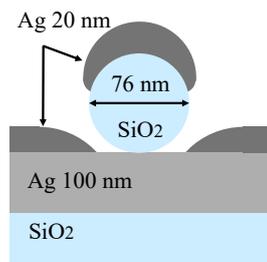


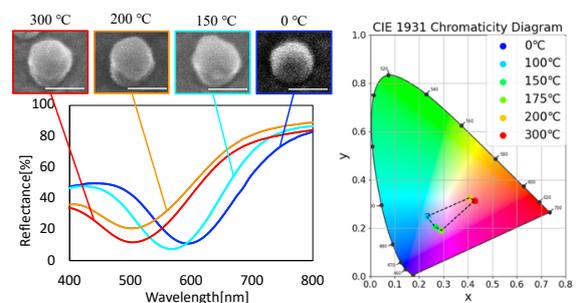
Fig. 1. Schematic configuration of Ag semi-shell - Ag mirror nanostructure

の反射スペクトルの呈色は等色関数を用いて CIE 色空間にプロットし評価した。

3. 結果

それぞれの加熱温度でのセミシェル構造の SEM 像とその時の反射スペクトルを Fig. 2(a) に、反射スペクトルの呈色を CIE 色空間にプロットした図を Fig. 2(b)に示す。

Fig. 2(a)から加熱温度に依存したナノ構造の形状変化とそれに伴う反射スペクトルの変化が確認できた。さらに Fig. 2(b)では変形に伴ったナノ構造の呈色の変化が確認できた。以上からナノ構造を融解変形させ構造を制御することで呈色の制御も可能である。



(a)

(b)

Fig. 2. (a) SEM images and reflectance spectra of Ag semi-shell - Ag mirror structures heated at different temperatures: scale bar length is 100 nm. (b) Experimental color range of measured reflectance spectra presented in a CIE-1931 color space.

トレンチ形成によるプラズモニック回折光の光閉じ込め効率向上の検証

Verification of effective confinement of the plasmonic diffraction within the pixel using trench Formation

浜本ト中研¹, 静岡大学²

○上野山 聡^{1*}, 吉澤 裕輔, 田中 和典¹, 藤原 弘康¹, 渡邊 明佳¹, 寺西 信一², 小野 篤史²

○Hamamatsu Photonics K.K.¹, Shizuoka University.²

E-mail: so.uenoyama@hpk.co.jp

近赤外帯域は自動運転に必要な LiDAR 画像やナイトビジョン, ガス検知など様々なアプリケーションに応用される一方, この波長帯域で動作するシリコンベースの光検出器は光感度層での光吸収が弱く感度が制限される課題が存在する. この課題を打破すべく我々はこれまでプラズモニック回折現象に着目し研究を進めてきた¹. プラズモニック回折は金属回折格子の周期を適切に設計することで 90° に近づく大きな角度での回折を可能とし, 光感度層での実効光路長を拡張し感度を著しく向上する. また金属回折格子の形状を適切に設計することで所望の波長や偏光に対してのフィルタリングが可能となり単一センサで多次元情報 (波長, 偏光など) を同時に取得するマルチモーダルイメージングなどへの応用の期待ができる.

本発表ではプラズモニック回折構造のイメージセンサ適用を目指し, 画素間に設置したトレンチの効果により画素内の回折光の閉じ込め効率の向上を調査した. 図 1(a)に示すように 5 μm 周期の画素の境界部に幅 150nm の空気層のトレンチが設けられ, 画素部には短冊状のプラズモニック回折構造 (P:520 nm, H:200 nm, G: 60 nm) が配置されている. 電磁界シミュレーションにより回折光の閉じ込め効率 (Si 内の光吸収量) を評価した. 図 1 (b) に光吸収量増加率の数値計算結果を示す. プラズモニック回折構造がない時の光吸収量 (赤線) を基準とした時にプラズモニック回折効果により波長 900 nm 帯域付近において光吸収量の増加を確認した. 更にトレンチ配置により回折光の閉じ込め効率の増加も確認できた. 発表ではトレンチ付き 1次元フォトダイオードアレイ上へのプラズモニック回折構造の試作状況や光閉じ込め評価について報告する.

