

研究活動  
北海道大学電子科学研究所  
平成二十年

# 研究活動

北海道大学電子科学研究所

平成20年度

点検評価報告書

Research Activities

Research Institute for Electronic Science  
Hokkaido University

2008-2009

北海道大学電子科学研究所  
〒001-0021 札幌市北区北21条西10丁目  
〒060-0812 札幌市北区北12条西6丁目  
TEL (011) 706-9102 FAX (011) 706-9110  
URL <http://www.es.hokudai.ac.jp/>

平成22年4月発行

二〇〇八

平成22年発行

## はじめに



世界的な経済の混乱が続く中、資源小国である我が国が将来を担保するためには、科学技術に対する確固たる長期ビジョンを持ち、これまで以上に科学技術立国を標榜することが必要です。大学の理工系附置研究所に対する期待もこのような状況の中で拡大しつつあり、国際水準を遥かに超えた独創的な科学技術に関する研究を推進することや、既存の学問分野から一步踏み出したイノベーションに繋がる新しい研究領域を開拓することが強く求められています。北海道大学電子科学研究所においては、その前身となる超短波研究所で医工融合研究が進められたように、歴史的に従来の学問分野の枠組みを超えて融合を図ることが受け継がれ、常に新学術領域を生み出すことを希求してきました。現在では、ナノテクノロジー研究をコアとし、「光」、「分子・物質」、「生命」、「数理」に関する科学の融合を図る「複合領域ナノサイエンス」の研究を推進することによって革新的な科学技術を創出することを目指しており、ここから生み出された成果は、人類共通の「知」の深化をもたらし、また文明をより高めるものになると確信しています。

当研究所はこのような新学術領域の創成をさらに加速するため、2007年より東北大学多元物質科学研究所、東京工業大学資源化学研究所、大阪大学産業科学研究所と共同で「ポストシリコン物質・デバイス創成基盤技術アライアンス」を発足させ、附置研究所間の異分野の研究者の共同研究を積極的に推進してきました。本アライアンスから生み出された研究成果は、国内外から高く評価され、その結果、2009年6月にはこれに九州大学先導物質化学研究所を加えた5研究所による「物質・デバイス領域ネットワーク型共同研究拠点」が、文部科学省より正式に認定されました。本ネットワーク型共同研究拠点は、文部科学省による共同利用・共同研究拠点改革において新規導入されたものであり、独創的な科学技術創出の源泉になるものと大きな期待が寄せられています。さらに、当研究所において培われた先端的ナノテクノロジー研究に関する「知」や、「先端設備・技術」を広く社会に還元するため、2007年より文部科学省の先端研究施設共用イノベーション創出事業ナノテクノロジーネットワークプログラムに「北海道イノベーション創出ナノ加工・計測支援ネットワーク (HINTS)」拠点として参画しており、新産業技術の創出においても大きな貢献を果たしています。

経済バブル崩壊以降、中国の急速な台頭と相まって世界における日本の存在感は薄れつつありますが、当研究所は、我が国が再び“Japan as No.1”と呼ばれるために必要不可欠な革新的科学技術を創出する中核拠点として先導的な役割を果たしていきたいと考えておりますので、皆様のご支援とご鞭撻をお願いいたします。

平成22年3月

北海道大学 電子科学研究所長  
三澤 弘明



# 目次

## 組織図

### I. 研究成果・活動

電子材料物性部門	
光電子物性研究分野	4
量子情報フォトンクス研究分野	10
有機電子材料研究分野	16
ナノ光高機能材料研究分野	25
電子機能素子部門	
量子機能素子研究分野	34
細胞機能素子研究分野	39
電子計測制御部門	
光システム計測研究分野	46
量子計測研究分野	52
分子生命数理研究分野	56
ナノシステム生理学研究分野	67
電子情報処理部門	
情報数理研究分野	74
神経情報研究分野	79
計算論的生命科学研究分野	84
スマート分子研究分野	89
ナノテクノロジー研究センター	
ナノデバイス研究分野	94
ナノ理論研究分野	97
バイオ分子ナノデバイス研究分野（「分子認識素子研究分野」から名称変更 H20. 10～）	106
極限フォトンプロセス研究分野	114
寄附研究部門	
ニコンバイオイメージングセンター	122

### II. 予算

II-1. 研究成果公表に関する各種の統計表	127
II-2. 予算	129
II-3. 外国人研究者の受入状況	130
II-4. 修士学位及び博士学位の取得状況	131

### III. 研究支援体制

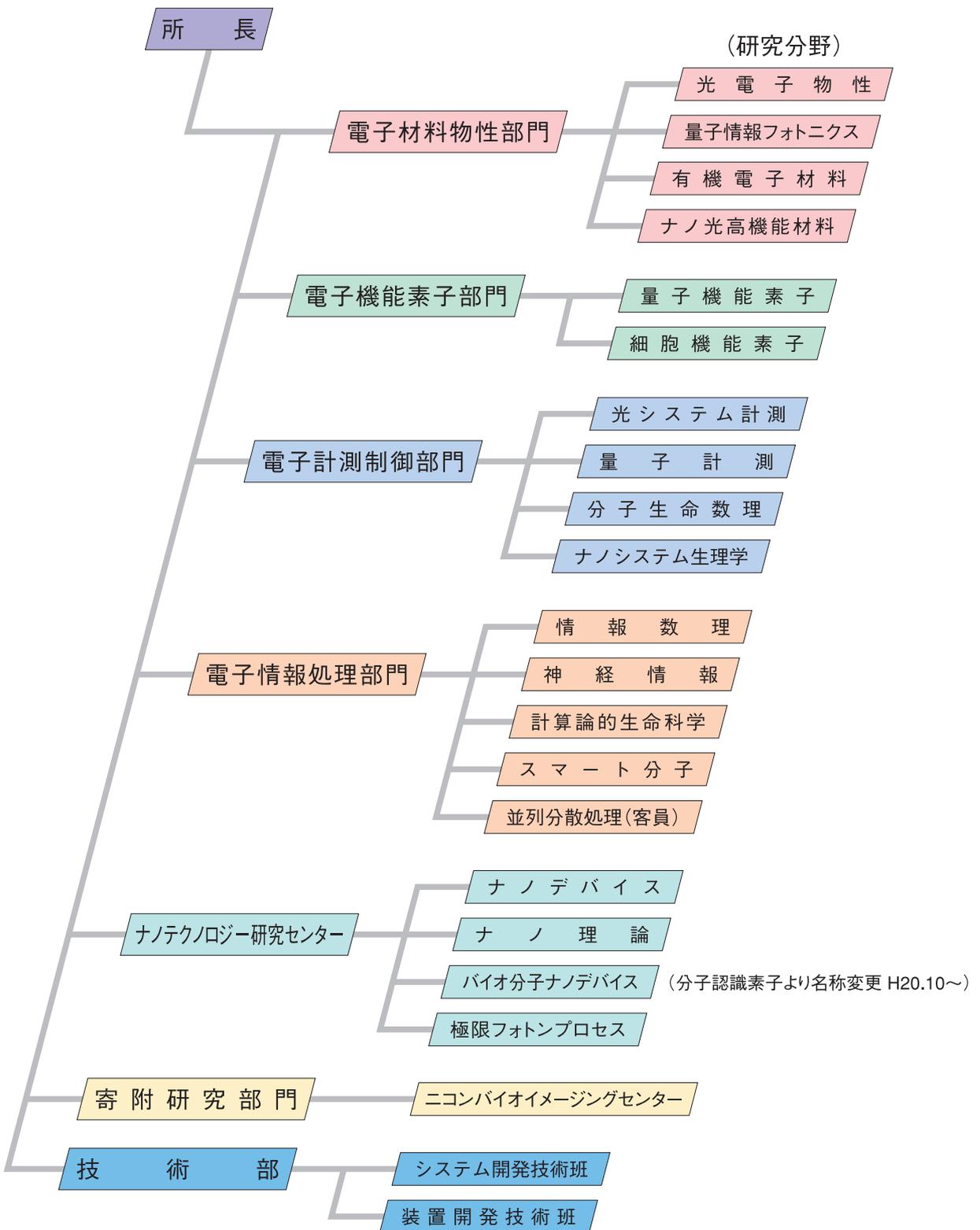
III-1. 技術部	135
III-2. 学術情報	136

### IV. 資料

IV-1. 沿革	139
IV-2. 建物	142
IV-3. 現員	142
IV-4. 教員の異動状況	143
IV-5. 構成員	144



# 組織図





# I. 研究成果・活動



## 電子材料物性部門

### 研究目的

電子材料を構成する原子、分子、分子集合体、半導体、誘電体及びそれらの物質が示す光・電子相互作用などの物理・物性を明らかにすることを通じて、電子科学を支える次世代電子材料の開発を目指している。



## 光電子物性研究分野

教授 太田信廣（東北大院、理博、1998.10～）  
准教授 中林孝和（東大院、理博、2002.7～）  
助教 飯森俊文（京大院、理博、2003.6～）  
非常勤研究員 牛坂 健（2004.4～2008.12）、Mohan S. Mehata（2007.11～）、伊藤寿之（2007.11～2009.2）、Xiaoming Liu（2008.11～）  
院 生  
博士課程  
Kamlesh Awasthi、Rahima Khaton、大島瑠利子  
修士課程  
中畑喬之、酒井實、大下周吾

### 1. 研究目標

分子や分子集合体に光を照射した時に起こるダイナミクスが外部からの電場や磁場の作用に対してどのような変化を示すのか、光励起に伴う分子構造や電子構造の変化はどうか、また光誘起導電性、電界発光の出現など電気、磁気特性と光学特性の関係はどうかを明らかにする。これらの結果に基づいて、『光励起ダイナミクス』、『光励起分子の構造』、『光機能物性』がお互いにどのように関係するかを明らかにすると共に、例えば光誘起超伝導といった光に関係する全く新しい機能物性の発現を探索する。生体内のダイナミクスと機能についても、生体内の「場」に着目しながら時間分解発光測定に基づいて調べる。

### 2. 研究成果

(a) 電子・イオン伝導体における電気伝導度の光照射効果  
外部から摂動を加えることにより固体物性を制御する研究が、最近非常に注目されている。たとえば、金属酸化物絶縁体における電界効果トランジスタ（FET）構造を用いた電場誘起超伝導性の発現や、巨大磁気抵抗効果、ならびに光誘起相転移現象を例として挙げることができる。これらの現象は、物性を理解するうえで重要な物理過程をはらんでいる場合が多いことに加え、特異的なスイッチング素子の開発といった応用へつながることからも注目を集めている。我々はこれまでに、金属-絶縁体相転移を示す有機導電体の電子輸送物性に着目し、光と外部電場に対する電気伝導度の応答について研究をすすめてきた。その成果として、絶縁状態において、レーザー光パルスを照射するとともに過渡的に金属状態へ光誘起相転移が起きることを明らかにした。また、外部電場存在下レーザー光照射を行うことにより、電気伝導度がスイッチング現象を示すことを明らかにしてきた。

ところで、有機導電体も含めた一般的な固体において、電気伝導性を担う電荷キャリアーは電子であり、原子は格子を形成して結晶中を自由に動き回ることではない。しかし

ながら、固体であるにもかかわらずイオン化した原子が電荷キャリアーとして振る舞う材料が存在することが知られており、固体電解質やイオン伝導体と呼ばれている。イオン伝導体は、燃料電池など様々な産業分野における応用が期待される材料であるが、これらの固体材料に光や外部電場を加えた場合の応答や緩和ダイナミクスはほとんど分かっておらず、未開拓の領域であった。そこで我々は、イオン伝導体の電気伝導度に対する光照射効果を測定するため、電気化学インピーダンス法と分光測定法を組み合わせた実験装置を新たに開発し研究を行った。

ヨウ化銀（AgI）は、 $\text{Ag}^+$ イオンが結晶中を動くことにより電気伝導性を示すイオン伝導体としてよく知られた物質である。この物質は結晶多形を示し、室温において結晶構造の異なった $\beta$ -相（ウルツ鉱型）および $\gamma$ -相（閃亜鉛鉱型）が共存する。温度を上昇させると $147^\circ\text{C}$ において $\alpha$ -相（bcc型）へ相転移を示すが、それにともないイオン伝導度が4桁以上増大し、超イオン伝導と呼ばれる非常に高いイオン伝導性を示す。したがって、光照射を用いたイオン伝導体の超イオン伝導体への転換、すなわち『光誘起超イオン伝導』現象の可能性を探索するモデル物質として、ヨウ化銀は適していると考えられる。そこで本研究では、可視・紫外光照射にともなうヨウ化銀の電気伝導度の変化を測定した。実験手法として、ヨウ化銀ペレット（直径13mm）の表面にカーボンペーストを用いて電極を作成し、LCRメーターを用いてインピーダンススペクトルを測定してバルク抵抗値を求めた。

300nm～700nmの波長範囲において励起光を試料に照射すると、試料のバルク抵抗値は減少した。図1は、インピーダンススペクトル測定から求めた、試料の抵抗値変化の波長依存性（アクションスペクトル）を示している。縦軸の変化量は、

$$\Delta R = (R_{\text{dark}} - R_{\text{ex}}) / R_{\text{dark}} \quad (1)$$

として定義され、 $R_{\text{dark}}$ 、 $R_{\text{ex}}$ はそれぞれ暗中所および光照射下における抵抗値である。 $\Delta R$ のアクションスペクトルは、450nmにピークを示しており、吸収スペクトル（図1）とは形が大きく異なっている。また、試料の色が、励起光波長に依存して変化することが分かった。光未照射の試料は黄色を呈しており、可視光である450nmの励起光を用いて

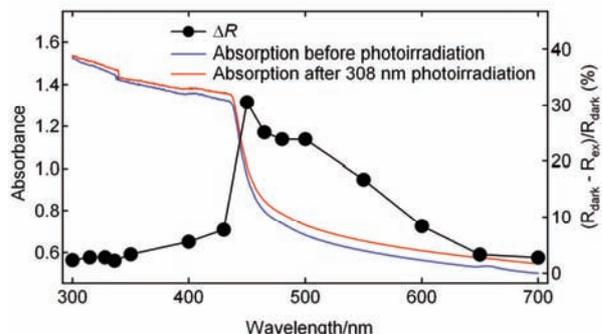


図1. ヨウ化銀の吸収スペクトルと光照射効果、およびバルク抵抗値変化( $\Delta R$ )のアクションスペクトル。

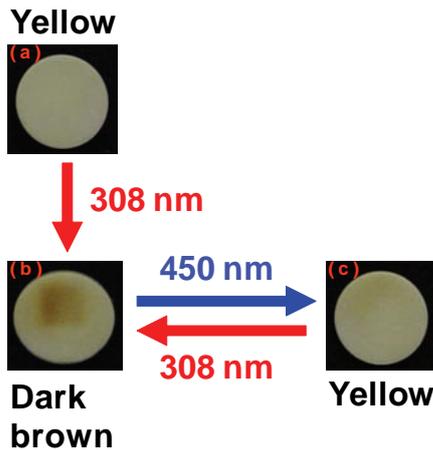


図2. 試料のイメージ。(a)光未照射、(b)308nmの励起光照射後、(c)450nmの励起光照射後。

も色の変化はみられなかったが、紫外光である308nmの励起光を照射すると、試料の色が褐色へと変化した(図2)。図2(a)は光を照射する前の状態であり、図2(b)は、308nmの光を5分間照射した後で観測したものである。また、308nmの光照射によって褐色へ変化した試料に、さらに450nmの光を照射すると元の黄色へと戻り[図2(c)]、可逆的なフォトクロミズムが見られる。308nmの光を照射した後で測定した吸収スペクトルを図1に示す。紫外光照射によって測定範囲全体にわたる吸収強度増大が生じることがわかった。このフォトクロミズムの原因は、紫外光照射によって銀クラスターが生成するためであると考えられ、可視光照射によって銀クラスターが解離してしまうことが考えられる。

また、この可逆的なフォトクロミズムと同期した電気伝導度のスイッチング現象をみだした。図3(上)は、40Hz~5MHzの範囲で測定したインピーダンススペクトルであり、図3(下)では、インピーダンススペクトルから求めた試料のバルク抵抗値の値をプロットしている。450nmの可視光を照射[図3(上)・青色]することによって、光照射を行わない場合(黒色)と比べると、インピーダンススペクトルが大きく変化することがわかる。また、450nmの励起光のオン・オフにともない、矢印(1)で示したように、2つのインピーダンススペクトル間を可逆的に変化することがわかった。次に、光照射効果の波長依存性について検討を行うために、光照射を行わない状態から308nmの紫外光を照射したところ、赤色で示すようなインピーダンススペクトルが得られ、可視光照射にくらべるとインピーダンス変化が少ないことがわかった。さらに、紫外光を照射した直後に450nmの光を照射すると、緑色のような別のスペクトルが得られ、未照射試料とは異なった挙動を示すことが明らかになった。図3(下)は、0~40分の時間範囲においては、光照射なし-450nm照射を繰り返したときのバルク抵抗値をプロットしており、光照射によって、可逆的な電気伝導度のスイッチングが生じていることを示している。また40分~80分の時間範囲においては、308nm照射-450nm照射を繰り返したときのバルク抵抗値をプロットしているが、

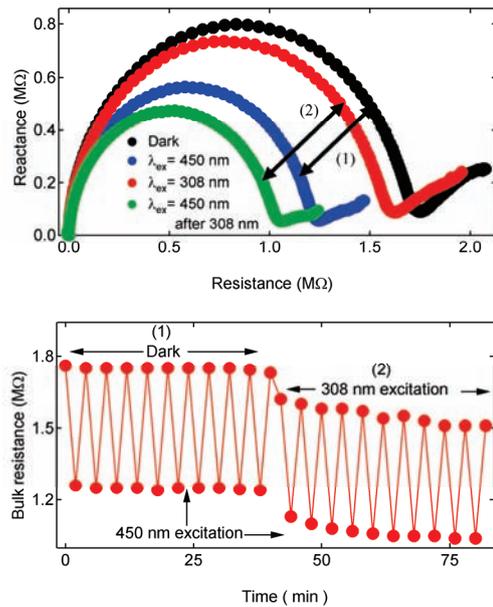


図3. (上)ヨウ化銀のインピーダンススペクトルと光照射効果。(下)バルク抵抗値に対する光照射効果のプロット。

紫外光を照射することによって、可視光照射のみを行った場合とは異なる電気伝導度へ可逆的なスイッチングを誘起できることが示されている。したがって、光照射とその波長選択によって、フォトクロミズムと同期したイオン伝導度の可逆的な制御を達成することができた。

#### (b) 蛍光寿命イメージングを用いた細胞のストレス状態のその場計測

蛍光による細胞のイメージングにおいて、蛍光強度ではなく、時間分解分光法を用いて蛍光寿命をイメージングすることにより、各種外来刺激に対する細胞内の応答機構について検討している。蛍光寿命は、蛍光分子の種類および蛍光分子の周囲の環境のみで決まり、光退色、励起光強度、光学系などの実験条件には依存しない。そのために、蛍光寿命は蛍光強度に比べてはるかに定量性に優れ、蛍光寿命の僅かな変化は、蛍光分子の周囲の環境変化または蛍光分子からの反応速度の変化に直接対応させることができる。本年度は、改変型緑色蛍光タンパク質(EGFP)を人のがん細胞であるHeLa細胞に発現させ、蛍光寿命変化を用いた細胞のストレス状態のその場計測および細胞ストレスに伴う蛍光寿命の変化の機構について考察した。

細胞ストレスの実験は、EGFPとtudorタンパク質の融合タンパク質が発現したHeLa細胞を用いた。図4aにEGFP-tudor融合タンパク質が発現したHeLa細胞の蛍光強度画像を示す。EGFP-tudor融合タンパク質は、tudorタンパク質に由来する高濃度のEGFPを含んだ顆粒を形成し、蛍光強度画像では顆粒部分が非常に明るく観測される。対応する蛍光寿命画像とその経時変化を図4b-f)に示す。試料調整直後では、EGFPの蛍光寿命は顆粒部分に関係なく細胞内ではほぼ一様であり、蛍光寿命はおよそ2.5nsであった(図4b)。しかし栄養分を与えずに空気中に放置すると、時間とともに

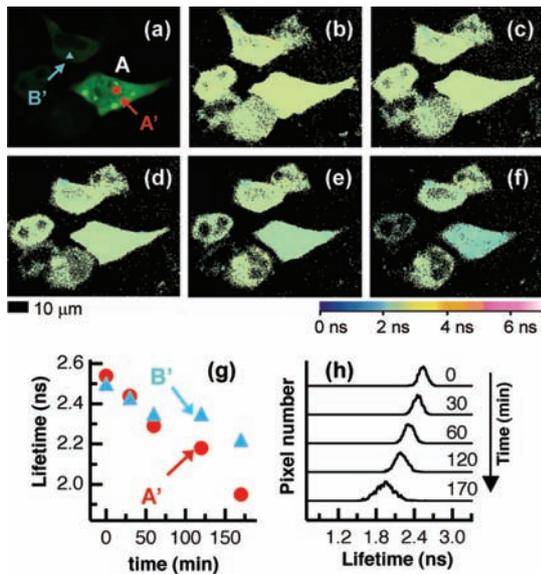


図4. EGFP-tudor融合たんぱく質が発現したHeLa細胞の蛍光強度画像(a)と対応する蛍光寿命画像(b-f)。細胞を栄養分を与えずに空气中に放置させ、0 (b), 30 (c), 60 (d), 120 (e), 170 (f) 分後の蛍光寿命画像を示している。A' および B' の領域における蛍光寿命の時間変化および細胞Aの蛍光寿命のヒストグラムの時間変化を(g) および (h) にそれぞれ示す。細胞Aおよび領域(A', B')は強度画像(a)に示してある。励起波長、450nm; 蛍光波長、515-560 nm。

に蛍光寿命の値が短くなる様子が観測された。特にAとラベルされた細胞において、蛍光寿命の減少が著しいことがわかる(図4f)。図4gに細胞内のある領域における蛍光寿命の経時変化を示す。領域(A', B')は図4aに示してある。A'において寿命の変化が顕著であり、測定開始から170分後では、1.9nsまで蛍光寿命が短くなっている。細胞Aの蛍光寿命のヒストグラムの時間変化を図4hに示す。ストレスに伴い蛍光寿命が短くなり、約2.5nsから約1.9nsに中心を持つ分布に変化する様子がわかる。これらの結果は、細胞ストレスに伴い観測される蛍光寿命の値が短くなることを示している。蛍光強度のみでは、ストレスの影響を受けている細胞を見分けることは難しいが、蛍光寿命によって、その場で見分けることができる。

観測された蛍光寿命の変化は、細胞ストレスに伴い、GFPの発色団の周囲の環境が変化することに起因する。GFPはポリペプチド鎖で覆われたバレル構造の内部に発色団を配した構造を持ち、発色団は周囲を取り囲むアミノ酸残基と静電的な相互作用をしている。このような静電的な相互作用の総和を局所電場とした場合、MV cm<sup>-1</sup>クラスの高電場がアミノ酸残基によって生じ、バレル構造内の発色団と相互作用していると考えられる。このような高電場は、発色団の無輻射緩和過程である分子内電荷移動に大きな影響を与えている。電荷移動速度は外部電場によって大きな影響を受けることから、細胞ストレスに伴う発色団の周囲の局所電場の変化が、無輻射緩和速度の変化を誘起していると考えられる。そこで我々は改変型GFPをPVA膜中に埋め込み、蛍光タンパク質の蛍光減衰曲線の外部電場効果について、実際に測定を行うことに成功した(図5a-c)。外部

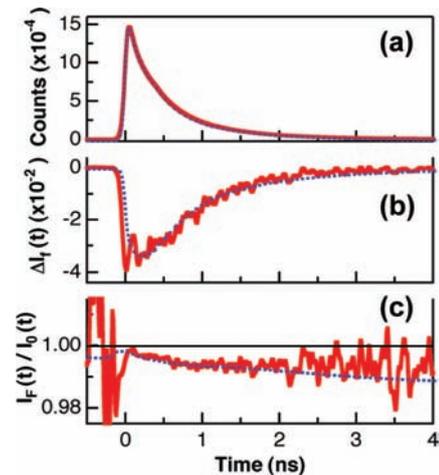


図5. GFPuv5における電場がOFFのときの蛍光減衰曲線(a)、電場がONのときとOFFのときの蛍光減衰曲線の強度差(b)および強度比(c)。各図において、計算値を点線で示してある。GFPuv5はPVA中に分散させている。励起波長、440nm; 蛍光波長、515nm; 印加電圧、0.7 MVcm<sup>-1</sup>。

電場によって蛍光寿命は短くなり、0.7MV cm<sup>-1</sup>の外部電場の印加に対して、蛍光寿命が約0.5%減少することによって、外部電場が存在するときと存在しないときの蛍光減衰曲線の強度差(図5b)と強度比(図5c)の両方を再現することができた。この結果は、細胞ストレスに伴う蛍光寿命の減少が、発色団周囲の局所電場が細胞ストレスに伴って増加したことに起因することを示唆している。細胞ストレスに伴うタンパク質の僅かな構造変化が、発色団とアミノ酸残基との静電的な相互作用を変化させていると考えられる。

### 3. 今後の研究の展望

電場・磁場変調発光分光法、ナノ秒、ピコ秒時間分解電場・磁場発光分光法、さらにはフェムト秒時間分解超高速発光分光法を適用することにより、光誘起電子移動、励起エネルギー移動、光誘起プロトン移動、励起錯体形成といった諸々の光化学反応への電場、磁場効果を種々の分子系および生体系を対象として調べ、自然界における光化学反応と外場との関係をさらに明らかにする。また、光誘起電子移動反応を示すドナー・アクセプター系を始めとする諸々の光化学反応系を対象に、電気・磁気的光機能物性を調べ、光反応への電場、磁場効果との関係を明らかにする。上で述べたように広い温度領域にわたる光電流測定や伝導度の照射効果を種々の系で調べ、光化学ダイナミクスと光導電性発現との関係やEL電界発光発現との関係を調べる。特に、単なる光伝導性ということではなく、究極の光機能物性というべき光誘起超伝導発現の可能性を探る。固体膜以外に、分子が比較的自由に動くことのできる溶液系や生体試料にも実験を進展させ、光と電場を組み合わせる分子の回転運動のコントロールや配向分子系の構築、および蛍光寿命イメージング測定や時間分解発光測定に基づいて生体系における反応機構および生体内電場や生体内環境の解明を行なう。

## 4. 資料

### 4.1 学術論文等

- 1) T. Nakabayashi, T. Morikawa and N. Ohta : “Direct Measurements of the Electric-Field-Induced Change in Fluorescence Decay Profile of a Methylene-Linked Compound of Pyrene”, *J. Photochem. Photobiol. A*, 196(2-3) : 227-232 (2008)
- 2) T. Nakabayashi, H.-P. Wang, K. Tsujimoto, S. Miyauchi, N. Kamo and N. Ohta : “Studies on Effects of External Electric Fields on Halobacteria with Fluorescence Intensity and Fluorescence Lifetime Imaging Microscopies”, *Chem. Lett.*, 37(5) : 522-523 (2008)
- 3) K. Awasthi, M. Mizoguchi, T. Iimori, T. Nakabayashi and N. Ohta : “Magnetic field effect on fluorescence in a mixture of N-ethylcarbazole and dimethyl terephthalate in a polymer film in the presence of electric fields”, *J. Phys. Chem. A*, 112(19) : 4432-4436 (2008)
- 4) T. Nakabayashi, H.-P. Wang, M. Kinjo and N. Ohta : “Application of fluorescence lifetime imaging of enhanced green fluorescent protein to intracellular pH measurements”, *Photochem. Photobiol. Sci.*, 7(6) : 668-670 (2008)
- 5) T. Nakabayashi, I. Nagao, M. Kinjo, Y. Aoki, M. Tanaka and N. Ohta : “Stress-Induced Environmental Changes in a Single Cell as Revealed by Fluorescence Lifetime Imaging”, *Photochem. Photobiol. Sci.*, 7(6) : 671-674 (2008)
- 6) T. Nakabayashi, M. Kinjo and N. Ohta : “Electric Field Effects on Fluorescence of the Green Fluorescent Protein”, *Chem. Phys. Lett.*, 457(4-6) : 408-412 (2008)
- 7) K. Rahima, S. Kashiwagi and T. Iimori, N. Ohta : “Reversible photoswitching behavior in bulk resistance and in color of polycrystalline AgI at room temperature”, *Appl. Phys. Lett.*, 93 : 234102-234104 (2008)
- 8) M. S. Mohan and T. Iimori, N. Ohta : “Electric-field-induced changes in fluorescence decay and spectrum of tris(8-hydroxyquinoline)aluminum in a polymer film”, *Chem. Phys. Lett.*, 457(1-3) : 62-65 (2008)
- 9) K. Awasthi, T. Iimori and N. Ohta : “Fluorescence of electron donor-acceptor pairs of N-ethylcarbazole and 1,3-dicyanobenzene in the presence of electric field and magnetic field”, *Chem. Phys. Lett.*, 470(4-6) : 219-223 (2009)

### 4.2 総説・解説・評論等

- 1) 飯森俊文、アワスティ カムレッシュ、太田信廣 : 「低温電場吸収・電場発光スペクトル測定装置の開発と光誘起電子移動反応研究への応用」、分光研究、57(4) : 198-200 (2008)
- 2) 飯森俊文、太田信廣 : 「四次元超高速電子顕微鏡で構造相転移を探る-究極の時間分解イメージング測定法」、

化学、63(6) : 62-63 (2008)

### 4.3 著書

- 1) 中林孝和、太田信廣 : 「蛍光寿命イメージングによる細胞内環境の計測」、ナノイメージング : 245-254 (2008)

### 4.5 講演

#### a. 招請講演

- 1) N. Ohta : “Electric field effects on photoluminescence and excitation dynamics”, Dynamics and Spectroscopy of Small Molecules and Biomolecules, Taipei., Taiwan (2008-11)
- 2) T. Nakabayashi and N. Ohta : “Application of fluorescence lifetime imaging to the investigation of cellular microenvironments”, Annual Meeting of the Spectroscopical Society of Japan, Sendai (2008-11)
- 3) N. Ohta, T. Nakabayashi, I. Nagao, M. Kinjo, Y. Aoki and M. Tanaka : “Fluorescence lifetime imaging study of a single cell: Stress-induced environmental change and electric field effects on fluorescence”, SPIE, San Jose, California, USA (2009-01)
- 4) 太田信廣 : 「蛍光寿命イメージング測定から得られる細胞内情報」、日本化学会第2回関東支部大会、群馬大学 (2008-09)
- 5) N. Ohta : “Time-Resolved Emission Measurements in Polymer System and Biological System”, Indian Association for the Cultivation of Science (IACS), Kolkata (2009-03)
- 6) N. Ohta : “Application of Time-Resolved Emission Measurements to Polymer System and Biological System”, Indian Institute of Technology (IIT), Delhi, (2009-03)
- 7) 中林孝和、太田信廣 : 「ポリマー中における色素分子発光スペクトルへの電場効果と光励起ダイナミクス」、有機エレクトロニクスに関する北大-名大合同研究会、札幌 (2008-10)
- 8) 中林孝和 : 「凝縮相の高速ダイナミクスの解明と細胞内現象への展開」、日本化学会北海道支部2009年冬季研究発表会、札幌 (2009-02)
- 9) T. Nakabayashi : “Studies on Microenvironment in a Single Cell Using Fluorescence Lifetime Imaging Microscopy”, Recent Advances in Fluorescence Spectroscopic Methods for Biological and Chemical Systems, Sapporo (2009-02)

#### b. 一般講演

##### i) 学会

- 1) 中林孝和、金城政孝、太田信廣 : 「緑色蛍光タンパク質の光励起ダイナミクスの外部電場効果」、第24回化学反応討論会、札幌 (2008-06)
- 2) Awasthi Kamlesh、飯森俊文、中林孝和、太田信廣 : 「Magnetic field effect on fluorescence in a mixture of N-ethylcarbazole and dimethyl terephthalate in a polymer

- film in the presence of electric fields」、第24回化学反応討論会、札幌 (2008-06)
- 3) 飯森俊文、田山純平、Mohan S. Mehata、中林孝和、太田信廣:「外部電場を用いた凝縮系における分子の配向制御:電場変調吸収分光法による電場配向状態の観測」、第24回化学反応討論会、札幌 (2008-06)
  - 4) N. Ohta, T. Nakabayashi, H.-P. Wang and M. Kinjo : “Fluorescence Lifetime Imaging Study on Living Cells with Particular Regard to Electric Field Effects and pH Dependence”, XXII IUPAC2008, Gothenburg, Sweden (2008-07 ~ 2008-08)
  - 5) 中林孝和、金城 政孝、太田信廣:「緑色蛍光タンパク質の蛍光スペクトルおよび蛍光寿命の外部電場依存性」、2008年光化学討論会、堺 (2008-09)
  - 6) 四辻剛史、中林孝和、小川和也、廣田俊、小夫家芳明、太田信廣:「ポルフィリンおよびフタロシアニン超分子の電場吸収スペクトル」、2008年光化学討論会、堺 (2008-09)
  - 7) Awasthi Kamlesh、飯森俊文、中林孝和、太田信廣:「Synergy effects of electric field and magnetic field on excitation dynamics in a mixture of N-ethylcarbazole and some acceptor molecules」、2008年光化学討論会、堺 (2008-09)
  - 8) 伊藤寿之、中林孝和、孫 凡、金城政孝、太田信廣:「蛍光寿命イメージングによるEGFPが発現したHeLa細胞のアポトーシス過程の観測」、2008年光化学討論会、堺 (2008-09)
  - 9) MEHATA Shingh Mohan、太田信廣、HSU Shu Chain、LEE Perrn Yuan : 「External electric effects on state energy and photoexcitation dynamic of polyfluorene : Field-induced changes in decay profile」、2008年光化学討論会、堺市 (2008-09)
  - 10) 飯森俊文、内藤 俊雄、太田信廣:「有機伝導体の光スイッチングにおけるパルス電場制御メモリー効果:光制御と熱効果の検討」、2008年光化学討論会、堺市 (2008-09)
  - 11) KHATON Rahima、飯森俊文、太田信廣:「Photoirradiation effects on the ionic conductivity of polycrystalline  $\beta$ -AgI at room temperature」、2008年光化学討論会、堺市 (2008-09)
  - 12) 飯森俊文、内藤 俊雄、太田信廣:「有機超伝導体の電気伝導度における光照射効果」、2008年光化学討論会、堺市 (2008-09)
  - 13) 中林孝和、太田信廣:「赤外吸収スペクトルの外部電場効果を用いた巨大分子の構造解析」、第2回分子科学討論会、福岡 (2008-09)
  - 14) 大島 瑠利子、浜田 辰夫、中林孝和、飯森俊文、太田信廣:「一光子励起発光を示す金ナノクラスターの蛍光スペクトルへの外部電場効果」、第2回分子科学討論会、福岡市 (2008-09)
  - 15) 飯森俊文、内藤俊雄、太田信廣:「有機超伝導体・ $\beta$ -(BEDT-TTF) $2\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2\text{Br}]$ のTc近傍における電気伝導度の光応答」、第2回分子科学討論会、福岡市 (2008-09)
  - 16) 伊藤 寿之、中林孝和、孫 凡、金城 政孝、太田信廣:「蛍光寿命イメージング測定によるHeLa細胞内ダイナミクスの観測」、第2回分子科学討論会、福岡市 (2008-09)
  - 17) 中畑 喬之、飯森俊文、内藤 俊雄、太田信廣:「有機超伝導体 $\beta$ -(BEDT-TTF) $2\text{I}_3$ の電気伝導度における光照射効果」、第2回分子科学討論会、福岡市 (2008-09)
  - 18) Awasthi Kamlesh、Hamada Tatuio、飯森俊文、太田信廣:「Electric field effect on fluorescence in methylene linked compounds of pyrene and phthalimide:D-A distance dependence and temperature dependence」、第2回分子科学討論会、福岡市 (2008-09)
  - 19) N. Ohta, Kamlesh Awasthi, T. Iimori and T. Nakabayashi : “Synergy Effects of Electric Field and Magnetic Field on Field on Fluorescence in Photoinduced Electron Transfer Systems in a Polymer Film”, The 5th Asian Photochemistry Conference, Beijing, China (2008-11)
  - 20) T. Iimori, T. Naito, and N. Ohta : “Control of Electrical Conductivity in Organic Conductor Using Photoexcitation and Pulsed Electric Fields: a Novel Optoelectronic Function”, The 5th Asian Photochemistry Conference, Beijing, China (2008-11)
  - 21) 飯森俊文、カートン ラヒマ、太田信廣:「Reversible photoswitching in ionic conductivity of polycrystalline AgI at room temperature」、PIPT2008, Osaka, USA (2008-11)
  - 22) N. Ohta, T. Iimori and T. Naito : “Memory effect of photoinduced conductivity switching controlled by pulsed voltages in a molecular conductor”, PIPT2008, Osaka (2008-11)
  - 23) T. Nakabayashi and N. Ohta : “Effects of Semitransparent Metal Substrates on Confocal Reflection Interference Contrast Images of Non-Fluorescent Bio-Systems and Polymers”, Annual Meeting of the Spectroscopical Society of Japan, Sendai (2008-11)
  - 24) 大下周吾、伊藤寿之、中林孝和、太田信廣、孫 凡、金城政孝:「蛍光寿命イメージング測定によるHeLa細胞の細胞ダイナミクスの観測(1)」、化学系学協会北海道支部2009年冬季研究発表会、札幌 (2009-02)
  - 25) 大下周吾、伊藤寿之、中林孝和、孫 凡、金城政孝、太田信廣:「HeLa細胞のアポトーシスおよび分裂過程の蛍光寿命イメージング測定」、日本化学会第89春季年会、東京 (2009-03)

#### 4.6 シンポジウムの開催

- 1) 太田信廣:「第24回化学反応討論会」、北海道大学学術交流会館 (札幌市) (2008年6月2日~2008年6月4日)

- 2) T. Nakabayashi : “Recent Advances in Fluorescence Spectroscopic Methods for Biological and Chemical Systems” 北海道大学 (札幌市) (2009年2月27日)

#### 4.7 予算獲得状況

##### a. 科学研究費補助金 (研究代表者、分類名、研究課題、期間)

- 1) 太田信廣、基盤研究(A)光と電場による反応制御と新奇外場応答で能物性の発現 (2008~2011年度)
- 2) 太田信廣、特定領域研究、金属および半導体ナノ粒子の外部電場硬化による発光制御
- 3) 太田信廣、特別研究員奨励費、光励起ダイナミクス及び分子運動への外部電場効果 (2007~2009年度)
- 4) 太田信廣、特別研究員奨励費、新奇ナノ物質・ナノ複合体におけるフォトルミネッセンスへの外部電場効果 (2008~2010年度)
- 5) 中林孝和、若手研究A、時間分解顕微吸収イメージングシステムによる非蛍光性の生体試料の画像観測 (2006~2008年度)
- 6) 中林孝和、萌芽研究、非線形分子分光技術を用いた細胞イメージングシステムの開発 (2008~2009年度)

##### b. 奨学寄付金 (研究担当者、機関名、研究課題、研究期間、総経費、研究内容)

- 1) 中林孝和、分子科学研究奨励森野基金運営委員会、凝縮相分子の微視的構造と高速ダイナミクスに関する実験的・理論的研究、2007年~
- 2) 中林孝和、北海道大学電子科学研究所、Development of Fluorescence Lifetime Imaging Microscopy to the Investigation of Cellular Microenvironments、2008年度

##### c. 海外機関との共同研究

- 1) 太田信廣、日台共同研究事業 (財団法人交流協会)、電場注入発光機構の解明とエレクトロルミネッセンス発光素子の開発、2008年度
- 2) 太田信廣、日印二国間交流事業、金属ナノクラスターの光学特性への電場効果、2008年~2009年度

##### d. 民間との共同研究

- 1) 太田信廣、富士フィルム、癌をターゲットとして自家蛍光寿命イメージング技術の研究 (2007年~2008年)

#### 4.8 受賞

- 1) 太田信廣 : Bimala Churn Law Memorial Lectureship, Award, IACS, Kolkata, India, 2009年3月
- 2) 中林孝和 : 平成20年度日本化学会北海道支部奨励賞、日本化学会北海道支部、2009年2月

#### 4.10 社会教育活動

##### a. 公的機関の委員

- 1) 太田信廣、日本学術振興会科学研究費委員会、専門委員
- 2) 太田信廣、科学系研究設備有効ネットワーク北海道地

域委員会委員 (2007年6月1日~2008年5月31日)

##### b. 国内外の学会の役職

- 1) 太田信廣 : 光化学協会理事
- 2) 太田信廣 : 分子科学会幹事
- 3) 太田信廣 : 平成19年度日本化学会北海道支部学会賞、学術賞等推薦委員
- 4) 太田信廣 : 日本分光学会生細胞分光部会幹事
- 5) 太田信廣 : 日本分光学会平成20年度推薦委員会委員
- 6) 中林孝和 : 日本分光学会編集委員会委員

