

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ダイナミクス
- 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) ナノ構造物質の観察と，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，近接場分光イメージング装置の開発を行い，並行して試料の測定を行っている。着任後測定装置の構築に取り組み，基本的なシステムの完成後プラズモン物質を中心にナノ光学の研究に用いてきた。光学像の横方向分解能は 50 nm 程度である。現在これを主に二つの方向で展開している。極めて短い寿命を持つプラズモンの動的過程を直接観測する目的で超高速近接場計測を行うため，超短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。これにより次項に述べるプラズモンの時空間ダイナミクスの観測に成功した。また近接場円二色性イメージングの装置開発を進め，2次元金属ナノ構造の局所光学活性の研究を行っている。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。
- 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，また微粒子凝集体では微粒子間空隙に生じる強い光場が観測できることを見だし，所外との共同研究も積極的に行いその展開を図った。それには対象とするナノ構造の制御と観察波長の拡張が重要であり，その目的で電子線描画装置と，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を導入し，体系的に光場の空間構造と分光特性の近接場測定を進めている。また前項で述べた通り，プラズモンのダイナミクスを直接観測可能な超高速近接場計測系が完成し，プラズモンの位相緩和を時間分解イメージングで直接観測したほか，複数のプラズモンモードをコヒーレントに励起した後のプラズモン波束の運動を可視化することに成功した。これはナノ物質の励起の時空間コヒーレント制御に向けた重要なステップに位置付けられると考えている。
- 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ことを見出し，また局所的な強い光学活性がその付近の微視的な電子の流れにより生じるのではなく，ナノ構造内の遠隔的な電磁気学相互作用で現れていることが明らかになる等，幾つかの基礎的に重要な結果が得られている。また高い対称性を持つアキラルな金属ナノ長方形構造において，巨視的な光学活性は当然現れないが，局所的には強い光学活性を示しており，それを平均すると全体の光学活性がほぼ0となっていることを，円二色性イメージングによって明確に示した。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、英国との共同研究として開始した。また金属ナノ構造における局所的に強くねじれた光の特性を更に解明し制御するための実験法の開発も、継続して推進している。

B-1) 学術論文

M. K. HOSSAIN, M. KITAJIMA, K. IMURA and H. OKAMOTO, “A Topography-Metrology Correlation in Nanoscale Probed by Near-Field Scanning Optical Microscopy,” *Plasmonics* **10**, 447–454 (2015).

Y. NISHIYAMA, K. IMAEDA, K. IMURA and H. OKAMOTO, “Plasmon Dephasing in Single Gold Nanorods Observed By Ultrafast Time-Resolved Near-Field Optical Microscopy,” *J. Phys. Chem. C* **119**, 16215–16222 (2015).

Y. NISHIYAMA, K. IMURA and H. OKAMOTO, “Observation of Plasmon Wave Packet Motions via Femtosecond Time-Resolved Near-Field Imaging Techniques,” *Nano Lett.* **15**, 7657–7665 (2015).

B-2) 国際会議のプロシーディングス

Y. NISHIYAMA, T. NARUSHIMA, K. IMURA and H. OKAMOTO, “Real Space and Real Time Observation of Plasmon Wavepacket Dynamics in Single Gold Nanorod,” *Ultrafast Phenomena XIX*, Springer, pp. 691–693 (2015).

B-3) 総説，著書

H. OKAMOTO, T. NARUSHIMA, Y. NISHIYAMA and K. IMURA, “Local Optical Responses of Plasmon Resonances Visualised by Near-Field Optical Imaging,” *Phys. Chem. Chem. Phys.* **17**, 6192–6206 (2015).

岡本裕巳, 「近接場分光」『発光の事典 基礎からイメージングまで』木下, 太田, 永井, 南編, 朝倉書店, pp. 165–170 (2015).

B-4) 招待講演

H. OKAMOTO, “Near-Field Imaging Measurements of Local Circular Dichroism in Gold Nanostructures,” 応用物理学会関西支部セミナー, 吹田, 2015年2月.

岡本裕巳, 「近接場光学顕微鏡によるキラルなプラズモンの可視化」分子研研究会「キラル磁性×光学物性研究会」岡崎, 2015年6月.