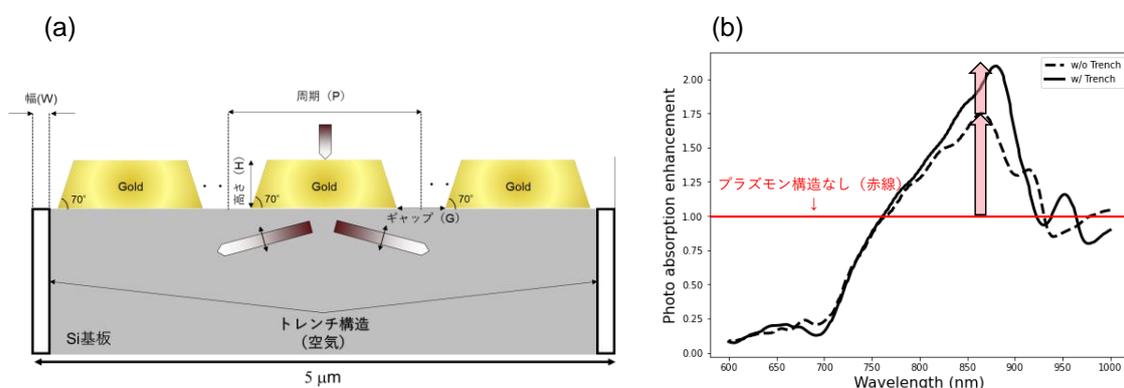


Fig.1 (a) Simulation model of the plasmonic structure (b) Simulation results of the photo absorption enhancement with and without the trench structure and plasmonic structure

[1] A. Ono, K. Hashimoto, & N. Teranishi: *Opt. Express*, **29** (2021), 21313 - 21319.

銀イオンおよび還元剤濃度が銀樹状構造の形状に及ぼす影響

Effect of silver ion and reductant concentration on the shape of silver dendrite

岡大院環境生命自然 ○(M1)川原 知季, 武安 伸幸

Okayama Univ., °Tomoki Kawahara and Nobuyuki Takeyasu

E-mail: oubutsu@jsap.or.jp

【背景】アセトンやエタノールのような表面張力の小さい溶液中で、アスコルビン酸によって銀イオンを還元すると、銀樹状構造が成長する [1,2]。本構造は、全体の中に異なるスケールの多数の自己相似形を含むフラクタル構造であり、可視から少なくとも近赤外域に渡り広帯域で光学応答を示す特徴がある。その成長過程において、温度や溶媒種などの成長環境が、核生成速度や銀イオンの還元速度、イオンの拡散などを変化させ、それが成長する構造の形状やサイズに影響を及ぼすと考えている。本研究では、銀樹状構造の形状やサイズを制御するパラメータとして、溶液の量や濃度に着目した。また、還元速度の影響も調べるため、アスコルビン酸の濃度の変化が与える影響についても調べた。今回は、硝酸銀溶液とアスコルビン酸溶液の濃度や量を変更して合成を行うことで銀樹状構造の成長への影響を調べた。

【実験】濃度が 5.70×10^{-2} 、 2.85×10^{-2} 、 1.90×10^{-2} M のアスコルビン酸/エタノール溶液と濃度が 3.9×10^{-2} M の硝酸銀/エタノール溶液を調製した。ガラス容器中で、アスコルビン酸/エタノール溶液 3 ml に異なる量の硝酸銀/エタノール溶液を添加して銀イオンを還元した。添加した硝酸銀/エタノール溶液は 3 ml、1 ml、0.5 ml、0.2 ml であった。生成物は、ガラスフィルター (20~30 μm) を用いてエタノールで洗浄・濾過し、乾燥した後に SEM 観察を行った。得られた SEM 像からフラクタル次元の解析や枝葉の長さを測定し、アスコルビン酸の濃度、および硝酸銀溶液の添加量の違いが成長する銀フラクタル樹状構造の形状やサイズに及ぼす影響を調べた。

【結果】図 1 に、(a) 5.70×10^{-2} M、および(b) 1.90×10^{-2} M のアスコルビン酸溶液に、硝酸銀溶液を 1 ml 滴下して成長した銀フラクタル樹状構造の SEM 像を示す。SEM 像から、成長した銀フラクタル樹状構造の主幹の長さを測ると、それぞれ 11.08 μm と 34.81 μm であった。この結果から、アスコルビン酸溶液の濃度が低いもののほうが、銀フラクタル樹状構造が大きく成長することがわかった。銀イオンの量を変えた場合の形状やサイズ変化についても、講演で述べる。

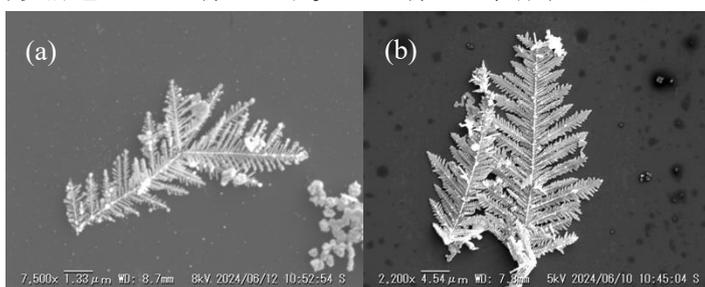


Fig.1 SEM images of silver tree-like fractal structures grown with (a) 5.70×10^{-2} M and (b) 1.90×10^{-2} M ascorbic acid solutions.