##### e. 大学院担当講義科目

- 1) 環境科学院、環境物質科学実習 I、太田信廣
- 2) 環境科学院、環境物質科学実習 II、太田信廣
- 3) 環境科学院、環境物質科学論文購読 I、太田信廣
- 4) 環境科学院、環境物質科学論文購読 II、太田信廣
- 5) 環境科学院、環境物質科学特別研究 I、太田信廣
- 6) 環境科学院、環境物質科学特別研究 II、太田信廣
- 7) 大学院共通講義、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論、太田信廣
- 8) 環境科学院、環境物質科学実習 I、中林孝和
- 9) 環境科学院、環境物質科学実習 II、中林孝和
- 10) 環境科学院、環境物質科学論文購読 I、中林孝和
- 11) 環境科学院、環境物質科学論文購読 II、中林孝和
- 12) 環境科学院、環境物質科学特別研究 I、中林孝和
- 13) 環境科学院、環境物質科学特別研究 II、中林孝和
- 14) 大学院共通講義、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論、中林孝和
- 15) 環境科学院、環境物質科学実習 I、飯森俊文
- 16) 環境科学院、環境物質科学実習 II、飯森俊文
- 17) 環境科学院、環境物質科学論文購読 I、飯森俊文
- 18) 環境科学院、環境物質科学論文購読 II、飯森俊文
- 19) 環境科学院、環境物質科学特別研究 I、飯森俊文
- 20) 環境科学院、環境物質科学特別研究 II、飯森俊文
- 21) 環境科学院、光分子化学特論、太田信廣
- 22) 環境科学院、光分子化学特論、中林孝和

## 量子情報フォトンクス研究分野

教授 竹内繁樹 (京大院、理博、2007.6～)  
 准教授 辻見裕史 (北大院、理博、2007.6～)  
 助教 岡本亮 (北大院、工博、2007.8～)  
 助教 藤原正澄 (大阪市立大学、理博、2009.1～)  
 客員研究員 Jeremy L. O'Brein (2009.1～)  
 院 生  
 博士課程  
 永田智久  
 修士課程  
 浅井健志、上田哲也、谷田真人、中村真一郎、  
 佐藤功亮

### 1. 研究目標

本研究分野では、光子1粒1粒を発生させ、その状態間の量子相関を自在に制御することで、これまでの「光」を超える「新しい光」の実現と応用について実験的な研究を行っている。光子を自在に制御、検出するために、ナノスケールの微小光デバイスの研究と、その光量子デバイスや単一光子源の実現について研究している。また、応用としては、光子を操る量子コンピュータ・光量子回路のほか、通常の光の限界を超えた「光計測」、「光リソグラフィー」の研究に主に実験的に取り組んでいる。また、量子コンピュータや量子暗号通信の実現に向けて、量子力学的なもつれ合いをもつ光子対の発生や制御、高効率な光子検出装置の開発、光子情報処理システムのプロトタイプ構築に取り組んでいる。

また、物質が相転移を起こすときには、その物質に隠れていた特性が顕在化する。この顕在化した特性の動的な原因を究明することにより、高機能特性を持つ電子材料を創世する設計指針を得ることも目的としている。

### 2. 研究成果

#### (a) もつれ合いフィルタの実現

近年、もつれ合いは興味深い現象としてだけでなく、量子情報処理分野における重要なリソースとして認識されつつある。例えば、複数粒子のもつれ合い状態を生成し、それに対して観測と個々の粒子への操作を行うことで量子計算を実行する方法が示されている。また、量子暗号では光子にのせた量子状態の伝送距離を大幅に延長するためにもつれ合い状態を用いる方法が注目されている。

我々は2つの光子がある特定のもつれ合いにある状態のみ抜き出す「フィルタ」を、線形光学素子を用いた量子回路により実現した (図1(a))。もつれ合いフィルタを用いることで、もつれ合った状態の生成、測定、劣化した状態の純化といったもつれ合い状態の操作が可能になる。このようなもつれ合いフィルタの開発は、もつれ合い状態の

ソースとしての必要性が増し続けている量子情報処理分野の発展に貢献することが期待できる。

実験の結果、2つの光子が共に横偏光(HH)、共に縦偏光(VV)の場合は透過し、一方が、縦偏光で、もう一方が横偏光(HV or VH)の場合、遮断されていることが確認できた (図1(c))。これは、構築したフィルタが個々の光子の偏光に対してではなく、2つの光子の偏光の相関に対して作用していることを意味する。

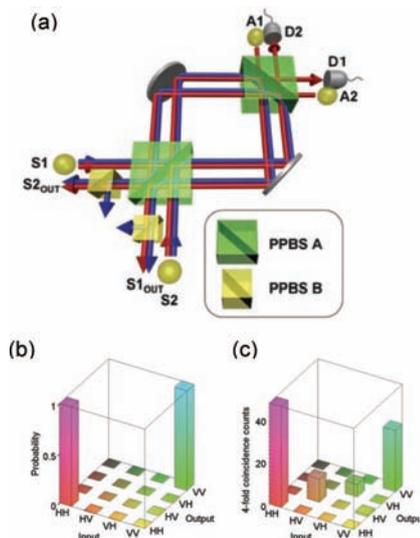


図1. (a) もつれ合いフィルタ実験系概念図: S1, S2から光子を1つづつ入力。(b) 横/縦偏光を入力し、横/縦偏光で測定した場合の出力の確率分布の理想的な場合。(c) 横/縦偏光を入力し、横/縦偏光で測定したカウント数。縦軸は、4光子同時計数を800s積算したものの。

#### (b) Gouy位相を用いた軌道角運動量量子相関の検出

これまで、量子もつれ合いの理論的研究及び、検証実験は、光子の偏光といった2状態量子系にほぼ限られていた。しかし、近年、よりノイズに強いことや、より安全性の高い量子暗号プロトコルを実現可能なことから多次元量子状態が注目されている。光子で多次元量子状態を実現する最も有力な候補が、軌道角運動量を用いる方法である。光子は、等位相面を螺旋状にとることで、軌道角運動量を持つことができ、その量子化された運動量を使って、多次元量子状態を作ることができる。

我々は、軌道角運動量の量子もつれ合い状態を生成し、その異なる基底間の位相を Gouy 位相という幾何学的位相を用いて制御することに成功した (図2)。

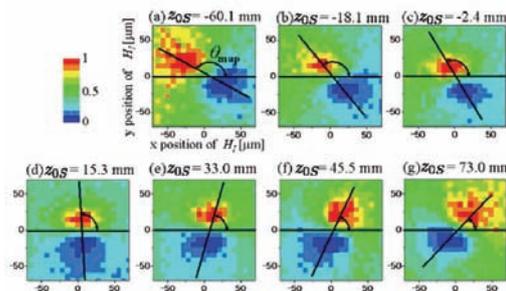


図2. Gouy位相を変化させたときの軌道角運動量重ね合わせ状態の変化。(a)→(g)へ Gouy位相が変化。

(c) 極低温下での微小球共振器とテーパファイバのカップリング技術の確立

テーパファイバ結合微小球は、ガラス微小球による高いQ値とテーパファイバからの近接場的な光入出力により、高効率光入出力が可能な微小光共振器デバイスとして注目されている。特に、共振器内に単一発光体を導入して非線形光学効果を格段に高める事が可能であり、これを用いることで量子位相ゲートが実現可能であると期待されている。現状の大きな問題として、安定した動作が期待される固体単一発光体ではフォノンの影響により励起状態のコヒーレンス時間が短い事があげられる。これを克服するために、微小球共振器とテーパファイバを液体ヘリウムクライオスタットに実装し、極低温下で結合させる必要がある。

我々は、これを実現するために特性のクライオスタットを導入し、温度8Kでテーパファイバと微小球の結合に成功した(図3)。極低温下でのテーパファイバと微小球の結合が可能なのは、我々の他にカルフォルニア工科大学、マックスプランク量子光学研究所があげられるが、637nmという可視光領域で実現したのは我々が初めてである。この637nmの波長領域は後述のダイヤモンド窒素欠陥(NVセンター)の励起に不可欠であり、量子位相ゲート実現への大きな進展である。

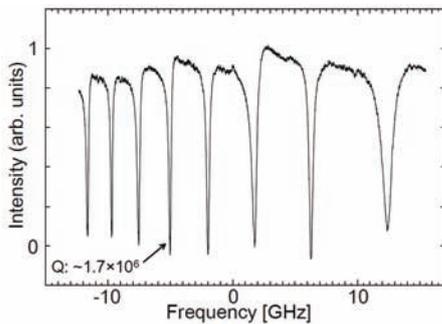


図3. テーパファイバ結合微小球共振器の透過スペクトル

(d) テーパファイバ結合微小球共振器における位相シフトスペクトルの測定

テーパファイバ結合微小球共振器を量子位相ゲート等の量子情報デバイスへ応用するためには、テーパファイバ結合微小球共振器単体の、共振に伴う光位相シフトを十分に理解・制御することが必要である。そこで我々は、その光位相シフトの周波数依存性の測定を行った。直径600nm~1μmのテーパファイバに、直径80~200μmの微小球を近接させ、光ファイバの入射偏光角度を斜め45°直線偏光に固定した状態で、波長を780nm近傍で掃引し、微小球共振モードにおける透過光の偏光状態を測定した。出射光の偏光状態からストークスパラメータのスペクトルを取得し、位相シフト量を導出した。位相シフトスペクトルは、球とファイバの結合状態に依存する。本研究の結果から、アンダーカップリング状態からオーバーカップリング状態へと結合状態が転移したことを確認した(図はオーバーカップリング状態に対応する)。これにより、量子力学的な位相の変化

を正確に分離して測定することができると考えられる。

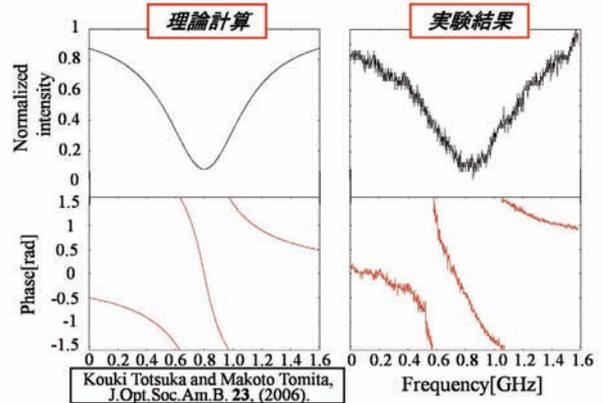


図4. オーバーカップリング状態における位相シフトスペクトルの計算結果と実験結果。

(e) リラクサー強誘電体Pb(Zn<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>のRaman散乱

Pb(Zn<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>において、強誘電性ソフトモード(FEモード)が存在するという中性子散乱実験の報告がある。一方、FEモードは存在しないというRaman散乱実験の報告がある。そこで、高分解能Raman散乱を行なった。図5にRamanモードの周波数の温度依存性を示した。A、B、EモードはE対称性の光学モード、FモードはE対称性のサイレント光学モードであり、これまで報告されている結果と良い一致を示している。問題はC、Dモードである。これまで、これらのモードは1つのモードと考えられていて、その周波数はC、Dモードの中間に位置しており、中性子散乱で報告されているFEモードの周波数とは明らかに異なるので、Raman散乱ではFEモードが見つからないとされていた。今回の高分解能実験で、このモードが2つの成分(C、Dモード)から成り立っていることを発見し、そしてCモードの周波数が中性子散乱で報告されているFEモードの周波数に近いこと(中性子散乱の実験精度を考えれば一致していると言える)が判明した。ただ、Cモードは明らかにソフト化していない(周波数がゼロになっていない)。したがって、中性子散乱実験で示された実験結果の解釈は間違いであり、FEモードとされたモードはFEモードではないと結論づけた。

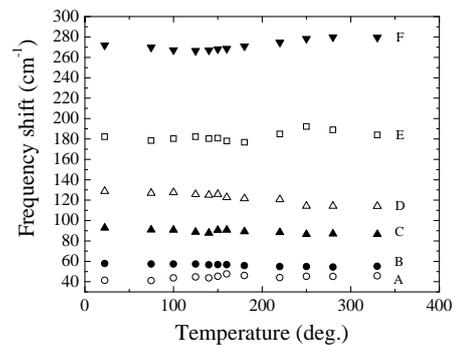


図5

### 3. 今後の研究の展望

本研究分野では現在、総務省戦略的情報通信研究開発推進制度、科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業のプロジェクトとして「光子間の高効率固体量子位相ゲートの実現に関する研究」、「多光子量子演算ゲートの研究」の研究を実施している。また、科学研究費課題として、「群速度エンジニアリングによる、時空間単一モード光子源の実現と応用」の研究を遂行してきた。これらのプロジェクトの展開として、(a) 光子を用いた線形量子計算の実現、(b) テーパーファイバー結合微小球を用いた単一光子制御デバイスの開発、(c) パラメトリック蛍光対を用いた光子数状態の制御、(d) 輻射場を制御した単一分子の分光計測、(e) 高量子効率光子数検出器の開発と特性解析、(f) もつれ合い光子を用いた量子リソグラフィ要素技術開発、(g) 単一光子制御デバイスの作製と特性解析等の研究テーマを遂行する予定である。また、量子相転移に関連して、量子常誘電体が示す特異な異常現象と、それをモディファイした物質で発現する超伝導状態とを、時空間スケリングの観点から統一的に解釈して行く。さらに、磁性体で見られる量子臨界現象との関わりを追求する。

### 4. 資料

#### 4.1 学術論文等

- 1) R. Okamoto, H. F. Hofmann, T. Nagata, J. L. O'Brien, K. Sasaki and S. Takeuchi : "Beating the standard quantum limit: phase super-sensitivity of N-photon interferometers", *New Journal of Physics*, 10 : 073033-1-073033-9 (2008)
- 2) D. Kawase, Y. Miyamoto, M. Takeda, K. Sasaki and S. Takeuchi : "Observing Quantum Correlation of Photons in Laguerre-Gauss Modes Using the Gouy Phase", *Phys. Rev. Lett.*, 101 : 050501/1-050501/4 (2008)
- 3) R. Okamoto, J. L. O'Brien, H. F. Hofmann, T. Nagata, K. Sasaki and S. Takeuchi : "An Entanglement Filter", *Science International*, 323 : 483-485 (2009)
- 4) D. Kawase, Y. Miyamoto, M. Takeda, K. Sasaki and S. Takeuchi : "Effect of high-dimensional entanglement of Laguerre-Gaussian modes in parametric down conversion", *Journal Of Optical Society Of America B*, 26(4) : 797-804 (2009)
- 5) Y. Tsujimi, H. Uwe, and H. Minami : "Broad Doublet and Plasmon Peak in Perovskite-type Oxides", *Ferroelectrics*, 367: 95-101 (2008)
- 6) Y. Tsujimi, H. Uwe, and H. Minami : "Plasmon-LO phonon coupled modes in Nb-doped Strontium Titanate", *Ferroelectrics*, 375: 148-155 (2008)

#### 4.2 総説・解説・評論等

- 1) 竹内繁樹:「光子の量子状態を自在に操る—光量子ゲートと光量子回路—」、レーザー研究、36(8) : 482-486 (2008)
- 2) 高島秀聡、藤原英樹、笹木敬司、竹内繁樹:「ファイバー結合微小球共振器を用いた固体量子位相ゲートの実現に向けて」、光学、(社) 応用物理学会分科会日本光学会、37(12) : 686-691 (2008)
- 3) 竹内繁樹:「光量子 IC の出現」、物理科学雑誌 パリティ、(榎丸善、24(1) : 11-12 (2009)

#### 4.6 特許

- 1) 竹内繁樹:特願2009-028429、周期構造等を付加したテーパー光ファイバ、2009年2月10日

#### 4.7 講演

##### i) 学会

- 1) S. Takeuchi, D. Kawase, Y. Miyamoto, M. Takeda, and K. Sasaki : "Observing quantum correlation of photons in Laguerre-Gaussmodes using the Gouy phase", 17th International Laser Physics Workshop(2008), Norwegian University of Science and Technology, Norway (2008-06)
- 2) K. Sasaki, Y. Kawabe, H. Fujiwara, R. Okamoto, and S. Takeuchi : "SPATIAL INTERFERENCE FRINGE OF ENTANGLED TWO-PHOTON PROCESS BEATING THE DIFFRACTION LIMIT", XXII IUPAC SYMPOSIUM ON PHOTOCHEMISTRY, Gothenburg Convention Centre, Sweden (2008-07)
- 3) H. Fujiwara, T. Chiba, J. Hotta, S. Takeuchi, and K. Sasaki : "DYNAMICAL ANALYSIS OF TRIPLET LIFE-TIME OF SINGLE MOLECULES USING PHOTON INTER-DETECTION TIME RECORDING", XXII IUPAC SYMPOSIUM ON PHOTOCHEMISTRY, Gothenburg Convention Centre, Sweden (2008-07)
- 4) D. Kawase, Y. Miyamoto, M. Takeda, K. Sasaki and S. Takeuchi : "Controlling photonic qubits using geometrical phase", SPIE Optics + Photonics2008, San Diego Convention Center, USA (2008-08)
- 5) R. Okamoto, J. L. O'Brien, H. F. Hofmann, T. Nagata, K. Sasaki, and S. Takeuchi : "Demonstration of a non-local quantum filter", The Ninth International Conference on QCMC2008, University of Calgary, Canada (2008-08)
- 6) T. Nagata, R. Okamoto, H. F. Hofmann, K. Sasaki, and S. Takeuchi : "Analysis of errors in an optical Controlled-NOT gate", The Ninth International Conference on QCMC2008, University of Calgary, Canada (2008-08)
- 7) 上田哲也、石川綾子、高島英聡、藤原英樹、松尾保孝、居城邦治、笹木敬司、竹内繁樹:「単一オリゴヌクレオチド/銀ハイブリッドナノ粒子の発光特性解析」、2008 秋季 第69回応用物理学会学術講演会、中部大学春日井

- キャンパス (2008-09)
- 8) H. Takashima, H. Fujiwara, S. Takeuchi, K. Sasaki, and M. Takahashi : “Analysis of input-output characteristic of fiber-coupled microsphere laser using rate equations”, EOS Annual Meeting 2008, Villepinte, Parc d'expositions et Centre de Conventions - Paris, France (2008-09)
  - 9) S. Takeuchi : “Photon juggling for quantum information processing and quantum metrology”, International Workshop on Fundamentals of Light-Matter Interaction, Recife-PE Brazil Hotel Atlante Plaza, Brazil (2008-10)
  - 10) 青木俊介、宮本洋子、川瀬大輔、竹内繁樹、Susanne Zwick、武田光夫、笹木敬司 : 「光子の軌道角運動量重ね合わせ状態検出における余分な方位角成分の影響 II」、日本光学会年次学術講演会2008、つくば国際会議場 (2008-11)
  - 11) R. Okamoto, and S. Takeuchi : “Quantum metrology using entangled photons”, SPIE Photonics West (2009), San Jose Convention Center, USA (2009-01)
  - 12) 高島秀聡、浅井健志、藤原英樹、笹木敬司、竹内繁樹 : 「低温でのテーパファイバと微小球共振器とのカップリング」、日本物理学会2009年春季第64回年次大会、立教大学池袋キャンパス(2009-03)
  - 13) 辻見裕史、植寛素 : 「ペロフスカイト系酸化物におけるブロードダブルレットとプラズモン III」、日本物理学会第63回年次大会、近畿大学 (2008-3)
  - 14) Y. Tsujimi, H. Uwe, H. Mianmi : “Broad Doublet Spectra and Anomalous Light Scatterings in Quantum Paraelectric States of SrTiO<sub>3</sub> and Nb-doped SrTiO<sub>3</sub>”, The 6th Asian Meeting on Ferroelectrics, Taipei, Taiwan (2008-8)
  - 15) 辻見裕史、植寛素、南英俊 : 「ペロフスカイト系酸化物におけるブロードダブルレットとプラズモン IV」、日本物理学会2008年秋季大会、岩手大学 (2008-9)
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) S. Takeuchi : “Photon juggling for quantum information processing and quantum metrology”, International Nano-Optoelectronic Workshop 2008, Lake Saiko and Shonan Village, Japan (2008-08)
  - 2) T. Asai, H. Takashima, H. Fujiwara, K. Sasaki, and S. Takeuchi : “Optical Phase Shift Observed in a Resonance Mode of a Tapered-Fiber Coupled with a Microsphere Resonator”, 4th Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium, Ichō Hall Osaka University (2008-09)
  - 3) M. Tanida, T. Nagata, R. Okamoto, K. Sasaki, and S. Takeuchi : “Hong-Ou-Mandel Dip with Independence Heralding Single Photon Sources” 4th Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium, Ichō Hall Osaka University (2008-09)
  - 4) S. Takeuchi : “Quantum information processing using photons”, 4th Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium, Ichō Hall Osaka University (2008-09)
  - 5) 竹内繁樹 : 「高効率固体量子位相ゲート素子の実現に向けて」、第3回量子 ICT 運営会議、メルパルク東京 (2008-09)
  - 6) 岡本亮、笹木敬司、竹内繁樹 : 「非局所量子フィルタの検証実験」、アライアンス G2 分科会、東京工業大学すずかけ台キャンパス (2008-10)
  - 7) 谷田真人、永田智久、岡本亮、笹木敬司、竹内繁樹 : 「高い2光子干渉性を持つ伝令付単一光子源の実現」、第19回量子情報技術研究会 (QIT19)、大阪府立大学中百舌鳥キャンパス 学術交流会館 (2008-11)
  - 8) 岡本亮、H.F.Hofmann、永田智久、J. L. O'Brien、笹木敬司、竹内繁樹 : 「多光子干渉を用いた位相測定と位相感度」、第19回量子情報技術研究会 (QIT19)、大阪府立大学中百舌鳥キャンパス 学術交流会館 (2008-11)
  - 9) 浅井健志、高島秀聡、藤原英樹、笹木敬司、竹内繁樹 : 「テーパファイバ結合微小球共振器の共鳴モードにおける光位相シフト」、第19回量子情報技術研究会 (QIT19)、大阪府立大学中百舌鳥キャンパス 学術交流会館 (2008-11)
  - 10) 中村真一郎、笹木敬司、竹内繁樹 : 「周期構造を導入したテーパ光ファイバ」、第19回量子情報技術研究会 (QIT19)、大阪府立大学中百舌鳥キャンパス 学術交流会館 (2008-11)
  - 11) R. Okamoto, J. L. O'Brien, H. F. Hofmann, T. Nagata, K. Sasaki, and S. Takeuchi : “Realization of non-local quantum filter”, International Symposium on Physics of quantum information processing, Nara Prefectural Public Hall (2008-11)
  - 12) R. Okamoto, J. L. O'Brien, H. F. Hofmann, T. Nagata, K. Sasaki, and S. Takeuchi : “Beating standard quantum limit: The sensitivity of N photon interferometers”, International Symposium on Physics of quantum information processing, Nara Prefectural Public Hall (2008-11)
  - 13) T. Asai, H. Takashima, H. Fujiwara, K. Sasaki and S. Takeuchi : “Micro-sphere resonator coupled with a tapered for quantum information processing”, International Symposium on Physics of quantum information processing, Nara Prefectural Public Hall (2008-11)
  - 14) T. Nagata, R. Okamoto, H. F. Holger, K. Sasaki and S. Takeuchi : “Toward high-fidelity operation of linear-optics quantum gates”, International Symposium on Physics of quantum information processing, Nara Prefectural Public Hall (2008-11)
  - 15) M. Tanida, T. Nagata, R. Okamoto, K. Sasaki, and S. Takeuchi : “Highly-pure heralding single-photon sources for linear optics quantum computation”, International Symposium on Physics of quantum information processing, Nara Prefectural Public Hall (2008-11)

- 16) S. Takeuchi : “Toward large-scale optical quantum circuits-Activity of Hokkaido University Group,a sub-group of Imoto Team-”, International Symposium on Physics of quantum information processing, Nara Prefectural Public Hall (2008-11)
- 17) D. Kawase, Y. Miyamoto, M. Takeda, K. Sasaki and S. Takeuchi : “Manipulation of optical quNits using geometrical phase”, International Symposium on Physics of quantum information processing, Nara Prefectural Public Hall (2008-11)
- 18) S. Takeuchi : “Photon juggling for quantum information processing and quantum metrology”, Workshop on Information,Nano and Photonics Technology 2008, Kobe University (2008-11)
- 19) S. Takeuchi : “Optical quantum circuits and nanophotonic devices for quantum information and quantum metrology”, The 10th RIES-Hokudai International Symposium on “綾”[aya], Hokkaido University Conference Hall (2008)-12)
- 20) R. Okamoto, J. L. O’Brien, H. F. Hofmann, T. Nagata, K. Sasaki and S. Takeuchi : “Evaluation of an entanglement filter”, The 10th RIES-Hokudai International Symposium on “綾”[aya], Hokkaido University Conference Hall (2008)-12)
- 21) 竹内繁樹、岡本亮:「光子を用いた量子情報通信処理」、ポストシリコン物質・デバイス創製基盤技術アライアンス 平成20年度成果報告会、北海道大学 学術交流会館 (2008-12)
- 22) 藤原英樹、竹内繁樹、笹木敬司:「ポリマーフィルム中単一分子の発光ダイナミクスの時間応答解析」、ポストシリコン物質・デバイス創製基盤技術アライアンス 平成20年度成果報告会、北海道大学 学術交流会館 (2008-12)
- 23) 竹内繁樹:「Q&A で考える量子暗号とその未来」、2009年 暗号と情報セキュリティシンポジウム(SCIS 2009)、大津プリンスホテル (2009-01)
- 24) T. Nagata, R. Okamoto, H. F. Hofmann, K. Sasaki and S. Takeuchi : “Toward high-fidelity operation of linear-optics quantum gates”, The 2nd International Symposium on Global COE Program of Center for Next-Generation Information Technology Based on Knowledge Discovery and Knowledge Federation(GCOE-NGIT2009), International Conference Hall,Hokkaido University (2009-01)
- 25) T. Nagata, R. Okamoto, H. F. Hofmann, K. Sasaki and S. Takeuchi : “Toward high-fidelity operation of linear-optics quantum gates”, The 12th SANKEN International Symposium Joint Meeting of The 7th SANKEN Nanotechnology Center Symposium The 2nd SANKEN MSTeC Symposium The 1st SANKEN Alliance Symposium, Convention Center, Osaka University (2009-01)
- 26) R. Okamoto, J. L. O’Brien, H. F. Hofmann, T. Nagata, K. Sasaki and S. Takeuchi : “Evaluation of an entanglement filter”, The 12th SANKEN International Symposium Joint Meeting of The 7th SANKEN Nanotechnology Center Symposium The 2nd SANKEN MSTeC Symposium The 1st SANKEN Alliance Symposium, Convention Center, Osaka University (2009-01)
- iii) コロキウム・セミナー等・その他
- 1) 竹内繁樹:「光量子回路の実現と応用ー量子もつれ合いフィルタの実現ー」、第11階ナノ量子情報エレクトロニクスセミナー、東京大学 駒場Ⅱキャンパス (2008-12)

#### 4.9 共同研究

##### a. 海外機関との共同研究

- 1) 英国ブリストル大学 (Prof. Jeremy O’Brien)
- 2) 独国フンボルト大学 (Prof. Oliver Benson)
- 3) 米国デューク大学 (Prof. Jungsang Kim)

##### b. 所内共同研究

- 1) 光システム計測研究分野 (笹木敬司教授、藤原英樹准教授) と密接に共同研究を実施した
- 2) バイオ分子ナノデバイス研究分野 (居城邦治 教授、松尾保孝 助教) 単一オリゴヌクレオチド/銀ハイブリッドナノ粒子の発光特性解析に関して共同研究を実施した

##### c. 民間等との共同研究

- 1) 竹内繁樹 (三菱電機株式会社) : 「量子暗号通信技術の盤技術開発とシステム化」、2007年度、4000千円、光ファイバー通信を利用した量子暗号通信システムを開発し、通信の実証実験を行う。また、通信波長帯での高効率の検出器の検討及び作成を行い、長距離通信系への適用を検討する。

##### d. 受託研究

- 1) 竹内繁樹、ホフマン F. ホルガ、ソージャエフ アレクサンドレ、岡本亮 (科学技術振興機構 戦略的創造研究推進事業「量子情報処理システムの実現を目指した新技術の創出」): 「多光子量子演算ゲートの研究」、2003～2008年度、5光子以上のゲート実現と量子回路、テレポーテーション的リピーター、制御NOTの新提案及び実現、単光子状態発生及びフォトンカウンティング技術発展、マルチパーティコンピューテーションへ多光子及びフォトンカウンティング技術
- 2) 竹内繁樹、笹木敬司、藤原英樹、ホフマン F. ホルガ (戦略的情報通信研究開発制度 (SCOPE) 特定領域重点型研究開発 (情報通信新技術・デバイス技術)): 「光子間の高効率固体量子位相ゲート素子の実現に関する研究」、2008年度、光子間の高効率固体量子位相ゲート素子の実現に関する研究 (課題名)

#### 4.10 予算獲得状況

##### a. 科学研究費補助金

- 1) 竹内繁樹、栗村直、基盤研究A、群速度エンジニアリングによる、時空間単一モード光子源の実現と応用、2008年度～2010年度
- 2) 辻見裕史、基盤研究C 一般、量子常誘電体における動的スケーリング構造とナノスケール強誘電体領域 (2007～2008年度)

##### b. 科学技術振興調整費

- 1) 竹内繁樹：平成18年度科学技術振興調整費先端融合領域イノベーション創出拠点「ナノ量子情報エレクトロニクス連携研究拠点」研究分担者

#### 4.12 社会教育活動

##### a. 公的機関の委員

- 1) 竹内繁樹：総務省 戦略的情報通信研究開発推進制度 専門評価委員 (2002年7月11日～現在)
- 2) 竹内繁樹：独 情報通信研究機構 高度通信・放送研究開発委託研究評価委員会 専門委員 (2004年4月1日～2010年3月31日)
- 3) 辻見裕史：基盤研究等審査員 (2006年12月1日～2008年11月30日)

##### b. 国内外の学会の役職

- 1) 竹内繁樹：電子情報通信学会エレクトロニクスソサイエティ第2種時限専門委員会 委員 (1998年11月1日～現在)
- 2) 竹内繁樹：量子情報技術研究会 委員 (1998年11月1日～現在)

##### c. 併任・兼業

- 1) 竹内繁樹：科学技術振興機構 領域アドバイザー (2003年7月24日～2009年3月31日)
- 2) 竹内繁樹：東京大学 ナノ量子情報エレクトロニクス研究機構 委嘱教授 (2007年4月1日～現在)
- 3) 竹内繁樹：大阪大学産業科学研究所 招聘教授 (2007年10月1日～現在)

##### d. その他

- 1) 竹内繁樹：Nonlinear Optics, Quantum Optics 編集委員 (2003年4月1日～現在)
- 2) 竹内繁樹：SPIE Photonics+Optics, Quantum communications and Quantum Imaging (Program Committee member)

##### e. 新聞・テレビ等の報道

###### ・新聞

- 1) 竹内繁樹：朝日新聞 2009年1月23日「世界最高“光量子回路”開発」
- 2) 竹内繁樹：日経産業新聞 2009年1月23日「特定の“双子”光子通過」
- 3) 竹内繁樹：日本経済新聞 2009年1月23日「光量子回路を開発」
- 4) 竹内繁樹：日刊工業新聞「“もつれ合い”光子対抽出」

- 5) 竹内繁樹：時事ドットコム 2009年1月23日「夢のコンピュータへ一歩＝世界最大級の光量子回路実現―北大」

- 6) 竹内繁樹：科学新聞 2009年1月30日「特定状態の時だけ2光子を抜き出し」

- 7) 竹内繁樹：東京新聞 2009年2月3日「世界最大級の光回路」

- 8) 竹内繁樹：中日新聞 2009年2月3日「世界最大級の光回路」

- 9) 竹内繁樹：北海道新聞 2009年3月31日「世界初の回路を開発」

##### f. 外国人研究者の招聘

- 1) Xia Lixin, CHINA (2008年2月13日～5月12日)
- 2) Jeremy L. O'Brien, UK (2008年5月27日～6月1日)
- 3) Holger F.Hofmann, JAPAN (2008年5月28日～29日)
- 4) Holger F.Hofmann, JAPAN (2008年9月25日～26日)
- 5) Gunnar Bjoerk, Sweden (2008年11月29日)
- 6) Joerg Wrachtrup, Germany (2008年12月10日)
- 7) Holger F.Hofmann, JAPAN (2008年12月10日)
- 8) Jeremy L.O'Brien, UK (2009年1月16日～6月15日)

##### g. 北大での担当授業科目

- 1) 情報科学研究科、情報エレクトロニクス特別研究第一、竹内繁樹、2008年4月1日～2009年3月31日
- 2) 情報科学研究科、情報エレクトロニクス特別研究第二、竹内繁樹、2008年4月1日～2009年3月31日
- 3) 情報科学研究科、情報エレクトロニクス特別演習、竹内繁樹、2008年4月1日～2009年3月31日
- 4) 情報科学研究科、光情報システム学特論、竹内繁樹、2008年10月1日～2009年3月31日

##### j. 修士学位及び博士学位の取得状況

###### ・修士課程 (2名)

浅井健志 (情報科学研究科 光システム計測研究分野)、  
谷田真人 (情報科学研究科 光システム計測研究分野)

###### ・修士論文

- 1) 浅井健志：テーパファイバ・微小球共振器間の結合状態制御と位相シフトスペクトルに関する研究
- 2) 谷田真人：伝令付き単一光子源の2光子干渉性に関する研究

## 有機電子材料研究分野

教授 中村貴義 (東大院、理博、1997.4~)  
准教授 芥川智行 (京大院、理博、2003.5~)  
助教 野呂真一郎 (京大院、工博、2004.7~)  
博士研究員 Qiong Ye (2007.5~)  
院 生 遠藤大五郎 (DC3)、野田祐樹 (DC1)、遠藤格 (DC1)、  
青沼昌樹 (M2)、工藤史人 (M2)、福原克郎 (M1)

### 1. 研究目標

単一分子の持つ機能を利用して、既存のコンピュータの処理能力、集積度を遙かに凌駕したシステムの実現を目指した、分子エレクトロニクスに関する研究が活発に行われている。一方、単一分子ではなく、生体における情報処理を模倣し、生体分子を利用して新たなシステムを構築するバイオコンピューティングの研究も平行して進行している。本研究分野では、単一分子やバイオ分子を直接用いるのではなく、分子が集合体を作る性質（自己集積化能）を利用して、ナノサイズの機能性ユニットを創製し、それを複合化・集積化することで、分子ナノデバイスの構築を進めている。人工の分子集合体における協同現象を積極的に利用し、単分子では達成できない分子集合体デバイスとしての機能を開拓し、次世代のコンピューティングの基盤としての、集積型分子エレクトロニクスを目指している。

### 2. 研究成果

#### (a) 超分子ローター構造を含む分子性強誘電体の開発

超分子化学の手法を用いる事で、磁性や伝導性を有する機能性分子集合体の構造制御や物性の複合化が可能である。各種カチオンとクラウンエーテルが非共有結合性の分子間相互作用から形成する超分子集合体カチオン構造に着目し、生体分子系で見られる分子モーター構造を模倣した新規な分子ローター構造の設計とその機能開拓を試みた。

これまでに、 $C_{52}[18\text{crown-6}]_3[\text{Ni}(\text{dmit})_2]$  や (Anilinium)  $[\text{18crown-6}][\text{Ni}(\text{dmit})_2]$  結晶における、 $[\text{18crown-6}]$  分子の回転運動や Anilinium ( $\text{Ani}^+$ ) カチオンの  $180^\circ$  フリップフロップ運動に関する報告を行った。本研究では、後者のフリップフロップ運動に着目し、回転ユニットに双極子モーメントを導入する事で、固体中で分極反転場を構築し、新規な強誘電体の開発を目的に研究を行った。結晶中の分子回転運動の実現は、最密充填構造の形成と相反するため、結晶空間の精密設計が重要である。既に報告した (Anilinium)  $[\text{18crown-6}][\text{Ni}(\text{dmit})_2]$  結晶では、Anilinium カチオンのフリップフロップ運動による分子反転に対して同一の結晶構造となる事から、強誘電性は出現しない。そこで、 $180^\circ$  フリップフロップ運動で双極子モーメントの反転が可能な *m*-fluoroanilinium (*m*-FAni<sup>+</sup>) カチオンを含む (*m*-FAni<sup>+</sup>)  $[\text{DB}[18\text{crown-6}][\text{Ni}(\text{dmit})_2]$  ( $\text{DB}[18\text{crown-6}] = \text{dibenzo}[18$

$\text{crown-6}]$  (1) を作製した。同時に、同形結晶である ( $\text{Ani}^+$ )  $[\text{DB}[18\text{crown-6}][\text{Ni}(\text{dmit})_2]$  (2) も作製可能であり、両結晶の誘電物性を比較する事で強誘電性の検証を可能とした。

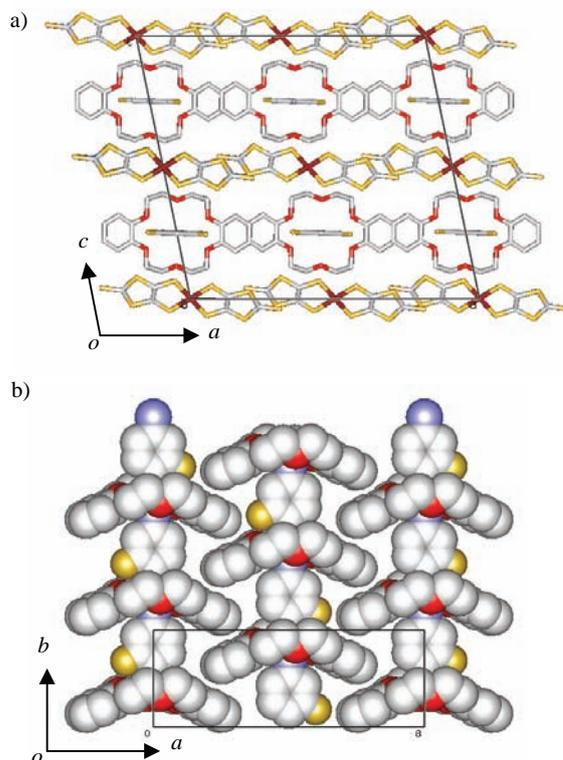


図 1. 錯体 1 の結晶構造。a) *b* 軸方向から見たユニットセル。超分子カチオンと  $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]$  アニオン層が、*c* 軸方向に交互に配列している。b) *ab* 面内における超分子カチオン配列。空間充填を示す CPK モデルを用いた表記で、水素原子は省略している。

結晶 1 では、(*m*-FAni<sup>+</sup>)  $[\text{DB}[18\text{crown-6}]$  から成る超分子カチオン構造が *ab* 面内において配列し、面内におけるフッ素の配向には disorder が観測された (図 1)。カチオン層の間には、 $S = 1/2$  スピンを有する  $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]$  アニオンの二次元配列があり、磁化率の温度依存性測定では、Curie-Weiss モデルに従う磁性が観測されている。

結晶中における *m*-FAni<sup>+</sup> カチオンの  $180^\circ$  フリップフロップ運動は、結晶の *a* 軸方向に起こり、単結晶試料 (1) を用いた誘電率の温度依存性では、顕著な異方性が観測された。*m*-FAni<sup>+</sup> カチオンの分子回転に伴う双極子モーメントの反転が期待できる *a* 軸方向の誘電率測定では、 $346\text{ K}$  に周波数に依存したピークが出現する (図 2)。より低周波数領域の誘電率測定 ( $f = 1\text{ kHz}$ ) でピークが明瞭になり、高周波数領域 ( $f = 1\text{ MHz}$ ) では、ピークは観測されていない。また、結晶の *b* および *c* 軸方向の誘電率測定では、周波数依存性が観測されない。以上の結果は、結晶中で、低い周波数に対応する分子運動が *a* 軸方向に存在する事に対応している。結晶 2 においては、この様な誘電挙動が観測され無い事から、*m*-FAni<sup>+</sup> カチオンの  $180^\circ$  フリップフロップ運動に伴う双極子モーメントの反転が、誘電率変化に反映されていると結論できる。強誘電体状態にある室温における

結晶1の*P-E*ヒステリシス曲線は、伝導成分による寄与を含む強誘電体に特徴的な挙動を示し、結晶2では常誘電体に特徴的な直線的な挙動を示した。さらに、固体<sup>19</sup>F-NMR、*ab-initio*計算による分子回転ポテンシャルエネルギーの計算、バイアス電圧の印加による結晶構造解析などの結果から、結晶1が346 K以下の温度領域で強誘電体である事が明らかとなった。

