

6-3 光分子科学研究領域

光分子科学第一研究部門

岡 本 裕 巳 (教授) (2000年11月1日着任)

A-1) 専門領域：ナノ光物理化学

A-2) 研究課題：

- a) 先端的な近接場分光法の開発とその利用研究
- b) 金属ナノ構造におけるプラズモン波，増強電場のイメージングと近接場相互作用
- c) ナノ構造物質におけるキラリティと局所的な光学活性

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 分子・分子集合体におけるナノ構造の観察と，特徴的な光学的性質，励起状態の超高速ダイナミクス等を探るための，近接場時間分解分光装置の開発を行い 並行して試料の測定を行っている。基本的な測定システムは数年前に完成し，光学像の横方向分解能は 50 nm 程度，時間分解能は 100 fs 以上を同時に実現した。更に短いレーザーパルスと空間位相変調による分散補償を導入した装置を開発し，近接場で最短約 14 fs のパルス幅を実現した。これにより金ナノ微粒子のプラズモンの緩和（約 8 fs）を，近接場領域で実時間観測することに成功し，また条件によってプラズモンの緩和にサイト依存性のあることを実測しつつある。また別な方向への発展として，近接場円二色性イメージングの装置開発を進めており，基本的な測定が可能となった。この手法についても更に精度を向上させ，様々な系に適用する予定である。
- b) 各種形状金属ナノ構造体の分光及びダイナミクスの測定を，単一ナノ構造内で空間を分解して行っている。貴金属微粒子の近接場分光測定により，プラズモンモードの波動関数の二乗振幅に対応するイメージが得られることを以前に見だし，所外との共同研究も積極的に行いその展開を図った。最近では例えば，近接場測定で得られた二次元的形状の円盤状金微粒子におけるプラズモン波のイメージに対し，理論研究者と共同で新たな理論的枠組みに基づくモードの解析を行い，その起源をほぼ明らかにすることができた。貴金属微粒子を凝集・配列した試料の近接場領域での光学的性質に関する研究を，多くの所外との共同研究も含め進めている。我々は既に数年前に，近接場イメージングによって，微粒子凝集体における微粒子間空隙に生じる強い光電場を実証したが，これを発展させ，微粒子の形状・サイズと凝集状態による電場増強の違い，微粒子間の電磁気学的な相互作用等に関して研究を進めている。これらの研究の結果として，有用な増強局在光電場を作るには，均一な配列構造ではなく，揺らぎのある構造が望ましいことを確立しつつある。これをさらに体系化するためにナノ構造の制御と観察波長の拡張が重要であり，それを実現するために，電子線描画装置の導入と，フェムト秒で近赤外域広帯域波長可変の近接場励起用光源の導入を進めた。
- c) 2次元のキラルな構造を持つ金ナノ構造体を電子線描画法で作成し，開発を進めている近接場円二色性イメージング装置を用い，局所的な光学活性を測定している。局所的な円二色性信号が巨視的な円二色性信号に比べて極めて大きくなる等，興味深い結果が得られてきている。また2次元のキラルな構造を二つのキラルでない（アキラル）部

分構造に分け，アキラルな部分構造の接近に従って系が光学活性を獲得するプロセスを追跡する研究を行っている。これらの発展として，金属ナノ構造と分子とのキラルな光学的相互作用に関する研究を視野に入れ，研究を推進している。

B-1) 学術論文

K. IMURA, K. UENO, H. MISAWA and H. OKAMOTO, “Optical Field Imaging of Elongated Rectangular Nanovoids in Gold Thin Film,” *J. Phys. Chem. C* **117**, 2449–2454 (2013).

S. KIM, K. IMURA, M. LEE, T. NARUSHIMA, H. OKAMOTO and D. H. JEONG, “Strong Optical Coupling between Mutually Orthogonal Plasmon Oscillations in a Silver Nanosphere-Nanowire Joined System,” *Phys. Chem. Chem. Phys.* **15**, 4146–4153 (2013).