【参考文献】

- [1] N. Takeyasu, et al., APL Photon. 1, 050801 (2016).
- [2] K. Nogami, et al. Appl. Phys. A. 128, 860 (2022)

異方性 $B8_1$ 構造をもつ PtSn ナノ粒子の合成と局在表面プラズモン共鳴特性評価
Localized Surface Plasmon Resonance properties of PtSn nanoparticles
with anisotropic $B8_1$ crystal structure

京大院理¹, 京大化研² ◦(M2)イ ヒョンジ¹, 竹熊 晴香^{1,2}, 佐藤 良太², 寺西 利治^{1,2}

Graduate School of Science, Kyoto Univ.¹, ICR, Kyoto Univ.²,

◦Lee Hyunji¹, Takekuma Haruka^{1,2}, Ryota Sato², Teranishi Toshiharu^{1,2}

E-mail: lee.ji.25s@st.kyoto-u.ac.jp

金属ナノ粒子の局在表面プラズモン共鳴 (LSPR) は、ナノ粒子の自由電子が入射光の電場と共鳴し、集団的に振動する現象であり、バイオや物理の分野で注目されてきた。可視領域における LSPR 研究は、11 族元素 (Au, Ag, Cu) ナノ粒子を中心に展開されており、ナノ粒子のサイズや形状制御による LSPR 波長制御が行われてきた。さらに、単一金属ナノ粒子だけではなく、Au と Ag の合金ナノ粒子¹や、Fe ドープ Au ナノ粒子²などの 11 族元素を含む *fcc* (Cu 型) 構造の合金ナノ粒子が研究されており、組成からも LSPR 波長制御が報告されている。最近、我々の研究室では、11 族金属を含まない合金ナノ粒子である C1 (CaF₂型) 構造の PtIn₂ ナノ粒子が可視域に LSPR を示すことを発見した³。本研究では、等方性結晶構造である *fcc* や C1 構造とは異なり、異方性結晶構造をもつナノ粒子の可視 LSPR に着目した。具体的には、11 族元素を含まない異方性 $B8_1$ (NiAs 型) 構造 (図 a) の球状 PtSn ナノ粒子を合成し、その LSPR 特性について検討した。

先行研究の合成方法³を参考にし、Pt 種粒子と Sn 前駆体をオレイルアミン溶媒中で反応させることで、球状 PtSn ナノ粒子の合成に成功した。また、Pt 種粒子の粒径を制御することにより、PtSn ナノ粒子の粒径も制御できた。XRD の測定と TEM の観察の結果から、目的の $B8_1$ -PtSn 構造の形成 (図 b) と球状のナノ粒子 (図 c) が確認された。さらに、HAADF-STEM 観察と EDX マッピングから、 $B8_1$ -PtSn の異方的な結晶面が確認された。得られた PtSn ナノ粒子は、消光スペクトルの可視域 (約 380 nm) と近赤外域 (約 850 nm) に特徴的な二つのピークを示した (図 d)。これらピーク波長の屈折率依存性と粒径依存性を検討したところ、二つのピークはいずれもレッドシフトを示した。このことから、これらのピークは LSPR 由来であると考えられる。球状の PtSn ナノ粒子が二つの LSPR を表す原因は、その異方性結晶構造にあり、特に二種類のスクリーニング⁴による寄与が大きいと予想している。

[1] A. N. Hidayah *et al.*, *J. Phys. A. Conf. Ser.*, **2020** [2] V. Amendola *et al.*, *Nanoscale*, **2014** [3] H. Takekuma, R. Sato, T. Teranishi *et al.*, *Adv. Sci.*, **2024** [4] K. Nobusada *et al.*, *J. Phys. Chem. A*, **2014**

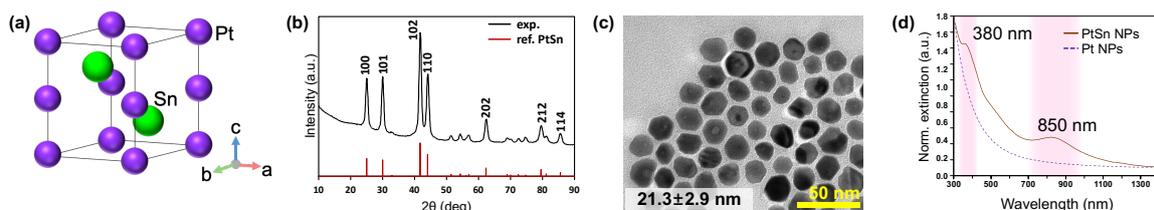


図 (a) $B8_1$ (NiAs 型) PtSn の結晶構造、(b) PtSn ナノ粒子 (NPs) の XRD パターン (ref. PDF# 01-089-2056) および (c) TEM 像、(d) Pt NPs と PtSn NPs の消光スペクトル

流れが誘導する平衡から遠い量子構造 IV

Current-induced Non-equilibrium Structure IV

○坂野 齋 (山梨大院)

○Itsuki Banno (Univ. of Yamanashi)

E-mail: banno@yamanashi.ac.jp

川添, 大津らの開発したフォトンブリーディング (PB) [1] は間接遷移型半導体から高効率発光デバイス作成を可能にし, その発光波長を決めるのは物質のバンドギャップではなくプロセス中の照射光波長である. 同時に巨大磁気光学効果 [2] や強磁性 [3] を発現する特徴をもつ.