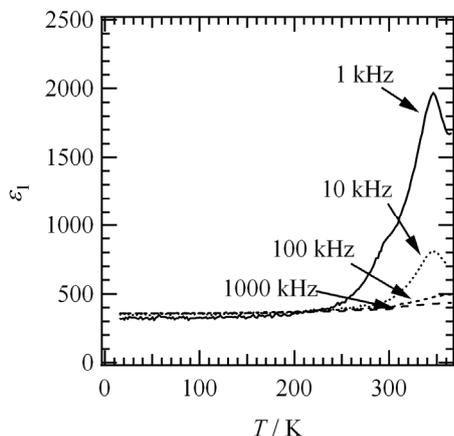


図2. 結晶1の*a*軸方向で測定した誘電率の温度一周波数依存性。

結晶1は、超分子化学の手法から設計された超分子ローター構造を利用した、新規な強誘電体である。水素結合鎖内のプロトン移動と比較し、分子回転に伴う分子座標の大きな変位に加えて強誘電性を担う超分子ローター構造と磁性機能を担う金属錯体が共存している事から、今後、マルチフェロイック材料などへの展開が期待できる。

#### (b) 超分子ローター構造を含む分子磁性体に関する研究

これまでに、[18]crown-6分子の回転運動、Anilinium カチオンの180°フリップフロップ運動や両者が共存したデュアル分子ローター構造などの開発を報告した。超分子ローター構造の回転特性(周波数や対称性)の分子設計と磁性を担う[Ni(dmit)<sub>2</sub>]<sup>-</sup>アニオンの分子配列の制御は、今後のマルチフェロイック材料の観点から重要である。そこで、Ani<sup>+</sup>および Adamantylammonium (AD-NH<sub>3</sub><sup>+</sup>)と DB[18]crown-6および dicyclohexano[18]crown-6 (DCH[18]crown-6)との組合せから形成する水素結合性の超分子カチオン構造に着目し(図3)、[Ni(dmit)<sub>2</sub>]<sup>-</sup>アニオンとの複合体を行う事で、結晶中での分子回転特性および磁性に関する検討を行った。

拡散法により、(Ani<sup>+</sup>)(DB[18]crown-6)[Ni(dmit)<sub>2</sub>]<sup>-</sup>(2)、(Ani<sup>+</sup>)(DCH[18]crown-6)[Ni(dmit)<sub>2</sub>]<sup>-</sup>(3)、(AD-NH<sub>3</sub><sup>+</sup>)(DB[18]crown-6)[Ni(dmit)<sub>2</sub>]<sup>-</sup>(4)および (AD-NH<sub>3</sub><sup>+</sup>)(DCH[18]crown-6)[Ni(dmit)<sub>2</sub>]<sup>-</sup>(5)の単結晶試料を作製し、その結晶構造、磁性および分子回転運動を評価した。

いずれの有機アンモニウムカチオンもクラウンエーテルの6個の酸素原子とN-H<sup>+</sup>~O水素結合により、超分子カチオン構造を形成していた(図4)。DB[18]crown-6分子は、V字形のコンフォメーションを取るのに対し、DCH[18]crown-6分子はシクロヘキサン環の構造の柔軟性を反映し

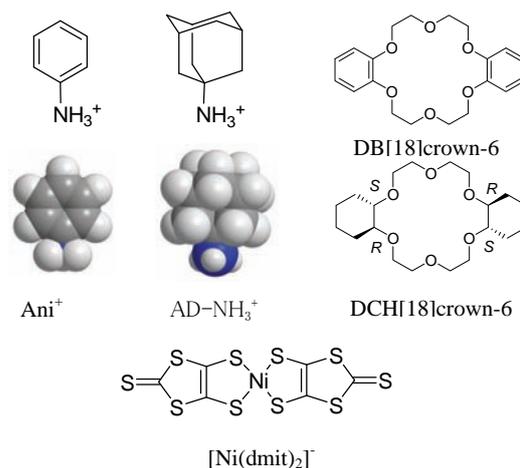


図3. 超分子カチオンを形成する有機アンモニウム、クラウンエーテル誘導体と[Ni(dmit)<sub>2</sub>]<sup>-</sup>の分子構造。

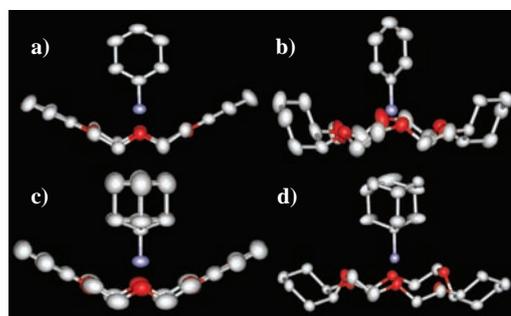


図4. 結晶2 (a), 3 (b), 4 (c), 5 (d)の中で形成した超分子カチオン構造。水素原子は省略している。

て、Ani<sup>+</sup>とAD-NH<sub>3</sub><sup>+</sup>ではそのコンフォメーションに相違が見られた(図4bと図4d)。結晶中の分子回転は、Ani<sup>+</sup>およびAD-NH<sub>3</sub><sup>+</sup>カチオンのC-NH<sub>3</sub>軸方向に生じると予測され、結晶中の分子配列様式の理解が重要である。

同型の結晶構造を有する結晶2と4では、超分子カチオンと磁性を担う[Ni(dmit)<sub>2</sub>]<sup>-</sup>層が*c*軸方向に交互に配列した層状構造であった(図5a)。結晶中のカチオンの分子回転は、カチオンに隣接する[Ni(dmit)<sub>2</sub>]<sup>-</sup>アニオンとの間の立体反発により支配される。一方、[Ni(dmit)<sub>2</sub>]<sup>-</sup>アニオン間には、分子末端のπ電子の重なりと分子間S-S相互作用により弱く相互作用する事で、二次元的な層状構造を形成していた。

結晶3では、結晶2と同様なカチオンとアニオンの層状構造が*b*軸方向に形成していたが、その分子配列様式は大きく異なっていた。特に、[Ni(dmit)<sub>2</sub>]<sup>-</sup>アニオンは、分子の短軸方向の相互作用により*a*軸方向に配列していた。結晶5においても、カチオン-アニオンの層状構造が*c*軸方向に見られた(図5c)。

結晶中のAni<sup>+</sup>とAD-NH<sub>3</sub><sup>+</sup>カチオンの分子回転の可能性を検討するために、*ab-initio*計算による分子回転ポテンシャルエネルギー曲線の評価を行った。Ani<sup>+</sup>およびAD-NH<sub>3</sub><sup>+</sup>カチオンを、分子のC-NH<sub>3</sub>軸回りで30度ごと回転させた時の系全体のエネルギー変化を回転角( $\phi$ )に対してプロットした(図6)。結晶2および3では、Ani<sup>+</sup>の分子形状を反

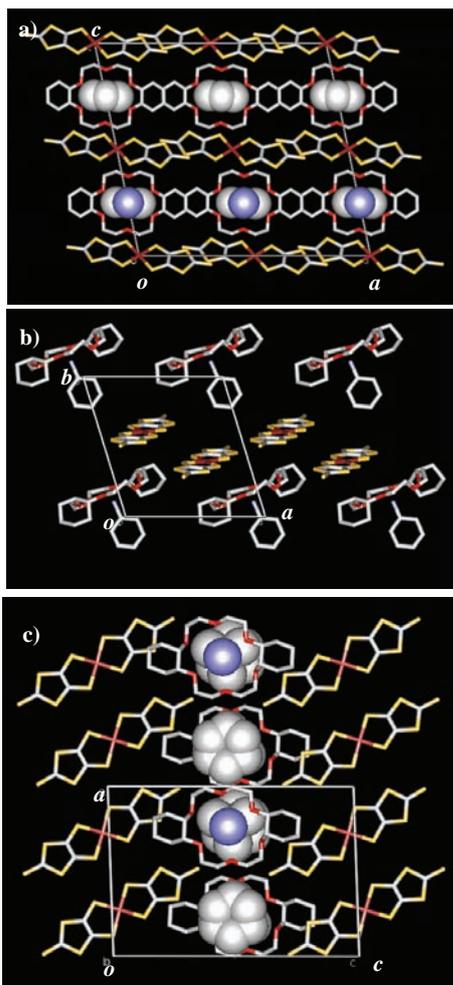


図5. 結晶 2 (a), 3 (b), 5 (c) のユニットセル。2 および 5 のカチオン構造は、van der Waals モデルで記述している。

映して、 $\phi = 0$  と  $180^\circ$  にエネルギー極小値を有する二極小型のポテンシャルエネルギー曲線が出現し、そのエネルギー障壁 ( $\Delta E$ ) は  $200$  および  $300 \text{ kJmol}^{-1}$  程度となった。これは、室温のエネルギー  $k_B T$  と比較して十分に大きいことから、室温付近では  $\text{Ani}^+$  の分子回転は起こらないと結論できる。一方、等方的な分子形状を有する  $\text{AD-NH}_3^+$  カチオンを含む結晶 4 と 5 では、Adamantyl 基の対称性を反映して、 $\phi = 0, 120, 240^\circ$  にエネルギー極小を有する三極小型のポテンシャルエネルギー曲線が出現した (図6)。そのエネルギー障壁の大きさは、 $10 \sim 16 \text{ kJmol}^{-1}$  程度であり、結晶中での Adamantyl 基の回転運動の存在を示唆する結果であった。

分子回転の存在が示唆された結晶 4 と 5 について、固体  $^1\text{H-NMR}$  から分子運動の評価を試みた。分子回転に関与する adamantyl 基の他に DB[18]crown-6 と DCH[18]crown-6 に由来するプロトンが結晶中に存在するが、これらは分子運動に関与しないかさ高いクラウンエーテル由来のプロトンである。 $^1\text{H-NMR}$  スペクトルは、二種類の吸収ピークの足し合わせで再現可能な形状を与え、温度依存性を示す線幅 ( $\Delta H$ ) の小さな成分が、adamantyl 基に由来する。図7は、結晶 4 と 5 の adamantyl 基に由来する成分の  $\Delta H$  を温度に対してプロットした結果である。先に  $220 \text{ K}$  で [18]crown-6 分

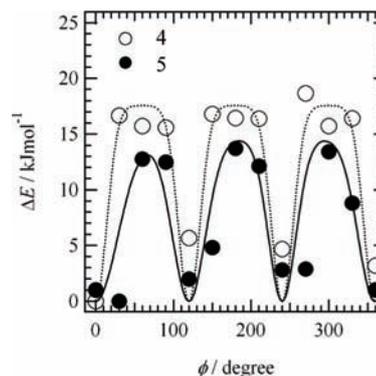


図6. 結晶 4 および 5 における、Adamantyl 基の回転ポテンシャルエネルギー曲線。

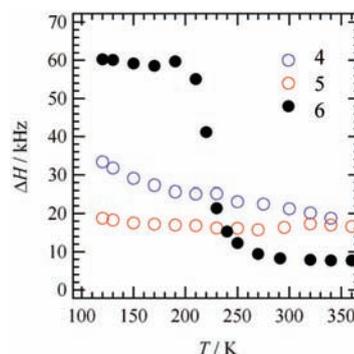


図7. 固体  $^1\text{H-NMR}$  スペクトル。結晶 4 と 5 の線幅 ( $\Delta H$ ) の温度変化と  $\text{Cs}_2^+[\text{18}]\text{crown-6}]_3[\text{Ni}(\text{dmit})_2]_2$  (6) の線幅の温度変化。

子の分子回転の存在を確認した  $\text{Cs}_2^+[\text{18}]\text{crown-6}]_3[\text{Ni}(\text{dmit})_2]_2$  (6) 結晶の結果も同時に示した。結晶 6 では、温度の低下に伴う分子回転の凍結に由来する  $\Delta H$  の急激な増加が観測されるのに対し、結晶 4 と 5 では室温付近で  $\Delta H \sim 20 \text{ kHz}$  程度の線幅が、温度の低下と共に徐々に増加した。以上の結果は、adamantyl 基が  $100 \text{ K}$  程度の低温領域においても、 $^1\text{H-NMR}$  の測定タイムスケールの範囲内で回転運動を行っている事を示唆している。

結晶の磁気的な性質は、 $S = 1/2$  スピンを有する  $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]$  分子の配列様式に依存して変化する。弱く相互作用した二次元的な  $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]$  アニオン配列を有する結晶 2 と 4 の磁化率の温度依存性は、Curie-Weiss 則に従い、 $\chi_{\text{mol}} T - T$  プロットから、 $20 \text{ K}$  以下の低温領域で弱い反強磁性相互作用の存在が確認された。一方、結晶 3 では、 $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]$  アニオン間の横方向に分子間相互作用が存在し、 $\chi_{\text{mol}} T - T$  から、低温における強磁性的な磁気相互作用の存在が確認された。強磁性的な相互作用の出現は、強磁性-強誘電性の両者を有するマルチフェロイック材料の開発の観点から重要な結果である。一方、結晶 5 においても分子短軸方向の  $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]$  アニオン配列が観測されたが、拡張ヒュケル法を用いた分子間重なり積分の評価から、分子短軸方向におけるダイマー形成が確認された。そこで、磁化率の温度依存性を Alternate Heisenberg モデル (赤線) およびダイマーモデル (青線) で再現したところ、後者のモデルで良好な結果が得られた。

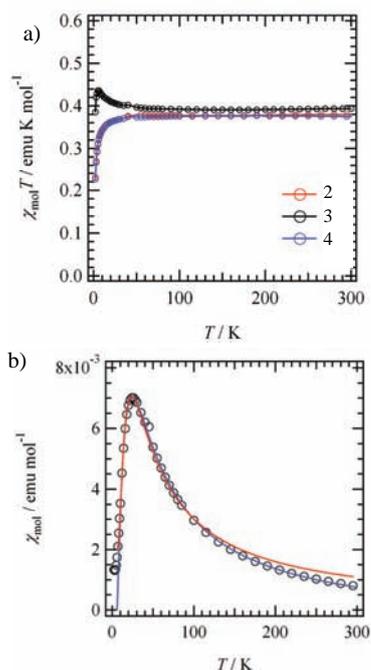


図8. 結晶2, 3, 4, 5の磁気的性質。a) 結晶2, 3, 4の $\chi_{mol} T - T$ プロット。b) 結晶5の $\chi_{mol} - T$ プロット。赤色と青色の実線は、理論的なフィッティング結果。

(c) 点接触電流イメージング原子間力顕微鏡 (PCI-AFM) を用いた単一分子ナノワイヤの伝導性評価

低次元電子構造に由来した多彩な電子状態が実現可能な分子性導体は、電子材料への展開の観点から興味深い研究対象である。分子性導体を基盤とした薄膜構造やナノ構造の作製は、次世代ナノデバイス構築のキーテクノロジーの一つである。これまでに、ウェット法の適用が可能な両親媒性マクロサイクリック TTF 分子(7)の設計から、分子集合体ナノワイヤやナノドット構造などの低次元ナノ構造の作製について報告している (図9)。特に、(7) ( $F_4$ -TCNQ)<sub>2</sub> 電荷移動錯体は、マイカ基板上で  $2 \times 50 \times 1000 \text{ nm}^3$  サイズの半導体ナノワイヤを形成する。これまでに、分子集合体ナノワイヤの伝導性の評価は、500 $\mu\text{m}$  ギャップの電極構造に Langmuir-Blodgett (LB) 法を用いて、20~40層のLB膜を累積する事で、バルク状態での測定を行ってきた。しかしながら、このようなバルク測定では、ナノワイヤ間の電子移動に支配された伝導挙動が観測され、真の意味でナノワイヤの伝導性を評価した事にはならない。そこで、単一ナノワイヤの伝導性の評価を、点接触電流イメージング原子間力顕微鏡 (PCI-AFM) を用いる事で評価した。

これまでに、AFM 探針を電極としナノ構造の伝導性を測定する事が可能な導電性 AFM (CAFM) に関する研究例が多数報告されている。CAFM の測定では、探針を常時ナノ構造と接触させながら電気物性の測定を行うため、機械的

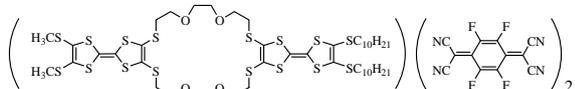


図9. 分子集合体ナノワイヤを形成する(7) ( $F_4$ -TCNQ)<sub>2</sub> 電荷移動錯体の分子構造。

な強度の弱い有機分子集合体の測定においては、ナノ構造の破壊などの観点から不向きである。そこで、ナノ構造の形状をダイナミックモードで測定し、各点の電流イメージを点接触で測定可能な PCI-AFM の手法を用い、単一ナノワイヤの伝導性の測定を試みた。

マイカ基板上にナノワイヤ構造を累積し、金電極を抵抗加熱法で蒸着する事で、金電極-ナノワイヤ接合構造を作製し、PCI-AFM を用いて各点における電流 ( $I$ ) - 電圧 ( $V$ ) 特性を測定した。電流イメージ像では、金電極に近い部位で大きな電流が観測され、ナノワイヤの各点における電流-電圧特性の同時測定に成功した (図10)。以上の結果から、単一ナノワイヤの伝導度は  $\sim 10^{-2} \text{ Scm}^{-1}$  となり、バルク測定と比べて2~3桁ほど良好な伝導性が確認できた。ナノワイヤ間の接合に由来する伝導成分が除かれた為に、単一ナノワイヤが有する伝導特性が正確に測定できた結果である。ナノスケールでの伝導性の測定手法は、分子エレクトロニクス構築の鍵を握る重要な手法である。

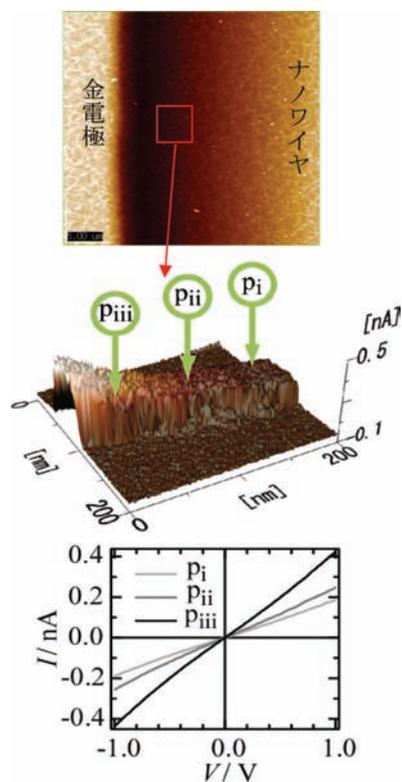


図10. PCI-AFM を用いた単一ナノワイヤの伝導性評価。点 i, ii と iii における  $I - V$  特性を下図に示す。

(e) リング状巨大 Polyoxometalate (POM) クラスターの内部空間安定化及び機能化

直径4nmにも達する巨大リング状POMクラスターは、リング内部に巨大空間を有している。そのため、古くから多孔性材料として注目されてきたが、リング構造の極度の不安定性 (内部及び外部空間に取り込まれている水分子を取り除くと骨格構造が崩壊) のため、多孔性機能に関する研究例はほとんど無い。そこで、巨大リング構造を化学的に安定化する事で、巨大POMクラスターの次世代多孔性材

料としての可能性について検討した。リング構造の安定化は、リング状 POM ( $\text{Na}_{14}[\text{Mo}_{154}\text{O}_{462}\text{H}_{14}(\text{H}_2\text{O})_{70}] \cdot 400\text{H}_2\text{O}$ ) を両親媒性分子である dimethyldioctadecylammonium ( $\text{DODA}^+$ ) カチオンで被覆することにより試みた。その結果、リング内部空間に存在する水分子を完全に取り除いても安定な複合体の合成に世界で初めて成功し、多孔性機能 (ガス・蒸気吸着特性、水中固体酸触媒特性) に関する興味深い知見を得ることができた (図11)。

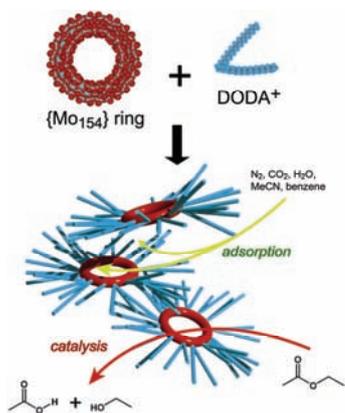


図11. リング状 POM と  $\text{DODA}^+$  の複合体形成による安定化と機能化。

(f) 柔軟性金属錯体を用いた新規多孔性材料の開発

金属イオンと有機架橋配位子を自己集積させることによって得られる金属錯体は、構造の多様性・設計性・柔軟性に富んだ高結晶性の物質である。また、無機部品の金属イオンと有機部品の配位子が共存しているため、それぞれの特性を兼ね備えることが可能となる。そのため、様々な機能性物質 (磁性、誘電性、光学特性、多孔性) の研究対象として注目されてきた。特に、均一なマイクロ孔を有する多孔性金属錯体はここ20年の間に急速に発展した分野であり、ゼオライト・活性炭に続く第3の多孔性材料として精力的に研究されている。本研究では、金属錯体の柔軟性に着目し、従来の多孔性材料では実現困難な機能を有する多孔性金属錯体の開発を試みた。

$[\text{Cu}(\text{PF}_6)_2(4\text{-phpy})_4]$  (4- $\text{phpy}$  = 4-phenylpyridine) の組成で表される擬ウエルナー型金属錯体 **8** は、共存するゲスト分子の種類に応じて多様な集積構造体を形成した (図12)。EtOH/hexane から再結晶化させると、ゲスト分子を全く含まない単核錯体  $\alpha$  体 ( $\alpha\text{-}[\text{Cu}(\text{PF}_6)_2(4\text{-phpy})_4]$  ( $\alpha\text{-8}$ ) が得られた。 $\alpha\text{-8}$  において、 $\text{PF}_6^-$  アニオンは銅イオンのアキシヤルサイトに弱く配位している。一方で、 $\text{CH}_2\text{Cl}_2/\text{hexane}$  から再結晶化させると、 $\text{PF}_6^-$  アニオンが銅イオンを連結した1次元錯体  $\beta$  体 ( $\beta\text{-}[\text{Cu}(\text{PF}_6)_2(4\text{-phpy})_4] \cdot \text{PF}_6 \cdot 4\text{CH}_2\text{Cl}_2$ ) ( $\beta\text{-8}$ ) が形成した。更に、acetone/hexane または Clben/hexane (Clben = chlorobenzene) から再結晶化させると、それぞれ acetone ゲストが銅のアキシヤル位に配位した単核錯体  $\gamma$  体 ( $\gamma\text{-}[\text{Cu}(4\text{-phpy})_4(\text{acetone})_2] \cdot 2\text{PF}_6$ ) ( $\gamma\text{-8}$ ) および  $\text{PF}_6^-$  アニオンによって連結された三核錯体  $\delta$  体 ( $\delta\text{-}[\text{Cu}_3(\text{PF}_6)_4(4\text{-phpy})_{12}] \cdot 2\text{PF}_6 \cdot 7\text{Clben}$ ) ( $\delta\text{-8}$ ) が選択的に得られた。このよ

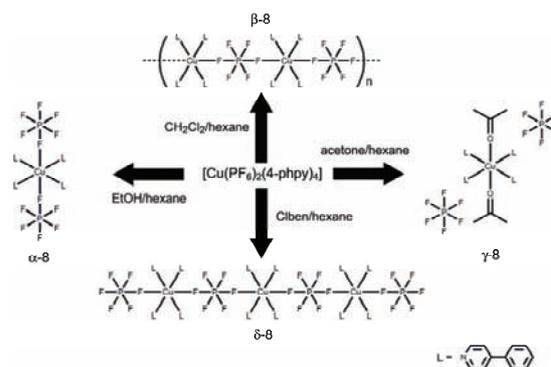


図12. 擬ウエルナー型金属錯体  $[\text{Cu}(\text{PF}_6)_2(4\text{-phpy})_4]$  (**8**) のゲスト分子に依存した多様な集積構造体形成。

うな構造多様性は柔軟な Cu- $\text{PF}_6$  弱配位結合に由来して発見していると考えられる。興味深いことに、1次元錯体  $\beta$  体は骨格内のゲスト分子 ( $\text{CH}_2\text{Cl}_2$ ) を完全に取り除いてもその構造を保持することが可能であり、全く同一の組成を持ちながら異なる集積構造をとりえる柔軟性金属錯体を得ることができた。そこで、 $\alpha$  体と  $\beta$  体の  $\text{CO}_2$  吸着特性を調べたところ、非多孔体である  $\alpha$  体と比較して多孔体である  $\beta$  体は大量の  $\text{CO}_2$  を吸着することが明らかとなった (図13)。

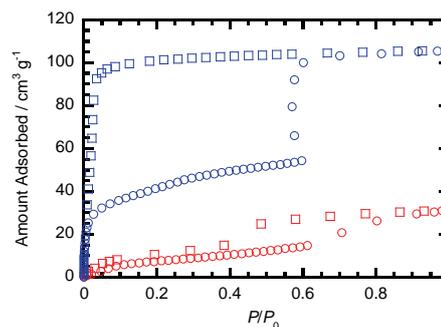


図13.  $\alpha$  体 (赤) 及び  $\beta$  体 (青) の195Kにおける  $\text{CO}_2$  吸着特性 (O: 吸着, □: 脱着)。

### 3. 今後の研究の展望

我々は、機能性の分子集合体 (分子性導体・磁性体) を用いて、分子デバイス構築に不可欠な材料創製を行っている。単一分子エレクトロニクス研究が隆盛を極めている状況で、これらの研究は特徴的であると言える。しかし、これらの二つのアプローチの区別は、本質的でないと考えられ、むしろユニット間のフロンティア軌道の重なりからの設計から、ナノスケールでの機能性の発現を理解するべきである。一方、分子集合体を積極的に利用することで様々な利点が生まれる。最大の利点は、単一分子では達成できない分子間の相互作用や、多数の分子による協同現象に基づく機能を利用できる点である。さらに分子集合体の柔らかさ、すなわち共有結合で機能ユニットが繋がっていないために、ある程度分子間の相互作用を時空間的に制御できることを利用したデバイス動作の道も拓けてくる。これらの研究を進捗することで、分子エレクトロニクス科学の確立に寄与したいと考えている。

## 4. 資料

### 4.1 学術論文等

- 1) T. Akutagawa, R. Jin, R. Tsunashima, S. Noro, L. Cronin, T. Nakamura : “Nanoscale Assemblies of Gigantic Molecular  $\{Mo_{154}\}$ -Rings: (Dimethyldioctadecylammonium)<sub>20</sub>  $[Mo_{154}O_{462}H_8(H_2O)_{70}]$ ”, *Langmuir*, 24 : 231-238 (2008)
- 2) T. Akutagawa, D. Endo, F. Kudo, S. Noro, S. Takeda, L. Cronin, T. Nakamura : “A Solid-State Supramolecular Rotator Assembled from a Cs-crown Ether Polyoxometalate Hybrid:  $(Cs^+)_3[18]crown-6)_3(H^+)_2[PMo_{12}O_{40}]$ ”, *Cryst. Growth & Des.*, 8 : 812-816 (2008)
- 3) T. Akutagawa, D. Sato, H. Koshinaka, M. Aonuma, S. Noro, S. Takeda, T. Nakamura : “Solid-State Molecular Rotators of Anilinium and Adamantylammonium in  $[Ni(dmit)_2]^-$  Salts with Diverse Magnetic Properties”, *Inorg. Chem.*, 47 : 5951-5962 (2008)
- 4) S. Noro, N. Yanai, S. Kitagawa, T. Akutagawa, T. Nakamura : “Binding Properties of Solvatochromic Indicators  $[Cu(X)(acac)(tmen)]$  (X =  $PF_6^-$  and  $BF_4^-$ ; acac<sup>-</sup> = Acetylacetonate, tmen = *N,N,N',N'*-Tetramethylethylenediamine) in Solution and the Solid State”, *Inorg. Chem.*, 47 : 7360-7365 (2008)
- 5) S. Noro, T. Takenobu, Y. Iwasa, H.-C. Chang, S. Kitagawa, T. Akutagawa, T. Nakamura : “Ambipolar, Single-Component, Metal-Organic Thin-Film Transistors with High and Balanced, Hole and Electron Mobilities”, *Adv. Mater.*, 20 : 3399-3403 (2008)
- 6) R. Tsunashima, S. Noro, T. Akutagawa, T. Nakamura, H. Kawakami, K. Toma, “Fullerene Nanowires: Self-Assembled Structures of a Low-Molecular-Weight Organogelator Fabricated by the Langmuir-Blodgett Method”, *Chem. Eur. J.*, 14 : 8169-8176 (2008)
- 7) R. Tsunashima, Y. Noda, Y. Tawaki, S. Noro, T. Akutagawa, T. Nakamura, T. Matsumoto, T. Kawai, “Electrical Resistivity of Individual Molecular-Assembly Nanowires of Amphiphilic bis-Tetrathiafulvalene Macrocycle /2,3,5,6-Tetrafluoro-7,7,8,8-tetracyano-p-quinodimethane Charge Transfer Complex Characterized by PCI-AFM”, *Appl. Phys. Lett.*, 93 : 173102 (2008)
- 8) T. Akutagawa, T. Nakamura, “Supramolecular approach for solid state Brownian rotators”, *Dalton Trans.*, 6335-6345 (2008)
- 9) Z.-R. Qu, Q. Ye, H. Zhao, D.-W. Fu, H.-Y. Ye, R.-G. Xiong, T. Akutagawa, T. Nakamura, “Homochiral Laminar Europium Metal-Organic Framework with Unprecedented Giant Dielectric Anisotropy”, *Chem. Eur. J.*, 14 : 3452-3456 (2008)
- 10) G.-X. Wang, G.-F. Han, Q. Ye, R.-G. Xiong, T. Akutagawa, T. Nakamura, P. W. H. Chan, S. D. Huang, “Di-

electric anisotropy of a homochiral rare-earth metal complex”, *Dalton Trans.*, 2527-2530 (2008)

### 4.4 著書

- 1) 芥川智行、中村貴義 : 「遷移金属錯体の固体物性化学」、錯体化学会選書3、三共出版 : 375-390 (2008)
- 2) 芥川智行 : 分子エレクトロニクスの話 : 齊藤軍治 編 著 5章 p. 90-102 ケイ・ディー・ネオブック 化学同人(2008)

### 4.7 講演

#### a. 招待講演

- 1) 野呂真一郎 : 「無機-有機複合材料を用いたホスト材料の創製」、第2回「機能性材料」分科会、京都大学(京都) (2008-04).
- 2) T. Nakamura : “Artificial Molecular Rotators in Single Crystals toward the Application for Ferroelectrics”, 10th International Symposium on Biotechnology, Metal Complexes and Catalysis, Zhengzhou, China (2008-05).
- 3) T. Nakamura : “Molecular Rotator Structures in  $Ni(dmit)_2$  Crystals for Ferroelectrics”, The 21st IUCr Satellite Meeting (Molecular Crystals Exhibiting Exotic Functions), Osaka (2008-08).
- 4) T. Nakamura, T. Akutagawa : “Ferroelectric Properties of  $Ni(dmit)_2$  Crystals with Supramolecular Rotator Structures”, 18th International Symposium on Fine Chemistry and Functional Polymers (FCFP-XVIII) & 4th IUPAC International Symposium on Novel Materials and their Synthesis (NMS-IV), Zhenjiang, China (2008-10).
- 5) 芥川智行 : 「超分子ローター構造から有機強誘電体への展開」、有機エレクトロニクスに関する北大一名大合同研究会、北海道大学(札幌) (2008-10).
- 6) 芥川智行 : 「分子性固体を用いたブラウンアンデバイスの作製」、九州大学 G-COE 「物質・エネルギー変換ユニット」ワークショップ、博多 (2008-11).
- 7) 芥川智行 : 「分子集合体の秩序変数と分子数から物性化学を考える」、有機物性科学の将来展望を語る会、つくば (2008-12).
- 8) 芥川智行 : 「結晶内の分子運動を利用した分子デバイスへのアプローチ」、電気学会 有機薄膜および複合膜のナノ界面物性とデバイス・センサ応用調査専門委員会、北海道大学(札幌) (2009-03).

#### b. 一般講演

##### i) 学会

- 1) 峯廻洋美、内藤俊雄、稲辺保、芥川智行、中村貴義 : 「ポリカルボン酸の水素結合ネットワークを利用した極性結晶構造の作製」、日本化学会北海道支部2008夏季研究発表会、北見 (2008-07)
- 2) 石川学、内藤俊雄、稲辺保、芥川智行、中村貴義 : 「軸配位金属フタロシアニン一次元伝導体の高電場による

- 物性変化」、日本化学会北海道支部2008夏季研究発表会、北見 (2008-07)
- 3) 高橋紗未、石川晴美、小林中、坂井賢一、芥川智行、中村貴義、長嶋雲兵:「励起状態分子内プロトン移動反応を示す亜鉛錯体の構造と発光特性」、日本化学会北海道支部2008夏季研究発表会、北見 (2008-07)
  - 4) 坂井賢一、高橋紗未、石川晴美、小林中、芥川智行、中村貴義、長嶋雲兵:「励起状態分子内プロトン移動反応を示す亜鉛錯体の発光特性と軸配位子効果」、第21回配位化合物の光化学討論会、相模原 (2008-08)
  - 5) T. Nakamura, T. Akutagawa, S. Noro: “Ferroelectric Properties of Molecular Magnetic Crystals Arising from Rotator Structures”, International Conference on Science and Technology of Synthetic Metals (ICSM2008), Porto de Galinhas, Brazil (2008-08)
  - 6) T. Akutagawa, Y. Noda, Y. Tatewaki, T. Nakamura: “Quantum Conducting Behaviour of Gold Nanoparticles-Molecular Nanowires Hybrids”, International Conference on Science and Technology of Synthetic Metals (ICSM2008), Porto de Galinhas, Brazil (2008-08)
  - 7) T. Akutagawa, T. Nakamura: “Design of Crystalline Space for Constructing Ferroelectric Rotators in  $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]$  Salts”, The International Union of Crystallography (IUCr2008), Osaka (2008-08)
  - 8) 坂井賢一、岡田孟矩、高橋紗未、石川晴美、芥川智行、中村貴義、長嶋雲兵:「複合機能化を目指した新規プロトン移動型レーザー色素の開発」、2008年光化学討論会、境 (2008-09)
  - 9) 坂井賢一、高橋紗未、石川晴美、小林中、芥川智行、中村貴義、長嶋雲兵:「配位子内での互変異性化を利用した金属錯体における双安定状態の実現」、第58回錯体化学討論会、金沢 (2008-09)
  - 10) 野呂真一郎、神玲奈、綱島亮、植村一広、喜多英敏、芥川智行、中村貴義:「巨大リング状  $\text{Mo}_{154}$ 核クラスターの内部空間安定化」、第58回錯体化学討論会、金沢 (2008-09)
  - 11) 遠藤大五郎、芥川智行、野呂真一郎、Leroy Cronin、中村貴義:「(Nitroaniline)([18]crown-6)超分子カチオンを用いた  $[\text{PMo}_{12}\text{O}_{40}]^{3-}$  塩の誘電特性」、第58回錯体化学討論会、金沢 (2008-09)
  - 12) 福原克郎、野田祐樹、帯刀陽子、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義、Jan Becher:「有機超薄膜ナノ物性評価」、第61回コロイドおよび界面化学討論会、福岡 (2008-09)
  - 13) 野呂真一郎、芥川智行、中村貴義:「擬ウェルナー型金属錯体のゲスト誘起構造転移及び吸着特性」、第61回コロイドおよび界面化学討論会、福岡 (2008-09)
  - 14) X.-M. Ren, T. Akutagawa, T. Nakamura: “Structural and magnetic investigations for the nonmagnetic doping effects on Spin-Peierls-like transition in a quasi-1D spin system based on bis(maleonitriledithiolate) nickelate monoanion”, International Conference on Molecule-based Magnets (ICMM2008), Florence, Italy (2008-09)
  - 15) T. Akutagawa, T. Nakamura: “ $4_1$  Helical  $\pi$ -stack and magnetic phase transition in  $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]$  salt induced by supramolecular cations”, International Conference on Molecule-based Magnets (ICMM2008), Florence, Italy (2008-09)
  - 16) F. Kudo, T. Akutagawa, D. Endo, S. Noro, L. Cronin, T. Nakamura: “Crystal structures and magnetic properties of gigantic polyoxomolybdate wheels”, International Conference on Molecule-based Magnets (ICMM2008), Florence, Italy (2008-09)
  - 17) M. Aonuma, R. Tsunashima, S. Noro, T. Akutagawa, T. Nakamura: “Crystal structures, electrical conductivities and magnetic properties of (o-, m-, p-fluoroanilinium) (Crown ethers) $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]_3$  salt”, International Conference on Molecule-based Magnets (ICMM2008), Florence, Italy (2008-09)
  - 18) 峯廻洋美、内藤俊雄、稲辺保、芥川智行、中村貴義:「ポリカルボン酸を利用した極性結晶の構築と強誘電体作製への応用」、第2回分子科学討論会、福岡 (2008-09)
  - 19) 遠藤大五郎、芥川智行、野呂真一郎、Leroy Cronin、中村貴義:「o-Phenylenediamineを用いた(crown ether)  $[\text{PMo}_{12}\text{O}_{40}]$ 錯体の結晶構造と誘電率測定」、第2回分子科学討論会、福岡 (2008-09)
  - 20) M. Aonuma, R. Tsunashima, S. Noro, T. Akutagawa, T. Nakamura: “Electrical Conducting Salt of (p-fluoroanilinium) ([18]crown-6) $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]_3$  with Rotator Structure”, 20th Korea Japan Joint Forum (KJF2008), Chitose (2008-10)
  - 21) F. Kudo, H. Imai, D. Endo, S. Noro, T. Akutagawa, L. Cronin, T. Nakamura: “Crystal Structures and Magnetic Properties of  $\{\text{Mo}_{176}\}$  and  $\{\text{Mo}_{57}\}$  Wheels”, 20th Korea Japan Joint Forum (KJF2008), Chitose (2008-10)
  - 22) T. Akutagawa, S. Noro, S. Takeda, T. Nakamura: “Dielectric Responses of Molecular Rotators in  $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]$  Salts”, 20th Korea Japan Joint Forum (KJF2008), Chitose (2008-10)
  - 23) S. Noro, T. Takenobu, Y. Iwasa, T. Akutagawa, T. Nakamura: “Ambipolar Single-Component, Metal-Organic Thin-Film Transistors”, 20th Korea Japan Joint Forum (KJF2008), Chitose (2008-10)
  - 24) S. Noro, T. Akutagawa, T. Nakamura, S. Horike, D. Tanaka, H. Sakamoto, S. Kitagawa: “Structures and Guest-Recognition Properties of One-Dimensional Cu(II) Coordination Polymer”, 1st International Conference on Metal Organic Frameworks and Open Framework Compounds (MOF2008), Augsburg, Germany (2008-10)
  - 25) S. Noro, T. Akutagawa, T. Nakamura, H.-C. Chang: “Structures and Electronic Properties of Thin Films Con-

structed from Metal Complexes with Redox-Active o-Quinone Ligands”, 8th International Conference on Nano-Molecular Electronics (ICNME2008), Kobe (2008-12)

- 26) T. Endo, T. Akutagawa, T. Kajiwara, K. Kakiuchi, Y. Tatewaki, S. Noro, T. Nakamura : “Langmuir-Blodgett Films of Charge-Transfer Complexes: Ethylenedithio-Substituted Amphiphilic Bis-TTF Macrocycle and F<sub>4</sub>TCNQ or Br<sub>2</sub>TCNQ”, 8th International Conference on Nano-Molecular Electronics (ICNME2008), Kobe (2008-12)
- 27) 青沼昌樹、綱島亮、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義 : 「超分子カチオン(p-fluoroanilinium)([18]crown-6)を用いた[Ni(dmit)<sub>2</sub>]の電気伝導性錯体の構造と物性」、日本化学会北海道支部2009冬季研究発表会、札幌 (2009-02)
- 28) 工藤史人、今井宏之、芥川智行、遠藤大五郎、野呂真一郎、Lee Cronin、中村貴義 : 「超分子カチオン(p-fluoroanilinium)([18]crown-6)を用いた[Ni(dmit)<sub>2</sub>]の電気伝導性錯体の構造と物性」日本化学会北海道支部2009冬季研究発表会、札幌 (2009-02)
- 29) S. Noro, D. Tanaka, H. Sakamoto, S. Shimomura, S. Kitagawa, T. Akutagawa, T. Nakamura : “Guest-Recognition Properties of Flexible One-Dimensional Cu(II) Coordination Polymer”, Japan-Russia Joint Symposium on Coordination Chemistry, Kyoto (2009-02)
- 30) Y. Noda, Y. Tatewaki, T. Akutagawa, T. Nakamura : “Charge Transport Behavior of Hybrid Structures between Gold Nanoparticles and TTF Derivatives”, 5th International Conference on Molecular Electronics and Bioelectronics, Miyazaki (2009-03)
- 31) 野呂真一郎、芥川智行、中村貴義 : 「双安定構造を有する擬ウェルナー型金属錯体の合成及び吸着特性」、日本化学会第89春季年会、船橋 (2009-03)
- 32) 福原克郎、野田祐樹、帯刀陽子、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義 : 「マクロサイクリック TTF-金ナノ粒子複合 LB 膜の電気伝導性に及ぼす金ナノ粒子のサイズ効果」、日本化学会第89春季年会、船橋 (2009-03)

