

6-2 メゾスコピック計測研究センター

メゾスコピック計測研究センター（以後「本センター」）は、旧分子制御レーザー開発研究センター（1997年4月設立）からの改組により、2017年4月に設立された。分子科学研究所の研究対象は、広い意味での分子物質であることは設立当初から変わらないが、当初は一つ一つの分子の挙動に重点をおいて注目されていたのが、最近では様々な分子やナノ構造体などがシステムを作って発現する機能・特性の解明と制御、及び新しい機能を持つシステムの構築に重点がシフトしてきている。それによって、分子の物質・エネルギー・情報変換能力を精緻に引き出すことが初めて可能になると考えられる。そのような新しい研究の方向性に対応する一つの方策として、分子科学研究所では2013年4月に協奏分子システム研究センターが設立されたところである。

分子計測の先端的手法では、時間、空間、波長、パワーなどにおいて極限に向かう方向が精力的に推し進められ、大きな成果を上げてきた。そうした手法では、理想化された極限条件下で系に大きなエネルギーの擾乱を与えて素過程の挙動を解析する方法が一般的であった。現在もその方式の重要性に変わりはないが、このような従来型計測法の可能性と限界も少しずつ明らかになってきている。本センターでは、従来の手法とは一線を画した、繊細・広帯域・多次元の計測解析手法で分子システムの挙動・機能のありのままの姿に迫り、また低摂動・超精密制御で新たな量子機能を創出する、革新的実験法の開発が必要という立場をとる。新たな分子能力の創発の現場を、マクロ階層の強靱でロバストな性質と、ミクロ階層の機能に富む特性が絡んだメゾスコピック領域に求め、分子の機能や反応の契機となる過程を明らかにするために、広い時空間領域で階層間のエネルギー・情報の変換を可視化させる新発想の計測開発手法を開発する。（ここでいうマクロ、ミクロ、メゾスコピックは、相対的な階層であり、扱う系によって実際のスケールは異なる。また空間だけではなく、時間領域についてもメゾスコピック領域が考えられる。）これらを通じて、分子の素過程が系全体の大域的な機能を生む機構を解明する研究などに主眼を置いて推進する。この目的のために、旧分子制御レーザー開発研究センターの研究業績・資産を引き継ぎながらも、分子科学研究所の基盤となる四つの領域から関連する研究を遂行する研究者の参画を得て、それらをまたぐ領域横断的なセンターとして設置することとした。これにより、同様な組織構成を取った協奏分子システム研究センターとともに、分子物質のシステムとしての挙動・機能を研究する両輪として研究活動を展開することが可能となった。

このような新しい分子計測制御法を開発・利用していくためのセンターとして、2017年4月の発足時に以下の3部門と担当教員を置くこととした。

(1) 物質量子計測研究部門：大森賢治（教授，光分子科学研究領域からの兼任），信定克幸（准教授，理論・計算分子科学研究領域からの兼任）

(2) 繊細計測研究部門：岡本裕巳（教授・センター長，専任），平等拓範（准教授，専任）

(3) 広帯域相関計測解析研究部門：飯野亮太（教授，生命・錯体分子科学研究領域からの兼任），藤 貴夫（准教授，専任）

専任研究グループに所属する助教等のスタッフも本センターの各研究部門に所属する。また、旧分子制御レーザー開発研究センターに所属した技術職員も、引き続き本センターに所属させる。今後分子科学研究所に採用される教授・准教授も、状況に応じて上記のいずれかの部門の専任または兼任ポストを占めることが想定されている。それぞれの部門の任務は、(1) 蓄積のある光観測・制御法を先鋭化し、更に量子系の構造変形を操作することによって、新しい量子相を作り出して制御し、量子情報処理など新規な分子の能力を引き出す；(2) 時空間を分解した計測法，増強光場を利用した超高感度・並列計測等による低摂動で繊細な分子計測法等を開発し，分子のありのままの姿を非破壊的に観測する；(3) 多変数スペクトロスコピー・多次元解析手法，高分解能広帯域計測法とその解析法を開発して分子の能力とそれを司る物理過程を明らかにし，従来とは質の異なる情報を獲得する革新的手法を開拓する；等を目指している。なお，信定准教授は2018年1月に残念ながら逝去された。平等准教授は2018年10月に理化学研究所（放射光科学研究センター）に，また藤准教授は2019年

4月に豊田工業大学に、それぞれ転出した。これらの研究領域の扱いについては今後の検討となる。一方、2018年5月には杉本敏樹准教授（物質量子計測研究部門）が物質分子科学研究領域からの、また2019年11月には江原正博教授（繊維計測研究部門）と南谷英美准教授（物質量子計測研究部門）が理論・計算分子科学研究領域からの併任として就任した。2021年4月からは、熊谷 崇准教授が広帯域相関計測解析研究部門に専任で就任した。