本理論 [4] の目的は内在電磁場を原因として発光や磁気光学効果が増強される仕組みの解明である. 前回は間接遷移型半導体の発光増強のトイモデルを提案した. モデルの特徴は, 内在ベクトルポテンシャルが存在し, (a) 波数過剰というオフシェル性を持つこと, (b) 非相対論性を起源とした非線形性を有し, 非摂動的に考慮すると強調因子となること (c) 光学フォノンなどの外電流密度 (流れ) と結合する 1 次摂動の存在であり, 「基底状態から遠い定常状態」の出現が示唆された. そのシナリオは, 非線形性と流れのインタープレイという意味で, 非平衡熱力学の散逸構造 [5] と類似のものである.

本発表の内容は: (1) 磁気光学効果にも上記 (b) と同様の強調因子が現れること, (2) 上記モデルの尤もらしさ; (a) オフシェル性, (b) 非線形性, (c) 1 次摂動の強度の検証, (3) モデルが依拠しているオンシェル, オフシェル電磁場の従う Maxwell 方程式を導く変分原理.

特に, (3) の変分原理は強い非線形性がある系を非摂動的に / 変分法で扱う際に有効である.

$$\mathcal{I}_{EM+} = \frac{1}{2} \int d^4x \int d^4x_1 \Delta A_\mu(x) \frac{-1}{c^2} \kappa_{\mu_1}^\mu(x, x_1) \Delta A^{\mu_1}(x_1) + \frac{-1}{c^2} \int d^4x \Delta A_\mu(x) \left\{ \hat{j}^{(ext)\mu}(x) + \int_0^1 d\zeta \hat{j}^{(ind)\mu}(x; [\zeta \Delta A^\nu]) \right\}$$

$$\frac{-1}{c^2} \kappa_{\mu_1}^\mu(x, x_1) \equiv \frac{\epsilon_0}{c} (\partial_\sigma \partial^\sigma \delta_{\mu_1}^\mu - \partial^\mu \partial_{\mu_1}) \delta^4(x - x_1)$$

誘導電流密度の部分が電磁ポテンシャルの振幅のパラメータ積分で書かれ, 構成方程式 ($\hat{j}^{(ind)}$ の ΔA 依存性) は自由に設定できる; 第 1 原理で導いてもよいし, 現象論として導入してもよい. この作用積分の電磁ポテンシャルによる最適化により, 次の通常のマクスウェル方程式が導かれるので, 光学全般に使えるものである.

$$(\partial_\sigma \partial^\sigma \delta_{\mu_1}^\mu - \partial^\mu \partial_{\mu_1}) \Delta A^{\mu_1}(x) = \frac{1}{\epsilon_0 c} \left(j^{(ext)\mu}(x) + j^{(ind)\mu}(x; [\Delta A]) \right).$$

謝辞

大津元一博士が主宰されるドレスト光子研究起点 (RODrep) での研究会のメンバーの方々に感謝いたします. この研究の一部はドレスト光子研究起点からの援助を受けています.

参考文献

- [1] T. Kawazoe and M. A. Mueed and M. Ohtsu, Appl. Phys. B, **104** p.747–754(2011); M. A. Tran, T. Kawazoe, and M. Ohtsu, Appl. Phys. A, **115** p.105-111(2014); M. Ohtsu, "Silicon Light-Emitting Diodes and Lasers" (Springer International Publishing, Switzerland, 2016).
- [2] N. Tate, T. Kawazoe, W. Nomura, and M. Ohtsu, Scientific Reports **5** p.12762-1-7 (2015); M. Ohtsu, in Off-shell archive (<http://offshell.rodrep.org>), DOI: 10.14939/1809R.001.v1.
- [3] 門脇 拓也, 川添 忠, 大津 元一, 佐野 雅彦, 向井 孝志. 「ドレスト光子による誘導放出を利用した波長 1.3~1.9 μ m 帯の非冷却型 Si 受光素子」, 応用物理学会 2021 年春季学術講演会, 17p-Z14-8.
- [4] 坂野 齋, 「流れが誘導する平衡から遠い量子構造」 2023 年春季学術講演会, 16a-A201-1; 坂野 齋, 「流れが誘導する平衡から遠い量子構造 II」 2023 年秋季学術講演会, 22p-A310-1; 坂野 齋, 「流れが誘導する平衡から遠い量子構造 III」 2024 年春季学術講演会, 24a-11F-1.
- [5] G. Nicolis, I. Prigogine, 「散逸構造 – 自己秩序形成の物理学的基礎」 (岩波書店, 1980).