#### 4.9 共同研究

##### b. 所内共同研究 (研究担当者、機関名、研究題目、研究期間、研究内容)

- 1) 中村貴義 (電子科学研究所 国際共同研究) : 「ホモキラル錯体の誘電-磁気マルチフェロイック特性に関する研究」、2008年度、キラルポーラス錯体の合成に関する研究で実績のある東南大学を海外における共同研究機関とすることで、電子科学研究所の研究者との研究交流の場を提供し、キラルポーラス錯体の誘電-磁気物性評価および材料化に関する国際共同研究拠点づくりを目指す。

#### 4.10 予算獲得状況

##### a. 科学研究費補助金 (研究代表者、分類名、研究課題、期間)

- 1) 中村貴義、基盤研究A、固相人工分子モーターの構築 (2007~2010年度)
- 2) 野呂真一郎、若手研究B、金属錯体半導体を用いたアンバイポーラーTFTデバイスの開発 (2007~2008年度)
- 3) 芥川智行、基盤研究B、ナノワイヤナノ粒子連結系の量子伝導制御 (2008~2010年度)

##### e. COE関係 (研究担当者、機関名、研究題目、研究期間、研究内容)

- 1) 野呂真一郎、グローバルCOEプログラム「統合フィールド環境科学の教育研究拠点形成」若手教員研究支援、金属錯体を用いた二酸化炭素分離吸着材料の開発、2008年度、分極ユニットを有する柔軟性金属錯体を利用したCO<sub>2</sub>の高効率分離吸着材料を開発する。

##### f. その他 (研究担当者、機関名、研究題目、研究期間、総経費、研究内容)

- 1) 野呂真一郎 (公益信託ENEOS水素基金) : 「柔軟性金属錯体を用いた高効率CO<sub>2</sub>分離材料の開発」、2007~2008年度、8500千円、構造柔軟性を持つ銅金属錯体を利用した高効率CO<sub>2</sub>分離材料を開発する。
- 2) 野呂真一郎 (北海道大学充填配分経費 若手研究者自立支援) : 「低次元金属錯体から構築される柔軟性空間の機能性に関する研究」、2008年度、1000千円、低次元金属錯体の柔軟性空間を利用した新機能性分離材料開発に関する基礎研究を行う。
- 3) 芥川智行 (財団法人村田学術振興財団) : 「超分子ローター構造を用いた熱伝材料の開発」、2008年度、1200千円、結晶中の分子回転を利用した熱伝導材料を開発する。
- 4) 芥川智行 (分子科学研究奨励森野基金) : 「分子性結晶における動的内部構造の設計と機能化に関する研究」、2008年度、1000千円、結晶中の分子運動に着目した物性開拓に関する研究。

#### 4.11 受賞

- 1) 野呂真一郎 : 第3回PCCP Prize “Rational synthesis and characterization of porous Cu(II) coordination polymers” 2009年3月
- 2) 芥川智行 : 2008年度 分子科学研究森野基金奨励賞、「分子性結晶における動的内部構造の設計と機能化に関する研究」2008年8月

#### 4.12 社会教育活動

##### g. 北大での担当授業 (対象、講義名、担当者、期間)

- 1) 環境科学院、電子材料科学特論、中村貴義、2008年10月1日~2009年3月31日
- 2) 環境科学院、環境物質科学研究、中村貴義、2008年4月1日~2009年3月31日

- 3) 環境科学院、環境物質科学実習、中村貴義、2008年4月1日～2009年3月31日
- 4) 環境科学院、環境物質科学論文購読Ⅰ、中村貴義、2008年4月1日～2009年3月31日
- 5) 環境科学院、環境物質科学論文購読Ⅱ、中村貴義、2008年4月1日～2009年3月31日
- 6) 環境科学院、環境物質科学特別研究、中村貴義、2008年4月1日～2009年3月31日
- 7) 全学教育科目、「基礎科学Ⅰ」、中村貴義、2008年度4月1日～2008年9月31日
- 8) 全学教育科目、「環境と人間」光・バイオ・分子で拓くナノテクノロジー、芥川智行、2008年度
- 9) 全学教育科目、「基礎科学Ⅰ」、芥川智行、2008年度4月1日～2008年9月31日
- 10) 環境科学院、電子材料科学特論、芥川智行、2008年10月1日～2009年3月31日
- 11) 環境科学院、環境物質科学研究、芥川智行、2008年4月1日～2009年3月31日
- 12) 環境科学院、環境物質科学実習、芥川智行、2008年4月1日～2009年3月31日
- 13) 環境科学院、環境物質科学論文購読Ⅰ、芥川智行、2008年4月1日～2009年3月31日
- 14) 環境科学院、環境物質科学論文購読Ⅱ、芥川智行、2008年4月1日～2009年3月31日
- 15) 環境科学院、環境物質科学特別研究、芥川智行、2008年4月1日～2009年3月31日
- 16) 総長主催、X線取扱者の為の教育訓練、芥川智行、2008年4月23日
- 17) 環境科学院、環境物質科学研究、野呂真一郎、2008年4月1日～2009年3月31日
- 18) 環境科学院、環境物質科学実習、野呂真一郎、2008年4月1日～2009年3月31日
- 19) 環境科学院、環境物質科学論文購読Ⅰ、野呂真一郎、2008年4月1日～2009年3月31日
- 20) 環境科学院、環境物質科学論文購読Ⅱ、野呂真一郎、2008年4月1日～2009年3月31日
- 21) 環境科学院、環境物質科学特別研究、野呂真一郎、2008年4月1日～2009年3月31日

**i. ポスドク・客員研究員など**

・ポスドク (1名)

- 1) Qiong Ye (日本学術振興会外国人特別研究員)

**j. 修士学位及び博士学位の取得状況**

・修士課程 (2名)

青沼昌樹、工藤史人

・博士後期課程 (3名)

遠藤大五郎、野田祐樹、遠藤格

・修士論文

- 1) 青沼昌樹：超分子ローター構造を導入した電気伝導性  $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]$  錯体の構築

- 2) 工藤史人：ナノポーラス構造を持つリング状 poly-oxomolybdate 結晶の物性

# ナノ光高機能材料研究分野

教授 末宗幾夫 (東工大、工博、1993.4~)  
 准教授 熊野英和 (北大院、工博、1997.4~)  
 助教 笹倉弘理 (北大院、工博、2007.11~)  
 博士研究員

定 昌史、井筒康洋、林雄二郎、許 載勳  
 院 生

佐藤 充、佐藤弘康、高田 真、伊藤早紀、江國晋吾、  
 倉光周平、宮村壮太、加藤大望

## 1. 研究目標

本研究分野では、(I)量子ドットなどナノ構造作製による電子状態ならびに発光波長の制御、(II)ナノテク技術を用いた単一量子ドット状態の作製と評価、(III)超伝導効果による光子生成過程の制御、(IV)量子ドットと組み合わせる光子生成過程を制御する光高機能材料の実現と、これを用いた量子情報処理への応用を目指している。

## 2. 研究成果

(a) 量子ドットを用いた光子偏光と電子スピン間の状態変換

光子を使った量子情報通信系と、電子スピンを使った量子情報処理系をつなぐには量子情報を変換する必要がある。その重要なステップの一つに、光子の偏光状態を電子スピンの状態に変換し、さらに保存した電子スピンを光子の偏光状態に変換する制御技術の確立が必要である。これまでに外部磁場を印加した状態ではそのような変換が可能であることは報告されているが、磁場を印加すると励起子スピン状態の縮退が解け、励起子スピンの重ね合わせ状態が維持されなくなる課題があった。そこで、磁場を印加しない状態での光子と電子スピン変換の検討を行った。

通常の量子ドットでは磁場が印加されていなくても励起子スピン状態のエネルギー分裂が生じてしまうが、単一の量子ドットにおける正の荷電励起子( $X^+$ )を1光学フォノンだけ上のエネルギーで準共鳴励起することにより、図1に示す発光線幅 $20\mu\text{eV}$ の非常に鋭い単一の $X^+$ 発光線を観測

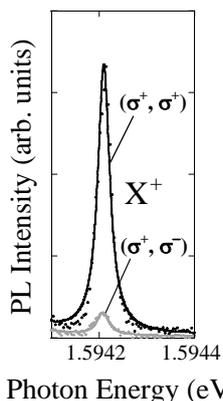


図1. 荷電励起子( $X^+$ )を右円偏光( $\sigma^+$ )励起した際の、 $\sigma^+$ 発光( $\sigma^+, \sigma^+$ )と左円偏光( $\sigma^-$ )発光スペクトル( $\sigma^+, \sigma^-$ )。  $X^+$  発光線より1光学フォノンだけ上のエネルギーを励起することにより、均一広がりの線幅 $20\mu\text{eV}$ と狭くかつ高い確率で励起偏光を保存した発光が得られた。このような高い偏光保存率を持つ均一広がりの発光を単一の量子ドットから観測したのは、今回が初めてである。

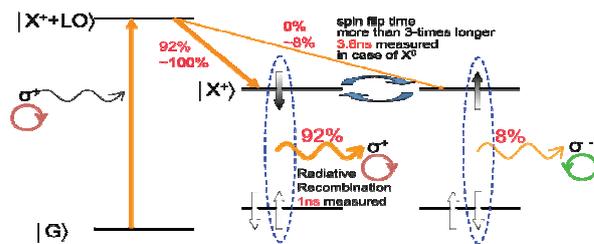


図2. 正の荷電励起子 $X^+$ より1LOフォノンエネルギーだけ上の状態を右円偏光子で仮想励起したときの、励起子状態電子スピンの反転と、発生する光子の円偏光状態を説明する模式図。

した。右円偏光励起した場合、対応する電子スピンを持つ励起子の励起を介して同じ右円偏光を持つ光子が強く発光しているのがわかる。一方反対の左円偏光を持つ光子の生成は大幅に抑えられている。このように正の荷電励起子の1LOフォノン上のエネルギーを準共鳴励起することで、円偏光 $\rightarrow$ 電子スピン $\rightarrow$ 円偏光の総合変換効率92% (円偏光度85%) を達成した。これは磁場印加無しの状態での世界最高の変換効率である。この結果を模式的にまとめると図2のようになる。右円偏光の光子が正の荷電励起子( $X^+$ )より1LOフォノン高いエネルギーを仮想的に励起すると、LOフォノンを放出して $X^+$ 状態へ変換される。その際スピン反転しないで変換される確率は確定できないが、レート方程式解析によれば92-100%と高い。この励起子状態でのスピン反転に関連して、励起子分子-励起子時系列発光に関する偏光相関測定を行い、これから中性励起子ではスピン反転時間が3.6nsと、発光寿命の1nsより3.6倍長いことを確認した。さらに今議論している正の荷電励起子におけるスピン反転時間ももっと長く、発光寿命の10倍、10nsを超えることを確認した。これにより励起子状態でのスピンフリップ確率が低く抑えられ、もとの円偏光状態を保つ光子へ高い効率で再変換されると考えられる。

(b) InAs 量子ドットの発光プロセスに対する超伝導効果

我々はクーバー対の関与した発光によって量子もつれ合い光子対を on-demand に発生させることを目指しているが、そのためには量子ドットにクーバー対をしみ込ませ、発生する光子対の個数状態制御に関する研究を進める必要がある。その点、開放型 InAs 量子ドットは超伝導電極と直接接合させることができること、光ファイバー通信の $1.55\mu\text{m}$ 波長帯での発光が比較的容易に得られることなどの特徴を持つが、表面再結合のためにその発光効率が低い課題がある。この点に関して、ドット形成前の半導体表面を原子レベルで平坦化することにより、開放型 InAs 量子ドットの発光が顕著に増大することを見いだした。さらに、この InAs 量子ドットに Nb 電極を形成することにより、超伝導臨界温度( $\sim 8\text{K}$ )以下の低温領域で、温度の低下に伴う発光増強を観測した。図3はその測定サンプルの模式図とサンプル表面の図面であり、Nb 電極に接している一部の InAs 量子ドットにクーバー対が染み込み、その発光に超伝導効果とを

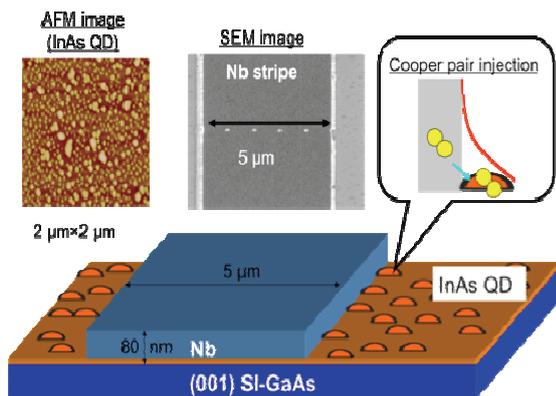


図3. 開放型 InAs 量子ドットに Nb を直接コンタクトさせ、Nb 電極から InAs 量子ドットへクーパ対がしみ込む効果をフォトルミネッセンスで観測する模式図。

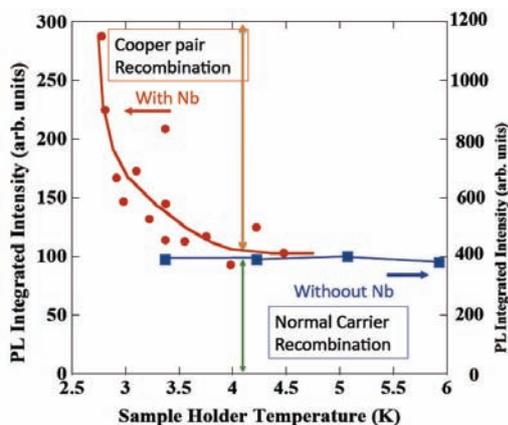


図4. Nb に接していない InAs 量子ドット発光強度の温度依存性 (■) と Nb に接している InAs 量子ドットの発光強度の温度依存性 (●)。光学評価を行うマイクロ PL 用クライオスタットは、外部からの輻射の影響を受け、Sample Holder 温度の ~4.1K が Nb 臨界温度の ~8K に対応する。

えることを期待した。図4はその測定結果であり、幅 5 $\mu$ m の Nb 電極の中央にビーム径約 3 $\mu$ m に収束させたレーザー光でサンプルを励起し、Nb 電極近傍の InAs 量子ドットの発光を観測した。Nb の影響を受けない領域で観測したドットの発光は、この狭い温度範囲では特段温度依存性を示さない。一方で、Nb 電極近傍では、Nb 臨界温度以下で発光増大を示した。これは Nb に接している InAs 量子ドットの割合が少ないことを考えれば、予想外の効果であるが、InGaAs-InP LED で観測された発光増強が、量子ドットでも再現されることを示唆している。

(c) GaAsSb系 Type-II 量子ドットと GaAsSb/GaAs 界面制御

GaAsSb/GaAs 系ヘテロ構造は正孔が GaAsSb に局在し、電子が GaAs に局在する Type-II のヘテロ構造となる。電子クーパ対を半導体量子ドットで正孔対と再結合させる場合、クーパ対が量子ドットでエネルギー緩和しないように、伝導帯での量子閉じこめがない Type-II 構造が最適である。これを使って、正孔を GaAsSb 量子ドット領域に閉じ込め、GaAs 伝導帯から電子クーパ対を GaAsSb 領域にし

み込ませて、クーパ対の関与した発光プロセスを実現しようと検討を進めている。その際に伝導帯バンド不連続の制御がポイントとなる。今年度 GaAsSb/GaAs 系ヘテロ構造を用い、正孔を量子閉じ込めしながら、電子の分布を制御して実効的に Type-I と Type-II を切り替えることに成功した。図5に示すように Sb 組成が 8.1% (サンプル A) と 3.5% (サンプル B) の GaAsSb/GaAs 単一量子井戸について、発光ピークの光励起強度依存性を測定すると、顕著な変化を示す。サンプル A では励起強度の 1/3 乗に比例するブルーシフトを示し、典型的な Type-II の特性を示す。これは電子が GaAsSb 外部の GaAs に局在していることを示している。一方サンプル B ではピークシフトは大きく減少しており、これと同様の特性は通常 Type-I のヘテロ構造で観測される。この結果は、電子の波動関数が相当に GaAsSb 領域に浸み込んでいることを示しており、Sb 組成の制御で、伝導帯での電子分布を制御できることを示している。

Sb 組成が 8.1% と 3.5% の場合における GaAs/GaAsSb 境界での伝導帯エネルギー障壁はそれぞれ 38meV と 16meV と求まっており、それぞれの場合の伝導帯における電子の波動関数からも泊まる空間的な存在確率を計算した結果を

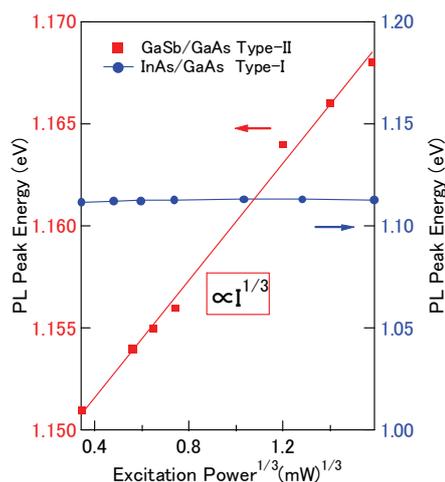


図5. Sb 組成が 8.1% と 3.5% の 2 種類の GaAsSb/GaAs ヘテロ構造と、それぞれの発光ピークの光励起強度によるエネルギーシフト。

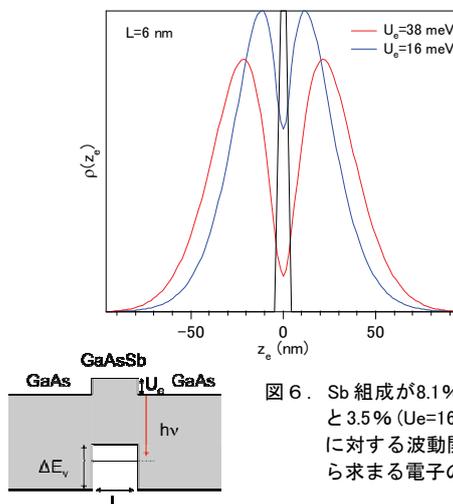


図6. Sb 組成が 8.1% ( $U_e=38\text{meV}$ ) と 3.5% ( $U_e=16\text{meV}$ ) の場合に対する波動関数の計算から求まる電子の存在確率。

図6に示す。エネルギー障壁としては小さな差と思われるが、中央のGaAsSb層における電子の存在確率は大きく異なることがわかる。これは図5の測定で求めたType-I, Type-II的な発光ピークシフトと良く対応している。このとき、正孔はいずれの場合もGaAsSb層に閉じ込められた状態のままであり、正孔を価電子帯で量子閉じ込めたまま、発光層であるGaAsSb層へ電子クーパ対を侵入させることがSb組成の制御で可能であることが示された。

### 3. 今後の研究の展望

今年度の研究により、単一の半導体量子ドットを用いた光子偏光と電子スピン間の量子状態変換が高い効率で実現できることが明らかとなり、光子を使った量子情報伝送とスピンを使った量子情報処理系をつなぐ一つのステップは確立できた。近年量子情報伝送自体は単一光子にとどまらず、量子もつれ合い光子対を用いた研究が活発化しているが、まだ必要なときに光子対を発生できるオンデマンドのもつれ合い光子対光源は実現できていない。我々は電子が(クーパ)ペア状態を形成したままで二つの正孔と再結合するプロセスを実証して、これによってそのような光源を実現することを目指している。前年度、電子クーパ対を注入して発光させる超伝導LEDによって、超伝導臨界温度以下で発光増強を観測し、そのような新規な発光プロセスの可能性を示した。量子もつれ合い光子対をオンデマンドに発生させるには、正孔対を量子ドットの単一量子準位に閉じ込め、パウリの排他律で一度に発生する光子対の数を一組に制御する必要がある。今年度、量子ドットにおいて電子クーパ対に関する発光を確認することができた。さらに量子もつれ合い光子対をオンデマンドに発生させる舞台として最適と考えられるType-IIヘテロ構造において、発光プロセスを最適化するために重要な電子波動関数制御の可能性を示すことができた。

今後は、クーパ対に関与した発光プロセスを理論・実験両面から明確化し、量子もつれ合い光子対を発生する新規発光プロセスの確率と、超伝導LEDへ量子ドットを導入してオンデマンド動作を実現することを目指していく。このためには、上記で議論した光子対の発生プロセスに加えて、発生した光子対を効率よく外部に取り出す新機軸も必要であり、現在並行して検討を進めている。

## 4. 資料

### 4.1 学術論文等

- 1) Y. Hayashi, K. Tanaka, T. Akazaki, M. Jo, H. Kumano, and I. Suemune: "Superconductor-based Light Emitting Diode: Demonstration of Role of Cooper Pairs in Radiative Recombination Processes" *Appl. Phys. Express* **1** (2008) 011701-1~3.
- 2) S. Adachi, H. Sasakura, N. Yatsu, R. Kaji, K. Yamada, S.

- Muto, H. Kumano, I. Suemune: "Fourier Spectroscopy of Decoherence of Exciton and Their Complexes in Single InAlAs Quantum Dots" *phys. stat. sol. (c)*, **5** (2008) pp. 351-355.
- 3) I. Suemune, T. Akazaki, K. Tanaka, M. Jo, K. Uesugi, M. Endo, H. Kumano, and E. Hanamura: "Role of Cooper Pairs for the Generation of Entangled Photon Pairs from Single Quantum Dots" *Microelectronics Journal*, **39** (2008) pp. 344-347.
- 4) H. Kobayashi, H. Kumano, M. Endo, M. Jo, I. Suemune, H. Sasakura, S. Adachi, and S. Muto: "Highly Circular-polarized Single Photon Generation from a Single Quantum Dot at Zero Magnetic Field" *Microelectronics Journal*, **39** (2008) pp. 327-330.
- 5) H. Kumano, H. Kobayashi, Y. Hayashi, M. Jo, I. Suemune, H. Sasakura, S. Adachi, and S. Muto: "Single Photon Emission with High Degree of Circular Polarization from a Single Quantum Dot Under Zero Magnetic Field" *Physica E*, **40** (2008) pp. 1824-1827.
- 6) J. Ibanez, R. Cusco, E. Alarcon-Llado, L. Artus, A. Patane, D. Fowler, L. Eaves, K. Uesugi, and I. Suemune: "Electron Effective Mass and Mobility in Heavily Doped n-Ga(AsN) Probed by Raman Scattering" *Journal of Applied Physics*, **103** (2008) pp. 103528-1~5.
- 7) Y. Hayashi, K. Tanaka, T. Akazaki, M. Jo, H. Kumano, and I. Suemune: "Luminescence Observed from A Junction Field-Effect Transistor with Nb/n-InGaAs/Nb Junction" *phys. stat. sol. (c)* **5** (2008) pp. 2816-2818.
- 8) H. Kumano, H. Kobayashi, S. Ekuni, Y. Hayashi, M. Jo, H. Sasakura, S. Adachi, S. Muto, and I. Suemune: "Optical-phonon Mediated Exciton Energy Relaxation with Highly Preserved Spin States in a Single Quantum Dot" *Phys. Rev. B* **78** (2008) 081306-1-4 (R).
- 9) R. Inoue, H. Takayanagi, M. Jo, T. Akazaki, and I. Suemune: "Differential Resistance Oscillations with Microwave Irradiation in a Superconductor-semiconductor Junction", *J. Phys. Conference Series*, **109** (2008) pp. 012033-1~4.
- 10) M. Jo, Y. Hayashi, H. Kumano, and I. Suemune: "Exciton-phonon Interactions Observed in Blue Emission Band in Te delta-doped ZnSe" *J. Appl. Phys.* **104** (2008) 033531-1~4.
- 11) H. Sasakura, S. Adachi, S. Muto, S. Hirose, H. Z. Song, and M. Takatsu: "Nuclear and excitonic spin polarization formed using cross-linearly polarized pulse pair via half-localized state in a single self-assembled quantum dot" *J. Appl. Phys.* **103** (2008) 103530-1~5.
- 12) R. Kaji, K. Yamada, H. Sasakura, and S. Adachi: "Optical evaluation of electron and hole g-factors in single quantum dots" *phys. stat. sol. (b)* **245** (2008) 2662-2666.

#### 4.4 著書

- 1) 末宗幾夫:「発光・受光の物理と応用」培風館 小林洋志監修、2008年(分担執筆)423ページ。第6章 半導体発光デバイス 6.6 量子ドット光デバイス。

#### 4.7 講演

##### a. 招待講演

- 1) I. Suemune: “Interdisciplinary Research on Superconducting Photonics and Development of LEDs based on New Concept” Japan-Brazil Memorial Symposium on Science on Science and Technology, June 23-25 (2008) Sao Paulo, Brazil, p.28.
- 2) I. Suemune, Y. Hayashi, K. Tanaka, T. Akazaki, H. Sakakura, and H. Kumano: “Superconducting Photonics and Development of Light Emitting Diodes based on New Concept” The 21<sup>st</sup> Annual Meeting of The IEEE Lasers & Electro-Optics Society, Newport Beach, CA, 9-13 November 2008, WS1, pp. 567-568.
- 3) I. Suemune: “New Directions with Alliance of Photonics and Superconductivity” The 12<sup>th</sup> SANKEN International Symposium “Frontiers of Science for Future Industries”, Osaka, January 22, 2009, pp. 11-12.

##### b. 一般講演

###### i) 学会

- 1) 鍛冶怜奈、足立智、武藤俊一、笹倉弘理、熊野英和、末宗幾夫:「単一 InAlAs 量子ドットにおける中性励起子発光の偏光回転」2008年(平成20年)秋季第69回応用物理学関係連合講演会(平成20年9月2日-5日、中部大学) 4pZQ8 講演予稿集 p.1248.
- 2) 江国晋吾、中島秀朗、熊野英和、笹倉弘理、足立智、武藤俊一、末宗幾夫:「単一量子ドット発光における Which-Path 情報と干渉効果」2008年(平成20年)秋季第69回応用物理学関係連合講演会(平成20年9月2日-5日、中部大学) 4pZQ3 講演予稿集 p.1246.
- 3) 倉光周平、笹倉弘理、田中和典、赤崎達志、熊野英和、末宗幾夫:「超伝導 Nb 電極による n-InGaAs 発光再結合寿命の短縮」2008年(平成20年)秋季第69回応用物理学関係連合講演会(平成20年9月2日-5日、中部大学) 3pZQ19 講演予稿集 p.1241.
- 4) 笹倉弘理、足立智、鍛冶怜奈、武藤俊一:「InAlAs 量子ドットにおける核磁場の局所性と双安定現象」第24回応用物理学学会 講演奨励賞受賞記念講演 2008年(平成20年)秋季第69回応用物理学関係連合講演会(平成20年9月2日-5日、中部大学) 4pZQ1 講演予稿集 p.1246.
- 5) 佐藤弘康、井筒康洋、笹倉弘理、熊野英和、末宗幾夫:「リフトオフプロセスによる開放型 InAs 量子ドットに直接コンタクトする Nb 微細構造の形成と評価」2008年(平成20年)秋季第69回応用物理学関係連合講演会(平成20年9月2日-5日、中部大学) 2pZQ6 講演予稿集 p.1258.

- 6) 佐藤充、井筒康洋、定昌史、笹倉弘理、熊野英和、末宗幾夫:「Type-II GaAsSb/GaAs  $\delta$ -Se delta-doped GaAs 層を導入した効果」2008年(平成20年)秋季第69回応用物理学関係連合講演会(平成20年9月2日-5日、中部大学) 3aCF13 講演予稿集 p.285.
- 7) 井筒康洋、伊藤早紀、佐藤弘康、許載勳、高田真、笹倉弘理、末宗幾夫:「Nb 埋め込み InAs QDs メサ構造の作製と評価」2008年(平成20年)秋季第69回応用物理学関係連合講演会(平成20年9月2日-5日、中部大学) 2pZQ8 講演予稿集 p.1259.
- 8) 末宗幾夫、林雄二郎、倉光周平、田中和典、赤崎達志、笹倉弘理、熊野英和:「Nb 電極を持つ InGaAs/InP LED の超伝導発光増強効果と内部量子効率に関する検討」2008年(平成20年)秋季第69回応用物理学関係連合講演会(平成20年9月2日-5日、中部大学) 3pZQ20 講演予稿集 p.1242.
- 9) J.-H.Huh, H. Sato, S. Ito, Y.Idutsu, and I. Suemune, “Nanolithography and Patterning for Superconducting Photonics” GCOE 産学共同シンポジウム、京王プラザホテル札幌、2008年10月3-4日、P2-14, pp. 125-126.
- 10) 許載勳、遠藤礼暁、佐藤弘康、末宗幾夫:「超伝導ニオブ電極のナノパターニング」第44回応用物理学学会北海道支部合同学術講演会(平成21年1月8日-9日、函館) C-6.
- 11) 宮村壮太、佐藤充、定昌文、末宗幾夫:「GaAsSb/GaAs type-II 量子井戸における離散的な局在準位形成の観測」第44回応用物理学学会北海道支部合同学術講演会(平成21年1月8日-9日、函館) C-5.
- 12) 中島秀朗、江国晋吾、熊野英和、笹倉弘理、末宗幾夫:「単一量子ドット励起子発光における単一光子干渉効果」第44回応用物理学学会北海道支部合同学術講演会(平成21年1月8日-9日、函館) A-12.
- 13) 加藤大望、井田惣太郎、高田真、井筒康洋、伊藤早紀、熊野英和、末宗幾夫:「有限差分時間領域法を用いた Nb 埋め込み InAs QDs ピラー構造の解析」第44回応用物理学学会北海道支部合同学術講演会(平成21年1月8日-9日、函館) A-11.
- 14) 和田雅樹、倉光周平、笹倉弘理、熊野英和、末宗幾夫:「超伝導 Nb 電極を有する LED 構造における発光再結合寿命の短縮」第44回応用物理学学会北海道支部合同学術講演会(平成21年1月8日-9日、函館) A-10.
- 15) 笹倉弘理、足立智、鍛冶怜奈、武藤俊一、熊野英和、末宗幾夫:「InAlAs 量子ドットにおける核磁場による電子スピン偏極度の低下」2009年(平成21年)春季第56回応用物理学関係連合講演会(平成21年3月30日-4月2日、筑波大学) 31p-ZB-8, 講演予稿集 p.1439.
- 16) 中島秀朗、江国晋吾、熊野英和、笹倉弘理、足立智、武藤俊一、末宗幾夫:「単一光子発生における偏光モード識別と干渉効果」2009年(平成21年)春季第56回応用物理学関係連合講演会(平成21年3月30日-4月2日、

- 筑波大学) 31p-ZB-16, 講演予稿集 p.1442.
- 17) 和田雅樹、笹倉弘理、定昌史、熊野英和、末宗幾夫：「単一量子リング/ドット発光のコヒーレンス測定」2009年(平成21年)春季第56回応用物理学関係連合講演会(平成21年3月30日-4月2日、筑波大学) 31p-ZB-7, 講演予稿集 p.1439.
  - 18) 井田惣太郎、高田真、加藤大望、井筒康洋、笹倉弘理、末宗幾夫：「Nb埋め込みInAs量子ドットのPL特性および有限時間差分領域法を用いた解析」2009年(平成21年)春季第56回応用物理学関係連合講演会(平成21年3月30日-4月2日、筑波大学) 31p-ZB-6, 講演予稿集 p.1439.
  - 19) 井筒康洋、高田真、伊藤早紀、佐藤弘康、許載勳、加藤大望、井田惣太郎、笹倉弘理、末宗幾夫：「Nb埋め込みInAs量子ドットピラー構造の作製とその光学特性評価」2009年(平成21年)春季第56回応用物理学関係連合講演会(平成21年3月30日-4月2日、筑波大学) 30a-ZG-8, 講演予稿集 p.1447.
  - 20) 倉光周平、和田雅樹、笹倉弘理、田中和典、赤崎達志、熊野英和、末宗幾夫：「Nb/n-InGaAs/p-InP超伝導発光ダイオードにおける発光寿命の注入電流依存性」2009年(平成21年)春季第56回応用物理学関係連合講演会(平成21年3月30日-4月2日、筑波大学) 31p-ZB-5, 講演予稿集 p.1438.
  - 21) 許載勳、佐藤弘康、伊藤早紀、井筒康洋、末宗幾夫：「Nb微細パターンエッチでの特異効果を利用した超伝導電極のナノ加工」2009年(平成21年)春季第56回応用物理学関係連合講演会(平成21年3月30日-4月2日、筑波大学) 31p-ZN-12, 講演予稿集 p.1114.
  - 22) 加藤大望、井筒康洋、伊藤早紀、佐藤弘康、高田真、許載勳、井田惣太郎、末宗幾夫：「テーパー型Nb埋め込みInAs量子ドットピラー構造のFDTD解析」2008年(平成21年)春季第56回応用物理学関係連合講演会(平成21年3月30日-4月2日、筑波大学) 31p-ZB-4, 講演予稿集 p.1438.
  - 23) 佐藤充、宮村壮太、定昌史、井筒康洋、笹倉弘理、熊野英和、末宗幾夫：「GaAsSb/GaAs Type-II バンド構造制御と離散的局在準位形成」2009年(平成21年)春季第56回応用物理学関係連合講演会(平成21年3月30日-4月2日、筑波大学) 30p-ZB-13, 講演予稿集 p.1431.
  - 24) 末宗幾夫、熊野英和、笹倉弘理、田中和典、赤崎達志：「半導体ナノ構造における新規発光プロセスの可能性：超伝導効果」2009年(平成21年)春季第56回応用物理学関係連合講演会、「14.2超薄膜量子ナノ構造」分科内招待講演(平成21年3月30日-4月2日、筑波大学) 31p-ZB-1, 講演予稿集 p.1437.
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) H. Kumano, S. Ekuni, H. Kobayashi, H. Sasakura, I. Suemune, S. Adachi, and S. Muto: "Optical-phonon Mediated Efficient Spin-state Transfer Between Electron Spin and Photon Polarization with a Single Quantum Dot without External Field" International conference on Physics of Light-Matter Coupling in Nanostructures (PLMCN8), April 7 - 11, 2008, Tokyo, Japan, WeP-9, p. 64.
  - 2) S. Adachi, R. Kaji, K. Yamada, S. Muto, H. Sasakura, H. Kumano, I. Suemune: "Nuclear Field-mediated Measurement of Effective g factors of Quantum Dots" International conference on Physics of Light-Matter Coupling in Nanostructures (PLMCN8), April 7 - 11, 2008, Tokyo, Japan, TuB-3, p. 28.
  - 3) H. Kumano, H. Kobayashi, S. Ekuni, H. Sasakura, I. Suemune, S. Adachi, and S. Muto: "Spin-flip Quenching during Energy Relaxation Processes Mediated by Optical-phonons in a Single Quantum Dot" 5th International Conf. on Semiconductor Quantum Dots, May 11-16, 2008, Gyeongju, Korea, Th-P-030.
  - 4) M. Takada, Y. Idutsu, Y. Hayashi, T. Akazaki, H. Sasakura, H. Kumano, I. Suemune: "Observation of Enhanced Luminescence Emitted from InAs Quantum Dots with Direct Contact to Superconducting Niobium Stripe" 5th International Conf. on Semiconductor Quantum Dots, May 11-16, 2008, Gyeongju, Korea, Th1-O-03.
  - 5) Y. Idutsu, S. Miyamura, and I. Suemune: "Improved Luminescence Efficiency of InAs Quantum Dots Grown on Atomic Terraced GaAs Surfaces Prepared with In-situ Chemical Etching" 5th International Conf. on Semiconductor Quantum Dots, May 11-16, 2008, Gyeongju, Korea, Th-P-056.
  - 6) M. Jo, Y. Hayashi, H. Sasakura, H. Kumano, I. Suemune, S. Adachi, S. Muto, S. Suraprapich, and C. W. Tu: "Reduced Fine Structure Splitting of Excitons in Self-assembled InAs/GaAs Quantum Rings" 5th International Conf. on Semiconductor Quantum Dots, May 11-16, 2008, Gyeongju, Korea, Th-P-051.
  - 7) S. Adachi, R. Kaji, K. Yamada, H. Sasakura, and S. Muto: "Zero effective g-factor of quantum dot electron using optically induced nuclear field" 5th International Conf. on Semiconductor Quantum Dots, May 11-16, 2008, Gyeongju, Korea, Th3-O-05.
  - 8) H. Sasakura, S. Adachi, R. Kaji, and S. Muto: "Formation of nanoscale magnetic field by nuclear spin polarization in individual quantum dots" 5th International Conf. on Semiconductor Quantum Dots, May 11-16, 2008, Gyeongju, Korea, Th-L-002.
  - 9) Y. Hayashi, K. Tanaka, T. Akazaki, M. Jo, H. Kumano, and I. Suemune: "Luminescence of n-InGaAs/p-InP Diode with Superconducting Nb Electrode" The 20th IEEE Conference on Indium Phosphide and Related Materials (IPRM'08), 25-29 May 2008, Versailles, France, MoB3-1.

- 10) H. Sasakura, Y. Hayashi, K. Tanaka, T. Akazaki, S. Kuramitsu, H. Kumano, I. Suemune: "Superconducting Effect on Radiative Recombinations in Long-wavelength Light Emitting Diode" 66th Device Research Conference, June 23-25, 2008, University of California, Santa Barbara, CA, VII.B-3.
- 11) H. Kumano, S. Ekuni, H. Sasakura, I. Suemune, S. Adachi, and S. Muto: "Photon-state Conversion with Well-defined Spin States in a Single Quantum Dot Without Magnetic Field" 29<sup>th</sup> International Conference on the Physics of Semiconductors, July 27-August 1, 2008, Rio de Janeiro, Brazil, TuP-C1-084.
- 12) Y. Idutsu, M. Takada, Y. Hayashi, T. Akazaki, H. Sasakura, H. Kumano, and I. Suemune: "InAs Quantum Dots with Direct Contact to Niobium Electrode: Enhancement of Luminescence Intensity Below Superconducting Critical Temperature" The 15<sup>th</sup> International Conference on Molecular Beam Epitaxy, August 3-8, 2008, University of British Columbia, Vancouver, Canada, THP15, p. 223.
- 13) M. Sato, M. Jo, and I. Suemune: "Conversion from Type-II to Type-I Transition due to Sb Composition in GaAsSb/GaAs Single Quantum Wells" The 15<sup>th</sup> International Conference on Molecular Beam Epitaxy, August 3-8, 2008, University of British Columbia, Vancouver, Canada, MP5, p.21.
- 14) Jae-Hoon Huh, Michiaki Endo, and Ikuo Suemune: "Nano-patterning of Niobium for Superconducting Light Emitting Diodes" The 10th RIES Int. Symposium, December 8-9, 2008, Sapporo, Japan, P04, pp. 45-46.
- 15) S. Kuramitsu, M. Wada, H. Sasakura, H. Kumano, and I. Suemune: "Reduction of Radiative Recombination Lifetime on Long-wavelength Light Emitting Diode Induced by Superconducting Nb Electrode" The 10th RIES Int. Symposium, December 8-9, 2008, Sapporo, Japan, P05, pp. 47-48.
- 16) I. Suemune, H. Kumano, H. Sasakura: "Single photon generation and quantum state transfer for next-generation quantum information networks" The 2nd International Symposium on Global COE Program of Center for Next-Generation Information Technology based on Knowledge Discovery and Knowledge Federation (GCOE-NGIT 2009), Sapporo, January 20-21, 2009, pp.114-120.
- 17) Jae-Hoon Huh, Michiaki Endo, Hiroyasu Sato, Yasuhiro Idutsu, and Ikuo Suemune: "Nano-patterning for Superconducting Photonics" The 2nd International Symposium on Global COE Program of Center for Next-Generation Information Technology based on Knowledge Discovery and Knowledge Federation (GCOE-NGIT 2009), Sapporo, January 20-21, 2009, pp.241-246.
- 18) Jae-Hoon Huh, Michiaki Endo, Hiroyasu Sato, Saki Ito, Yasuhiro Idutsu, and Ikuo Suemune: "Nano-fabrication of Superconducting Electrodes for New Type of LEDs" The Optical Society of Korea Annual Meeting, Seoul, February 12-13, 2009, T1C-III3.