以上のような方針で分子システムの計測解析に関する研究を遂行すること、及びそれを通じて我が国の関連研究コミュニティにおける人材育成に寄与することが本センターの主なミッションであるが、同時にここで開発された新しいメゾスコピック計測手法を共同研究に供することも重要な機能の一つである。各研究グループの協力研究やその他のチャネルの共同研究を通じてそれを実施するほか、適宜醸成された計測手法・技術に関するセミナー等を開催する。また、さらに新たな革新的計測手法の開拓を念頭に置いた、萌芽的研究テーマとアイデアの発掘、可能性及び将来構想を議論する研究会等の開催も行っている。旧分子制御レーザー開発研究センターでは、分子科学研究所と理化学研究所の連携融合事業「エクストリーム・フォトニクス」を推進する母体となり、その主な研究活動終了後も、合同シンポジウム等の活動を自主的に継続してきたが、本センターはこの活動の継続のための推進母体ともなることが想定されている。なお、旧分子制御レーザー開発研究センターは、発足当初、種々の共用機器を保有して施設利用に供していたが、現在ではそれらの機器とその利用は全て機器センターに移っており、それを受けて本センターでは施設利用は想定していない。

繊維計測研究部門

岡 本 裕 巳（教授）（2000 年 11 月 1 日着任）

成島 哲也（助教）

吉澤 大智（助教）

AHN, Hyo-Yong（特任助教（新分野創成センター））

山西 絢介（学振特別研究員）

石川 晶子（技術支援員）

野村 恵美子（事務支援員）

A-1) 専門領域：ナノ光物理化学

A-2) 研究課題：

- a) キラルナノ・マイクロ物質における局所的な光学活性とその応用
- b) 光によるナノ物質の力学操作手法の開発

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) 光学活性分光手法と顕微イメージングを組み合わせた新手法を開発し、それらを用いたナノ・マイクロ物質の局所光学活性に関する基礎研究、及び応用研究を推進している。ナノレベルの空間分解能での測定が可能な近接場光学顕微鏡による光学活性イメージングでは、主にキラルな構造を持つ金ナノ構造体を対象とし、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、高い対称性を持つアキラルな金属ナノ構造においても局所的には強い光学活性を示すこと、局所的な誘起双極子が局所的な円偏光場の起源になること等、幾つかの基礎的に重要な結果を得た。その成果を基礎として、蛍光分子とキラルな金属ナノ構造の組み合わせにより、高い円偏光度を示す蛍光が得られ、その起源をプラズモンモードとの関連において明らかにした。通常の遠方場の顕微鏡においても光学活性によるイメージングは未開拓であるが、我々は高い精度・確度で顕微光学活性イメージングを可能とする実験手法を開発し、微結晶試料、液晶、生体組織等への応用を、共同研究を通じて推進している。キラルな構造を持つ金属有機構造体（MOF）微結晶の掌性同定に成功しており、多数の微結晶の掌性同定に有効であることを示した。液晶分子集合体をテンプレートとした螺旋状金微粒子集合体では、螺旋の掌性による円二色性信号の差を検出することに成功した。また、円二色性イメージングの医療応用を想定した基礎研究を、医科学分野の研究者と共同で開始している。また更に感度を向上させる試み、波長範囲を拡張する試みを行っている。
- b) レーザー光を強く集光すると、その焦点に微粒子がトラップされる（光トラッピング）。この時入射光にフェムト秒レーザーパルスを用いることで、非線形誘起分極によって、従来の光トラッピングとは全く異なる挙動を示すことを、数年前に報告した。非線形効果、共鳴効果、偏光を有効利用することで、このような光による力学的マニピュレーションの自由度が格段に広がることが予想される。この研究展開を図ることを、現在の研究活動の今一つの柱としている。キラルな物質においては、左右円偏光に対する力学的な作用が異なることが期待され、我々はキラル金ナノ微粒子の円偏光による光トラッピングを行いその挙動を調べた。その結果、光トラッピングのキラル挙動の起源に関する重要な基礎的知見が得られた。その起源を解析する中で、光トラッピングに関する従来知られている機構では説明困難な部分が見いだされ、理論解析を進めている。