オフシェル科学と因果性

Off-shell Sciences and Causality

○西郷 甲矢人 (長浜バイオ大学)

○Hayato Saigo (Nagahama Institute of Bio-Science and Technology)

E-mail: h.saigoh@nagahama-i-bio.ac.jp

ドレスト光子研究をその嚆矢とするオフシェル科学は、相対論的な意味で「空間的」な領域の間の「つながり」を正面から受け止める科学であるともいえる。この種の「つながり」は、直接的に因果的な関係ではない一方で、因果性と矛盾するどころか、間接的な形では因果性と深く関連しあっている。したがって、オフシェル科学を推進するうえで、「因果性」とは何かを深く掘り下げることは不可避免的に重要である。これは、「時空」概念を問い直すことと表裏一体である。

これまでの本学会における講演では、[2, 3]に基づき、量子場とその状態を「(部分的な) 対合構造をもつ圏上の圏代数とその上の状態」として定義することにより、圏構造としての相対論的構造と非可換確率構造としての量子論的構造を直接に統合できることを示し、代数的量子場理論や位相的量子場理論などの先行するアプローチとの概念的関係についても論じた。またこれらを踏まえてオンシェル・オフシェルの概念を見直し、時空を「(構造づけられた) 点集合」としてではなく「圏」—より詳細にいえば「(部分的な) 対合構造を持つ因果的圏」[3]—として見直すことが、ドレスト光子研究 [1] に端を発するオフシェル科学にとって核心的であるという見方を提示した。ここでいう「因果的圏」は、きわめて抽象的な概念であって、因果性とは何かについては一旦横に置く形で定式化されているが、これを現実的な因果性概念と関連付けることは、現象とそのモデルの関係性を明らかにするうえで根本的である。

本講演では、そもそも因果性とは何であるかを反省し、「時空：圏」「量子場：圏代数」「量子場の状態：圏上の状態」という対応の枠組みにおいて「量子場の(局所)状態の遷移に関する(非決定論的な)法則性」(それは「(局所)状態の類」「(局所)圏代数の間の完全正值写像の類」の概念を用いて書ける)として定式化する。また、こうした法則性が因果的圏としての時空の構造から誘導できることを示し、量子場の動力学を、この意味での因果性の様相として捉え直すことを提案する。

Acknowledgments

本研究は(社)ドレスト光子研究起点の助成を得た。

参考文献

- [1] M. Ohtsu: *Dressed Photons* (Springer, Berlin Heidelberg 2014)
- [2] Saigo, H. Category Algebras and States on Categories. *Symmetry* **2021**, *13* 7, 1172. <https://doi.org/10.3390/sym13071172>
- [3] Saigo, H. Quantum Fields as Category Algebras. *Symmetry* **2021**, *13* 9, 1727. <https://doi.org/10.3390/sym13091727>

ネットワーク量子場からのドレスト光子

Dressed photons from network quantum fields

中部大工¹, ○岡村 和弥¹

Chubu Univ.¹, ○Kauzya Okamura¹

E-mail: k.okamura.renormalizable@gmail.com

ネットワーク量子場の観点からドレスト光子のモデリングについての講演を行う。ネットワーク量子場とは、ネットワークおよび離散的な構造上に定義される量子場のことであり、量子場として有限自由度系から無限自由度系まで扱う対象である。本講演で重視する観点および研究目標は以下の3点である：

- (1) 近年では量子ウォークによるモデリングが盛んになっている。それ以前のドレスト光子のモデリング [1, 2] の意義をネットワーク量子場として見直したい。
- (2) そして、連続時間量子ウォークによるモデリングの可能性を議論できる体系（枠組み）を構築したい。ここにおいては三宮氏のアプローチ [3] との比較も重要になる。
- (3) ドレスト光子に関わる系に対する量子測定理論の開拓をしたい。

(1)と(2)は、ドレスト光子をオフシェル量子場として記述する試みにおいて、先行研究の意義を明確にする目的がある。第一に、量子ウォーク以前のモデルをネットワーク量子場の特殊な場合として位置づけられることを説明する。量子ウォーク以前のモデルは量子場として記述できているが、関わる物質の非一様性や欠陥などドレスト光子のモデリングにおいて特徴的な系の構造、そしてダイナミクスを記述する目的には徹底されていなかった。非一様性や欠陥などについては、量子ウォークモデルにおいて克服されており、ネットワーク量子場によるモデリングにおいても当然組み込まれるべき観点である。量子ウォークモデルは離散時間でのダイナミクスの記述である一方、今回提案するモデルは1粒子状態においては連続時間量子ウォークモデルに対応するモデルである。そのため、離散時間と連続時間でのモデリングの差については今後の検討課題である。

ネットワーク量子場における量子測定理論、そしてドレスト光子のモデリングと量子測定理論の関係の追究が(3)である。講演者が研究してきた（相対論的状况をふくめた）量子場の測定理論 [4, 5] の知見を活かし、ネットワーク量子場およびドレスト光子のモデリングに対する測定理論を継続的に研究している。今回は、上で行ったネットワーク量子場によるモデルが測定状況で被る変化について行った解析の紹介を行う。ドレスト光子に関わる系においては、合成系の構築が物理量代数のテンソル積に基づく有限自由度系とは異なるため、量子場の測定理論の知見が不可欠である。この事実について実験と数理が対応することを説明する。

参考文献

- [1] 大津 元一, 小嶋 泉 編著, 『ここからはじまる量子場 —ドレスト光子が開くオフシェル科学—』, (朝倉書店, 2020).
- [2] 大津 元一, 『ドレスト光子』, (朝倉書店, 2013) .
- [3] S. Sangu, H. Saigo, *Symmetry* **13** (2021), 1768.
- [4] K. Okamura and M. Ozawa, *J. Math. Phys.* **57** (2016), 015209.
- [5] K. Okamura, *Symmetry* **13** (2021), 1183.