#### 4.9 共同研究

##### d. 受託研究 (研究担当者、機関名、研究題目、研究期間、研究内容)

- 1) 末宗幾夫、熊野英和、植杉克弘、田中和典、菅博文、山西正道、赤崎達志、高柳英明 (科学技術振興機構): 「超伝導フォトンクスの創成とその応用」、2005~2010年度、157,500千円、これまで遊離していた超伝導領域とフォトンクスをつなぐ基幹デバイスを開発する。

#### 4.10 予算獲得状況

##### a. 科学研究費補助金 (研究代表者、分類名、研究課題、期間)

- 1) 末宗幾夫、基盤研究Sピラミッド微小光共振器を用いた量子ドット励起子状態のコヒーレント制御に関する研究、2004~2008年度
- 2) 末宗幾夫、特定領域研究、光ファイバー通信波長帯量子ドットを用いた高次機能光子源の研究、2005~2008年度
- 3) 熊野英和、若手研究A (2006~2008年度) 高効率量子ドット量子光源の作製と空間伝送量子暗号通信への応用に関する研究
- 4) 笹倉弘理、若手研究B (2008~2009年度) フーリエ分光法に基づく量子ドットで発生する単一光子の偏光状態測定装置の開発

#### 4.12 社会教育活動

##### a. 公的機関の委員

- 1) 末宗幾夫: JJAP編集委員 (2003年4月1日~現在)
- 2) 末宗幾夫: 日本学術振興会ワイドギャップ半導体光・電子デバイス第162委員会委員 (2001年4月1日~現在)
- 3) 末宗幾夫: 日本学術振興会光電相互変換第125委員会委員 (2001年4月1日~現在)
- 4) 熊野英和: 日本学術振興会光電相互変換第125委員会委員 (2001年4月1日~現在)

##### b. 国内外の学会の主要役職

- 1) 15th International Conference on Molecular Beam Epitaxy, August 3-8, 2008, Vancouver, Canada, International Program Committee.

##### g. 北大での担当授業科目 (対象、講義名、担当者、期間)

- 1) 工学研究科、情報エレクトロニクス特別演習、末宗幾夫、熊野英和、2008年4月1日~2009年3月31日
- 2) 工学研究科、光電子物性学特論、末宗幾夫、2008年4月1日~2008年9月30日

- 3) 工学部 (情報エレクトロニクス学科) 統計力学、熊野英和、2008年10月1日～2009年3月31日
- 4) 工学部 (情報エレクトロニクス学科) 電子情報工学実験、熊野英和、笹倉弘理 2008年4月1日～2009年3月31日
- 5) 全学共通、光・バイオ・分子で拓くナノテクノロジー、末宗幾夫、2008年4月1日～2008年9月30日
- 6) 大学院共通講義、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論 I、末宗幾夫、2008年4月1日～2008年9月30日 (集中講義7月25-27日)

**i. ポスドク・客員研究員など**

- 定 昌史 (日本学術振興会)
- 林 雄二郎 (日本学術振興会)
- 井筒 康洋 (JST-CREST 受託研究博士研究員)

**j. 修士学位及び博士学位の取得状況**

・修士学位

- 1) 伊藤早紀:「光子源からの光子取り出し効率向上を目指した半導体形状制御とその評価」(平成20年2月)
- 2) 佐藤弘康:「Nb 超伝導微細電極形成技術とInAs量子ドット発光デバイスへの応用に関する研究」
- 3) 佐藤 充:「GaAsSb/GaAs Type-II 単一量子井戸構造における伝導帯障壁制御と発光過程の評価」
- 4) 高田 真:「Nb埋め込みInAs量子ドットからの光子取り出し効率向上に関する研究」



## 電子機能素子部門

### 研究目的

物質や生物が有する階層的な構造性と各階層に特徴的な機能発現の解明に基づいて、電子科学を支える機能素子の設計と開発に関わる基礎的研究を行うことを目的としている。



## 量子機能素子研究分野

教授 石橋 晃 (東大院、理博、2003. 01～)

講師 近藤憲治 (早大院、工修、2003. 04～)

助教 海住英生 (慶大院、工博、2004. 09～)

院生

博士課程

川口敦吉、山形整功

修士課程

Susanne White

### 1. 研究目標

Si ベースの LSI は、その構造が外在的ルールで決まるトップダウン型のシステムの代表格であるが、素子サイズ上、動作パワー上、及び製造設備投資上の限界がいわれて久しい。トップダウン系に対するアンチテーゼとして最近その重要性が認識されてきたもう一つの流れは、自律分散型相互作用など内在的ルールにより構造が決まっていくボトムアップ系である。バイオ系に代表される自律立分散系の他、たとえば半導体量子ドットなど無機物のセルフアSEMBル系を含め、広くボトムアップ系に期待が集まっている。しかしながら、両系は未だに専ら独立で、トップダウン、ボトムアップ両系の間に橋渡しすること(究極的には統合・融合すること)は極めて重要にも係らず、未だ実現されていない。

従来の「ボトムアップとトップダウンの統合」が両者のいいとこ取りでナノ構造を作るというもの(積集合)であったのと異なり、我々は両者の相互乗り入れを可能とする(和集合)観点から取り組んでいる。両者の構成原理が大きく異なるため、勿論容易ではないが、もしトップダウン・ボトムアップの両系を繋ぐことができれば、今後ナノテク・ナノサイエンス分野で得られる新しい効果や機能を既存の Si ベースの IT インフラ構造と接続し相乗効果を引出しつつナノとマクロを結合することができる。当研究室では、このような立場から、局所的かつ個別的にアドレスすることの可能なナノ構造体を大局的サイズで得、さらに新しい量子機能を創出することを目指した基礎研究を進めている。

### 2. 研究成果

(a) トップダウン系とボトムアップの接続の基礎、及びスパイラルヘテロ構造応用素子

(a1) 極限高清浄環境の展開と新型光電変換素子応用

地球環境保全、石油資源の有効活用上も、太陽エネルギーのユビキタスな利用を可能とすることが急務であることに鑑み、フレキシブル基板を用いた光電変換素子・太陽電池の作製可能性を探っている。特に、熱力学的限界のため高効率を得ることの難しい、温度差の小さい黒体放射源に対応するべく、黒体放射の全スペクトル中に亘って高効率

に光電変換を達成し、グリーンIT用電源として供する可能性も検証する。図1に示すように、フォトンの進行方向とフォトキャリアの移動方向を直行させ、かつフォトンの進行方向に沿ってバンドギャップの昇降順を配した複数の半導体ストライプを有する新しい光電変換素子を提案している。また、非常に高い清浄度を実現可能な CUSP の展開としてアクリル製デスクトップタイプ、モバイルタイプが可能であることを示した。

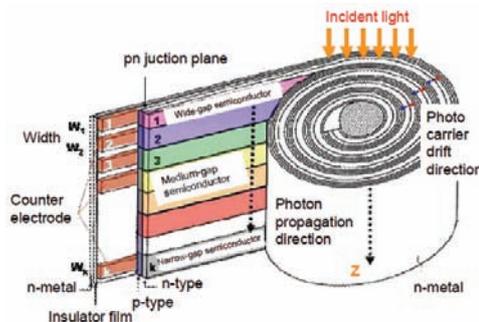


図1 新型光電変換素子構造。

(a2) 量子十字デバイスの作製とその評価

次世代超高密度メモリやBeyond CMOSスイッチングデバイスへの応用、並びに、単一分子系のキャラクタリゼーションを目指し、我々はスパイラルヘテロ構造を用いた量子十字デバイスを提案している。スパイラルヘテロ構造とは金属薄膜/有機膜を渦巻状に巻き取った構造で、ここから2枚の多層膜薄片を切り出し、互いに直交するように貼り合わせると、金属薄膜のエッジとエッジが互いに対向した新規な構造のデバイスができる。このデバイスを量子十字デバイスといい、例えば、膜厚1~20nmの金属薄膜を用いれば、原理的に1~20nmサイズの超微細接合が作製可能となる。これにより単一分子系のキャラクタリゼーションが可能となる。また、超高密度メモリやBeyond CMOSスイッチングデバイスへの応用も期待できる。今回、我々はNi薄膜/ポリエチレンナフタレート(PEN)有機膜を用いて量子十字デバイスを作製し、その構造解析ならびに電気的特性評価を行った。

初めに、抵抗加熱式真空蒸着装置を用いて、PEN有機膜(帝人デュボン社製TEONEX Q65、幅2mm、膜厚100μm)上にNi薄膜(膜厚10~20nm)を成膜した図2(a)。Niの蒸着パワーは280W、蒸着時の真空度は $\sim 10^{-3}$ Pa、蒸着膜厚レートは0.93nm/minとした。次に、成膜したNi薄膜/PEN有機膜をポリメタクリル酸メチル(PMMA)で固定し(図2(b))、化

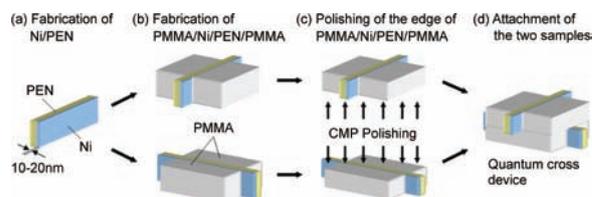


図2 量子十字デバイスの作製方法。

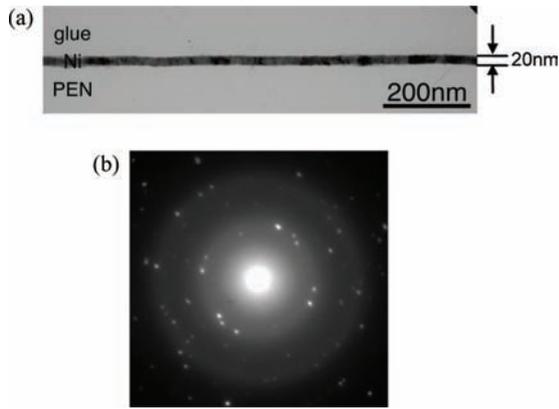


図3. Ni/PENの(a)断面TEM像と(b)電子線回折パターン.

学機械研磨(CMP)法によりNiエッジ面を研磨した(図2(c)). 研磨剤には0.1、0.3、1.0  $\mu\text{m}$  粒径の  $\text{Al}_2\text{O}_3$  スラリーを用いた。研磨回転数は75 rpm、研磨圧力は6.5 psi とした。最後に、クラスISO マイナス1の超高清浄環境内で室温にてNiエッジ面同士を貼り合わせ、量子十字素子を作製した(図2(d)). 膜厚測定にはダイオード励起型固体(DPSS)レーザーによる透過光強度測定法を用いた。表面観察には原子間力顕微鏡(AFM)を用いた。構造解析には透過型電子顕微鏡(TEM)、及び、電子線回折(ED)を用い、断面TEM試料の作製には、Arイオンミリングを用いた。このとき、電子ビームによる試料の温度上昇を抑えるため低温ステージを用いた。電流電圧測定には室温直流4端子法を用いた。

図3(a)にNi(20nm)/PENの断面TEM像を示す。Ni原子がPEN有機膜内に拡散せず、明瞭な界面が形成できていることがわかる。また、Ni表面が平坦であることも確認でき、これはAFMによる観察結果(表面粗さ  $R_a = 1.1\text{nm}$ )と一致する。回折コントラストよりNi膜は多結晶状態になっていることもわかる。図3(b)に電子線回折パターンを示す。PEN有機膜上のNiはfcc構造であり、バルクNiと同じ構造であることがわかった。また、電子線のビーム径を50~100 nmとしてもリングパターンは見られなかった。これは結晶粒が大きいことを示す。断面TEM像のコントラストから判断すると、結晶粒は20~50 nm程度であることがわかる。ここで量子十字素子への適用を考えると、結晶粒が大きいこ

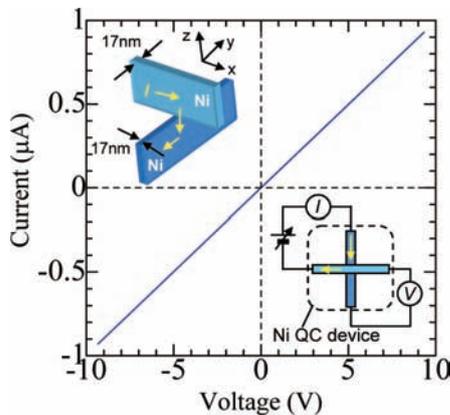


図4. 量子十字デバイスの電流電圧特性.

とは量子十字素子には好適であるといえる。なぜなら、エッジ面、すなわち、断面TEM像に平行な面が接合面となるため、結晶粒が大きいとき、接合面の面方位が一定となるからである。以上より、Ni薄膜とPEN有機膜の界面の明瞭性、並びに、Niの結晶粒サイズの観点からNi/PENは量子十字素子に適していることがわかった。

図4にNi/PENを用いて作製したNi量子十字素子の電流電圧特性を示す。Ni膜厚は17 nmとしたので、接合面積は  $17 \times 17 \text{ nm}^2$  となる。内挿図は直流4端子法のセットアップである。図4からわかるように、オーミック特性を得ることができた。この結果はアンダーソンハミルトニアンを用いた計算結果と定性的に一致した。また、この電流電圧特性は経時変化がなく非常に安定した特性であった。これらの結果は、次世代超高密度メモリ、並びに、Beyond CMOS スイッチングデバイス応用に大きな期待がもてることを示唆する。今後は、Ni薄膜エッジ間に有機分子を挟んだ量子十字デバイスの作製に注力し、それらの電気伝導特性、及び、磁気抵抗特性評価を行い、スイッチングデバイス、及び、巨大磁気抵抗効果デバイス等の新機能量子十字デバイスの創製を目指す。

(b) スピン量子十字構造素子 (SQCS device) の輸送特性の理論的検討

今年度は量子十字構造素子(QCS device)の電極を強磁性体にした場合の輸送特性と磁気抵抗比(MR比)をアンダーソンハミルトニアンを用いて、電極の次元性を考慮して計算した。

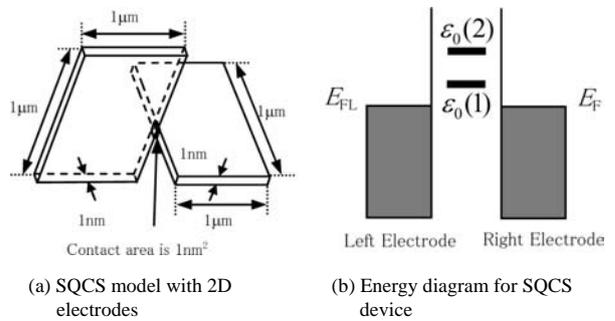
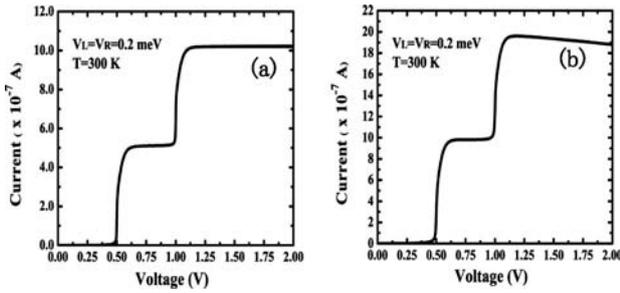


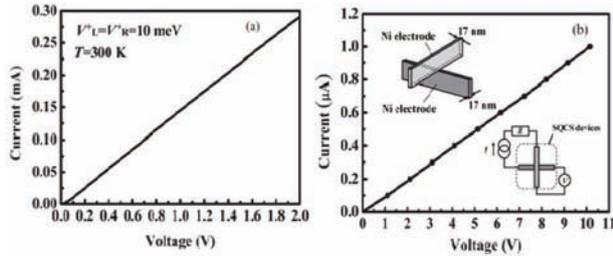
図5. 計算に用いたスピン量子十字構造素子のモデルとエネルギー図

電極にNi電極を用いたときの計算の結果、QCS素子と同様に、分子との結合が室温のエネルギーより小さい weak coupling の時には、図6のように電極が2次元であろうが、3次元であろうが関係なく、シャープなピークを持つ電流・電圧特性が得られ、switching 素子として機能することが判明した。また動作電力も10nW程度で、現在のCMOSを凌駕する。また、分子との結合が室温のエネルギーより十分大きい strong coupling limit の時には、図7(a)のような電流・電圧特性が得られ、オーミックな特性が得られる事が予想された。その後、実験により得られた電流電圧特性は、図7(b)のようなオーミック特性を示し、定性的に理論と良い一致を示した。



SQCS devices with (a) 2D electrodes and (b) 3D electrodes

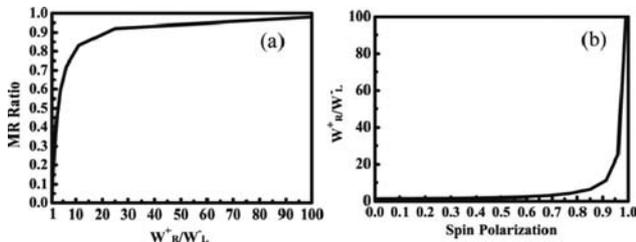
図6. 弱結合時の SQCS device の電流電圧特性の理論結果.



(a) Calculated I-V characteristics under the strong coupling limit. (b) Experimental I-V characteristics.

図7. (a) 強結合極限時の SQCS device の電流電圧特性の理論結果. (b) 強結合極限時の実験結果.

また、理論的にこの SQCS device がもし磁気抵抗効果を示すならばという仮定のもと、電極の繰り込まれた結合強度を用いて、MR比を計算した結果が図8(a)で、図8(b)は、この繰り込まれた結合強度と電極のスピン分極率との関係を示す結果である。



(a) The calculated MR ratio. (b) The relation between the renormalized transfer matrices and the spin polarization.

図8. SQCS device の MR 比(a)と繰り込まれた結合強度とスピン分極率の関係(b)

(c) コンパクトクリーンユニットシステムの開発

トップダウンとボトムアップの融合・統合をプラットフォームベースで実現するため、高 cleanliness を持つクリーンユニットシステムプラットフォームのモバイル版の要素技術を検討した。図9に示すように、ISO クラス2のハンドキャリー可能な高 cleanliness 環境を実現することができた。本技術は量子十字構造作製のためのコアテクノロジーとなると同時に、ナノテクノロジー、バイオテクノロジー、次世代植物作製技術の異種研究分野の融合・統合を可能にするプラットフォームベーステクノロジーとしても期待できる。

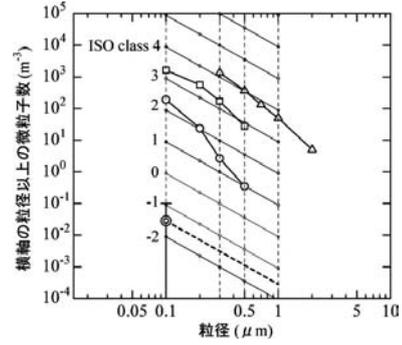


図9. 高 cleanliness の実測値。△、□、○は HEPA フィルタを用いたときの値、◎は自己発塵のないフィルタを用いたときの値。これにより ISO-1~2 級の極限高 cleanliness を得た。

### 3. 今後の研究の展望

次のステップとして、2次元ボトムアップ構造への局所アドレッシングを可能とすることにより、2次元ボトムアップ系とトップダウン系との接続を実現することを目指している。従来、トップダウン系をなす半導体集積回路などでは一括露光等によるパターンニングが用いられ、実質的な配線幅は数十 nm であったが、本研究ではサブナノメートルの膜厚制御せいをもつ真空蒸着の特性を活かし、且つ成長速度が遅いという弱点を克服することにより、丁度鳴門かまぼこの如く金属と絶縁体が巻き込まれたスパイラル状円盤を形成し、そこから一角を切出すことにより得られる金属/絶縁体交互多層膜薄片を金属層がクロスするように重ねた構造(ダブルナノバウムクローヘン構造)を創ることを試みる。この構造中には、多重平行金属リボン群によるエッジ対向した交差構造(Quantum Cross)が  $N \times N$  個形成されることで、ナノサイズの分解能とバルクサイズの拡がりを両立した  $xy$  グリッドが実現する。両薄片に挟まれた2次元ボトムアップ構造に対し原子層の分解能でボトムアップ構造の各部分へ個別アクセスが可能である。しかも本構造は主要部分がリソグラフィフリーで形成できる。

また、本研究の目指すダブルナノバウムクローヘン構造は、既存の素子の特性を飛躍的に向上させる可能性も持っている。リボンの厚みと巾を独立制御できることにより、例えば、分子素子では従来の Break Junction 電極(Reed, 1997)や 40nm 程度の粗大な Cross-bar 構造(Williams, 2002)と異なり、配線抵抗は小さく抑えながらも、対向2電極のクロスセクションを極めて小さく押さえ真に少数の分子系を挟む事ができるのみならず、原子層オーダーで急峻な  $D_{2d}$  対称性もつサドルポイント状のナノスケール電極配置の創成と同電極に挟まれた活性エレメントの物性評価を行うことができる。2次元電子液体において、さらに厳密な解を得るために、パーテックス補正を取り入れた  $GW\Gamma$  法を開発し、適用する。密度汎関数法の基礎に関わる交換・相関カーネルについて新しいカーネルの提案を行う。またすでに結果が得られつつあるが、ナノコンタクトにおけるコンタクト物質の次元性とコンダクタンスについての関係を明らかにす

る。また磁気記録応用でも超高密度化の可能性が期待できる。ダブルナノバウムクーヘン構造により得られる多重並列エッジ対向金属リボン交差構造により(2次元的な)ナノとマクロの世界とをつなぎ、トップダウンーボトムアップ両系の統合に端緒をつける可能性が出てくる。またスパイラルヘテロ構造を用いた新型太陽電池の応用も期待される。

## 4. 資料

### 4.1 学術論文等

- 1) K. Kondo, H. Kaiju and A. Ishibashi : “Theoretical and Experimental Results of Electronic Transport of Spin Quantum Cross Structure Devices”, J. Appl. Phys., 105: 07D522-1-07D522-3 (2009)
- 2) H. Kaiju, A. Ono, N. Kawaguchi, K. Kondo, A. Ishibashi, J. Won, A. Hirata, M. Ishimaru and Y. Hirotsu : “Ni thin films vacuum-evaporated on polyethylene naphthalate substrates with and without the application of magnetic field”, Appl. Sur. Sci., 255 : 3706-3712 (2009)
- 3) K. Kondo, H. Kaiju and A. Ishibashi : “Theoretical Investigation of New Quantum-Cross-Structure Device as a Candidate beyond CMOS”, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., 1067 : B03011-B03016 (2008)
- 4) H. Kaiju, A. Ono, N. Kawaguchi, K. Kondo and A. Ishibashi : “Study of Gold Thin Films Evaporated on Polyethylene Naphthalate Films toward the Fabrication of Quantum Cross Devices”, Mater. Res. Soc. Symp. Proc., 1025 : B07011-B07016 (2008)
- 5) M. D. Rahaman, H. Kaiju, N. Kawaguchi and A. Ishibashi : “Ultra-high cleanliness of ISO class minus 1 measured in triply connected clean-unit system platform”, Jpn. J. Appl. Phys., 47 : 5712-5716 (2008)

### 4.2 総説・解説・評論等

- 1) 石橋晃:「クリーンユニットシステムプラットフォーム(CUSP)による極限高 cleanliness ISO クラスー1 (マイナス1) の実現」、クリーンテクノロジー、日本工業出版: 343-351 (2008)
- 2) 近藤憲治:「ナノデバイスの現状と低次元電子ガスの理論的特性」、化学工業、化学工業社、59(No.6) pp1-8 (2008)
- 3) 近藤憲治:「ホール効果と異常ホール効果、そしてその先にあるもの」、まてりあ、日本金属学会、2月号 pp55-60 (2009)。

### 4.6 特許

・国内特許

- 1) 石橋晃:2008-2430、展示ユニット、2008年4月16日
- ・国際特許

- 1) H. Kaiju, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, A. Ono and A. Ishi-

bashi : PCT/JP2008/065924, ニッケル薄膜およびその形成方法ならびに強磁性ナノ接合およびその製造方法ならびに金属細線およびその形成方法 (2008年8月28日)

## 4.7 講演

### b. 一般講演

#### i) 学会

- 1) K. Kondo, H. Kaiju and A. Ishibashi : “Theoretical and Experimental Results of Electronic Transport of Spin Quantum Cross Structure Devices”, 53rd Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, Austin, Texas, USA (2008-11)
- 2) 海住英生、近藤憲治、小野明人、川口敦吉、元鍾漢、平田秋彦、石丸学、弘津禎彦、石橋晃:「Ni 薄膜/ポリエチレンナフタレート(PEN)有機膜を用いた量子十字構造の作製とその評価」、第32回日本磁気学会、東北学院大学 (2008-09)
- 3) N. Kawaguchi and A. Ishibashi : “Spiral Heterostructure-Based New Solar Cells with Constant Output Voltage”, International Union Materials Research Societies presents International Conference on Electronic Materials 2008, Sydney, Australia (2008-07 ~ 2008-08)

#### ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 近藤憲治、海住英生:「新ナノデバイス(QCS-Device)とグラフェンとの融合」、グラフェン・ミニ研究会、北海道大学創成科学研究棟ナノテクノロジー研究センター (2008-08) (招待講演)
- 2) 石橋晃:「高 cleanliness 環境 CUSP システム」、2009国際ナノテクノロジー・ナノバイオ展示会、東京ビッグサイト (2009-02)
- 3) 石橋晃、近藤憲治、海住英生:「スパイラルヘテロ構造を利用した新型光電デバイスの進展」、ポストシリコン物質・デバイス創製基盤技術アライアンス平成20年度成果報告会、北海道大学 (2008-12)
- 4) H. Kaiju, K. Kondo and A. Ishibashi : “Fabrication of Quantum Cross Devices using Ni Thin Films on Polyethylene Naphthalate Organic Substrates”, The 10th RIES-Hokudai International Symposium, Sapporo (2008-12)
- 5) 石橋晃、大橋美久、スザン ホワイト:「極限高 cleanliness 環境を提供するクリーンユニットシステム」、ビジネス EXPO、アクセスサッポロ (2008-11 ~ 3008-11)
- 6) 海住英生、近藤憲治、石橋晃:「ニッケル薄膜/ポリエチレンナフタレート有機膜を用いた量子十字デバイスの作製とその評価」、平成20年度アライアンス G2 分科会シンポジウム、東京工業大学 (2008-10)
- 7) 石橋晃:「クリーンユニットシステムプラットフォーム(CUSP)による高 cleanliness 環境」、第7回国際バイオフォーラム&国際バイオ EXPO2007、東京ビッグサイト (2008-07)

#### 4.9 共同研究

##### b. 海外機関との共同研究

- 1) H. Kaiju, A. Ishibashi, H. Fujiwara and Y. Rakovich (電子科学研究所) : “The experimental investigation of interface of nano-structures and applications”, 2008～2009年度, 450千円, 本研究では、Trinity College Dublinの研究グループ(Prof. John Donegan)の II-VI 系微粒子測定技術と本研究室の光電変換素子、及び、量子十字素子作製技術を組み合わせ、新たな光機能デバイスを創製することを目的とする。これにより、次世代太陽電池、及び、分子エレクトロニクス素子への応用の礎を構築する。

##### c. 民間等との共同研究

- 1) 石橋晃(北洋銀行)「CUSP 内での有人作業可能化のための要素技術の研究開発」
- 2) 石橋晃(シーズテック株式会社)「CUSP 技術の高度化」
- 3) 石橋晃(ノーステック財団) : 「ノーステック財団研究開発助成事業「清浄環境測定器付きモバイル高清浄環境の開発」」、2008年度、モバイルなクリーンシステムプラットフォームの高性能化を行う。これまでのクリーン環境提供法を質・量ともに一変させ、必要な性能を、必要なだけ、必要なときに、必要な場所へ、低コストで提供することができる。

##### e. 受託研究

- 1) 石橋晃(独立行政法人科学技術振興機構) : 「平成20年度産学共同シーズイノベーション化事業顕在化ステージ「引き伸ばし型一体成型による繊維状光電変換素子(太陽電池)の可能性の検証」、2008～2009年度、7930千円、引き伸ばし型一体成型による繊維状光電変換素子(太陽電池)のF/Sと市場調査

#### 4.10 予算獲得状況

##### f. その他(研究担当者、機関名、研究題目、研究期間、総経費、研究内容)

- 1) 海住英生(新世代研究所研究助成) : 「ナノエッジ法による単分子プロセッシングと巨大スイッチング効果」、2008～2009年度、1,400千円、本研究課題では、金属薄膜のエッジを利用したナノエッジ法により、少数分子のナノプロセッシングに関する研究を行う。また、これにより巨大スイッチング効果の可能性も探る。

#### 4.12 社会教育活動

##### b. 併任・兼業

- 1) 石橋晃 : シーズテック株式会社(北海道大学発ベンチャーカンパニー) 技術担当取締役(CTO)

##### e. 新聞・テレビ等の報道

###### ・新聞

- 1) 石橋晃、大橋美久 : 日刊工業新聞 2008年04月09日「大学発ベンチャーの挑戦 : シーズテック」

###### ・放送

- 1) 石橋晃 : TV 東京 FINE! 2009年2月19日「連結 Clean Unit System Platform (CUSP) の紹介。S-CUSP、A-CUSP、M-CUSP が放送された。」・その他
- 2) 石橋晃 : 日経 BP 先端技術事業化 2009年2月23日「北海道大学発ベンチャーで、小型クリーンルーム製造などを行っているシーズテック(札幌市、大橋美久社長)は、東京ビッグサイト(東京国際展示場、東京・江東)で開催された「nano tech 2009(国際ナノテクノロジー総合展・技術会議)」(主催 : nano tech 実行委員会)で、人が内部で作業できる小型のクリーンルーム「ラングカスプ(L-CUSP)」を開発中であることを明らかにした。シーズテックは、北海道大学電子科学研究所量子機能素子研究分野の石橋晃教授らの研究グループの技術を基に2006年12月7日に起業された大学発ベンチャーである。同社は、従来のクリーンルームとは清浄方式が異なる「密閉循環」型の「極限高清浄環境」を作る方式を開発している。クリーンルームを完全密閉循環型にすることで、清浄度を上げることができる。」
- 3) 石橋晃、大橋美久 : J-Net21(中小企業ビジネス支援サイト) 2008年4月9日「大学発ベンチャーの挑戦 : シーズテック」
- 4) 石橋晃 : DVD「新たなビジネス拠点を是非札幌へ」 2008年4月3日「研究室活動紹介並びに極限高清浄環境 CUSP の紹介」

##### g. 北大での担当授業科目(対象、講義名、担当者、期間)

- 1) 理学院、半導体物理学、石橋晃、2008年10月01日～2009年3月31日
- 2) 全学共通、複合科目 環境と人間「現代物理学入門」(分担)、石橋晃、2008年4月1日～2008年9月30日
- 3) 工学部、基礎物理学 I、石橋晃、2008年4月1日～2008年9月30日
- 4) 全学共通、現代物理学(分担)、石橋晃、2008年4月1日～2008年9月30日
- 5) 全学共通、複合科目 環境と人間「ナノテクノロジー」(分担)、石橋晃、2008年4月1日～2008年9月30日
- 6) 全学共通、基礎物理学 II(電磁気学と熱力学)、近藤憲治、2008年10月1日～2009年3月31日
- 7) 理学院、量子デバイス物理学(非平衡グリーン関数論)、近藤憲治、2008年10月1日～2009年3月31日

## 細胞機能素子研究分野

教授 上田哲男 (北大院、薬博、1998.2~)  
准教授 中垣俊之 (名大院、学博、2000.11~)  
助教 高木清二 (名大院、学博、2003.9~)  
博士研究員 三枝 徹 (北里大院、医博、2005.4~)  
博士研究員 手老篤史 (北大院、理博、2006.4~)  
博士研究員 伊藤賢太郎 (北大院、理博、2008.7~)  
院 生 山口将大 (M1)

### 1. 研究目標

細胞は、生物学的には全ての生物の構成素子であり、物理・化学的には分子という機能素子が高度に自己組織化したダイナミカルな体系である。このような認識に基づいて、細胞という機能体の構築原理を解明することが、本研究分野の目標である。特に細胞原形質がしめす高度な情報処理機能、細胞インテリジェンスの探求およびそのメカニズムの解明をめざす。多核のアメーバ様単細胞(図1)である真性粘菌変形体の特徴を利用して、変形体の原形質が示す情報統合や判断という脳的機能を、非線形ダイナミクスに基づいて解明する。

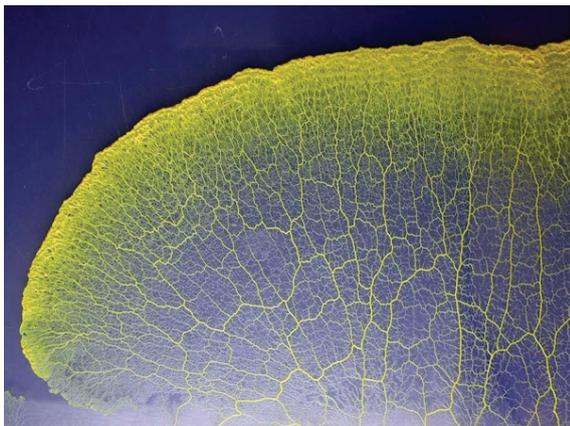


図1. 寒天上を這う粘菌変形体。

### 2. 研究成果

#### (a) 細胞の時間記憶

高次の情報処理能力として“時間記憶”をする能力が、粘菌にも存在することを昨年報告した。この発見は、NATURE誌のニュース欄に取り上げられたり、Discovery誌の年間トップ100科学ニュースにランクインするなど、世界的に注目された。このような能力は、粘菌固有のものなのか、あるいは細胞に一般的にみられるものなのだろうか。今回、別の生物種で粘菌と同様の試験をし、時間記憶能の有無を調べた。手始めに、アカゾウリムシ (Blepharisma 属) を用いた。周期的な温度刺激を与えると、アカゾウリムシの遊泳運動が質的に変化した。刺激により、直進的な遊泳が、その場での旋回運動になった。この質的変化を行動の

指標とした。周期的な刺激の後、次の刺激のタイミングで、実際には刺激が無いにも関わらず、自発的な運動指標の変化が見られた。また、しばらくした後、再び刺激を一回だけ与えると、その後に周期的な指標変化が認められた。以上より、アカゾウリムシにも、粘菌と同じような時間記憶能が存在することが明らかとなった。

温度刺激を光刺激に置き換えたところ、アカゾウリムシは、やはり同様な時間記憶能を示した。時間記憶能の機構は、刺激の物理的性状によらないことがわかった。

アカゾウリムシのほかに、オジギソウ、グリーンヒドラで同様の研究を開始した。今後様々な生物で調べ、時間記憶能がどのように進化の系統と関係するかを研究する。

時間記憶能のメカニズムは簡単な力学モデルで説明する事ができる。粘菌の活動性(例えば変形や収縮)を長時間にわたり観察すると、速いフーリエ成分から遅いフーリエ成分まで連続的に分布していることがわかる。このような時間挙動をもたらすのは複雑な化学反応ネットワークであろうが、ここでは簡単化のために各成分を独立な一つの振動子と考えることにする。原形質のある微小な塊をとってくると、そこには自然振動数の異なるたくさんの振動子が(小さいものから大きいものまで)存在するという訳である。変形体は、巨大な原形質の塊なので、このような一連の振動数をもった振動子群が複数(例えば100000セット程度の数)存在する。細胞全体の活動性は、これら全ての振動子の総和として捉えられる。ただし、ここでは振動子間の相互作用は一切考えないものとする。さて、このような系に周期的な外力を加え、ある種のオーダーパラメータで系を特徴づけると、実験で観察されたような予想、記憶、想起が再現された。この数理モデルは、現時点では現象論的で比喩的なものであるが、何らかの意味で動力的本質をとらえているのではないかも期待できる。今後、実験と理論の両面からその検証を進める予定である。

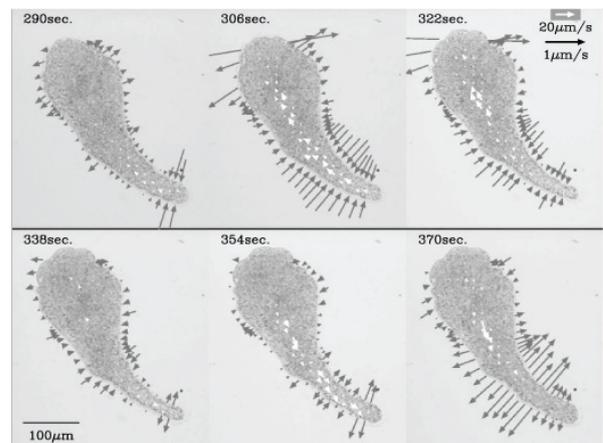


図2. PID法による原形質流動と変形の測定。300マイクロメートルほどの変形体内を流れる細胞内顆粒をトラッキングし、流れの速度場を定量化した。

### (b) 原形質流動の時空間測定に基づく粘菌の移動機構

粘菌変形体を用いて、アメーバが力学的にどのように重心移動を実現するかを研究した。アメーバの体全体にわたり、原形質流動の時間依存的な速度場を計測した。そのために、particle image velocimetry (PID) の新たなプログラムを開発した。原形質流動の速度場のほか、重心の移動、体の変形を同時に測定し(図2)、移動の簡単な物理機構を提案した。変形体の蠕動的な運動が、後方から前方に向かって生じることがわかった。体の前後軸に対して、蠕動の向きは対称的でないわけである。この非対称性が、往復流動による物質輸送の対称性を生み出し、重心の移動をもたらされる。この機構の一般性について議論した。

### (c) 光刺激による粘菌に発生した回転波の生成と消滅

寒天ゲル上を這う変形体(図1)の管を切断すると、内圧により原形質が流出する。これをピペットで少量取り(～0.2 $\mu$ l)、寒天ゲル上に置くと10分程度で周期的な収縮弛緩運動を開始し、さらに1～2時間ほど経過すると振動パターンは安定な回転波を示すようになる(図3(a))。このような状態の粘菌原形質に青色光パルスを局所的に与え、振動パターンの変化を調べた。すると、主に以下のようなパターン遷移が見られた。青色光を図3(a)に示すように、回転波の中心をかすめるように照射した場合、照射領域にある部分が最大収縮を示すタイミングで光刺激を与えると高い確率で回転波が消滅し、一方向への伝播波へと振動パターンが変化した。一方、弛緩している時に光刺激を与えても回転波は消滅せず、振動パターンの変化は起きなかった。また、回転波の中心から離れた領域を刺激した場合(図3(c))、収縮中期に相当する等位相線(黄色付近)と刺激領域の境界線の交点付近に互いに反対回転の回転波が対生成された(図3(d))。これら現象は、刺激により type0 の位相リセットが起きたとすると、うまく説明することができ、刺激による位相の変化も type0 リセットを裏付けている。

また、この回転波の生成と消滅は興奮媒体に局所刺激を

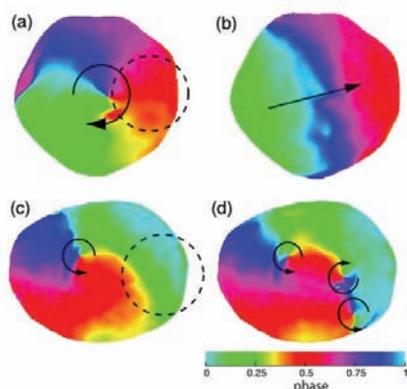


図3. 変形体の示す多様な振動パターン。色は振動の位相を示す。赤：最大収縮期、水色：最大弛緩期。(a) 刺激直前のパターン。時計回りの回転波。破線は刺激領域を示す。(b) 刺激後のパターン。右方向への伝播波。(c) 刺激直前のパターン。時計回りの回転波。(d) 刺激後のパターン。右下の領域に一对の回転波が生成された。

与えた場合に観察されるものと同様の現象であり、粘菌で得られた知見を他の系に応用できることが期待される。例えば、心臓で活動電位の回転波が発生すると、頻脈や細動といった致死の病的状態となり、その状態を治すには外部から高電圧の刺激を与えるしか方法はない。そこで、患者に優しい低電圧での治療方法が求められており、粘菌で得られた知見を心臓治療に応用することも期待できる。

## 3. 今後の研究の展望

生物情報処理機構の解明は、脳科学の華やかな国家プロジェクトを見るまでもなく、現在、最もチャレンジングなテーマの一つである。粘菌変形体は、脳や神経系を持たないにもかかわらず予想以上の情報処理能力を持っていることが我々の研究により明らかとなってきた。粘菌のような比較的単純な生物を用いることは、この分野に対する脳科学とは異なる有力な手法となるであろう

粘菌変形体は複合刺激情報を統合判断し適切な行動をとるといった刺激情報の統合演算だけでなく、効率的な流路ネットワークをデザインするという空間情報の計算など、多彩な情報処理能力を持つことを明らかにしてきた。さらに、これらの能力はリズム場の示すグローバルな動的パターン形成と関係しているようだ。われわれが独自に見いだしたこれらの現象を糸口にして、バイオコンピューティングの原理を解明していく。

## 4. 資料

### 4.1 学術論文等

- 1) A. Tero, T. Saigusa and T. Nakagaki : “Protoplasmic computing to memorize and recall periodic environmental events”, Proceedings in Information and Communications Technology (PICT 1): Natural Computing, Springer-verlag : 213-221- (2009)
- 2) K. Matsumoto, S. Takagi and T. Nakagaki : “Locomotive Mechanism of Physarum Plasmodia based on Spatiotemporal Analysis of Protoplasmic Streaming”, Biophysical Journal, 94(7) : 2492-2504 (2008)
- 3) T. Miyaji, I. Onishi, A. Tero and T. Nakagaki : “Failure to the shortest path decision of an adaptive transport network with double edges in Plasmodium system”, International Journal of Dynamical Systems and Differential Equations, 1 : 210-219 (2008)
- 4) A. Tero, K. Yumiki, R. Kobayashi, T. Saigusa and T. Nakagaki : “Flow-network adaptation in Physarum amoebae”, Theory In Biosciences, 127 : 89-94 (2008)