T. SHIMADA, K. IMURA, H. OKAMOTO and M. KITAJIMA, “Spatial Distribution of Enhanced Optical Fields in One-Dimensional Linear Arrays of Gold Nanoparticles Studied by Scanning Near-Field Optical Microscopy,” *Phys. Chem. Chem. Phys.* **15**, 4265–4269 (2013).

T. NARUSHIMA and H. OKAMOTO, “Circular Dichroism Nano-Imaging of Two-Dimensional Chiral Metal Nanostructures,” *Phys. Chem. Chem. Phys.* **15**, 13805–13809 (2013).

T. NARUSHIMA and H. OKAMOTO, “Strong Nanoscale Optical Activity Localized in Two-Dimensional Chiral Metal Nanostructures,” *J. Phys. Chem. C* **117**, 23964–23969 (2013).

M. KITAJIMA, T. NARUSHIMA, T. KURASHINA, A. N. ITAKURA, S. TAKAMI, A. YAMADA, K. TERAISHI and A. MIYAMOTO, “Stress Inversion from Initial Tensile to Compressive Side During Ultrathin Oxide Growth of the Si(100) Surface,” *J. Phys.: Condens. Matter* **25**, 355007 (5 pages) (2013).

B-3) 総説，著書

G. HARTLAND, H. OKAMOTO, M. ORRIT and P. ZIJLSTRA, “Optical Studies of Single Metal Nanoparticles,” *Phys. Chem. Chem. Phys.* **15**, 4090–4092 (2013).

H. OKAMOTO, “Nano-optical Studies on Physical and Chemical Characteristics of Noble Metal Nanostructures,” *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **86**, 397–413 (2013).

H. OKAMOTO and K. IMURA, “Visualizing the Optical Field Structures in Metal Nanostructures,” *J. Phys. Chem. Lett.* **4**, 2230–2241 (2013).

岡本裕巳，「指紋領域のピコ秒赤外吸収スペクトル(スペクトルギャラリー)」*分光研究* **62**, 174–176 (2013).

B-4) 招待講演

成島哲也，岡本裕巳，「キラルなナノ構造体の局所光学活性——近接場ナノイメージング——」日本分光学会北海道支部シンポジウム，札幌，2013年3月。

成島哲也，「近接場光学顕微鏡によるナノスケール円偏光二色性イメージング」日本分光学会平成24年度中部支部東海・信州ブロック講演会，岡崎，2013年3月。

岡本裕巳，「金属ナノ微粒子の非線形光学トラップ」第60回応用物理学会春季学術講演会，厚木，2013年3月。

H. OKAMOTO, “Nano-Optical Visualization of Subwavelength Optical Field Structures and Chirality in Metal Nanostructures,” Symposium on Plasmon-Based Chemistry and Physics (ICP Preconference), Leuven (Belgium), 2013年7月。

K. IMURA and H. OKAMOTO, “Visualization and Optical Control of Localized Plasmons by Near-Field Optical Microscopy,” Symposium on Plasmon-Based Chemistry and Physics (ICP Preconference), Leuven (Belgium), 2013年7月.

H. OKAMOTO, “Near-Field Optical Visualization of Subwavelength Optical Fields and Chiralities in Metal Nanostructures,” Control and Applications of Light at the Nanoscale, Glasgow (U.K.), 2013年9月.

H. OKAMOTO, Y. NISHIYAMA, T. NARUSHIMA and K. IMURA, “Time-Domain Plasmon Dynamics Measurements by Optical Nanoscopy,” 246th National Meeting of the ACS, Symposium on Chemistry at the Space-Time Limit, Indianapolis (U.S.A.), 2013年9月.

岡本裕巳, 「パルスレーザーによる金属微粒子の捕捉の非線形光学効果」日本物理学会2013年秋季大会, 徳島, 2013年9月.