B-1) 学術論文

S. MATOBA, C. KANZAKI, K. YAMASHITA, T. KUSUKAWA, G. FUKUHARA, T. OKADA, T. NARUSHIMA, H. OKAMOTO and M. NUMATA, “Directional Supramolecular Polymerization in a Dynamic Microsolution: A Linearly Moving Polymer’s End Striking Monomers,” *J. Am. Chem. Soc.* **143**(23), 8731–8746 (2021). DOI: 10.1021/jacs.1c02644

B-2) 国際会議のプロシーディングス

J. YAMANISHI, H.-Y. AHN, S. HASHIYADA and H. OKAMOTO, “Optical Gradient Force on Chiral Nanoparticles,” *Proceedings of SPIE—The International Society for Optical Engineering* **11522**, 115220E (2020). DOI: 10.1117/12.2573513

J. YAMANISHI, H.-Y. AHN, S. HASHIYADA, K. T. NAM and H. OKAMOTO, “Optical Gradient Force on Gold Chiral Nanoparticles,” *Proceedings of SPIE—The International Society for Optical Engineering* **11926**, 119260K (2021). DOI: 10.1117/12.2616111

H. OKAMOTO, “Chemical and Mechanical Dissymmetries in Chiral Plasmonic Interactions,” *2021 IEEE Research and Applications of Photonics in Defense Conference (RAPID)*, **2021**, WE4.3 (2021). DOI: 10.1109/RAPID51799.2021.9521413

B-3) 総説, 著書

岡本裕巳, 「キラル光学効果(光学活性)の常識と常識はずれ 初心者による, 初心者のための(Conventional and Unconventional View of Chiro-Optical Effects (Optical Activity)—for beginners, by a beginner」, *Mol. Sci.* **15**, A0119 (2021). DOI: 10.3175/molsci.15.A0119 (in Japanese)

Y. CHEN, W. DU, Q. ZHANG, O. ÁVALOS-OVANDO, J. WU, Q.-H. XU, N. LIU, H. OKAMOTO, A. O. GOVOROV, Q. XIONG and C.-W. QIU, “Multidimensional Nanoscopic Chiroptics,” *Nat. Rev. Phys.* **4**, 113–124 (2021). DOI: 10.1038/s42254-021-00391-6

岡本裕巳, 「光圧における非線形光学現象」, 「光圧 物質制御のための新しい光利用」, 石原 一, 芦田昌明 編, 朝倉書店, 138–146 (2021). ISBN: 978-4-254-13139-0

B-4) 招待講演 (* 基調講演)

H. OKAMOTO, “Chiral Near-Field Properties of Plasmonic Nanomaterials: Imaging and Functions,” The 11th International Conference on Metamaterials, Photonic Crystals and Plasmonics (META 2021), Warsaw (Poland) (online), September 2021.*

H. OKAMOTO, “Chemical and Mechanical Dissymmetries in Chiral Plasmonic Interactions,” The 2021 IEEE Research and Applications of Photonics in Defense Conference (RAPID), Florida (USA) (online), August 2021.

H. OKAMOTO, “Chemical and Mechanical Dissymmetries in Chiral Interaction of Plasmonic Materials,” 11th Asian Photochemistry Conference (APC2021), Daejeon (Korea) (online), November 2021.

岡本裕巳, 「キラルな光-物質相互作用の計測, 化学効果, 力学効果」, *Molecular Chirality* 2021, 東広島, 2021年11月.

H. OKAMOTO, S. HASHIYADA, K. Q. LE and T. NARUSHIMA, “Imaging chiral plasmons and chiral near-field interactions,” The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies 2021 (Pacifichem 2021), Honolulu (USA) (online), December 2021.

H. OKAMOTO, J. YAMANISHI, H.-Y. AHN, S. HASHIYADA and K. T. NAM, “Chiral field effects in optical manipulation,” *Pacifichem* 2021, Honolulu (USA) (online), December 2021.

B-5) 特許出願

国際出願

2021-029181,「円偏光照射器, 分析装置及び顕微鏡」, 岡本裕巳, 成島哲也(自然科学研究機構), 2022 年.

B-7) 学会および社会的活動

学協会役員等

プラズモニク化学研究会副会長 (2020-).

学会の組織委員等

光科学異分野横断萌芽研究会アドバイザリーボード (2015-). (成島哲也)

文部科学省, 学術振興会, 大学共同利用機関等の委員等

日本学術会議会員 (2020-), 同化学委員会幹事 (2020-), 同化学委員会物理化学・生物物理化学分科会委員長 (2020-), 同化学委員会分析化学分科会世話人 (2020-).

その他

自然科学研究機構教育研究評議員 (2016-).

日本表面真空学会出版委員 (2014-). (成島哲也)

B-10) 競争的資金

科研費特定領域研究(計画研究),「光圧を創る:物質自由度を活用した捜査の高度化」, 岡本裕巳 (2016 年–2022 年).