### 4.2 総説、解説、評論等

- 1) T. Nakagaki, A. Tero, R. Kobayashi, I. Onishi and T. Miyaji : “Computational ability of cells based on dynamics

and adaptability”, New Generation Computing, Ohmsha-Springer, 27(1) : 57-81 (2009)

#### 4.3 国際会議議事録等に掲載された論文

- 1) H. Yamada and T. Nakagaki : “Flow rate by peristaltic movement in plasmodial tube of Physarum polycephalum”, American Institute of Physics Conference proceeding 1028, Collective dynamics: Topics on competition and cooperation in the Biosciences : 210-214 (2008)

#### 4.7 講演

##### a. 招待講演

- 1) T. Saigusa, A. Tero, T. Nakagaki and Y. Kuramoto : “An amoeba can anticipate a periodic event”, Dynamics Days Asia Pacific 5, Nara (2008-09)
- 2) K. Matsumoto, S. Takagi and T. Nakagaki : “Locomotive mechanism of Physarum plasmodia based on spatiotemporal analysis of protoplasmic streaming”, The 10th RIES-HU International Symposium on AYA, Hokkaido University (2008-12)
- 3) T. Nakagaki, A. Tero, R. Kobayashi, D. Sumpter, M. Beekman and M. Middendorf : “Organic Computing by an amoeba: Optimization in natural systems”, The 9th Human frontier science program awardee meeting, Berlin Brandenburg Academy of Sciences and Humanities, Germany (2008-07)
- 4) 中垣俊之 : 「単細胞生物の底力」、北大電子科学研究所新棟落成記念講演会、アスペンホテル、札幌 (2008-12)

##### b. 一般講演

###### i) 学会

- 1) T. Nakagaki : “Cells anticipate periodic events”, American Physical Society March Meeting, Pittsburgh, USA (2009-03)
- 2) 中垣俊之、手老篤史、三枝徹、小林亮 : 「アメーバの賢さのしくみと制御」、第52回システム制御情報学会研究発表会、京都情報大学院大学京都駅前校 (2008-05)
- 3) T. Nakagaki, A. Tero, T. Saigusa and R. Kobayashi : “Information processing at cell level -smart behaviors in an amoeba of Physarum-”, Korean Physical Society Meeting, Dejeon, Korea (2008-04)

###### ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 中垣俊之 : 「単細胞の底力」、九州大学フロンティアリサーチセンター生企画シンポジウムーロマンチックサイエンスー、九州大学 (2009-03)
- 2) 中垣俊之 : 「アメーバの計算能力」、TOP Winter School 2009、札幌 (2009-03)
- 3) 中垣俊之 : 「あるアメーバの問題解決能力」、リズム現象研究会、お茶の水大学 (2009-01)
- 4) T. Nakagaki : “Information processing in a living cell based on nonlinear biochemical dynamics”, ISEM2008 Returns

(Int. Sym. on Engineering Micro-/Nano-Materials Based on Self-Assembling and Self-Organization), KAGAKU-MIRAI-KAN, Tokyo (2008-12)

- 5) T. Nakagaki : “Information processing based on biochemical reactions in an amoeba”, The 10th RIES-HU International Symposium on AYA, Hokkaido University (2008-12)
- 6) 中垣俊之 : 「イグノーベル賞受賞記念講演ー中垣俊之准教授が語る粘菌の不思議ー」、ビズラボ、札幌ビズカフェ (2008-11)
- 7) T. Nakagaki : “Computing with slime molds”, 3rd International workshop on Natural Computing, Yokohama (2008-09)
- 8) R. Kobayashi, A. Tero and T. Nakagaki : “Patterns and Computations in Biological Systems -- True Slime Mold --”, Czech-Japanese Seminar in Applied Mathematics 2008, Takachiho, Miyazaki (2008-09)
- 9) 中垣俊之 : 「粘菌のネットワークに見る賢さ」、ネットワークが創発する知能研究会、東工大 (2008-08)
- 10) T. Nakagaki : “Information processing in cells based on nonlinear biochemical dynamics -behavioral smartness in slime molds-”, Gordon Research Conference on Dynamic Instabilities And Oscillations In Chemical Systems, Colby College, Maine, USA (2008-07)
- 11) 中垣俊之 : 「粘菌を通してみる生物型情報機能創発」、第一回創発機能研究会、東京総評会館 (2008-05)

###### iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) T. Nakagaki : “Behavioral smartness based on adaptability in an amoeba-like organism of true slime mold”, Seminar in Centre de Recherches sur la Cognition Animale, Université Paul Sabatier, Toulouse, France (2009-03)
- 2) 中垣俊之 : 「単細胞の底力」、北海道大学創成科学サロン、北海道大学 (2009-02)
- 3) 中垣俊之 : 「単細胞の底力」、大阪大学生命機能研究科セミナー、大阪大学 (2009-02)
- 4) 中垣俊之 : 「粘菌の賢さを探る」、理化学研究所研究員会議総会講演会、理化学研究所 (2009-01)
- 5) 中垣俊之 : 「真正粘菌の不思議」、現象数理学 : 冬の学校「数理の目で世界を見る」、明治大学 (2009-01)
- 6) 中垣俊之 : 「アメーバの行動に見る賢さ」、京都大学医学部生体構造学セミナー、京都大学 (2008-11)
- 7) T. Nakagaki : “Information processing in cells -Behavioral smartness of slime moulds-”, Complex system seminar, RIKEN, Wako (2008-11)
- 8) 小林亮、手老篤史、中垣俊之 : 「真正粘菌変形体とその数理モデル」、イグ・ノーベル賞記念講演会 (第15回計算科学セミナー)、電気通信大学 (2008-10)
- 9) 中垣俊之 : 「粘菌を通してみた生命の知」、豊橋技術科学大学 情報生命学セミナー、豊橋技術科学大学 (2008-10)

- 10) 中垣俊之:「アメーバに学ぶネットワーク最適化手法」、第26回北大シミュレーションサロン、北大 (2008-06)
- 11) 中垣俊之:「生物の情報処理から学ぶ最適化手法」、防衛大学校 課外講演、防衛大学校 (2008-05)
- 12) T. Nakagaki, A. Tero, T. Saigusa and R. Kobayashi : “Behavioral smartness in an amoeba -Experimental evaluation of smartness and dynamical mechanism-”, Seminar in Mathematics department, University of Uppsala, University of Uppsala, Sweden (2008-04)
- 13) T. Nakagaki : “Smart behaviors in an amoeba of Physarum”, Korea University, Department of Physics, Colloquium, Korea University, Seoul, Korea (2008-04)
- 14) S. Takagi : “Annihilation and creation of rotating waves in protoplasmic droplet of the Physarum plasmodium” Spatio-temporal order & Life Physics seminar, Kyoto University, Kyoto (2009-3)

#### 4.8 シンポジウムの開催

##### a. 国際シンポジウム

- 1) Y. Yamaguchi, Y. Nishiura, T. Nakagaki, Y. Sato, K. Sasaki, T. Ueda, K. Ijro, A. Ishibashi and I. Tsuda : “The 10th RIES-Hokudai International Symposium on “綾””, 100人, Hokkaido University (Sapporo) (2008年12月8日～2008年12月9日)
- 2) K. Ito, T. Takada, A. Satake and T. Nakagaki : “International workshop on Biological group behaviors and nonlinear dynamics”, Hokkaido University (Sapporo) (2008年9月3日)
- 3) M. Hauser, I. Tsuda and T. Ueda : “International Academic Exchange Symposium on “Functional Dynamics in Biology, Chemistry and Physics”, Hokkaido University (Sapporo) (2009年3月11日)

#### 4.10 予算獲得状況

##### a. 科学研究費補助金 (研究代表者、分類名、研究課題、期間)

- 1) 中垣俊之、基盤研究B 一般 (2)、時間記憶能の系統進化に対する実験的評価と非線形動力学構造、2008～2012年度
- 2) 高木清二、若手研究B、動的パターンの遍歴による単細胞生物の脳機能発現メカニズム、2008～2019年度

##### e. COE関係 (研究担当者、機関名、研究題目、研究期間、研究内容)

- 1) 中垣俊之 (文部科学省21COEプログラム「トポロジー理工学の創成 (代表 丹田聡)」): 「生物トポロジーの研究」、2004～2008年度、21COEプログラム「トポロジー理工学の創成 (代表 丹田聡)」のサブリーダーとして参加

##### f. その他 (研究担当者、機関名、研究題目、研究期間、総経費、研究内容)

- 1) 小林亮、中垣俊之、石黒 章夫 (JST クレスト「数学と諸分野の協働によるブレイクスルーの探索」): 「生物ロコモーションに学ぶ大自由度システムの新展開」、2008～2013年度、227200千円、現実の複雑な環境の中を、あたかも生物のごとく、柔らかくしなやかに動きまわることのできるロボットを創り出すためには、ロボットの身体に生物同様の大きな自由度を持たせ、かつそれを巧みに制御する必要があります。本研究では、アメーバ運動から歩行運動にいたるさまざまなロコモーション様式に通底する、しなやかな動きを生み出す制御のからくりを数理的に解明することにより、大自由度ロボットの自律分散的制御法の創出を目指します。

#### 4.12 社会教育活動

##### b. 国内外の学会の役職

- 1) 上田哲男: 生物物理学会・運営委員 (2001年4月1日～現在)

##### c. 併任・兼業

- 1) 中垣俊之: 大阪大学 生命機能研究科 客員助教授 (2002年4月1日～現在)

##### d. その他

- 1) 中垣俊之: 日本ゆらぎ現象研究会 運営委員 (2002年11月28日～現在)
- 2) 中垣俊之: editor, International Journal of Unconventional Computing (2008年05月01日～現在)

##### e. 新聞・テレビ等の報道

###### ・新聞

- 1) 中垣俊之: 札幌学生新聞 学ストリート 2009年02月01日 「北海道読売新聞社発行の学生新聞の「研究室訪問」欄にて「考える粘菌」ロボットに」として紹介された」
- 2) 中垣俊之: 朝日小学生新聞 2009年1月1日 「おもしろ版ノーベル賞「イグノーベル賞」、迷路の最短経路を解く粘菌、単細胞でも賢い、などと紹介される」
- 3) 手老篤史、小林亮、中垣俊之: 毎日新聞 2008年11月23日 「単細胞生物なのに迷路が得意な粘菌一同質集まり賢さ実現」
- 4) 手老篤史、小林亮、中垣俊之: 読売新聞 2008年11月10日 「考える粘菌、迷路で最短ルート、光さける工夫も」
- 5) 手老篤史、小林亮、中垣俊之: 熊本日日新聞 2008年10月25日 「「パズルを解く粘菌の研究」に対するイグノーベル賞認知科学賞受賞の報道」
- 6) 中垣俊之: 高知新聞 2008年10月23日 「「パズルを解く粘菌の研究」に対するイグノーベル賞認知科学賞受賞の報道」
- 7) 中垣俊之: 北海道新聞 2008年10月21日 「ひと欄にて「イグノーベル賞の北大電子科学研究所准教授」として紹介」
- 8) 中垣俊之: 西日本新聞 2008年10月16日 「「パズルを解く粘菌の研究」に対するイグノーベル賞認知科学賞受賞の報道」

- 9) 中垣俊之：山形新聞 2008年10月15日「「パズルを解く粘菌の研究」に対するイグノーベル賞認知科学賞受賞の報道」
  - 10) 中垣俊之：朝日新聞 2008年10月13日「「ひと」欄にノーベル賞のパロディ「イグノーベル賞」を受けたとして紹介記事掲載」
  - 11) 中垣俊之：信濃毎日新聞 2008年10月13日「「パズルを解く粘菌の研究」に対するイグノーベル賞認知科学賞受賞の報道」
  - 12) 手老篤史、小林亮、中垣俊之：京都新聞 2008年10月13日「「パズルを解く粘菌の研究」に対するイグノーベル賞認知科学賞受賞の報道」
  - 13) 手老篤史、小林亮、中垣俊之：東京新聞 2008年10月12日「「パズルを解く粘菌の研究」に対するイグノーベル賞認知科学賞受賞の報道」
  - 14) 中垣俊之：秋田新聞 2008年10月12日「「パズルを解く粘菌の研究」に対するイグノーベル賞認知科学賞受賞の報道」
  - 15) 中垣俊之：秋田さきがけ新聞 2008年10月12日「「パズルを解く粘菌の研究」に対するイグノーベル賞認知科学賞受賞の報道」
  - 16) 中垣俊之：北海道新聞 2008年10月10日「「栄えある？「イグノーベル賞」受賞 「迷路を解く粘菌」って!？」
  - 17) 中垣俊之：岩手新聞 2008年10月9日「「パズルを解く粘菌の研究」に対するイグノーベル賞認知科学賞受賞の報道」
  - 18) 中垣俊之：中日新聞 2008年10月7日「「パズルを解く粘菌の研究」に対するイグノーベル賞認知科学賞受賞の報道」
  - 19) 中垣俊之：東奥新聞 2008年10月7日「「パズルを解く粘菌の研究」に対するイグノーベル賞認知科学賞受賞の報道」
  - 20) 中垣俊之：徳島新聞 2008年10月7日「「パズルを解く粘菌の研究」に対するイグノーベル賞認知科学賞受賞の報道」
  - 21) 中垣俊之：沖縄新聞 2008年10月7日「「パズルを解く粘菌の研究」に対するイグノーベル賞認知科学賞受賞の報道」
  - 22) 中垣俊之：琉球新聞 2008年10月7日「「パズルを解く粘菌の研究」に対するイグノーベル賞認知科学賞受賞の報道」
  - 23) 中垣俊之：日本海新聞 2008年10月7日「「パズルを解く粘菌の研究」に対するイグノーベル賞認知科学賞受賞の報道」
  - 24) 中垣俊之：愛媛新聞 2008年10月7日「「パズルを解く粘菌の研究」に対するイグノーベル賞認知科学賞受賞の報道」
  - 25) 中垣俊之：神戸新聞 2008年10月7日「「パズルを解く粘菌の研究」に対するイグノーベル賞認知科学賞受賞の報道」
  - 26) 中垣俊之：宮崎新聞 2008年10月7日「「パズルを解く粘菌の研究」に対するイグノーベル賞認知科学賞受賞の報道」
  - 27) 中垣俊之：山陽新聞 2008年10月7日「「パズルを解く粘菌の研究」に対するイグノーベル賞認知科学賞受賞の報道」
  - 28) 中垣俊之：四国新聞 2008年10月7日「「パズルを解く粘菌の研究」に対するイグノーベル賞認知科学賞受賞の報道」
  - 29) 中垣俊之：新潟新聞 2008年10月7日「「パズルを解く粘菌の研究」に対するイグノーベル賞認知科学賞受賞の報道」
  - 30) 中垣俊之：静岡新聞 2008年10月7日「「パズルを解く粘菌の研究」に対するイグノーベル賞認知科学賞受賞の報道」
  - 31) 中垣俊之：福井新聞 2008年10月7日「「パズルを解く粘菌の研究」に対するイグノーベル賞認知科学賞受賞の報道」
  - 32) 中垣俊之：埼玉新聞 2008年10月7日「「パズルを解く粘菌の研究」に対するイグノーベル賞認知科学賞受賞の報道」
  - 33) 中垣俊之：山梨新聞 2008年10月7日「「パズルを解く粘菌の研究」に対するイグノーベル賞認知科学賞受賞の報道」
  - 34) 中垣俊之：山陰中央新聞 2008年10月7日「「パズルを解く粘菌の研究」に対するイグノーベル賞認知科学賞受賞の報道」
  - 35) Toth Agota、山田裕康、石黒章夫、手老篤史、中垣俊之、小林亮：中国新聞 2008年10月4日「広島大の小林教授、イグ・ノーベル賞 単細胞が迷路解く」
  - 36) T. Nakagaki：Dagens Nyheter 2008年8月30日“スウェーデン最大の大衆紙で見開き2頁の記事として、粘菌の知性に関する研究が「Svampar ar smartare an du tror」として紹介された。”
  - 37) T. Nakagaki：DiePresse 2008年7月25日“オーストリアの新聞にて、細胞の賢さに関する研究が「Einzeller sind so smart!»として紹介された。”
  - 38) 中垣俊之：産経新聞 2008年5月17日「産経新聞夕刊に、科学作家である竹内薫氏が我々の粘菌研究を紹介するコラムを書いた。」
- ・雑誌
- 1) A. Tero, R. Kobayashi and T. Nakagaki：DISCOVER-Science, Technology and The Future- 2009年1月1日“1月号にて100 TOP science stories of 2008 という特集が生まれ、我々の粘菌研究が「Slime molds show primitive smarts」として71位にランクイン”
  - 2) 中垣俊之：JST News 2009年1月1日「「ようこそ研究室へ」欄にて「単細胞生物「粘菌」から生物の賢さを学ぶ」として紹介された」
  - 3) 中垣俊之：クオリティ 2009年1月1日「各界リーダー10

- 人に一問一答コーナーで「単細胞生物の能力を応用してカーナビやロボットを作りたい」として紹介された」
- 4) 中垣俊之：北方ジャーナル 2009年1月1日「クローズアップ欄にて「迷路を解く粘菌の研究でイグノーベル賞受賞」
  - 5) 中垣俊之：YOZEMI JOURNAL 2008年12月10日「予備校代ゼミの発行する雑誌の研究室探訪欄で「数理生物学」として我々の研究室が紹介された」
  - 6) 中垣俊之：現代科学 2008年12月1日「12月号に「迷路を解く粘菌がイグノーベル賞に」という紹介記事」
  - 7) T. Nakagaki：New Scientist 2008年10月29日「Smart amoebas reveal origins of primitive intelligence」(By Collin Barras) という記事の中で、粘菌の時間記憶能について、memristor 素子を用いた電子回路による実装の可能性について紹介された。」
  - 8) T. Nakagaki：NATURE 2008年10月9日「NEWS 欄にてイグノーベル賞記事のなかで紹介された」
  - 9) 中垣俊之：諸君！（文芸春秋社）2008年9月1日「科学作家竹内薫による連載「サイエンティスト異能者列伝」の第二回として「粘菌にも知性がある」にて208-215頁にわたり紹介された。2008年9月号。」
  - 10) T. Nakagaki：New Scientist 2008年04月11日「Ten Weirdest computersという特集記事で、light computer, quantum computer, DNA computer などとならんで我々の粘菌計算の研究が mouldy computer としてランクインした。」
- ・テレビ・ラジオ
- 1) 三枝徹、手老篤史、中垣俊之：NHK 教育TV「サイエンスゼロ」2008年12月28日「教育科学番組であるサイエンスゼロでの2008年年間ランキング特集にて、「ゼロのツボ」コーナーで粘菌研究がイグノーベル賞受賞とともに紹介された。」
  - 2) 中垣俊之：テレビ局NHK北海道 2008年11月13日「夕方のニュース「まるごとニュース北海道」にて「イグノーベル賞と粘菌研究について」報道された。」
  - 3) 中垣俊之：テレビ局UHB 2008年10月21日「夕方のニュースにて「イグノーベル賞と粘菌研究について」報道された。」
  - 4) 中垣俊之：NHK ラジオ 2008年10月3日「番組「ラジオ朝一番」にて文化の日になんだ話題として「迷路を解く粘菌の研究」として15分ほどインタビュー形式で紹介された。」
  - 5) 手老篤史、小林亮、中垣俊之：フジテレビ「特ダネ」2008年10月1日「「パズルを解く粘菌の研究」に対するイグノーベル賞認知科学賞受賞の報道」
  - 6) 中垣俊之：FM ラジオ局 J-WAVE の番組「竹内薫の Jam the world」2008年6月25日「上記FM ラジオ局（東京六本木ヒルズ）の番組に出演しインタビューを受けた。20分間ほどの番組。」
  - 7) 中垣俊之：NHK 教育TV「サイエンスゼロ」2008年5月

24日「教育科学番組であるサイエンスゼロで粘菌特集が組まれた。そのなかの中心テーマとして我々の粘菌研究が紹介された。」

**f. 外国人研究者の招聘**（氏名、国名、期間）

- 1) Kai Ramsch, Germany（2009年3月16日～2009年4月10日）
- 2) Martin Middendorf, Germany（2009年3月3日～2009年3月31日）
- 3) Vladimir Vanag, USA（2009年2月8日～2009年2月15日）
- 4) Serge Bielawski, France（2008年12月18日～2008年12月21日）
- 5) Christophe Szwarz, France（2008年12月18日～2008年12月21日）
- 6) Madeleine Beekman, Australia（2008年8月26日～2008年9月6日）
- 7) David Sumpter, Sweden（2008年8月23日～2008年9月6日）
- 8) Anders Johanson, Sweden（2008年8月23日～2008年9月6日）
- 9) Boris Granovskiy, Sweden（2008年8月23日～2008年9月6日）
- 10) Stam Nicolis, Sweden（2008年8月23日～2008年9月6日）
- 11) Martin Middendorf, Germany（2008年8月21日～2008年9月7日）
- 12) Tanya Latty, Australia（2008年8月19日～2008年9月6日）

**g. 北大での担当授業科目**（対象、講義名、担当者、期間）

- 1) 理学部、生体高分子物性論1、中垣俊之、2008年10月1日～2009年3月31日
- 2) 全学共通、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論1、中垣俊之、2008年7月1日～2008年7月3日
- 3) 全学共通、トポロジー理工学特別講義1、中垣俊之、2008年6月27日
- 4) 理学院、細胞情報学特論、中垣俊之、2008年6月3日～2008年7月22日
- 5) 理学院、生命理学概論、中垣俊之、2008年5月21日
- 6) 理学院、生命解析科学研究1、中垣俊之、2008年4月1日～2009年3月31日
- 7) 理学院、生命解析科学実験、中垣俊之、2008年4月1日～2009年3月31日
- 8) 理学院、生命解析科学論文購読1、中垣俊之、2008年4月1日～2009年3月31日

**i. ポスドク・客員研究員など**

- ・ポスドク（2名）  
手老篤史、三枝 徹

## 電子計測制御部門

### 研究目的

電子計測を基盤とする計測と制御に関する研究を中心課題とし、光や電子の特性を利用した高速、高感度、高精度計測法に基づき、生体のような柔軟性と適応性をもつ新しい制御システムについて研究することを目的としている。



## 光システム計測研究分野

教授 笹木敬司（阪大院、工博、1997.11～）  
准教授 藤原英樹（北大院、工博、2008.6～）  
助教 藤原英樹（北大院、工博、2005.7～2008.5）  
ポスドク 高島秀聡（北大院、情科博、2007.4～）  
田中嘉人（阪大院、工博、2008.10～）

院 生

博士課程

永田智久、シャハルル・カドリ・アヨブ

修士課程

浅井健志、市橋和明、上田哲也、谷田真人、  
中村真一郎

### 1. 研究目標

本研究分野では、光テクノロジーの究極を目指して、光の量子性・波動性をフルに活用した新しい概念に基づく光情報処理、光計測制御など、新しい世代の光科学の研究に取り組んでいる。具体的には、単一光子制御デバイスや高効率レーザーの開発を目指して、微小球やトロイド、ランダム構造等の微細構造体における光子閉じ込めの解析や発光ダイナミクス制御の研究を進めている。また、量子リソグラフィ技術の実現に向け、量子力学的なもつれ合いをもつ光子対の発生や制御、もつれ合い光子を用いた光反応の観測に取り組んでいる。さらに、ナノ空間の光計測技術やレーザーマニピュレーションを利用した極微弱な力の解析、単一光子源の開発に向けた単一分子・単一ナノ微粒子の分光計測システムの開発を行っている。

### 2. 研究成果

(a) 金属ナノ構造中に誘起される光局在場の散乱型近接場イメージング

金属ナノ構造の局在プラズモン共鳴により、光と物質の相互作用を増強する研究(例えば、表面増強ラマン散乱や2光子光重合等の非線形現象の増強効果等)が盛んに報告されている。金属ナノ構造では、ナノメートルオーダーの微小空間に高強度の光局在場が発生し、その特性はナノ構造のサイズや形状、材質に強く依存することが知られている。この光局在場の特性を明らかにするため、これまでに数値解析的な手法を用いた研究は数多く報告されているものの、実験的にナノメートルオーダーの高い空間分解能で局在場を直接観察・評価する方法は十分に確立されているとは言い難い。本研究では、高空間分解能で金属ナノ構造の形状像と光局在場の同時イメージングを行うための散乱型の近接場顕微鏡を構築し、近接した金ナノ微粒子間のナノメートルオーダーのギャップ部に誘起される光局在場の測定を試みた。その結果、微粒子間のナノギャップの形状像とそこで生じる光局在場をナノメートルスケールの高い空間分

解能で同時観察することに成功した(図1)。

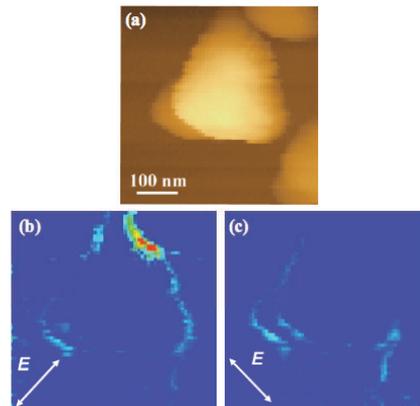


図1. 金ナノ粒子の(a)形状像と(b, c)近接場像。矢印は入射レーザー光の偏光方向。

(b) テーパーファイバ結合微小球共振器における位相シフトスペクトルの測定

テーパーファイバ結合微小球共振器を量子位相ゲート等の量子情報デバイスへ応用するためには、テーパーファイバ結合微小球共振器単体の、共鳴に伴う光位相シフトを十分に理解・制御することが必要である。そこで我々は、その光位相シフトの周波数依存性の測定を行った。直径600nm～1μmのテーパーファイバに、直径80～200μmの微小球を近接させ、光ファイバの入射偏光角度を斜め45°直線偏光に固定した状態で、波長を780nm近傍で掃引し、微小球共鳴モードにおける透過光の偏光状態を測定した。出射光の偏光状態からストークスパラメータのスペクトルを取得し、位相シフト量を導出した。位相シフトスペクトルは、球とファイバの結合状態に依存する。本研究の結果から、アンダーカップリング状態からオーバーカップリング状態へと結合状態が転移したことを確認した(図はオーバーカップリング状態に対応する)。これにより、量子力学的な位相の変化を正確に分離して測定できると考えられる。

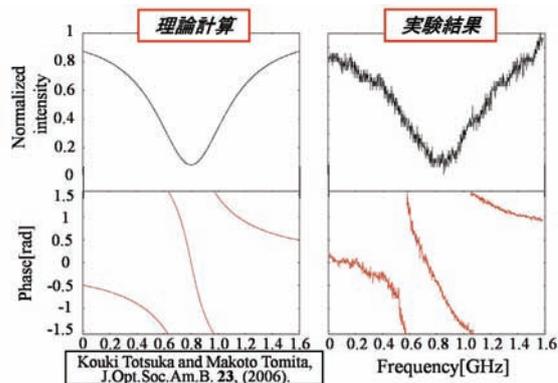


図2. オーバーカップリング状態における位相シフトスペクトルの計算結果と実験結果。

(c) トロイド共振器の作製

近年、新規ナノフォトニックデバイスを実現するため微小共振器が注目されている。様々な微小共振器の中でも、トロイド共振器は高いQ値と小さいモード体積、さらに、

高効率光入出力が可能な優れた微小共振器のひとつとして動作する。我々は、トロイド共振器を用いたナノフォトニックデバイスの実現を目指し、トロイド共振器の作製を行いテーパファイバとのカップリング実験を行った。図3に直径116 $\mu\text{m}$ のトロイド共振器の透過スペクトルを示す。周期的なディップが観測され、このピーク間隔(1.1nm)がトロイドの直径から推測されるモード間隔(1.14nm)と一致していることから、トロイド共振器のモードを観測していると考えられる。

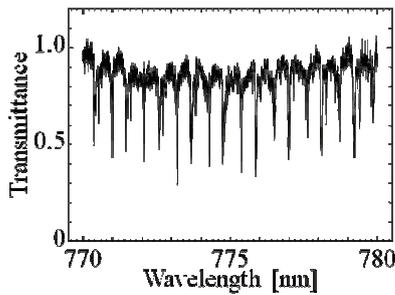


図3. テーパファイバにカップルした直径116 $\mu\text{m}$ のトロイド共振器の透過スペクトル。

(d) 2光子干渉縞に対する量子もつれ合い光子の入力状態の影響解析

レーザー光を用いた従来のリソグラフィ技術では、用いる光の回折限界によって、加工の細線化に原理的な限界が存在する。しかし近年、量子もつれ合い光を用いることで、回折限界を超えた干渉縞パターンの作製についての研究が盛んに行われている。本研究でもこれまでに、高精度な2光子もつれ合い状態を干渉させることで、初めて実際に回折限界を超える干渉縞の直接観察に成功している。本年度の研究では、この形成される2光子干渉縞パターンの入力状態依存性について数値解析的に解析を行う為の手法を開発し、様々な入力状態が形成される干渉縞パターンに及ぼす影響について検討を行った。図4は、実験的に測定した入力状態(偏光もつれ合い状態)の状態密度行列((a)実部と(b)虚部)と、この入力状態を用いて計算を行った2光子干渉縞を示している。

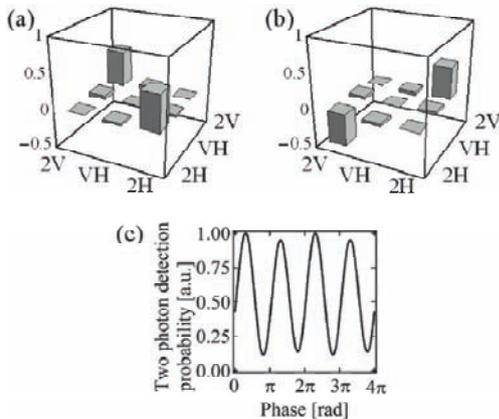


図4. 実験的に測定した偏光もつれ合い状態の状態密度行列の(a)実部と(b)虚部。入力状態の状態密度行列から計算された2光子干渉縞。

(e) 光子検出時間間隔法を用いた金薄膜表面上における単一量子ドットのトラップ準位寿命解析

量子ドットは蛍光標識や単一光子源、太陽電池等の光・電子デバイスを構成する新規ナノ材料として広く注目されているが、特に発光デバイスへの応用の場合、単一量子系特有の発光明減現象による発光効率の減少が問題となっており、この現象の機構解明や抑制が課題となっている。この発光明減は、光励起キャリアの基板表面等のトラップ準位への捕捉によって起きるため、量子ドットの置かれた基板状態に強く依存する。本研究では、基板表面のトラップ準位の発光ダイナミクスへの影響を明らかにするため、光子検出時間間隔法を用いて、各基板上における単一量子ドットの発光ダイナミクスやトラップ準位寿命の解析を試みた。図5は、(a)ガラス、(b)金薄膜(50nm)、(c)金薄膜上にSiO<sub>2</sub>層(20nm)を堆積させた基板上における単一CdSe/ZnS量子ドットからの発光の光子検出時間差ヒストグラムを示している。結果から、ガラス基板上では現れているトラップ準位に対応する遅い減衰成分が金薄膜上では観えなくなっている事から、基板の変化によりトラップ準位も変化している事を確認した。また、消光効果を抑制する為のSiO<sub>2</sub>スペーサー層を導入した場合には、ガラス基板上とは異なる遅い減衰成分が現れており、異なるトラップ準位が現れていることを示唆している。以上の結果から、量子ドットの発光ダイナミクスへのトラップ準位の影響が基板によって変化する事を明らかにした。

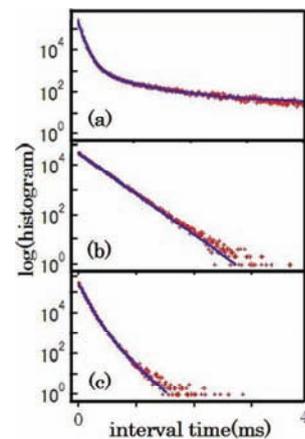


図5. 光子検出時間間隔ヒストグラムの基板依存性。基板：(a)ガラス基板、(b)金薄膜(厚み50nm)、(c)金薄膜上のSiO<sub>2</sub>層(厚み20nm)。

(f) 欠陥領域を用いたランダムレーザー発振制御

ランダム構造は簡便かつ安価な微小共振器構造として注目されているが、構造内にランダムに現れる局在モード制御の困難さが応用上の問題となっている。これに対し我々は、構造内に設けた欠陥領域を利用した局在モードの制御方法について提案を行っている。本年度の研究では、レート方程式を導入した2次元FDTD法を用いてランダム構造内の欠陥領域に誘起されるレーザー発振現象の数値解析を行った。図6は、利得スペクトルとランダム構造の周波数

特性が一致している場合（上図）と一致しない場合（下図）のレーザー発振強度分布の計算結果を示している。構造の周波数特性と利得スペクトルが一致している場合には、導波路を介してレーザー発振光が出力されているのに対し、一致しない場合には、導波路と結合したモードではなく、構造全体から発振光がランダムに出力している様子が確認できる。これらの結果から、構造パラメータの最適化によって、本来ランダムに誘起されるレーザー発振モードの特性を構造内の欠陥領域によって制御できる事を示した。

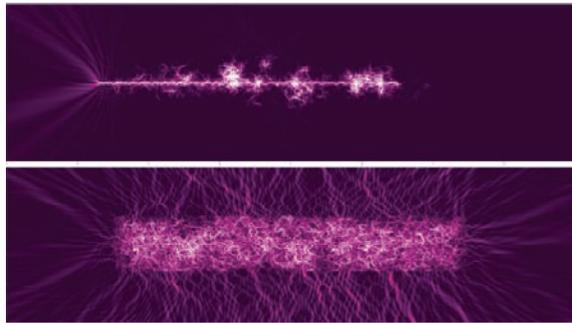


図6. 利得スペクトルとランダム構造の周波数特性が一致している場合（上図）と一致しない場合（下図）のレーザー発振強度分布。

### 3. 今後の研究の展望

本研究分野では現在、科学研究費課題として「放射圧を利用した非破壊光子検出法の開発」、「超狭帯域レーザー顕微分光イメージングを用いた高次機能性構造の光局在反応解析」の研究を遂行中である。また、総務省戦略的情報通信研究開発推進制度のプロジェクトとして「光子間の高効率固体量子位相ゲートの実現に関する研究」の研究を量子情報フォトンクス研究分野との共同研究として実施している。さらに、科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業のプロジェクトとして「ランダム構造内の欠陥領域を利用した光局在モード制御」の研究を遂行中である。これらのプロジェクトの展開として、(a) テーパファイバー結合微小球・トロイド構造を用いた光子制御デバイスの開発、(b) パラメトリック蛍光対を用いた光子数状態の制御、(c) 輻射場を制御した単一分子の分光計測、(d) もつれ合い光子を用いた量子リソグラフィ要素技術開発、(e) 高空間分解分光イメージングシステムの構築、(f) 単一光子制御デバイスの作製と特性解析、(g) ナノ構造体による光制御技術の開発、(h) 光ナノ計測を用いた微粒子間相互作用力測定、等の研究テーマを遂行する予定である。

## 4. 資料

### 4.1 学術論文等

#### a. 学術論文

- 1) K. Ueno, S. Juodkazis, T. Shibuya, Y. Yokota, V. Mizeikis, K. Sasaki and H. Misawa : “Nanoparticle Plasmon-Assisted Two-Photon Polymerization Induced by Incoherent Excitation Source”, *Journal of the American Chemical Society*, 130(22) : 6928-6929 (2008)
- 2) R. Okamoto, H. F. Hofmann, T. Nagata, J. O'Brien, K. Sasaki and S. Takeuchi : “Beating the standard quantum limit: phase super-sensitivity of N-photon interferometers”, *New Journal of Physics*, 10 : 073033-1-073033-9 (2008)
- 3) D. Kawase, Y. Miyamoto, M. Takeda, K. Sasaki and S. Takeuchi : “Observing Quantum Correlation of Photons in Laguerre-Gauss Modes Using the Gouy Phase”, *Phys. Rev. Lett.*, 101 : 050501/1-050501/4 (2008)
- 4) R. Okamoto, J. L. O'Brien, H. F. Hofmann, T. Nagata, K. Sasaki and S. Takeuchi : “An Entanglement Filter”, *Science*, 323 : 483-485 (2009)
- 5) Y. Nishijima, K. Ueno, S. Juodkazis, V. Mizeikis, H. Fujiwara, K. Sasaki and H. Misawa : “Lasing with well-defined cavity modes in dye-infiltrated silica inverse opals”, *Opt. Exp.*, 17(4) : 2976-2983 (2009)
- 6) H. Fujiwara, Y. Hamabata and K. Sasaki : “Numerical analysis of resonant and lasing properties at a defect region within a random structure”, *Opt. Exp.*, 17(5) : 3970-3977 (2009)
- 7) D. Kawase, Y. Miyamoto, M. Takeda, K. Sasaki and S. Takeuchi : “Effect of high-dimensional entanglement of Laguerre-Gaussian modes in parametric down conversion”, *Journal Of Optical Society Of America B*, 26(4) : 797-804 (2009)

### 4.2 総説・解説・評論等

- 1) 高島秀聡、藤原英樹、笹木敬司、竹内繁樹：「ファイバー結合微小球共振器を用いた固体量子位相ゲートの実現に向けて」、*光学、社）応用物理学会分科会日本光学会*、37(12) : 686-691 (2008)

### 4.7 講演

#### a. 国際会議招待講演

- 1) S. Takeuchi, D. Kawase, Y. miyamoto, M. Takeda and K. Sasaki : “Observing quantum correlation of photons in Laguerre-Gaussmodes using the Gouy phase”, 17th International Laser Physics Workshop(2008), Norwegian University of Science and Technology, Norway (2008-06 ~2008-07)
- 2) S. Takeuchi, D. Kawase, Y. miyamoto and K. Sasaki :