H. OKAMOTO, “Plasmon Dynamics and Chiralities Investigated by Optical Nanoscopy,” A Peter Wall Colloquium Abroad and The 73rd Okazaki Conference on Coherent and Incoherent Wave Packet Dynamics, Okazaki (Japan), 2013年11月.

H. OKAMOTO, “Visualizing the Optical Fields in Metal Nanostructures by Near-Field Optical Microscopy,” The Fourth Asian Spectroscopy Conference (ASC2013), Singapore, 2013年12月.

B-6) 受賞, 表彰

岡本裕巳, 光科学技術研究振興財団研究者表彰 (1994).

岡本裕巳, 分子科学研究奨励森野基金 (1999).

井村考平, 応用物理学会講演奨励賞 (2004).

井村考平, ナノ 옵ティクス賞 (2005).

井村考平, 分子構造総合討論会奨励賞 (2005).

井村考平, 光科学技術研究振興財団研究者表彰 (2007).

井村考平, 日本化学会進歩賞 (2007).

井村考平, 日本分光学会賞(奨励賞)(2007).

原田洋介, ナノ 옵ティクス賞 (2010).

岡本裕巳, 日本化学会学術賞 (2012).

成島哲也, Yamada Conference LXVI Best poster award (Young Scientist) (2012).

橋谷田俊, 日本光学会 OPJ ベストプレゼンテーション賞 (2013).

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等員

日本化学会トピックス小委員会委員 (1993–1996).

日本分光学会編集委員 (1993–2001).

日本分光学会東海支部幹事 (2001–2012).

日本化学会東海支部常任幹事 (2003–2005).

分子科学研究会事務局 (2004–2006).

分子科学会運営委員 (2006–2008).

学会の組織委員等

The International Symposium on New Developments in Ultrafast Time-Resolved Vibrational Spectroscopy (Tokyo), Organizing Committee (1995).

The Tenth International Conference on Time-Resolved Vibrational Spectroscopy (Okazaki), Local Executive Committee (2001).

The Twentieth International Conference on Raman Spectroscopy (Yokohama), Local Organizing Committee (2006).

International Workshop on Soft X-ray Raman Spectroscopy and Related Phenomena (Okazaki), Local Organizing Committee (2006).

The 12th Korea-Japan Joint Symposium on Frontiers of Molecular Science (Jeju), Co-chair (2007).

Japan-Korea Joint Symposium on Molecular Science 2009 “Chemical Dynamics in Materials and Biological Molecular Sciences” (Awaji), Co-chair, Secretary general (2009).

The 7th Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics (Jeju), Technical Program Committee (2009).

Yamada Conference LXVI: International Conference on the Nanostructure-Enhanced Photo-Energy Conversion, Programming Committee (2012).

文部科学省，学術振興会，大学共同利用機関等の委員等

日本学術振興会科学研究費委員会専門委員 (2006–2007).

日本学術振興会特別研究員等審査会専門委員 (2008–2010).

日本学術振興会国際事業委員会書面審査員 (2008–2010).

文部科学省研究振興局科学研究費補助金における評価に関する委員会(理工系委員会)委員(評価者)(2010–2012).

日本学術振興会学術システム研究センター専門研究員 (2013–).

その他

スーパーサイエンスハイスクール(愛知県立岡崎高等学校)活動支援 (2003, 2004).

総合研究大学院大学物理科学研究科副研究科長 (2010–2012).

総合研究大学院大学物理科学研究科研究科長 (2012–).

B-10) 競争的資金

科研費基盤研究(B), 「動的近接場分光法による励起伝播ダイナミクスの分子科学」岡本裕巳 (2004年–2006年).

科研費若手研究(B), 「メゾスコピック領域における金微粒子を用いた空間的エネルギー伝播の直接観測」井村考平 (2004年–2006年).

倉田記念日立科学技術財団倉田奨励金, 「時空間コヒーレンス観測に向けた超高速近接場分光システムの開発」岡本裕巳 (2005年).