科研費基盤研究(A),「高精度円偏光二色性イメージングによるキラリティ時空間構造の可視化」, 岡本裕巳 (2021 年–).

科研費挑戦的研究(萌芽),「キラルな光によるプラズモン物質の不斉誘起」, 岡本裕巳 (2021 年–).

新分野創成センター先端光科学研究分野共同研究プロジェクト,「キラル物質が示す円二色性のイメージング分析と微視的な起源構造解析」, 成島哲也 (2021 年).

新分野創成センター先端光科学研究分野共同研究プロジェクト,「光誘起力顕微鏡によるナノスケールでの光学キラリティの観測」, 山西絢介 (2021 年).

アストロバイオロジーセンタープロジェクト研究,「星間塵ナノ微粒子のナノ光科学に基づくホモキラリティ発現に関する研究」, 成島哲也 (2020 年–2021 年).

自然科学研究機構若手研究者による分野間連携研究プロジェクト,「ナノスケールでの局所光学キラリティ顕微技術の確立と生体分子のキラリティ構造解析」, 山西絢介 (2021 年).

科研費基盤研究(B),「スピン流駆動型アインシュタイン・ドハース効果の理論構築と実証実験研究」(代表:松尾 衛), 成島哲也(研究分担者) (2010 年–2022 年).

C) 研究活動の課題と展望

着任以来, 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を開発し, 試料の測定を行ってきた。その中で近接場光学活性イメージング法を開発して金属ナノ構造の局所光学活性, キラルな光場の空間構造の解析に用い, そこからグループの主要な研究内容をキラル物質の局所光学活性のイメージングにシフトした。金属ナノ構造の近接場光学活性イメージングによって, 独自の実験的情報を得ることができ, プラズモン由来の強くねじれた局所光場の存在, また対称性の高いアキラルな構造で

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。これらの研究から得られたプラズモンのキラリティに関する性質を基礎として、キラルプラズモンが分子の特性に及ぼす効果に関する研究にも展開し、高い円偏光度を示す発光物質系を見出しその起源を解明するなど、成果が得られるようになってきた。通常の回折光学系による(遠方場)顕微鏡で精度の高い円二色性イメージングを可能とする装置開発も行い、これは物質開発、生物科学、結晶学等の様々な分野の研究者から興味を持って頂いている。これらの近接場及び遠方場円二色性イメージングは、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おり、国内外との共同研究を数件行っている。円二色性顕微鏡の開発で企業との協力も視野に入れている。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実際の共同研究も行っている。更に、円二色性イメージングの医療応用に関する共同研究も開始している。これらとは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研究萌芽(非線形共鳴光トラッピング)を見出したことを契機に、光圧(勾配力、散乱力)によるナノ物質・分子の力学操作に関する新たな研究展開にも注力している。キラル微粒子の光トラッピングに関する新たな成果も出つつ、まもなく成果を公表する予定である。

広帯域相関計測解析研究部門

熊谷 崇（准教授）（2021 年 4 月 1 日着任）

西田 純（助教）

伊藤 敦子（事務支援員）

A-1) 専門領域：物理化学，表面科学，近接場分光

A-2) 研究課題：超短光パルスの研究

- a) 低温フォトン走査トンネル顕微鏡を応用したプラズモニックナノ接合における物理化学現象の素過程解明
- b) 低温フォトン走査トンネル顕微鏡を応用した原子スケールの時空間極限における分光の開発
- c) 超高速・超広帯域近接場光顕微鏡を応用した多次元・多変数ナノスケール分光の開発

A-3) 研究活動の概略と主な成果

- a) プラズモニックナノ接合では局在表面プラズモン共鳴の励起を介して強く局在化したナノスケールの光を発生させることができる。この強く局在化した光の性質とそれによって引き起こされる現象の微視的機構について低温フォトン走査トンネル顕微鏡を応用した極微分光によって調べている。
- b) 低温フォトン走査トンネル顕微鏡のプラズモニック接合に発生する強く局在化した光を原子スケールで操る技術を開発し、極限空間における極微分光についての研究を行っている。さらに超短パルスレーザーと組み合わせることにより時空間極限における究極的な分光の開発を目指している。現在は低次元物質におけるフォノンダイナミクスを原子スケールで直接観測する研究に取り組んでいる。この研究課題は科研費帰国発展研究に採択されている内容である。
- c) 原子間力顕微鏡に基づいた非開口型近接場光顕微分光を超高速・超広帯域のパルスレーザーと組み合わせた多次元・多変数ナノスケール分光の開発を行っている。この新しい先端計測によって重要な電子・光学材料の構造，物性そして機能を解明する研究へと展開していくことを目指している。これは分子科学研究所への着任に伴い新しく開始した研究課題であり，JST 創発的研究支援事業に採択されている内容である。

B-1) 学術論文

S. LIU, A. HAMMUD, M. WOLF and T. KUMAGAI, “Anti-Stokes Light Scattering Mediated by Electron Transfer Across a Biased Plasmonic Nanojunction,” *ACS Photonics* **8**(9), 2610–2617 (2021). DOI: 10.1021/acsphotonics.1c00402.