- “Controlling photonic qubits using geometrical phase”, SPIE Optics + Photonics2008, San Diego Convention Center, USA (2008-08)
- 3) K. Sasaki : “Temporal and Spatial Interference of Entangled Photon Process”, Japan-Taiwan Joint Symposium on Organized Nanomaterials and Nanostructures Related to Photoscience , kyoto,Japan (2008-11)
- b. 国内会議招待講演**
- 1) 笹木敬司 : 「フォトンの制御・操作技術とその展望」、光科学技術研究会、北海道大学電子科学研究所 (2009-03)
- 2) 笹木敬司 : 「微小共振器構造体における光局在場解析」、2009春季第56回応用物理学関係連合講演会、筑波大学筑波キャンパス (2009-03~2009-04)
- c. 国際会議一般講演**
- 1) K. Sasaki, Y. Kawabe, H. Fujiwara, R. Okamoto and S. Takeuchi : “Patial Interference Fringe of Entangled Two-Photon Process Beating The Diffraction Limit”, XXII IUPAC SYMPOSIUM ON PHO-TOCHEMISTRY, Gothenburg Convention Centre, Sweden (2008-07~2008-08)
- 2) H. Fujiwara, T. Chiba, J. Hotta, S. Takeuchi and K. Sasaki : “Dynamical Analysis of Triplet Lifetime of Single Molecules Using Photon Inter-Detection Time Recording”, XXII IUPAC SYMPOSIUM ON PHOTOCHEMISTRY, Gothenburg Convention Centre, Sweden (2008-07 ~ 2008-08)
- 3) T. Nagata, R. Okamoto, H. F. Hofmann, K. Sasaki, and S. Takeuchi : “Demonstration of a non-local quantum filter”, The Ninth International Conference on QCMC2008, University of Calgary, Canada (2008-08)
- 4) R. Okamoto, J. L. O’Brien, H. F. Hofmann, T. Nagata, K. Sasaki, and S. Takeuchi: “Analysis of errors in an optical Controlled-NOT gate”, The Ninth International Conference on QCMC2008, University of Calgary, Canada (2008-08)
- 5) H. Fujiwara and K. Sasaki : “Numerical Analysis of Localized Modes within a Waveguide Structure Surrounded by a Random Structure”, 6th International Conference on Photo-Excited Processes and Applications, Sapporo, Japan (2008-09)
- 6) H. Takashima, H. Fujiwara, S. Takeuchi, K. Sasaki and M. Takahashi : “Analysis of input-output characteristic of fiber-coupled microsphere laser using rate equations”, EOS Annual Meeting 2008, Paris, France (2008-09~2008-10)
- 7) T. Asai, H. Takashima, H. Fujiwara, K. Sasaki and S. Takeuchi : “Optical Phase Shift Observed in a Resonance Mode of a Tapered-Fiber Coupled with a Microsphere Resonator”, 4th Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium, Osaka University, Japan (2008-09~2008-10)
- 8) M. Tanida, T. Nagata, R. Okamoto, K. Sasaki and S. Takeuchi : “Hong-Ou-Mandel Dip with Independence Heralding Single Photon Sources”, 4th Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium, Osaka University, Japan (2008-09~2008-10)
- 9) R. Okamoto, J. L. O’Brien, H. F. Hofmann, T. Nagata, K. Sasaki and S. Takeuchi : “Realization of non-local quantum filter”, International Symposium on Physics of quantum information processing, Nara, Japan (2008-11)
- 10) R. Okamoto, J. L. O’Brien, H. F. Hofmann, T. Nagata, K. Sasaki and S. Takeuchi : “Beating standard quantum limit: The sensitivity of N photon interferometers”, International Symposium on Physics of quantum information processing, Nara, Japan (2008-11)
- 11) S. Takeuchi, T. Asai, H. Takashima, H. Fujiwara and K. Sasaki : “Micro-sphere resonator coupled with a tapered for quantum information processing”, International Symposium on Physics of quantum information processing, Nara, Japan (2008-11)
- 12) T. Nagata, R. Okamoto, H. F. Hofmann, K. Sasaki and S. Takeuchi: “Toward high-fidelity operation of linear-optics quantum gates”, International Symposium on Physics of quantum information processing, Nara, Japan (2008-11)
- 13) M. Tanida, T. Nagata, R. Okamoto, K. Sasaki and S. Takeuchi: “Highly-pure heralding single-photon sources for linear optics quantum computation”, International Symposium on Physics of quantum information processing, Nara, Japan (2008-11)
- 14) D. Kawase, Y. miyamoto, M. Takeda, K. Sasaki and S. Takeuchi : “Manipulation of optical quNits using geometrical phase”, International Symposium on Physics of quantum information processing, Nara, Japan (2008-11)
- 15) R. Okamoto, J. L. O’Brien, H. F. Hofmann, T. Nagata, K. Sasaki, and S. Takeuchi : “Evaluation of an entanglement filter”, The 10th RIES-Hokudai International Symposium on “綾” [aya], Hokkaido University Conference Hall, Japan (2008-12)
- 16) T. Nagata, R. Okamoto, H. F. Hofmann , K. Sasaki and S. Takeuchi : “Toward high-fidelity operation of linear-optics quantum gates”, The 12th SANKEN International Symposium Joint Meeting of The 7th SANKEN Nanotechnology Center Symposium The 2nd SANKEN MSTeC Symposium The 1st SANKEN Alliance Symposium, Convention Center, Osaka University, Japan (2009-01)
- 17) R. Okamoto, J. L. O’Brien, H. F. Hofmann, T. Nagata, K. Sasaki and S. Takeuchi : “Evaluation of an entanglement filter”, The 12th SANKEN International Symposium Joint Meeting of The 7th SANKEN Nanotechnology Center Symposium The 2nd SANKEN MSTeC Symposium The 1st

SANKEN Alliance Symposium, Convention Center, Osaka University, Japan (2009-01)

- 18) T. Nagata, R. Okamoto, H. F. Hofmann, K. Sasaki and S. Takeuchi: "Toward high-fidelity operation of linear-optics quantum gates", The 2nd International Symposium on Global COE Program of Center for Next-Generation Information Technology Based on Knowledge Discovery and Knowledge, International Conference Hall, Hokkaido University, Japan (2009-01)
- 19) H. Fujiwara and K. Sasaki: "Structural parameter dependence of localized modes induced in a waveguide structure surrounded by a random medium", SPIE Photonics West 2009, San Jose Convention center, USA (2009-01)

#### d. 国内会議口頭発表

- 1) 藤原英樹:「ランダム構造内の欠陥領域を利用した光局在モード制御」、さきがけ「物質と光作用」第4回領域会議、東京ガーデンパレス (2008-06)
- 2) 藤原英樹、笹木敬司:「超狭帯域レーザー顕微分光イメージングを用いた高次機能性構造の光局在反応解析」、「光-分子強結合反応場の創成」第3回シンポジウム(特定領域)、北海道大学大学院理学研究科 (2008-06)
- 3) 藤原英樹、笹木敬司:「ランダム構造内導波路中に誘起される局在モード特性の構造パラメータ依存性」、2008秋季 第69回応用物理学学会学術講演会、中部大学春日井キャンパス (2008-09)
- 4) 市橋和明、藤原英樹、笹木敬司:「フォトンフォース計測を用いた2粒子間相互作用の研究」、2008秋季 第69回応用物理学学会学術講演会、中部大学春日井キャンパス (2008-09)
- 5) 上田哲也、石川綾子、高島秀聡、藤原英樹、松尾保孝、居城邦治、笹木敬司、竹内繁樹:「単一オリゴヌクレオチド/銀ハイブリッドナノ粒子の発光特性解析」、2008秋季 第69回応用物理学学会学術講演会、中部大学春日井キャンパス (2008-09)
- 6) 岡本亮、笹木敬司、竹内繁樹:「非局所量子フィルタの検証実験」、アライアンスG2分科会、東京工業大学すずかけ台キャンパス (2008-10)
- 7) 谷田真人、永田智久、岡本亮、笹木敬司、竹内繁樹:「高い2光子干渉性を持つ伝令付単一光子源の実現」、第19回量子情報技術研究会(QIT19)、大阪府立大学中百舌鳥キャンパス (2008-11)
- 8) 岡本亮、ホフマン F. ホルガ、永田智久、オブライエン L. ジェレミー、笹木敬司、竹内繁樹:「多光子干渉を用いた位相測定と位相感度」、第19回量子情報技術研究会(QIT19)、大阪府立大学中百舌鳥キャンパス (2008-11)
- 9) 浅井健志、高島秀聡、藤原英樹、笹木敬司、竹内繁樹:「テーパファイバ結合微小球共振器の共鳴モードにおける光位相シフト」、第19回量子情報技術研究会

(QIT19)、大阪府立大学中百舌鳥キャンパス (2008-11)

- 10) 中村真一郎、笹木敬司、竹内繁樹:「周期構造を導入したテーパ光ファイバ」、第19回量子情報技術研究会(OIT19)、大阪府立大学中百舌鳥キャンパス (2008-11)
- 11) 藤原英樹、竹内繁樹、笹木敬司:「ポリマーフィルム中単一分子の発光ダイナミクスの時間応答解析」、「ポストシリコン物質・デバイス創製基盤技術アライアンス」平成20年度成果報告会、北海道大学学術交流会館 (2008-12)
- 12) 高島秀聡、浅井健志、藤原英樹、笹木敬司、竹内繁樹:「低温でのテーパファイバと微小球共振器とのカップリング」、日本物理学会2009年春季第64回年次大会、立教大学池袋キャンパス (2009-03)
- 13) 藤原英樹、池田匠、笹木敬司:「ランダム構造内導波路におけるランダムレーザー発振特性の解析」、2009春季第56回応用物理学関係連合講演会、筑波大学 筑波キャンパス (2009-03 ~2009-04)
- 14) 市橋和明、藤原英樹、笹木敬司:「3次元フォトンフォース計測システムを用いた2粒子間相互作用解析」、2009春季第56回応用物理学関係連合講演会、筑波大学 筑波キャンパス (2009-03~2009-04)

#### 4.9 共同研究

##### a. 海外機関との共同研究

- 1) Dr. Daniel Day and Prof. Keiji Sasaki: "Nanometric optical sensing for characterisation of microbioreactors" The funding are from the Australian Research Council (ARC). ARC Linkage International Award, (2008-2010)
- 2) H. Kaiju, A. Ishibashi, H. Fujiwara and Y. Rakovich (北海道大学電子科学研究所): "The experimental investigation of interface of nano-structures and applications", (2008~2009)

##### d. 受託研究

- 1) 藤原英樹(科学技術振興機構 戦略的創造研究推進事業(さきがけタイプ)):「ランダム構造内の欠陥領域を利用した光局在モード制御」(2007~2010)
- 2) 竹内繁樹、笹木敬司、藤原英樹、ホフマン F. ホルガ(戦略的情報通信研究開発制度(SCOPE) 特定領域重点型研究開発(情報通信新技術・デバイス技術)):「光子間の高効率固体量子位相ゲート素子の実現に関する研究」(2008)

##### f. その他

- 1) 藤原英樹(科学技術振興機構 戦略的創造研究推進事業(さきがけタイプ)):「ランダム構造内の欠陥領域を利用した光局在モード制御」(2007~2010)

#### 4.10 予算獲得状況

##### a. 科学研究費補助金

- 1) 笹木敬司: 基盤研究A「放射圧を利用した非破壊光子検出法の開発」(2006~2009)

- 2) 笹木敬司：特定領域研究「超狭帯域レーザー顕微分光イメージングを用いた高次機能的構造の光局在反応解析」（2007～2010）

#### 4.12 社会教育活動

##### a. 公的機関の委員

- 1) 笹木敬司：ノーステック財団「研究開発助成事業」審査委員会 専門委員（2008.08.19～2009.03.31）
- 2) 笹木敬司：OPJ2008 顧問（2008.07.24～2009.03.31）
- 3) 笹木敬司：科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業（CREST）領域アドバイザー（2008.05.26～2010.03.31）
- 4) 笹木敬司：科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業（さきがけ）領域アドバイザー（2005.06.09～2009.06.08）

##### c. 併任・兼業

- 1) 笹木敬司：電気通信大学 レーザー次世代研究センター 共同研究員（2008.04.01～2010.03.31）
- 2) 藤原英樹：科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業 個人研究型（さきがけ）委嘱研究者（2007.10.01～2011.03.31）

##### f. 外国人研究者の招聘

- 1) Daniel Day, Australia（2008年4月17日～2008年4月24日）
- 2) Peter Dedecker, Belgium（2008年11月6日～2008年11月9日）
- 3) 堀田純一, Belgium（2009年1月8日～2008年1月18日）

##### g. 北大での担当授業科目（対象、講義名、担当者、期間）

- 1) 工学部、光エレクトロニクス、笹木敬司、2008年4月1日～2008年9月30日
- 2) 工学部、電磁気学、藤原英樹、2008年10月1日～2009年3月31日
- 3) 工学部、電子情報工学実験、藤原英樹、2008年4月1日～2009年3月31日
- 4) 情報科学研究科、情報エレクトロニクス特別演習、笹木敬司、2008年4月1日～2009年3月31日
- 5) 情報科学研究科、情報エレクトロニクス特別研究第一、笹木敬司、2008年4月1日～2009年3月31日
- 6) 情報科学研究科、情報エレクトロニクス特別研究第二、笹木敬司、2008年4月1日～2009年3月31日
- 7) 情報科学研究科、光情報システム学特論、笹木敬司、藤原英樹、2008年10月1日～2009年3月31日

##### i. ポスドク・客員研究員など

- ・ポスドク（2名）

  - 1) 高島秀聡（電子科学研究所非常勤研究員）
  - 2) 田中嘉人（電子科学研究所博士研究員）

##### j. 修士学位及び博士学位の取得状況

- ・修士課程（5名）

  - 1) 市橋和明：「フォトンフォース計測を用いた2粒子間相互作用解析法」
  - 2) 中村真一郎：「非線形光量子デバイスの実現に向けた研究」

- 3) 浅井健志：「テーパファイバ・微小球共振器間の結合状態制御と位相シフトスペクトルに関する研究」
- 4) 上田哲也：「光子統計解析による単一発光体の発光メカニズムの研究」
- 5) 谷田真人：「伝令付き単一光子源の2光子干渉性に関する研究」

## 量子計測研究分野

教授 栗城真也 (北大院、工博、1991.8～)  
准教授 小山幸子 (阪大院、博士(人間科学)、2004.3～)  
博士研究員 大塚 明香 (サザブトン大学、2007.4～)  
技術補助員 在原百合子 (苫・高専、2008.5～)  
院 生  
田中 光、河本隆史、向舘 健、青山岳人、大内健一  
下條暁司、李 昕

### 1. 研究目標

量子計測研究分野は、北海道大学・電子科学研究所の電子計測制御部門に所属し、量子効果に基づいた高感度電磁気計測の基礎と応用に関して研究を行っている。また、情報科学研究科・生命人間情報科学専攻の協力講座の研究室として大学院教育に関わっており、修士・博士課程の大学院生を主体とした研究教育を行っている。

本研究分野では高感度な磁気センサであり、ジョセフソン効果によりその機能を発現するSQUID (Superconducting Quantum Interference Device) を中心とし、

- ・ SQUID を用いた生体磁気計測法の研究
  - ・ MEG (脳磁界) 計測と解析によるニューロイメージング
  - ・ 高次機能を支える脳活動の解明
  - ・ 言語環境が聴覚野の発達に及ぼす影響
  - ・ 聴覚フィードバック効果と学習への応用
  - ・ 自発成分の抽出と位相解析・wavelet 解析
  - ・ 内因性の要因による脳活動の変調
  - ・ 音楽の構造認知に関わる脳磁界活動の計測
- を主要な研究としている。

### 2. 研究成果

「MEG による自発的脳活動の解析：和音進行列により誘起される聴覚野の活動」

音楽聴取では、各音の音響特性の分析を基に、連続や非連続、抑揚や終止等の内因性の感覚が生じる。これらの効果は、音楽構造理論では音の提示順序、即ち、音の周波数の序列表変化に伴う次音への期待に起因すると考えられている。殆どの西洋音楽作品は I-IV-V-I 等の特定の和音構造パターンに集約される。終止部の V (e.g., ソシレ) → I (e.g., ドミソ) という進行は完全終止 (PC: Perfect Cadence) と呼ばれる。半終止 (HC: Half Cadence) は V で係留し、次音 I による終止を強く想起させる。偽終止 (MC: Minor Cadence) は V → VI の様に親近調で微妙に終止する。即ち、終止・非終止 (または更なる連続への期待) という心理効果は、導音 V の後には I が想起される事を前提として、その期待の実現の度合いに基いて決定されると考えられる。

本実験では、これらの終止型を持つ和音進行列を提示した時の脳磁界活動を計測した。終止音提示後の無音期間の

活動に注目し、異なる終止型が脳活動に与える影響を調べた。

和音進行列が音楽的に終止しなかった場合、無音期間の両側頭葉付近の脳磁界信号に明確なピークが観察された。無音期間の活動の最大活動部位は聴覚野に推定された。信号源における活動の時系列変化から、2つの成分が観察された。第一成分のピーク潜時は無音期間開始後約 80ms、第二成分は約 150ms または 200ms だった。第二成分の潜時は和音進行列の終止型に依存して異なった。これらの聴覚野における皮質活動、特に第二成分は、被験者の内的な音のイメージ生成に関連がある事が示唆される。音楽の終わり方に依存して、音の提示のタイミング、または、タイミングと更にその音の高さに対する期待を反映すると提案される。

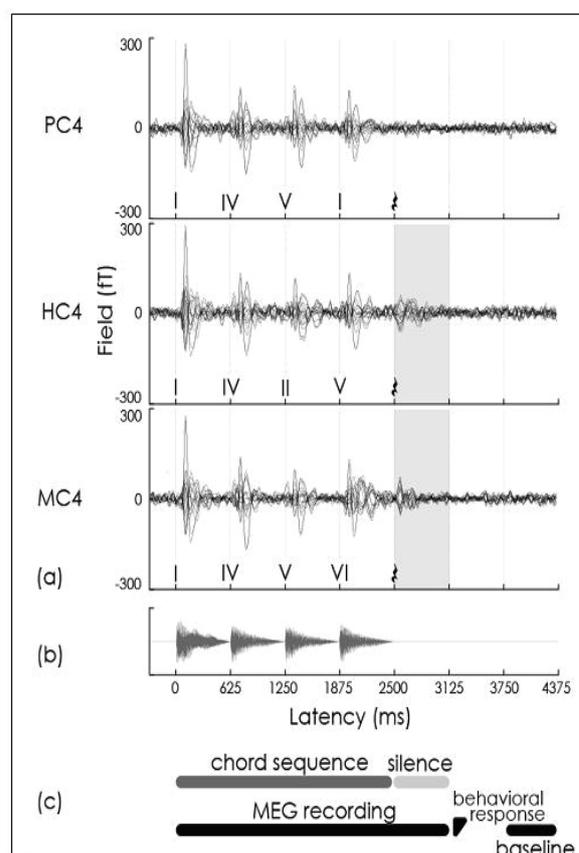


図 代表的な被験者 1 名の左半球側頭葉付近の 16 チャンネルから計測した、PC4, HC4, MC4 に対する脳磁界信号。各和音により誘発された P1m, N1m, P2m 反応が明確に観察された。2500ms における休止符は、その後続く 625ms の無音期間 (灰色掛) の開始を示す。PC4 以外の HC4, MC4 の無音期間に反応ピークが観察された。  
(b) I-IV-V-I 進行の PC4 の音波形態。各和音の長さは 625ms であり、ピアノ音の特徴であるアタックと線形の減衰から成る。  
(c) 脳磁界計測と刺激提示のデザイン。

## 4. 資料

### 4.1 学術論文等

- 1) A. Otsuka, S. Kuriki, N. Murata, T. Hasegawa: Neuro-magnetic responses to chords are modified by preceding musical scale. *Neuroscience Research*, 60(1): 50-55 (2008).
- 2) K. Takeda, H. Mori, A. Yamaguchi, H. Ishimoto, T. Nakamura, S. Kuriki, T. Hozumi, S. Ohkoshi: High temperature superconductor micro-superconducting-quantuminterference-device magnetometer for magnetization measurement of a microscale magnet. *Review of Scientific Instrument*, 79: 033909-1-7 (2008).
- 3) 鷲尾大輔、栗城眞也：複合音の時間特性による聴覚誘発 MEG 応答の変化. *生体医工学*, 46(1) : 103-108 (2008).
- 4) 竹市博臣、寺尾敦、竹内文也、豊澤悠子、小山幸子：M系列変調法を用いた談話理解評価に関する脳領域のfMRIによる同定. *認知神経科学*, 10(1) : 99-108(2008).
- 5) 竹市博臣、小山幸子、松本秀彦、諸富隆：ランダムブロープ法と談話理解の脳内機構. *臨床脳波*, 50(9) : 524-530 (2008).
- 6) 軍司敦子、小山幸子、豊村 暁、小川昭利、千住淳、東條吉邦、加我牧子：小児の発話と聴覚フィードバック効果. *信学技報*, 108 : SP2008-39, 109-113 (2008).

### 4.2 総説・解説・評論等

- 1) 栗城眞也：“低温・超電導技術の現状と将来展望「エレクトロニクス応用」”, *低温ジャーナル*, 2:10-13 (2008).

### 4.4 著書

- 1) Kakigi R, K. Yokosawa, Kuriki S, eds.: “BIOMAGNEISM: Interdisciplinary Research and Exploration”, *Proceedings of the 16th International Conference on Biomagnetism*, pp. 1-284 (Hokkaido University Press, 2008).

### 4.7 講演

#### i) 学会

- 1) S. Koyama, A. Toyomura, T. Miyamoto, A. Terao, T. Omori, H. Murohashi, S. Kuriki: Neural activation to one's own, friend's and stranger's voice: an fMRI study. *The 15th Annual Cognitive Neuroscience Society Meeting* (San Francisco, 2008-4).
- 2) H. Takeichi, S. Koyama, B. Foster, D. Liley: Coherence analysis of EEG response to speech modulated by m-sequence. *The 15th Annual Cognitive Neuroscience Society Meeting* (San Francisco, 2008-4)
- 3) A. Toyomaki, S. Koyama, Y. Toyosawa, F. Takeuchi, H. Takeichi, S. Kuriki: Hemispheric difference in MEG responses to short temporal gaps. *The 15th Annual Cogni-*

*tive Neuroscience Society Meeting* (San Francisco, 2008-4).

- 4) Y. Inoue, A. Ogawa, K. Arai, H. Matsumoto, A. Toyomaki, H. Takeichi, T. Omori, S. Koyama, T. Morotomi, M. Kitazaki: Feature Analysis of Event-related Brain Potentials by Statistical Classification: Application of Naive Bayes Method and Principal Component Analysis to Predicting Auditory Stimuli, *14th Annual Meeting of the Organization for Human Brain Mapping* (Melbourne, 2008-06)
- 5) 大塚明香、玉城祐二、栗城眞也：音楽的な和音進行列の聴取に伴う終止音の想起について：脳磁界活動の計測. *第10回日本ヒト脳機能マッピング学会* (山形, 2008-6).
- 6) 河本隆史、桑野晃希、栗城眞也：色相の異なる視覚画像による自発性リズムの変調. *第23回日本生体磁気学会* (東京, 2008-6) .
- 7) 小山幸子、豊巻敦人、豊澤悠子、竹内文也、竹市博臣、栗城眞也：純音に挿入された無音部に対する誘発脳磁場. *第23回日本生体磁気学会* (東京, 2008-6) .
- 8) 田中光、横澤宏一、大塚明香、栗城眞也：自発脳磁波における聴覚性注意効果の検討. *第23回日本生体磁気学会* (東京, 2008-6).
- 9) 大塚明香、関大輔、横澤宏一、栗城眞也：刺激音の音圧と周波数成分の増加に対する聴覚性脳磁界反応：第23回日本生体磁気学会 (東京, 2008-6).
- 10) 軍司敦子、小山幸子、豊村暁、小川昭利、千住淳、東條吉邦、加我牧子：小児の発話と聴覚フィードバック効果. *日本音響学会音声研究会* (札幌2008-6).
- 11) 荒井宏太、松本秀彦、諸富隆、小山幸子、竹市博臣、豊巻敦人:純音刺激のONSETとOFFSET刺激持続時間の種類数の減少がAEPへ及ぼす影響. *第26回日本生理心理学会大会* (沖縄, 2008-07)
- 12) S. Koyama, F. Takeuchi, H. Takeichi. A. Cichocki: MEG responses to speech sounds with m-sequence modulation. *第31回日本神経科学大会* (東京, 2008-07)
- 13) H. Takeichi, S. Koyama: Volterra Series Analysis of Scalp EEG Responses to Spoken Sentences Modulated by M-Sequence. *第31回日本神経科学大会*(東京, 2008-07)
- 14) T. Tamura, A. Gunji, M. Kitazaki, H. Shigemasa, N. Matsuzaki, K. Arai, H. Takeichi. S. Koyama: EEG rhythm changes associated with speech-related movements. *第31回日本神経科学大会* (東京, 2008-07)
- 15) H. Tanaka, K. Yokosawa, A. Otsuka, S. Kuriki: Effects of auditory attention on oscillatory activities around 10 Hz. *International Conference on Biomagnetism 2008 (Biomag 2008)* (Sapporo, 2008-8).
- 16) A. Otsuka, Y. Tamaki, K. Yokosawa, S. Kuriki: Attentional modulation of auditory neuromagnetic responses to musical chord sequences: an MEG study. *The 16th International Conference on Biomagnetism. (Biomag 2008)*

- (Sapporo, 2008-8).
- 17) S. Koyama, Y. Inoue, A. Toyomaki, Y. Toyosawa, A. Ogawa, F. Takeuchi, H. Takeichi, T. Omori, M. Kitazaki, S. Kuriki: Evoked magnetic responses to short temporal gaps between sounds. *The 16th International Conference on Biomagnetism (Biomag 2008)*. (Sapporo, 2008-8).
  - 18) F. Takeuchi, H. Takeichi, S. Koyama, A. Cichoci: A new technique for accessing verbal comprehension using magnetoencephalography. *The 16th International Conference on Biomagnetism (Biomag 2008)* (Sapporo, 2008-8).
  - 19) S. Koyama: A new method for assessing verbal comprehension using amplitude modulated spoken sentences. *The 16th International Conference on Biomagnetism Satellite Symposium* (Sapporo, 2008-8).
  - 20) 竹市博臣、小山幸子、寺尾敦、竹内文也、豊澤悠子、室橋春光：変調劣化音声を用いた談話理解の神経機能のニューロイメージング。日本音響学会2008年秋季研究発表会(福岡, 2008-9)
  - 21) 荒井宏太、松本秀彦、諸富隆、小山幸子、竹市博臣：ONSET, OFFSET刺激によって惹起されるAEPsの発達的变化。日本心理学会第72回大会(札幌, 2008-9)
  - 22) 竹市博臣、寺尾敦、竹内文也、小山幸子、室橋春光：劣化(m系列変調)音声に対するfMRI応答。日本心理学会第72回大会(札幌, 2008-9)
  - 23) 河本隆史、桑野晃希、栗城眞也：異なる色相の視覚画像による自発脳リズムの変調。生体医工学シンポジウム2008(大阪, 2008-9)
  - 24) 田中光、横澤宏一、大塚明香、栗城眞也：10Hz近傍の自発性脳磁波における聴覚性注意効果。第46回日本生体医工学北海道支部大会(札幌, 2008-10)。
  - 25) 竹市博臣、小山幸子、寺尾敦、竹内文也、豊澤悠子、室橋春光：変調劣化音声を用いた談話理解の神経機能のニューロイメージング。日本音響学会2008年秋季研究発表会(福岡, 2008-9/10)
  - 26) S. Koyama, T. Hiroshige, A. Gunji, M. Kaga, A. Cichocki, H. Okada, T. Omori: EEG responses associated with verbal comprehension in school age children: A new technique using m-sequence modulation. *The 38th annual meeting of the Society for Neuroscience* (Washington DC, USA, 2008-11).
  - 27) T. Tamura, A. Gunji, S. Koyama, M. Kitazaki, H. Shigemasa, N. Matsuzaki, H. Takeichi: Speech-related rhythmic activities in the motor cortex. *The 38th annual meeting of the Society for Neuroscience* (Washington DC, USA, 2008-11).
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) S. Koyama: Sound of silence: neural responses to short temporal gaps. *Fechner Day 2008* (Toronto, 2008-8) (Invited)
  - 2) 小山幸子：音声言語知覚機構の解明と英語教育法への

展開「脳科学と社会」領域シンポジウム 脳科学と教育：平成16年度採択課題研究終了報告(東京, 2008.08)

#### 4.8 国際会議の開催(組織者名、会議名、参加人数、開催場所、開催期間)

- 1) S. Kuriki, T. Yoshimine, S. Ueno, 16th International Conference on Biomagnetism, 600, Royton Sapporo, August 25-29, 2008.

#### 4.10 予算獲得状況

##### a. 科学研究費補助金(研究代表者、分類名、研究課題、期間)

- 1) 栗城眞也、基盤研究B、認知的脳情報の検出と読み出しに関する研究、2007~2010年度
- 2) 小山幸子、基盤研究B、脳波、脳磁場を指標とした談話理解の可視化：解析の高度化と発達研究への応用
- 3) 小山幸子、萌芽研究、成人アスペルガー患者の音声・聴覚フィードバック機能とその神経基盤の検討
- 4) 小山幸子、萌芽研究(分担金)、聴覚の時計と視覚の時計の相互交渉場面を探る

#### 4.12 社会教育活動

##### a. 公的機関の委員

- 1) 栗城眞也：日本学術振興会 産学協力研究会 第146委員長(2005年4月1日~2008年6月15日)

##### b. 国内外の学会の役職

- 1) 栗城眞也：日本エムイー(生体医工)学会教育技術委員会委員(2003年4月1日~現在)
- 2) 栗城眞也：日本エムイー(生体医工)学会評議委員(2003年4月1日~現在)
- 3) 小山幸子：日本臨床神経生理学会評議員(2003年7月10日~現在)
- 4) 栗城眞也：日本生体磁気学会、理事(2005年6月1日~現在)
- 5) 小山幸子：日本生体磁気学会評議員(2005年4月1日~現在)

##### c. 併任・兼業

- 1) 栗城眞也：ニューロイメージングPF委員会委員(2006年4月1日~現在)

##### e. 新聞・テレビ等の報道

###### ・新聞

- 1) 栗城眞也：朝日新聞 2008年12月24日「無い音記憶で作る：知に挑む脳研究、磁場で探る脳波」

##### g. 北大での担当授業科目(対象、講義名、担当者、期間)

- 1) 工学部、応用物性工学、栗城眞也 2008年4月1日~2008年9月30日
- 2) 情報科学研究科、脳機能工学特論、栗城眞也、小山幸子、2008年4月1日~2008年9月30日
- 3) 工学部、電気回路、栗城眞也、2008年10月1日~2009年3月31日

4) 工学部、生体医工学基礎・生体工学概論、栗城眞也、  
2008年10月1日～2009年3月31日

i. ポスドク・客員研究員など

・ 博士研究員

大塚明香

j. 修士学位および博士学位の取得状況

・ 論文博士 (1名)

大塚明香

・ 修士課程 (3名)

田中光、河本隆史、向舘 健

## 分子生命数理研究分野

教授 小松崎民樹 (総研大、理博、2007.10～)  
准教授 Chun Biu Li (テキサス大、PhD、2008.3～)  
助教 寺本 央 (東大院、学術博、2008.6～)  
助教 西村吾朗 (阪大院、理博、2007.10～)  
博士研究員 馬場昭典 (2007.10～)  
日本学術振興会特別研究員 河合信之輔 (2008.4～)

院 生

博士課程後期

清 一人 (特別研究学生、神戸大学大学院理学研究科)、  
Johannes G. Hagmann (日仏博士課程コンソーシアム  
留学生、リヨン高等師範学校)

博士課程前期

永幡 裕 (理学院数学専攻)

### 1. 研究目標

生体分子、細胞、組織、そして個体に至る生命システムは常に外界に晒(さら)されながら、ミクロレベルでの“刺激”がマクロレベルまで伝達し頑健な機能を作り出している。生体系の反応現象の多くは、複雑ななかに特異性、すなわち、選択性・機能性を保有していて、その特異性が生命現象の豊かさの源泉となっている。生体機能とは「外界からの刺激に対する応答として始まる一連の構造変化とそれに伴う化学反応」であり、階層を越えた「状態変化」のつながりの産物といえる。そのような生命システムを理解するためのアプローチには、大別して、背後に存在する数理構造を提唱するトップダウン的構成論的手法と微視的な立場からマクロな現象の再現を試みるボトムアップ的還元論的手法が存在する。前者は大胆な仮定や粗視化のために自然と乖離したモデルに陥る可能性が存在する一方で、後者は個々の微視的事象を枚挙するだけでシステム全体を捉えることは困難である。

自然科学研究において革命的な発展をもたらすものは、多くの場合、新しい実験技術とその新しい実験事実に基づいた理論・概念の転回である。近年、1分子計測技術等の飛躍的な進展により、「観測」の在り方が大きな変貌を遂げ、サブミリ秒程度の時間分解能で、1分子レベルの大規模構造変形や細胞の分化の計時変化を直接観測することが可能になってきた。

当該研究分野では、化学反応や生体分子の構造転移などの状態変化における「偶然と必然」、「統計性と選択性」、「部分と全体」の基礎原理を解明するとともに、“トップダウン”と“ボトムアップ”の両アプローチを橋渡しする概念や方法論を確立し、できるだけ自然現象に照らし合わせながら生命システムの階層性の論理を構成し、生命の中に積木細工をこえる新しい概念を創出することを目指している。この他、単一分子分光を用いた生体計測を通して、階層を越えた構造と機能の相関を探っている。具体的には、700

～1400nmの近赤外波長領域の光計測技術を用いた非侵襲計測により、生きたままの生体組織の単一分子レベルから定量的な生体計測技術を目指している。

### 2. 研究成果

(a) 熱的にゆらぐ環境下での化学反応の決定性とランダム性

化学反応は化学工学・生命・環境など幅広い領域において中心的な役割を持つ自然現象の一つである。物理学的に見れば化学反応は原子の配置の変化であり、核間距離などの適切な変数を用いて原子配置を記述すれば反応の過程はこれらの変数を座標軸とする空間(配位空間)の中の運動として捉える事ができる。反応の過程において系は配位空間内のある安定な(=ポテンシャルの低い)領域「反応物」から別の安定領域「生成物」へと移動する。両者の間には多くの場合、「鞍部点(サドル点)」と呼ばれる不安定点が存在し、化学反応の分野では、反応物領域と生成物領域といった、反応の「前」と「後」を分割する遷移状態として考えられている。しかしながら、サドル点は“分子のひとつの構造”に対応するので、系の相空間を反応の「前」と「後」を分割する空間を構成することは原理的に不可能である。遷移状態は、本来、系の空間の次元から1差し引いた次元をもつ“空間”を指す(例えば、3次元空間を二分する空間は2次元空間(=面)、2次元空間を二分する空間は1次元空間(線))。遷移状態が、特段、化学反応において重要視される所以は、反応物領域から生成物領域へ系が遷移状態を通過(交差)すると、その後、生成物領域に“捕獲されずに”反応物領域に戻る(再交差)することはないと近似的に考えられているためである。換言すると、この仮定は化学反応において「状態が変わる(った)」という表現を成立させるための暗黙裡な条件となっている。

これまでの我々の研究(小松崎、Berry、*Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **98**, 7666 (2001); *Adv. Chem. Phys.* **123**, 79 (2002) など)において、系を構成するすべての自由度とそれらの相互作用が既知であるハミルトン力学系では、分子内の多数の自由度が複雑に非線形相互作用し、強いカオスを呈する場合でもNormal Form理論と呼ばれる手法を用いると、解析的に適切な座標を選ぶことができ、系が反応する/しないを分(わ)かつ遷移状態が抽出し得ることが解明されている。しかし、系がアヴォガドロ数程度の溶媒分子に囲まれている凝縮相の反応においては、系が周囲の環境から受ける力は熱ゆらぎに起因する“ランダム”な性格を持つ。このような系で反応の帰趨(きすう)を決定しているものが何か、あるいはそもそも決定性が残っているのかも未だ解決すべき大きな問題である。

我々は熱的に揺らぐ環境下における状態変化の決定性の存在を調べるために、熱雑音存在下の化学反応を多次元ランジュバン方程式で表現し、これまでの我々の理論をランダムな外力を受ける系に拡張し、系の反応性を決定する力

学構造を抽出することに成功した。その結果、系の持つ複数の自由度間の非線形相互作用、およびランダムな外力の存在下においても、それらに応じた適切な座標を構成してその座標に射影して見ることによって運動が単純な形になることを見出し、またその座標変換を得るための具体的な手法を構築することに成功した。この特別な座標で見ることにより、ランダム力の存在下にあっても少なくとも鞍部点近くの領域においては反応するものとししないものを分かつ境界が存在し、反応の帰趨は系が鞍部点近傍に入った時点でこの境界面のどちら側にあるかのみで決まっていることを数値的に実証した(図1)。この境界面は本研究で導入した新しい座標がゼロになる場所として解析的に与えることができる。新しい座標は元の座標およびランダム力の非線形な(汎)関数であるが、その解析的な形を見ることにより系の反応性に影響を及ぼす因子を環境の熱ゆらぎの効果、非線形性の効果、およびそれらが複合的に組み合わせられた効果に分類して理解することができる。

本研究は、熱的に揺らぐ環境下における化学反応の選択性と統計性、偶然と必然の原理を理解する上で重要な見方を提供するものと考えられる。

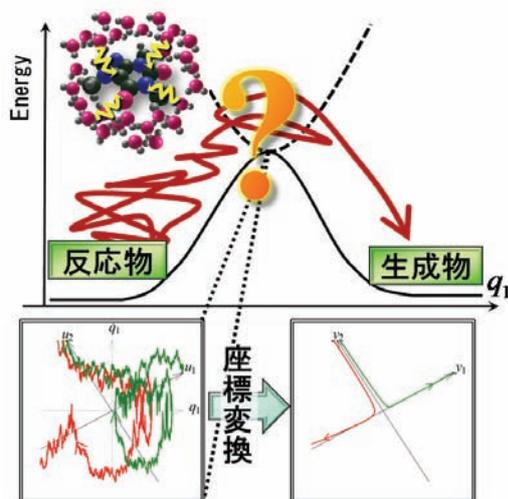


図1. 化学反応における鞍部点近傍の運動の概念図。凝縮相にある系は環境からのランダムな力と非線形性の効果を受けるので、通常の座標の取り方では非常に複雑な軌道を描く(左下図)。しかし本研究で導入した特別な座標に射影すると運動は単純な形になり、反応する軌道(緑)と反応しない軌道(赤)との間に明確な境界が存在する。

## (2) 遷移状態の分岐現象

これまでの我々の研究により余次元1の(再交差挙動を与えない)真の遷移状態がサドル点領域で比較的広いエネルギー領域に渡って頑健に存在し得ることが解明されている。これは局所的には“カオスの海”にあっても化学反応の選択性が生き残っていることを意味している。しかしながら、活性化障壁近傍よりも遥かに高いエネルギー領域で遷移状態概念が生き続けるのか否かはほとんどわかっていない。我々はこれまでに遷移状態が如何に崩壊し、反応が予測不可能になるためのメカニズムを考察してきたが(Li

ら *Phys. Rev. Lett.* **97**, 129901 (2006))、遷移状態がどのように高次元相空間のなかで分岐してゆくのか、換言すると分岐を支配しているパラメータがなにかは明らかにされていない。仮にそのパラメータが分かれば、分岐パラメータが張る空間で、相空間を二分する遷移状態が相空間のどこに“移動”するのかを予め同定することが可能となる。

我々は全自由度ハミルトン系から反応自由度以外をNormalizeする部分Normal Form理論を鞍部点領域の遷移ダイナミクスに援用し、全エネルギーのほかに非反応自由度の作用変数(よい量子数)が、カオスが存在しない状況の下では、“よい分岐パラメータ”として機能することを見出した。

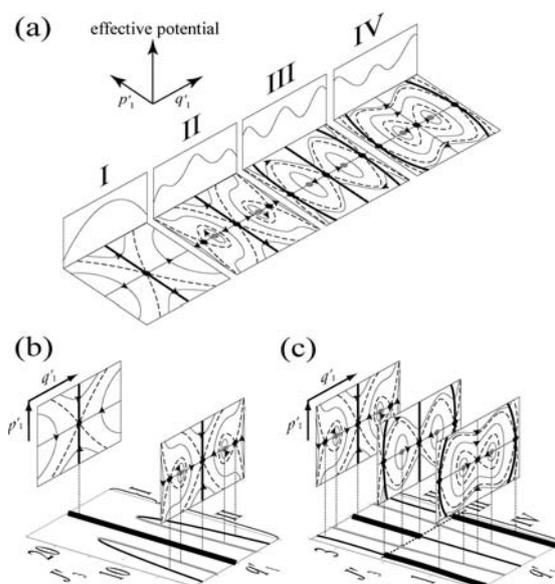


図2. 3自由度  $H_2+H \rightarrow H+H_2$  の分岐ダイアグラムと対応する相空間構造。

図2aに全角運動量ゼロの3自由度  $H_2+H \rightarrow H+H_2$  の交換反応におけるサドル点近傍の4つの異なる相空間構造を示す。図中、反応自由度が張る  $(p_1, q_1)$  空間における不安定/安定固定点、セパトリックス、遷移状態を、それぞれ、dark/gray点、点線、太い線で表し、各相空間構造に対応する一次元の有効ポテンシャルを描いている。図2b、2cは、異なる全エネルギーにおける、非反応自由度のひとつの作用変数を分岐パラメータとする分岐ダイアグラムを示している。非反応自由度の作用変数が運動の近似的不変量とみなせる限り、相空間のどこに遷移状態が位置するかを解析的に同定・予測できることを意味している。この遷移状態の分岐現象を解析的に予測することができるという事実は化学反応を制御・予測するうえで極めて重要な知見を与えるものである。

## (3) タンパク質周りの水の動態場の力学構造

タンパク質が機能を発揮する上では周辺にある水分子の存在が欠かせない。タンパク質と周りの水とが動的に相互作用していることを示唆する実験結果としては、溶媒分子

の周りの水分子は、普遍的にバルク水とは違い早いピコ秒スケールの緩和と遅いナノ秒スケールという二段階緩和を示すことが知られている(Nandiら、*J. Phys. Chem. B* **101**, 10954 (1997))。また、鈴木誠らの誘電緩和測定においては、電荷密度が高い溶質周辺に高い並進易動度をもつハイパーモバイル水と呼ばれる水の存在が示唆されてきたが、これまでの計算機実験の範疇では対応する“新しい動的な相”の存在が見出されていない。一方で、水を低温にすると220Kをさかいに水の緩和挙動が質的に遅くなり(Angellら *Nature* **398**, 492 (1999))、ちょうどその温度を境にして水中のタンパク質の活性も失われてしまうことが知られている(Baguchiら *Chem. Rev.* **105**, 3197 (2005))。以上の実験結果は水とタンパク質が動力的に相互作用していること、および水の動力学がタンパク質の機能発現に重要な役割を担っていることを示唆している。しかし、分子論的にタンパク質と周りの水が動力的にどのように相互作用しているのかということに関しては、ほとんど解明されていない。本研究に於いては、その点を明らかにするため、我々は、タンパク質などの溶質周りの水の集団的な動きを抽出するための粗視化の方法論、ならびに、生体分子の構造変化と生体分子「近傍」の水の動態場との動的相互作用をラグランジェ協同構造と呼ばれる概念を通して解析する手法を新規に開発した。

