

電子やイオン等の能動的制御と反応
2020 年度採択研究者

2020 年度 年次報告書

岩佐 豪

北海道大学 大学院理学研究院
助教

近接場光による励起状態制御の理論

§ 1. 研究成果の概要

量子力学が支配する世界では、物質は波の性質も示します。このことによって、一つの物質において、複数の状態を重ね合わせる事ができます。分子は通常、最もエネルギーの低い基底状態にいますが、光などの外場を作用させることで励起状態への遷移や、複数の励起状態を重ね合わせた状態を実現できることが知られています。実際、短波長レーザー光を用いた時空間制御の研究は盛んに行われています。本研究ではこの原理を利用して、特に空間部分に着目し、「物質近傍に局在する近接場光を用いて励起状態をどのように制御できるか」に理論的に挑戦します。近接場光は光源の形状に依存した空間分布を持つため、巧みに設計した近接場光を用いることで、分子の基底状態に重ね合わせる電子励起状態を制御できる可能性があります。まだその制御には至っていません。本研究ではまず近接場光と分子の相互作用を記述するための理論的な枠組を開発し、それを用いて、狙いの電子励起状態へと励起し、分子の反応性を能動的に制御する仕組みを打ち立てます。

近接場光と分子の相互作用を記述するためには、通常の伝搬する光と分子の相互作用でよく成り立つ双極子近似を超えた理論が必要になります。本年度では、多重極ハミルトニアンに基づいた第一原理計算のための定式化を行い、この定式化を実時間・実空間密度汎関数法のプログラムに実装しました。これを用いて、近接場光で励起された分子の計算を行い、非常に複雑な電子ダイナミクスが誘起されることを確認しました。現在は、どのように近接場光励起状態を解析するかを考えています。また、関連して近接場を用いた探針増強ラマン分光法の方法論の開発と応用も行い、近接場光の形状と分子振動の両方を反映したイメージングができることも実証しました。