正則グラフ上の量子ウォークの波動関数について

The wave functions of quantum walks on regular graphs

工学院大学

○ 齋藤正顕

Kogakuin University

○ Seiken Saito

ドレスト光子 (DP) を説明するモデルとして, 大津-瀬川 [3] によって 3 状態の量子ウォーク (QW) モデル (ドレスト光子の量子ウォークモデル) が提案され, 次元が 2 以上の場合に, その数値的な挙動が調べられている [4]. 本研究では, より基礎的なグラフ上の量子ウォークを扱う. 具体的には, グラフ $G = (V, E)$ の隣接行列を A とするとき, 時間発展行列を $U(t) = e^{itA/2}$ とし, 初期状態を $\Psi(0) \in \mathbf{C}(V)$ とするとき, 時刻 $t \geq 0$ における状態が

$$\Psi(t) = U(t)\Psi(0)$$

によって定められる連続時間量子ウォークについて考察する. このような量子ウォークモデルは, グラフ上のシュレディンガー方程式として, 昔から研究されてきた. グラフ G が 1 次元格子 \mathbf{Z} , サイクルグラフ C_N , 正則木 T_{q+1} の場合については, [2] などがある. 詳しくは, [1], [2], [5], [6] 等を参照のこと. しかしながら, 特定の種類のグラフの族だけを扱った研究が多く, 正則グラフを統一的な視点で扱う研究は少ないようである. 本研究では, 跡公式の観点から正則グラフの時間発展行列の統一的な表示を与える. これは, [2] で扱っているいくつかの例が示唆するように J -ベッセル関数を含む形で表され, またグラフのパスの個数に関する幾何的な情報を持った数列を含む. 併せて頂点推移的で, girth が発散するような正則グラフの増大列 (G_n) の場合についても考察した.

謝辞 この研究の一部はドレスト光子研究起点の支援を受けています.

参考文献

- [1] C. Godsil and H. Zhan, Hanmeng Discrete quantum walks on graphs and digraphs, London Math. Soc. Lecture Note Ser., 484 Cambridge University Press, Cambridge, 2023, xii+138 pp.
- [2] 今野紀雄, 量子ウォークの数理, 産業図書, 2008.
- [3] M. Ohtsu, A Quantum Walk Model for Describing the Energy Transfer of a Dressed Photon, Preprint, 2021, Offshell: 10.14939/2109R.001.v1.
- [4] 大津元一, 瀬川悦生, 結城謙太, 量子ウォークモデルによるドレスト光子エネルギー移動のシミュレーション, 2022 年第 83 回応用物理学会秋季学術講演会 (講演番号 22a-A101-6).
- [5] R. Portugal, Quantum walks and search algorithms, Quantum Sci. Technol., Springer, New York, 2013, xii+222 pp.
- [6] S. E. Venegas-Andraca, Quantum walks: a comprehensive review, Quantum Inf. Process.11(2012), no.5, 1015-1106.

ドレスト光子の自律的移動経路を決める最適散逸

Optimum dissipation for governing the autonomous transfer of dressed photons

ドレスト光子¹, 横浜国大², Middenii³, 工学院大⁴○大津元一¹, 瀬川悦生², 結城謙太^{3,4}, 齋藤正顕⁴Res. Origin Dressed Photon¹, Yokohama Ntnl. Univ.², Middenii³, Kogakuin Univ.⁴○Motoichi Ohtsu¹, Etsuo Segawa², Kenta Yuki^{3,4}, Seiken Saito⁴

E-mail: ohtsu@rodrep.or.jp

【まえがき】多数のナノ寸法粒子 (NP:NP_s) の三次元配列の光照射位置に発生したドレスト光子 (DP) はフォノンと結合してドレスト光子フォノン (DPP) を生成し、NP_s 間を自律的に移動し出口の NP (NP_L) に達して外部に光放射する。この現象は従来の On-shell 科学を支配する最小作用の原理には従わない。本講演ではこの現象への散逸過程の関わりを示す。

【方法】実験によれば出口までの DPP の到達可能距離 L_0 は三次元配列の厚さ H の増加とともに増加する (図 1(a)) [1]。理論面に目を向けると DP の特性解析には相互作用、さらには散逸が本質であることがわかっている [2]。相互作用は非可換な物理過程なので、非可換代数の量子ウォーク (QW) モデルが有効である。このモデルに散逸の効果を取り入れたこれ迄の計算結果は実験結果と整合している [3]。さらに Si 結晶中の B 原子対に局在する DPP の生成確率は散逸係数 κ が 0.2 ($= \kappa_{opt}$) のときに最大となる (図 1(b))。B 原子対を NP に置き換えれば図 1(a) が解析可能である。