科研費萌芽研究, 「近接場分光法による素励起の波動関数イメージング」岡本裕巳 (2005年–2007年).

科研費特定領域研究「極微構造反応(公募研究)」極微構造における素励起の時空間コヒーレンスの超高時間分解近接場分光」岡本裕巳 (2005年–2007年).

科研費基盤研究(A), 「ナノ微粒子系の波動関数と励起状態の動的挙動」岡本裕巳 (2006年–2010年).

科研費若手研究(A), 「励起と検出の時空間を制御した時間分解近接場分光手法の構築」井村考平 (2006年–2010年).

池谷科学技術振興財団研究助成, 「固体表面・界面歪みの利用を目的とした2次元高精度歪み検出系開発」成島哲也 (2007年).

科研費特定領域研究「光 - 分子強結合場」(計画研究)「近接場顕微分光に基づく光反応場の動的可視化・制御」岡本裕巳 (2007年-2011年).

住友財団基礎科学研究助成,「開口散乱型近接場光学顕微鏡の開発」井村考平 (2007年-2008年).

科学技術振興機構さきがけ研究,「プラズモン物質の波動関数の光制御とその応用」井村考平 (2008年).

科研費挑戦的萌芽研究,「ナノ円二色性イメージングの開発と分子集合体キラリティ」岡本裕巳 (2009年-2011年).

科研費基盤研究(S),「ナノドット配列における結合励起状態の時空間特性と励起場制御」岡本裕巳 (2010年-).

科研費若手研究(B),「近接場光励起領域近傍の空間分解分光イメージング」成島哲也 (2011年-).

特別研究員奨励費,「超高速時間分解分光法を用いたイオン液体中における光解離反応過程の解明」西山嘉男 (2011年-2012年).

科研費若手研究(B),「近接場超短パルスによるプラズモン波束のコヒーレント制御」西山嘉男 (2013年-).

光科学技術研究振興財団研究助成,「キラル物質に都合の良い光電場の発生とその相互作用に関する研究」成島哲也 (2013年-).

C) 研究活動の課題と展望

静的・動的近接場分光装置を用いた、メソスコピックな分子系・微粒子系に関する研究を推進している。金属ナノ構造体に関しては波動関数や光電場の空間分布をイメージするという独自の研究領域を拓く事ができた。これまでの研究によって、金属ナノ構造の性質・機能(特に微粒子の集合構造における光電場増強に基づく光学特性や、新たな光反応場としての機能)の新たな可能性や、プラズモン電場、波動関数の空間特性等、プラズモンの物理的本質に関わる新たな可能性を見いだしつつある。現在、測定波長域の拡大や、試料設計・作成のための新装置導入等を進め、これらを次のフェーズに発展させつつある。時間分解近接場分光の時間分解能を格段に向上させる装置開発では、10 fsに迫る時間分解能で近接場測定が可能となった。これによる光励起直後の励起状態のコヒーレントな空間伝播や緩和の空間挙動の研究に向け、努力を続けている。今一つの方法論開発として、近接場円二色性イメージングの開発を行っている。最近貴金属ナノ構造の局所的な円二色性の分布を観測することに成功し、ナノ構造体の光学活性の起源について興味深い実験的情報を得ることができた。キラルなプラズモンに対するユニークで強力な実験手法を提供する他、今後様々な金属ナノ構造に限らず種々のナノ構造光学活性物質や、スピンと光の相互作用に関しても有力な実験手法になることを期待している。また、この実験手法で得られた成果をもとに、金属ナノ構造と分子のキラルな電磁気学的相互作用に基づく新たな物質機能の研究への展開も視野に入りたい。この他にも微粒子の光トラッピング等、ナノ光学に関わるいくつかの研究萌芽を見出しており、機会があればこれらも展開させたいが、現時点の研究室の体制ではそれらを大きく進展させるのは難しそうである。