H. OKAMOTO, “Local Optical Activity in Metal Nanostructures Visualized by Near-field Circular Dichroism Microscopy,” PIERS (Progress In Electromagnetics Research Symposium) 2015 in Prague, Prague (Czech Republic), July 2015.

H. OKAMOTO, “Imaging Local Optical Activity in Metal Nanostructures by Near-Field Circular Dichroism Microscopy,” The 10th Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics, Hakodate (Japan), July 2015.

H. OKAMOTO, “Circular Dichroism Nanoscopy of Metal Nanostructures,” The 5th Asian Spectroscopy Conference, Sydney (Australia), September 2015.

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, ナノオブティクス賞 (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, ナノオブティクス賞 (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).
西山嘉男, 日本分光学会年次講演会一般講演賞 (2014).
橋谷田俊, 日本化学会第95春季年会学生講演賞 (2015).
橋谷田俊, 第9回分子科学討論会分子科学会優秀ポスター賞 (2015).

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).
1st Optical Manipulation Conference, Optics & Photonics International Congress 2014, Program Committee (2014).
2nd Optical Manipulation Conference, Optics & Photonics International Congress 2015, Program Committee (2015).

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–).

学術誌編集委員

Journal of Photochemistry and Photobiology C: Photochemistry Reviews, Advisory Board (2012–).

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 (2012–2014).

分子科学研究所運営会議議長 (2014–).

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),「メソ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–2015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–2014年).

科研費特別研究員奨励費,「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).

二国間交流事業共同研究(英国との共同研究)「ナノフォトニック物質の光電場構造・ダイナミクス解析」岡本裕巳 (2012年–2014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–2015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–2015年).

科研費基盤研究(C),「局所的に発現するナノ構造の強い光学活性の実態解明と物質系との相互作用への展開」,成島哲也(2014年–).

科学技術振興機構さきがけ研究,「強い局所光学活性を利用したキラル光デバイス」,成島哲也(2014年–).

科研費基盤研究(A),「キラルなプラズモン励起による不斉光化学場の展開」,岡本裕巳(2015年–).

科研費挑戦的萌芽研究,「金属ナノ構造に誘起される局所的円偏光電場による磁性体中の磁化制御」,岡本裕巳(2015年–).

科研費特別研究員奨励費,「金ナノ構造体の強い局所光学活性によるキラル光化学反応場の開拓」,橋谷田俊(2015年–).

C) 研究活動の課題と展望

近接場分光イメージングによるナノ構造物質の光学特性に関する研究を推進し,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,金属ナノ構造による光の局在化や増強などの性質・機能に関する新たな情報と方法論を提供し,多くの追随研究を生んだと考えている。また並行して継続的に測定波長域の拡大や 試料設計・作成のための新装置導入 近接場計測装置の高度化等を進め 研究を次のフェーズに発展させる用意も進めてきた。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 レベルの時間分解能で近接場測定を実現し,金属ナノ構造の多モードコヒーレント励起後の時空間ダイナミクスのイメージングが可能となるなど,一つの山を越える段階に到達したと考えている。これを更に今後どのように展開するか,可能性を探ることが一つの課題である。今一つのベクトルとして進めている近接場円二色性イメージングの開発とナノ物質のキラリティの研究では,金属ナノ構造の円二色性イメージングによって,その光学活性の特性,起源等について独自の実験的情報を得ることができた。対称性の高いアキラな構造でも局所的に強い光学活性を示すという,ユニークな成果も得られた。近接場円二色性イメージングはキラルなプラズモンに対する特徴的で強力な実験手法を提供する他,今後様々なナノ構造光学活性物質の機能解明のための有力な実験手法になることを期待している。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展開することも,高いポテンシャルを持つものとして重点的に考えており,すでに国外との共同研究を開始している。また物質および光のキラリティは磁性との相関においても興味を持たれ,ナノ光学の観点からこの方向への研究展開についても検討を開始した。一方これらとはやや異なる研究課題として,微粒子の光トラッピングに関わる独自の新たな研究萌芽(非線形共鳴光トラッピング)を見出しており(数年前に発表済),国内で関連する研究を行っている研究者が集まり,それらの今後の展開について議論を開始している。機会があればこれも展開させたい。