【結果】散逸係数 κ は内部散逸係数 $\kappa_{internal} (= N \cdot \alpha_{loss})$ (N : NP の数, α_{loss} : 各 NP での損失係数) と出口 (NP_L) での放射緩和に起因する散逸係数 κ_{out} の和である。ここで N は三次元配列の三軸方向の NP の数 N_x の積に比例し、また、配列の厚み H は N_x に比例するか

ら $\kappa \propto H$ である。これは上記の最適値 κ_{opt} は H にも最適値 H_{opt} があることを意味するので、図 1(a) の実験結果は図 1(b) 中の領域 A ($H < H_{opt}$) に対応する。すると L_0 は $H < H_{opt}$ において最大となり (最適経路)、その後は H の増加とともに減少することがわかる (領域 B: $H > H_{opt}$)。この最適経路は有限数の NP により構成されるのであり、以上の特性は最小作用の原理とは異質であり、オフシェル科学固有である。

【まとめ】QW モデルにより DP エネルギー移動後の放射光パワーを最大とする最適散逸量、最適経路があることを示した。これは新しいナノ寸法光デバイスを作るには三次元配列には有限値の最適寸法があることを示唆する。

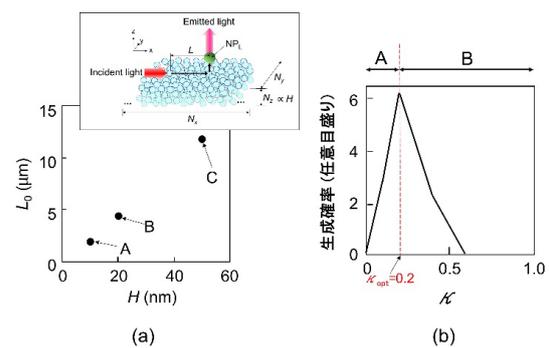


図1 最適経路の条件

【文献】

- [1] W. Nomura, et al, *Appl. Phys. B*, **100**, (2010), pp. 181-187. [2] I. Ojima, in *Progress in Nanophotonics 5*, (ed. T. Yatsui, Springer, 2018) pp. 107-135. [3] 大津他、第84回応物秋講演会(2023/9) 22p-A310-7.

量子ウォークモデルから見たドレスト光子が自律的に選択するグラフ上のパス

Paths on the graph chosen autonomously by dressed photons from the quantum walk model

- 瀬川悦生 (横浜国大)¹, 斎藤正顕 (工学院大)², 結城謙太 (Middenii)³, 大津元一 (ドレスト光子)⁴,
○ Etsuo Segawa (Yokohama Nat. Univ.)¹, Seiken Saito (Kogakuin Univ.)², Kenta Yuki (Middenii)³,
Motoichi Ohtsu (Dressed photon)⁴.
E-mail: segawa-etsuo-tb@ynu.ac.jp

任意のグラフ上のドレスト光子のエネルギー移送問題 [1] の量子ウォークによる素子化モデル [2], を提案する. グラフ上の各頂点にその隣接頂点に関する巡回置換 (ローテーション) を与える. そして, 元のグラフの隣接構造を保ちつつ, 各頂点をこの巡回置換にしたがった有向サイクルに置き換えたグラフを拡張グラフと呼ぶ. したがって, この拡張グラフの各頂点において, 元のグラフの隣接構造から由来するものと, 各頂点のローテーションから由来する 2 種類の有向辺が存在する. これをドレスト光子の各頂点における局所的な 2 種類の跳躍経路とみなす. さらにフォノンによる跳躍の抑止性を与えるため, その各頂点にセルフループを設ける. この各頂点上に適切な 3 次元のユニタリ行列 $H = (h_{i,j})_{i,j=1,p,2}$ を与えることで, 量子ウォークによる素子化モデルの時間発展を定義することができる. このときの定常状態において, ドレスト光子がどのような振る舞いをするのかについて考察する. まず, 定常性とフォノンのこのモデルにおける役割により, ドレスト光子の 2 種類の跳躍の中に, フォノンの役割を反映させた次のような 2 次元のユニタリ行列 \tilde{H} による時間発展として書き直すことができる.

Lemma 1. 既約化された量子コイン $\tilde{H} = (\tilde{h}_{ij})_{i,j=1,2}$ は次のように書き表される.

$$\begin{aligned}\tilde{h}_{ij} &= h_{ij} + \frac{h_{ip}h_{pj}}{1-h_{pp}} \\ &= \frac{1}{1-h_{pp}} \left(h_{ij} - (-1)^{i+j} \text{Det}(H) \bar{h}_{-i,-j} \right)\end{aligned}$$

この Lemma と \tilde{H} のユニタリ性から次の事が導出される.