S. LIU, A. HAMMUD, M. WOLF and T. KUMAGAI, “Atomic Point Contact Raman Spectroscopy of a Si(111)-7×7 Surface,” *Nano Lett.* **21**(9), 4057–4061 (2021). DOI: 10.1021/acs.nanolett.1c00998

B. CIRERA, Y. LITMAN, C. LIN, A. AKKOUSH, A. HAMMUD, M. WOLF, M. ROSSI and T. KUMAGAI, “Charge Transfer-Mediated Dramatic Enhancement of Raman Scattering upon Molecular Point Contact Formation,” *Nano Lett.* **22**(6), 2170–2176 (2022). DOI: 10.1021/acs.nanolett.1c02626

B-2) 国際会議のプロシーディングス

M. MÜLLER, N. MARTÍN SABANÉS, F. SCHULZ, F. KRECINIC, T. KUMAGAI, T. KAMPFRATH and M. WOLF,
“Quantitative Sampling of Femtosecond THz Voltage Pulses and Hot Electron Dynamics in an STM Junction,” *CLEO: QELS–Fundamental Science*, FTh4L.4 (2021). DOI: 10.1364/CLEO_QELS.2021.FTh4L.4

B-4) 招待講演

熊谷 崇, 「原子スケールの光による分光に向けて」, ナノプローブテクノロジー第 167 委員会第 97 回研究会, オンライン開催, 2021 年 4 月.

熊谷 崇, “Direct observation of plasmon-enhanced single-molecule tautomerization Session: Electron- and Photon-Driven Chemical Reactions at Surfaces,” The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies 2021 (Pacifichem 2021), Honolulu (U. S. A.) (online), 2021 年 12 月.

熊谷 崇, “Atomic-Scale Optical Spectroscopy in Plasmonic Scanning Tunneling Microscope Junctions,” The 9th International Symposium on Surface Science (ISSS-9), オンライン開催, 2021 年 12 月.

熊谷 崇, 「原子スケールの極微分光」, 第 15 回日本化学連合シンポジウム「持続可能な社会構築のための見分ける化学, 分ける化学」, オンライン開催, 2022 年 3 月.

熊谷 崇, 「原子スケールの極微分光」, 物性研究所短期研究会「機能的走査プローブ顕微鏡の新展開」, オンライン開催, 2022 年 3 月.

B-7) 学会および社会的活動

学会の組織委員等

1st IMS-FHI Symposium (オンライン開催) (2021/7/12-13) 「Emerging Techniques of Scanning Probe Microscopy」, Organizer (Chair) (2021).

B-8) 大学での講義, 客員

北海道大学, 客員准教授, 2020 年 4 月–.

B-10) 競争的資金

科研費国際共同研究加速基金 (帰国発展研究), 「時間分解探針増強ラマン分光による時空間極限における原子層物質のフォノン計測」, 熊谷 崇 (2021 年–2023 年).

科学技術振興機構創発的研究支援事業, 「時空間極限における革新的光科学の創出」, 熊谷 崇 (2021 年–2027 年).

C) 研究活動の課題と展望

分子科学研究所の着任に伴い新しく開始した研究課題, 「低温フォトン走査トンネル顕微鏡を応用した原子スケールの時空間極限における分光の開発」および「超高速・超広帯域近接場原子間力顕微鏡を応用した多次元・多変数ナノスケール分光の開発」を推進していく。これらの研究課題は科研費帰国発展研究および JST 創発的研究支援事業に採択されており, 加速的に研究を進められると期待している。走査プローブ顕微鏡を基軸とした極限計測技術を研

究室の柱として物理化学，分子科学，そしてナノ科学にまたがる学際領域の形成，革新的な光科学・光技術の創出を目指した基礎研究を展開していきたいと考えている。また，マックス・プランク協会フリッツ・ハーバー研究所（ベルリン，ドイツ）と2021年に締結した研究協力協定に基づいた国際的な共同研究や学術交流についても積極的に推進していきたいと考えている。