Theorem 1. 定常状態において, $h_{11} = \text{Det}(H)\bar{h}_{22}$ を満たすとき, ドレスト光子はローテーションによって誘導されるグラフの閉曲面埋め込みにおける各面の境界に沿って動く.

この定理の条件を満たすものは, [2] によって提案されている典型的な量子ウォークのドレスト光子シミュレーションモデルの中で現れている. しかしながら, [1] の結果との整合性の観点から, この条件を緩和させ $h_{11} - \text{Det}(H)\bar{h}_{22} \in \mathbb{R}$ となるものが良いことが [3] から示唆できる.

参考文献

- [1] M. Naruse et al., Nano Communication Networks **2** (2011) 189–195.
[2] M. Ohtsu et al., Off -shell archive: 2304O.001.v1 (2013).
[3] Yu. Higuchi and E. Segawa, arXiv:2402.00360.

物質構造を介したドレスト光子高励起状態の生成

Generation of Highly Excited States of Dressed Photon via Matter Structure

(株)リコー °三宮 俊

Ricoh Co., Ltd.

°Suguru Sangu

E-mail: suguru.sangu@jp.ricoh.com

1. はじめに

ドレスト光子は原子や量子ドットなどの質点を表わすノードに束縛された準粒子としてモデル化することができる。このモデルを用い、ドレスト光子を介在した物理現象(不純物位置の固定化や発光現象など)の解明を試みている[1]。これらの現象はナノ物質系から外界へのエネルギー散逸が重要な役割を担っており、その制御方法の確立や高効率化は将来的な技術課題である。著者らは近年、散逸現象とドレスト光子の高励起状態(複数個のドレスト光子を内在する状態)との関係に注目し、理論検討を進めている。高励起状態は Dicke の超放射と類似の基底状態[2]で記述することができ、空間対称性に起因した高速な緩和現象の発現が示唆される。また、ドレスト光子が主役となるナノ物質系は人工的に製造可能であり、多様な光学機能実現への展開が期待される。

本発表では、上述内容の予備的検討として数値シミュレーションを基に、ドレスト光子の高励起状態を効率的に生成する物質構造について検討した結果を報告する。

2. 数値シミュレーション

数値シミュレーションでは、散逸を加味した量子密度行列の運動方程式(Lindblad 方程式)の定常解を数値的に算出し、各基底状態の占有確率を評価する。ここで、基底状態とはドレスト光子が物質を表わすノードに束縛された状態を示し、これは物質励起、光子、フォノンの混合状態を準粒子と見なした描像である。物質構造とドレスト光子の励起状態との関係を調べるため、本講演では最近接距離に配置したノード対を中央に固定し、その周囲にランダムにノードを配置した物質モデルを解析対象としている。

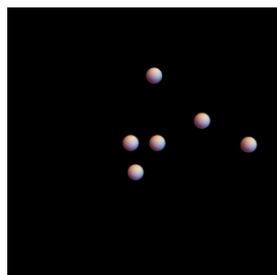
3. 数値解析例と考察

Fig. 1 は、6 ノードの物質モデル多数生成し、ドレスト光子基底状態の占有確率を算出した結果の一例を示す。ノード間の配置に規則性がない場合、占有確率は平坦な分布となるが、幾つかの物質モデルでは Fig. 1(b) に示すように、3 個のドレスト光子を内在する状態(3DP 状態)において基底状態の選択的な励起が観測できる。3DP 状態は基底の数が多く、ノードの空間配置に依存して励起および緩和のレートが異なるために、占有確率に偏りが現れるものと推察される。構造の特徴として、対配置または鎖状配置を有する物質モデルにおいて占有確率の分散性が高くなる傾向を確認しているが、より詳細な物理的解釈さらにはノード数影響等については現在検討を進めており、講演ではその内容も含めて報告する。

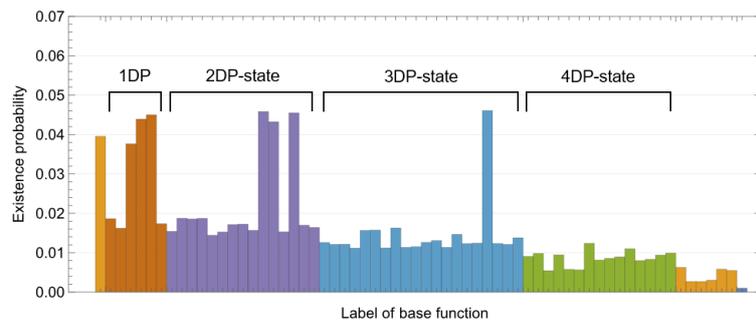
参考文献

[1] 三宮・他, 2024 年第 71 回応用物理学会春季学術講演会 講演予稿集(2024) 24a-11F-7.

[2] M. Gross and S. Haroche, Phys. Rep. 93 (1982) 301.



(a) 物質モデル(6 ノード)



(b) 基底状態の占有確率

Fig. 1: 非平衡定常状態におけるドレスト光子状態の数値解析例