手始めに、室温環境下における11対のA-TペアからなるDNA分子まわりの水分子の動態構造について解析を行った。粗視化スケールを細かいものから粗いものへと変化させたときの密度場を図3に示す。粗視化のスケールが粗くなるにつれて個々の水分子は見えなくなり、水の作り出す大域的な密度場が浮かび上がる。粗視化に当たって重要なことは、もともと系が持っている対称性、ならびに保存則を保つように粗視化をすることである。たとえば、密度場、およびその流れは連続の式と呼ばれる物質保存則を満たしている必要があるが、ここでは保存則と整合するような粗視化の方法論を構築した。粗視化された密度場(図3)とその流れもまた連続の式を満たす。

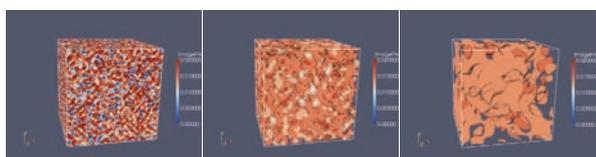


図3. 水分子の密度場を粗視化したもの(右から粗視化スケール1.0/0.625, 1.0/1.25, 1.0/2.5 (nm<sup>-1</sup>)). 水分子に隠れて見えないが、中央にDNAが存在している(システムサイズ100Å<sup>3</sup>, 総原子数90386、圧力1atm、温度300K)。

次に、水が集団的に作り出す場が溶質分子の運動にどのような影響を与えるのかを調べるため、ラグランジェ協同構造(Lagrangian Coherent Structure, LCS)とDNA分子の動力学との関係を解析した(図4)。LCSとはHaller(G. Hallerら、*Chaos*, **10**, 99 (2000); *Physica D*, **149**, 248 (2001); *Physics of Fluids*, **13**, 3365 (2001); **14**, 1851 (2002))により提案され、Shaddenによりその名が与えられたものであり、

端的に言えば、流れが二つに“泣き別れる面”をつなぎ合わせたものに対応する。Lekienら(*J. Math. Phys.* **48**, 065404 (2007))により、その構造の理論的基礎付けが与えられ、LCS面の法線方向にその面から引き離そうとする力が働く。従って、LCSは溶質分子の動力学、および溶質分子周りの水分子の動力学を理解する上で重要な役割を果たすことが期待される。

DNAとの動力的な関係をみるためにLCSのスナップショットを1ps間隔でDNA分子を含む面で輪切りにしたものを図5に示す。図5の赤い線で表したLCSがDNA分子に食い込み、再び離れるのに対応して、白丸で囲んだDNA部位の構造変化が起こっている。これは生体分子の構造変化が水の集団的な動態場の「幾何構造」によって決定される可能性があることを示唆している。我々が開発した解析手法は、生体分子の構造変化と生体分子「近傍」の水の動態場との動的相互作用を解明するものと期待される。

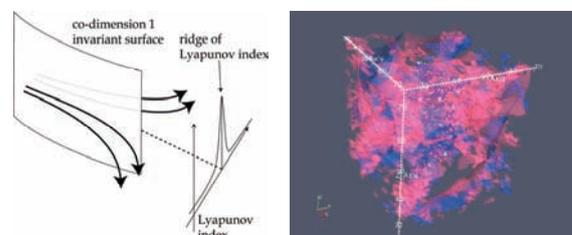


図4. (左) ラグランジェ協同構造の概略図。ラグランジェ協同構造は、3元空間上のベクトル場の分離面に相当する。(右) DNA分子の周りの水が集団的に作り出すLCSのスナップショット。(赤(青): 時間発展させると分かれ(接近)していく流れの境界面)

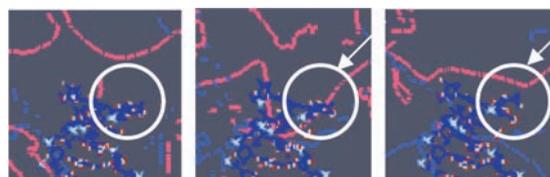


図5. LCSとDNA分子の残基との相互関係

#### (4) 量子ドットの間欠的なプリンキング現象の時系列解析

一分子データ解析は、通常、同じ分子種であっても、分子個々に応じて異なる振舞いを呈する。これは分子のもつ内部自由度の状態が異なることに由来し、タンパク質などのように、内部自由度が多ければ多いほど顕著となる。量子ドット(Quantum Dot, QD)のような単純な色素分子系においても顕著に観測される。この事実はなんらかの多数の“内部自由度”に相当するものがQDにおいても存在することを明示している。

QDの蛍光トレース(強度時系列)として、特筆すべき特徴のひとつにその間欠的なプリンキング現象がある(図6)。プリンキング現象はQDに限らず、多くの蛍光色素分子において普遍的に存在し、1分子時系列からタンパク質の構造変化などを正しく同定するうえで大きな弊害のひとつになっている。QDのプリンキングは、定性的には、“暗”

状態と“明”状態のあいだのランダムジャンプと考えられている（最近では2つ以上の状態が観測されている）。しかしながら、それらのジャンプは強い相関を示し、“暗”“明”状態の各滞在確率分布は4桁から9桁に渡って、べき分布をもつ（べき指数は1.1から2.2の間に殆どの場合、帰属される）ことが知られている。

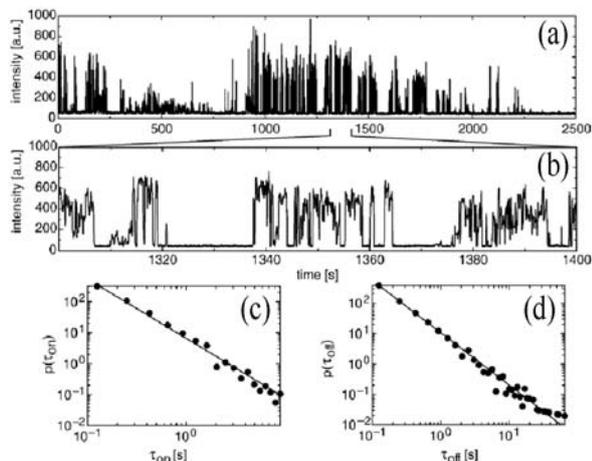


図6. (a) (b) 単一量子ドットの蛍光トレースの代表例  
(c) (d) “明” “暗” 状態の滞在確率のべき分布

現在、存在する（現象論的）モデルのほとんどはプリンキングの成因をナノ粒子内部の電荷分離と捉えている。マイナス電荷をもつ電子が光照射によってコアから飛び出し、空間的に広がった高励起状態に遷移する。その結果、量子ドットのコア部分がプラスに帯電し、電荷が分離した状態と捉えることができる。一旦、QDが電荷分離を起こすと、蛍光はオージェ過程によってクエンチされて暗状態になる。提案されているモデルは群雄割拠しており、基本的にはそれらは電荷分離状態をどのように構成するかが異なっている。

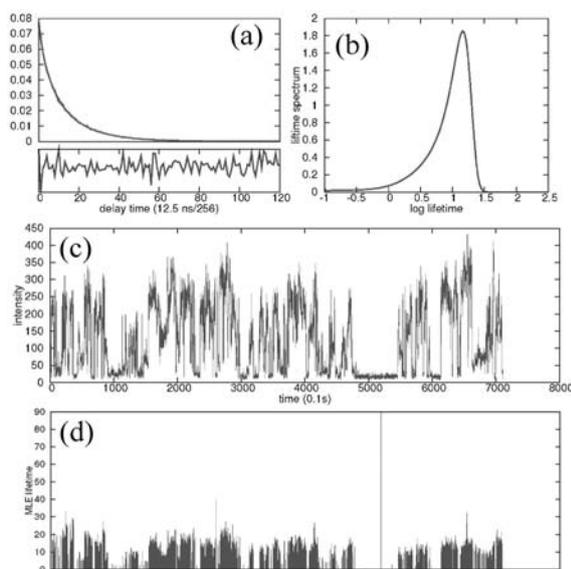


図7. QD プリンキング時系列の統計解析。(a) 最大エントロピー法で求めた蛍光寿命分布と対応する寿命スペクトル(b)。(a)の挿入図：実験データをフィットしたときの残差。(c) QDの強度トレース (d) 最尤推定により決定された寿命時系列。

我々は現象論的にモデルを構成するのではなく、1分子時系列情報からもっとも予測性能が高く、かつ最適なモデルを自動的に抽出するアプローチをとる。当該年度は、そのための予備的な統計解析を行った。

その結果、異なる同種 QD の強度揺らぎが広く分布している (30~1200counts/100ms) こと；ほとんどの QD の強度は100~400counts/100ms であること；図7b, 7cに示すように、寿命分布の形と強度揺らぎの大きさのあいだには明確な関係がないことが分かった。一方、明、暗状態のパターンは QD 毎に変化する。ある QD は明状態に長く滞在し、暗状態に早く遷移するのに対し、ほかの QD は、逆に、ほとんどの時間、暗状態に滞在し、短い明状態へ速やかに遷移する。ほとんどの強度トレースはこれらの中間のパターンに属するものと考えられるが、そのうちの幾つかは全く異なる揺らぎパターン間の遷移を包含することも分かった。

最尤推定法により決定された寿命時系列は10-40 (unit=342ns/256) の間を大きく揺らいでいる (図7d)。特筆すべき点は、この寿命時系列は強度揺らぎの時系列と強い相関を示唆している点である (図7c, d)。最尤推定された寿命時系列では、強度時系列に含まれている幾つかの実験誤差、たとえば、測定に由来する（であろう）線形減衰していく成分、正弦波成分など、を除去することができるため、実験誤差に対してある程度の安定な解析を行えることが期待できる。今後、寿命時系列に対して、背後に存在する状態空間のネットワークを抽出し、QDのプリンキング現象のメカニズムを考察する計画である。

## (5) 1分子生物学における多次元自由エネルギー地形の理論

蛍光共鳴エネルギー移動 (FRET) などの1分子実験で得られるのは、蛍光分子間距離に対応するような1次元の情報のみであり、ここから生体分子の各瞬間の多次元の立体構造をどのように推定すべきか、そして、それぞれの立体構造ごとの安定性や立体構造間の反応障壁の高さを表す多次元的な自由エネルギー地形をいかに読み取るかは自明ではない。近年、我々は「局所平衡状態」と呼ぶべき状態の組を1次元の1分子時系列から抽出し、それらの状態間の多次元的な自由エネルギー地形を構成する新しい方法論を開発した (Babaら *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **104**, 19297 (2007))。方法論を端的に説明すると、1次元の観測値の、ある短い時間幅  $\tau$  での分布 (ばらつき) に注目し、時系列の各時刻の周囲の局所的な観測値の分布を、分布間の類似性についての指標である Kantorovich 測度に基づいたクラスター分析を行うものである。

系が頻繁に長時間滞在し、内部を十分経巡る局所平衡状態は、時間幅  $\tau$  の範囲で互いに頻繁に行き来する立体構造の集まりに対応すると考えることができる。ある系の配置空間を細かい領域に分割し、これらの中の遷移ネットワークを構成したとき、このようなネットワークを、互いに頻

繁に行き来する領域ごとに分ける方法として、最も遷移の頻度の少ないボトルネックとなる断面を探し、そこで分割するという方法が知られている。近年、計算機シミュレーションの領域で広く使われてきている、自由エネルギー Disconnectivity Graph の方法は、これを階層的に用いることで、立体構造間の遷移ネットワークから、反応障壁についての本構造を抽出する (Krivov & Karplus, *J. Chem. Phys.* **117**, 10894 (2002))。以下(図8)にこのようなネットワークの、遷移のボトルネックでの分割例を示す。

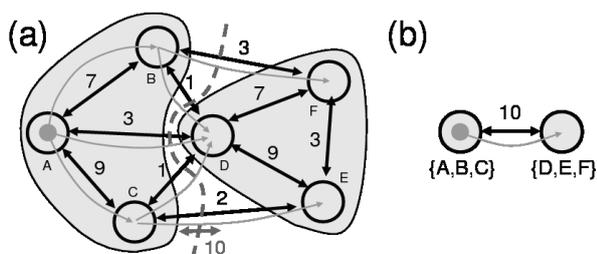


図8. 遷移ネットワークの、遷移頻度のボトルネックによる分割。(a) 状態A-F間の遷移ネットワーク。矢印が遷移経路を、数字が頻度を表す。点線がボトルネックとなる断面。(b) A-C, D-Fのグループをまとめ、粗視化したネットワーク。灰色の矢印はAから異なるグループへの遷移の経路を表す。

図8aの分割された2つのグループの間の遷移には、複数の経路を含むために、一般に複数の遷移の時間スケールが現れる。しかし、もし一つのグループの内部での遷移が非常に早く、内部で平衡分布に至る局所平衡時間  $\tau_{eq}$  が、もう一つのグループへ遷移する脱出時間  $\tau_{esc}$  より十分に速い場合は、図8bのように単純な2つの状態間の、単一の時間スケールでの遷移とみなせる。局所平衡状態は、このような粗視化が許されるような立体構造のグループに対応し、観測の時間幅  $\tau$  が、 $\tau_{eq} \ll \tau \ll \tau_{esc}$  の条件を満たす場合に、そのような状態が観測できると期待される。時系列から得られた局所平衡状態の間の実効的な自由エネルギー地形について次元性を評価することで、系が経験する地形の複雑さを評価できる可能性がある。これは、局所平衡状態間の遷移ネットワークが、遷移経路が交差しないように何次元で表せるかによって、系全体のエネルギー地形の大域的な反応座標の数の下限を見積もる方法(図9)で実現できる。

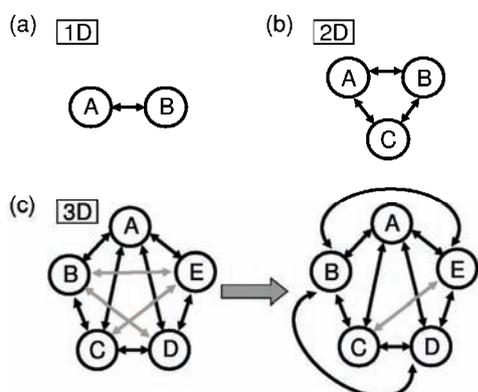


図9. 遷移ネットワークの次元性の評価。(a-c) 1-3次元のネットワーク。(c)で示されるネットワークはどのように変形しても2次元では遷移経路の交差を回避できない。

ここで2次元かどうか、すなわち平面グラフであるかどうかはKuratowskiの定理(*Fund. Math.* **15**, 271 (1930))を用いて判別できる。この方法は残念ながら、3次元以下の次元性の評価に制限されるが、例えば、イオンチャンネルの開閉や、モーター蛋白質の並進運動などについて、1次元的な反応経路として取り扱うことが適切であるかどうかを判定するために利用できるかと期待される。

#### (6) 情報理論的ノイズ・フィルタリング手法の開発

実際に得られる1分子時系列データはノイズのない「理想的な」力学系から構成されるものではなく、常に観測装置による測定誤差、光子統計に由来するショットノイズ、ブリンキングなどの光化学に由来する強度揺らぎ、色素分子の配向ダイナミクスなど、様々な実験誤差が含まれている。

我々は、プリンストン大学のHaw Yang博士が開発した、フィッシャー情報基準およびCramer-Rao不等式の情報理論などに立脚し、実験により得られる1分子時系列情報から観測ノイズに埋もれた状態間遷移のシンボル列を抽出するChanging Point解析法に基づいて、観測ノイズが相関をもたないガウス過程と見なせる場合には観測ノイズを情報理論的に除去できるデータ処理方法を開発した。

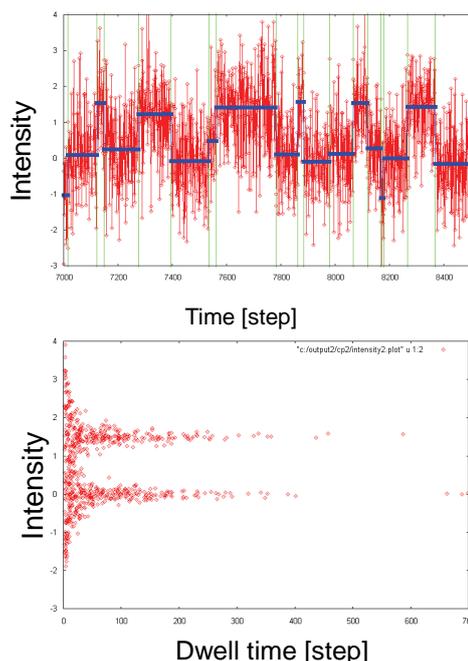


図10: (左) (蛍光)強度0および1を中心に分散1のガウスノイズが存在する時系列(赤色)に対するChange Point解析例。検出されたChange Point(緑色)によって、時系列は「区間(interval)」に分割される。各区間の平均値が、青色で示されている。(右) Change Pointによって分割された各区間はその区間におけるIntensityの平均値( $\hat{I}_i$ )と、区間の長さ( $T_i$ )によって、特徴付ける。ここでは、すべての( $\hat{I}_i, T_i$ )をプロットしている。

Change Point解析は、一般に、「時系列の性質が有意に変化する時点(Change Point)」を、検出するための方法である(図10)。Change Pointを検出するための方法は、各時刻において、「その時刻以前の時系列」と「その時刻以後の時系

列」が、等しいパラメータ(平均と分散)を持つガウシアン分布で尤もらしく記述できるかを、尤度比検定によって決定する。このプロットによって、ノイズの性質(蛍光ピーズなどの対照実験などで事前に確認することができる)が近似的にガウス過程である場合には、ノイズに埋もれている蛍光強度レベルの個数やDwell time (図10の  $T_i$ ) の広がりなどを検出することができる。たとえば、ショットノイズが顕著な場合にはポアソン統計分布を仮定することで除去することができる。我々はChange Pointによって分割された各区間における蛍光強度の平均値だけでなく、高次モーメントも考慮に入れた新しい方法論も、開発している。スカラー量である時系列情報に埋もれている背後に存在する高次元性を部分的に評価できることが期待される。

具体的な系として、名古屋大学と共同で機械受容イオンチャンネルMscLのパッチクランプ電流時系列データを解析し、膜に与える張力の大きさに依存して、キネテックスが多様な変化(指数緩和からべき緩和へ)を示すこと、ならびにそれらの背後に存在する状態に依存して滞在時間分布が多様に変化する状態遷移ネットワークが存在することが分かった。

#### (7) 近赤外波長域の光計測技術の開発と生体組織の非侵襲計測

生体組織透過性の良い近赤外波長域のうち、 $1\mu\text{m}$ を越える波長域は、ヘモグロビンの吸収が少なくなり水の吸収が主体的になる領域である。そのため、組織内の水を指標とした生体組織の評価とその医学的応用が可能となると考えられる。一方、水の吸収を定量的に評価するためには、組織の光散乱を考慮した解析が必要であり、中でも光の組織透過にかかる飛行時間の計測(時間分解計測法)は有用である。この方法は、組織を透過する光の飛行時間分布を計測し、それに散乱を考慮した適当なモデルにより合わせ定量する方法である。これまで、 $1\mu\text{m}$ 域より短い波長域では、時間分解計測法を用いた生体組織計測法の研究が行われてきた。しかし、それより長い波長域では、組織を時間分解計測するのに適した検出器がほとんどない。今回は、InGaAsアバランシェフォトダイオード(APD)を単一光子検出モードで動作させその特性を評価し、組織計測への応用可能性を検討した。

InGaAs APDは市販のものを $-30^\circ\text{C}$ 程度に冷却し、ガイガーモードで使用し、単一光子検出を行った。素子に光が検出されるであろうタイミングにのみAPDのブレークダウン電圧を越える電圧を印加し、検出器のゲートとして機能させた。ゲート機能により、ダークカウントを軽減させた。試料からの透過光の時間応答は、通常的时间相関単一光子計数法を用いた。

最初にこの素子の波高特性を計測した(図11)。InGaAs APDの場合、波高特性は光量にほとんどよらないことがわかった。このことは、通常的光電子増倍管などと異なり、弁別器の閾値を変化させてもS/Nはほとんど変化しない

ことを意味する。従って、閾値はノイズに対応する波高の低い所のみを除去するのが良いと考えられる。一方、S/Nを向上させるためには、素子温度を下げダークカウント自身を下げる必要があることもわかった。

この素子を用い、レーザーの時間応答および、生体組織を模擬した散乱体溶液、イントラリピッド溶液、の時間応答計測を行った(図12)。ゲートタイミングは、ゲート幅のほぼ中央にレーザー光が検出されるように設定した。挿入図は、計測された生データを示す。ダークの上に実際の試料からの信号が少し重畳していることがわかる。この差を取り、見たい信号の時間特性を得る。レーザーのみの時間応答特性と、光がイントラリピッド水溶液中を透過したのちの時間応答特性を図に示している。レーザーの応答特性から、検出器の時間応答は約200psであったことがわかる。それに対し、イントラリピッド試料を透過することにより光路分布が広がったことによる時間広がりが出された。現時点では、ダークカウントが経時的に変化するなどすることにより、安定な時間応答測定が難しいこともわかった。生体などへの計測への応用には、素子温度をより低くしまた安定化することが必須であると考えられる。素子の時間応答については、電気的な信号の反射などによる波形歪みの改善が必要であると考えられる。これらのことを踏まえ、生体組織の時間分解計測に応用出来る検出器の開発を行っている。

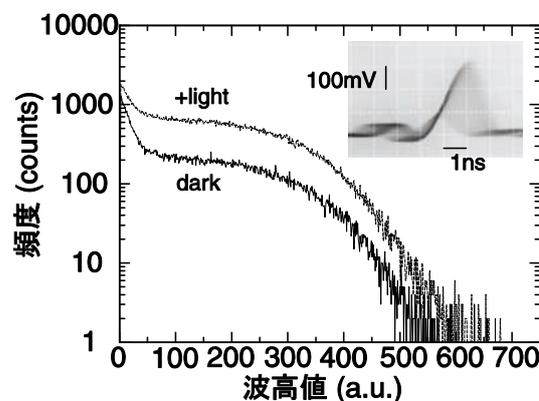


図11. InGaAs APD 検出器の波高特性。挿入図は、パルス形状。

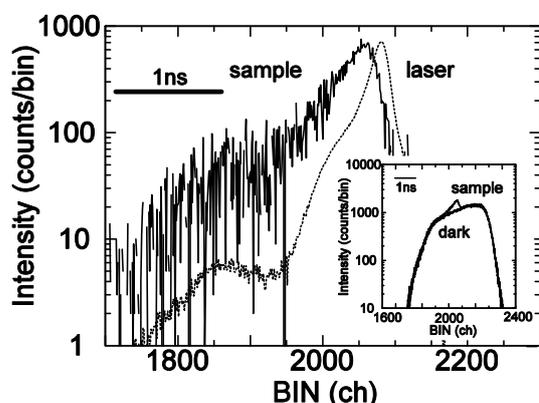


図12. InGaAs APD 検出器の時間応答特性と、10%イントラリピッド溶液の散乱時間応答特性。挿入図は、ダークカウントを差し引く前のデータ。

### 3. 今後の研究の展望

生体機能を司る分子は、多くの場合、アボガドロ数個ではなく、**少数個**が参画し、**有限時間内**に生体機能は生起する。そこでは平衡統計の枠組みが必ずしも成立している保証はなく、一分子観察を通して、長時間の分子記憶などの動態現象として具現化されているものと思われる。しかしながら、「入出力レベルも熱エネルギー程度である生体機能が、熱揺らぎに晒されながら、なぜ効率的かつ選択的に生起するのか」に関する指導原理は未だに解明されていない。それゆえ、統計性を予め仮定しない基礎理論から化学反応や構造転移の根本原理を追求するとともに、あらかじめ系についての性質（統計性、次元性など）を前提としないで、（実際に観測される）一分子時系列情報から背後に存在する動態構造について読み解く方法論を確立することは熱揺らぎ存在下における生体機能の指導原理を考察するうえで本質的に重要である。

今後、開発した解析手法や理論を、化学反応の量子制御、記憶を持つ一般化ランジュバン方程式へ拡張・深化させるとともに、より多くの具体例に展開していき、1分子生物学における自由エネルギー地形概念そのものの再考、生体分子系ダイナミクスと熱揺らぎの拮抗関係、時空間スケールの異なる階層間の情報伝達、環境に適応しながら時々刻々変化する階層ネットワーク構造の遍歴現象などを考察していく予定である。

一方、近赤外波長域の生体計測における検出システムの開発により、生体組織レベルでの定量的計測法の確立とその医学生物学応用を進めていく予定である。

### 4. 資料

#### 4.1 学術論文等

- 1) H. Teramoto and T. Komatsuzaki: “Probing Remnants of Invariants to Mediate Energy Exchange in Highly-Chaotic Many-dimensional Systems”, *Physical Review E*, **78**: 017202 [4 pages] (2008)
  - 2) A. Shojiguchi, C.-B. Li, T. Komatsuzaki and M. Toda: “Erratum: Fractional Behavior in Multi-Dimensional Hamiltonian Systems Describing Reactions”, *Physical Review E*, **77**: 019902 (2008)
  - 3) H. Teramoto and T. Komatsuzaki: “Exploring Remnant of Invariants Buried in a Deep Potential Well in Chemical Reactions”, *Journal of Chemical Physics*, **129**: 094302 [9 pages] (2008)
  - 4) C.-B. Li, H. Yang and T. Komatsuzaki: “Multiscale Complex Network of Protein Conformational Fluctuation Buried in Single Molecule Time Series”, *Proceedings of National Academy of Sciences USA*, **105**: 536-541 (2008)
  - 5) 小松崎民樹: 「1分子時系列情報から読み解く生体分子の状態遷移ネットワーク」、生物物理、日本生物物理学会、**48**(5): 282-283 (2008)
  - 6) 小松崎民樹: 「1分子時系列情報からわれわれは何を学び取ることができるか?」、物性研究、**(91)**: 121-130 (2008)
  - 7) C.-B. Li, M. Toda and T. Komatsuzaki: “Bifurcation of no-return transition states in many-body chemical reactions”, *Journal of Chemical Physics*, **130**(12): 124116-124122 (2009)
- #### 4.7 講演
- ##### a. 招待講演
- ##### i) 学会
- 1) T. Komatsuzaki: “Construction of an Effective Free Energy Landscape from Single-Molecule Time Series”, 1st Annual Protein and Peptide Conference, BIT’s 4th Life Spring Forum on protein folding and diseases –celebrating 60 years of Prof. Scheraga’s science (1948-2008), Shenzhen, China (2008-04)
  - 2) 小松崎民樹: 「1分子時系列情報から読み解く生体機能の階層構造」、第64回日本物理学会、盛岡市 (2008-09)
  - 3) 清一人、馬場昭典、李振風、小松崎民樹: 「1分子計測から読み解く状態遷移ネットワークへ機械受容型イオンチャネルMscLを例に」、日本生物物理学会シンポジウム「イオンチャネルゲーティングのダイナミクスをイメージする (老木成稔氏 (福井大学)、曾我部正博氏 (名古屋大学) 主催、福岡市 (2008-12))
  - 4) 李振風: 「Understanding the Multiscale Dynamics of Complex Biological Systems from Single Molecule Experiments」、日本生物物理学会シンポジウム「レア・イベントから創薬へ (岐阜大学桑田一夫氏、東京大学分子細胞生物学研究所北尾彰朗氏主催)」、福岡市 (2008-12)
  - 5) T. Komatsuzaki: “Multiscale Complex Network and Effective Free Energy Landscape Extracted from Single-Molecule Time Series”, Symposium on Linking single molecule spectroscopy and energy landscape perspectives, at 46th Annual Meeting of the Biophysical Society of Japan, Fukuoka (2008-12)
  - 6) T. Komatsuzaki: “Exploring remnants of invariants buried in a deep potential well in chemical reactions”, Focus Session: The Transition State in Physics, Chemistry, and Astrophysics, APS Meeting, Pittsburgh, PA, USA (2009-03)
- ##### ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) 小松崎民樹: 「1分子時系列情報から生体分子機能の複雑さを解読する」、分子研シンポジウム 6月13-14日、岡崎市 (2008-06)

- 2) T. Komatsuzaki : “Extracting Multiscale Complex Network of Protein Fluctuation from Single-Molecule Time Series”, Telluride Summer Workshop “Characterizing Landscapes: From Biomolecules to Cellular Networks,” Telluride, USA (2008-07)
- 3) 寺本央、小松崎民樹:「生体分子系における化学反応の選択性と統計性の原理的理解」、特定領域研究「高次系分子科学」第2回ミニ公開シンポジウム、神戸市 (2008-07)
- 4) 小松崎民樹「時系列情報から読み取る数理モデル—生体分子の構造揺らぎを例に」特定領域研究「移動知」A班+D班の合同班会議、札幌市 (2008-07)
- 5) 小松崎民樹「化学反応や生体高分子の構造転移における「偶然と必然」の数理を探る」Dynamics of complex systems 2008 — 数学的予測方式の可能性と諸分野からのニーズ —、札幌市 (2008-09)
- 6) 李振風:「An Information-theoretic Approach to unveil the Multiscale Dynamics of Biophysical Systems: Information Flows among Different Scales」、Dynamics of complex systems 2008 — 数学的予測方式の可能性と諸分野からのニーズ —、札幌市 (2008-09)
- 7) 小松崎民樹:「1分子計測から読み解く状態遷移ネットワーク—機械受容チャンネルを例に」、生理研研究会「膜機能分子ダイナミクスの分子機構解明に向けて」、岡崎市 (2008-09)
- 8) 小松崎民樹:「1分子時系列情報から我々は何を読み解くことができるのか?」、ポストシリコン物質・デバイス創製基盤技術アライアンス-G3「ナノ分子メカニクス・バイオメカニクス」グループ分科会、大阪市 (2008-10)
- 9) C.-B. Li : “On the search of new mathematical frameworks to unveil the multiscale dynamics of complex systems”, Workshop on Interfacial dynamics on the boundaries of physics, chemistry, biology and mathematics, Sapporo (2008-11)
- 10) H. Teramoto : “Folding patterns of stable/unstable manifolds in multi-dimensional systems”, Workshop on Interfacial dynamics on the boundaries of physics, chemistry, biology and mathematics, Sapporo (2008-11)
- 11) 寺本央:「分子の動力学と力学系理論との接点」、特定領域研究「実在系の分子理論」若手研究者勉強会、伊豆の国市 (2008-11)
- 12) T. Komatsuzaki : “What can we learn about the mechanism of complexity in kinetics and dynamics from scalar time series?”, Institute for Protein Research Seminar on New Approaches to Complexity of Protein Dynamics by Single Molecule Measurements: Experiments and Theories, Osaka (2008-12)
- 13) C.-B. Li : “Data-driven Modeling of Single Mechanosensitive Ion Channels from Time Series Analysis”, Institute for Protein Research Seminar on New Approaches to Complexity of Protein Dynamics by Single Molecule Measurements: Experiments and Theories, Osaka (2008-12)
- 14) 小松崎民樹:「局所平衡や分子摩擦を越えた新しい化学反応動力学理論を目指して」、特定領域「実在系の分子理論」シンポジウム、札幌市 (2008-12)
- 15) 小松崎民樹:「1分子時系列情報から読み解く状態遷移ネットワークを俯瞰する」、ポストシリコン物質・デバイス創製基盤技術アライアンス平成20年度成果報告会、札幌市 (2008-12)
- iii) コロキウム・セミナー等・その他**
- 1) 小松崎民樹:「1分子生物学:時系列情報から読み解く生体分子機能の複雑さ」、生命科学院研究交流会セミナー、北海道大学 (2008-05)
- 2) T. Komatsuzaki : “Construction of an Effective Free Energy Landscape from Single-Molecule”, Seminar at Department of Chemistry, Boston University, USA (2008-06)
- 3) T. Komatsuzaki : “Construction of an Effective Free Energy Landscape from Single-Molecule Time Series”, Seminar at Lab. of Chem. Phys., NIDDK,NIH, USA (2008-07)
- 4) C.-B. Li : “Data-driven Modeling of Single Molecule Experiments from Time Series Analysis”, Seminar at Laboratory for Photochemistry & Spectroscopy, Department of Chemistry, Katholieke Universiteit Leuven, Belgium (2009-02)
- 5) T. Komatsuzaki : “Chance and Necessity in Changes of States”, Department of Physics seminar, ENS de Lyon, Lyon, France (2009-02)
- 6) T. Komatsuzaki : “Construction of an Effective Free Energy Landscape from Single-Molecule Time Series”, Seminar at Dep. of Chem. and Biochem., UCLA, Los Angeles, USA (2009-03)
- 7) C.-B. Li : “Data-driven modeling of Biological Systems:An information-theoretic approach”, the 4th Bioinformatics colloquium at Hokkaido, Frontier Research Center for Post genomic Science and Technology, Hokkaido University, Sapporo (2009-03)
- b. 一般講演**
- i) 学会**
- 1) C.-B. Li and T. Komatsuzaki: “Capturing the Multiple-Time-Scale Dynamical State-Space-Network in the Time Series of Single Molecule Experiment”, 1st Annual Protein and Peptide Conference, Shenzhen, China (2008-04)
- 2) 李振風、戸田幹人、小松崎民樹:「Uncovering the Phase Space Geometry of Reaction Dynamics」、化学反応討論会、札幌市 (2008-06)

- 3) 河合信之輔、Chun-Biu Li、小松崎民樹、山下雄史、藤村陽、戸田幹人:「反応 $O(^1D)+N_2O \rightarrow NO+NO$ の相空間構造の解析」、第24回化学反応討論会、北海道大学、札幌市 (2008-06)
- 4) 寺本央、小松崎民樹:「符号化可能力学系の時系列からMarkov分割を構成する方法論および異なるMarkov分割から構成されるMarkov確率過程間の関係に関する研究」、第64回日本物理学会、盛岡市 (2008-09)
- 5) 河合信之輔、小松崎民樹:「液相反応の動力学—熱浴下における反応の決定性—」、第2回分子科学討論会、福岡市 (2008-09)
- 6) S. Kawai and T. Komatsuzaki: “Reaction dynamics in condensed phase – Determinacy of the reaction in a noisy environment–”, STEREO DYNAMICS 2008, Dalian, China (2008-10)
- 7) S. Kawai and T. Komatsuzaki: “Dimension reduction for the analyses of reaction dynamics of  $O(^1D)+N_2O \rightarrow NO+NO$ ”, STEREO DYNAMICS 2008, Bayshore Hotel Dalian, China (2008-10)
- 8) 西村 吾朗:「 $1\mu m$ 波長域の生体組織評価のための検出器開発」、日本光学会 (Optics and Photonics Japan 2008)、つくば国際会議場、つくば市 (2008-11)
- 9) 寺本央、小松崎民樹:「生体分子のモード選択性の解明」、日本生物物理学会、福岡市 (2008-12)
- 10) 清一人、馬場 昭典、李振風、小松崎民樹:「機械受容型イオンチャネルのゲーティングダイナミクスの解明に向けて」、日本生物物理学会、福岡市 (2008-12)
- 11) 馬場昭典、小松崎民樹:「局所平衡状態解析:一分子観測時系列から自由エネルギー地形を読み取る」、日本生物物理学会、福岡市 (2008-12)
- 12) 藤本和也、木下雅仁、鎌形清人、三本木至宏、馬場昭典、小松崎民樹、高橋聡:「一分子測定法を用いた緑濃菌由来シトクロムcの変性状態内の運動観察」、日本生物物理学会、福岡市 (2008-12)
- 13) K. Sei, C.-B. Li, T. Nomura, H. Tatsumi and T. Komatsuzaki: “Data-driven time series analysis of Mechanosensitive ion channel gating dynamics”, 6th Asian Biophysics Association (ABA) Symposium & 27th Hong Kong Society of Neuroscience Annual Meeting, Hong Kong, China (2009-01)
- 14) C.-B. Li: “Complex multi-scale networks of protein fluctuation dynamics from single-molecule time series”, 6th Asian Biophysics Association (ABA) Symposium & 27th Hong Kong Society of Neuroscience Annual Meeting, Hong Kong, China (2009-01)
- 15) 河合信之輔、小松崎民樹:「熱揺らぎ環境下における化学反応の偶然と必然」、日本化学会第89春季年会、船橋市 (2009-03)
  - ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
    - 1) H. Teramoto and T. Komatsuzaki: “Several properties of entanglement and intersection between stable and unstable manifold emanating from normally hyperbolic invariant manifold”, Kyoto Dynamics Days 7 (KDD7), Kyoto (2008-06)
    - 2) H. Teramoto and T. Komatsuzaki: “Toward Understanding of Dynamical Origin of Mode-Selectivity in Complex Systems”, The 2nd International Symposium on Molecular Theory for Real Systems, Aug 4 -6, 2008, Okazaki (2008-08)
    - 3) A. Baba and T. Komatsuzaki: “Multidimensional energy landscape from single molecule time series”, Institute for Protein Research Seminar on New Approaches to Complexity of Protein Dynamics by Single Molecule Measurements: Experiments and Theories, Osaka (2008-12)
    - 4) K. Fujimoto, M. Kinoshita, K. Kamagata, Y. Goto, Y. Sambongi, A. Baba, T. Komatsuzaki and S. Takahashi: “Denatured state dynamics of cytochrome c551 observed by single molecule fluorescence intensity measurements”, Institute for Protein Research Seminar on New Approaches to Complexity of Protein Dynamics by Single Molecule Measurements: Experiments and Theories, Osaka (2008-12)
    - 5) K. Sei, C.-B. Li and T. Komatsuzaki: “Toward the understanding of the gating dynamics for the mechanosensitive ion channel”, Institute for Protein Research Seminar on New Approaches to Complexity of Protein Dynamics by Single Molecule Measurements: Experiments and Theories, Osaka (2008-12)
    - 6) H. Teramoto and T. Komatsuzaki: “Elucidation of mode-selectivity of biomolecule”, Institute for Protein Research Seminar on New Approaches to Complexity of Protein Dynamics by Single Molecule Measurements: Experiments and Theories, Osaka (2008-12)
    - 7) S. Kawai and T. Komatsuzaki: “Determinism and Fluctuation of Chemical Reactions under Noisy Environment”, The 10th RIES-HOKUDAI International Symposium on “綾”, Sapporo (2008-12)
    - 8) C.-B. Li: “Multiscale Networks of Interacting Biological Systems: From network constructions to causality among them”, Sapporo Winter School, Hokkaido University, Sapporo (2009-02)
    - 9) H. Teramoto: “Folding patterns of stable/unstable manifolds in high dimensional dynamical systems”, Sapporo Winter School, Hokkaido University, Sapporo (2009-02)

#### 4.8 シンポジウムの開催

- 1) T. Komatsuzaki: “1st Annual Protein and Peptide Conference”, Shenzhen (Shenzhen China) (2008年4月22日～2008年4月28日)
- 2) 小松崎民樹:「第24回化学反応討論会」、北海道大学(札

幌市) (2008年6月2日～2008年6月4日)

- 3) 小松崎民樹:「日本生物物理学会「Linking single molecule spectroscopy and energy landscape perspectives」シンポジウム」、福岡国際会議場 (福岡市) (2008年12月3日～2008年12月5日)
- 4) 小松崎民樹:「蛋白研セミナー「A New Perspective on the Dynamics of Single Protein: Experiments and Theories (一分子観察による蛋白質の新しい動的描像:実験と理論)」」、大阪大学 (吹田市) (2008年12月8日～2008年12月9日)

#### 4.9 共同研究

##### a. 海外機関との共同研究

- 1) T. Komatsuzaki, D. M. Leitner, R. S. Berry, J. E. Straub, M. Toda, A. Kidera and S. Takada (シカゴ大学・ボストン大学・ネバダ大学レノ校・電子科学研究所・横浜市立大学・京都大学・奈良女子大学): “JSPS-NSF/NSF-JSPS International Project “Dynamical Foundation of Functions in Protein Systems””、2004年度～2008年度、基質結合に伴う立体構造変化の応答・伝達のダイナミックスの原理を解明し、「ダイナミックス＝機能」としてみた分子機能の多様性とその頑健性についての動的構築原理を創出する。日米合同で特集号“*Kinetics and Nonlinear Dynamics of Complex Many-Body Systems*” *Advances in Chemical Physics*, John-Wiley & Sons, Inc. (2010) を出版する予定。
- 2) T. Komatsuzaki, A. Baba, C.-B. Li and H. Yang (電子科学研究所・カリフォルニア大学バークレー校): “生体分子機能および化学反応網における選択性と統計性のダイナミックス基盤の創生”、2006～2008年度、1分子観察データから各準安定状態を規定し背後に潜む状態空間上の遷移ネットワーク構造を抽出する解析手法を確立し分子記憶と構造多型性・経路多重性の関係を解明することを目的とする。
- 3) T. Komatsuzaki and M. Peyrard (リヨン高等師範学校・電子科学研究所): “たんぱく質フォールディングダイナミックスにおける統計性”、2007年度～2008年度、日仏博士課程コンソーシアム制度により、リヨン高等師範学校から10か月間博士課程学生の派遣を受け入れた。

##### b. 所内共同研究 (研究担当者、機関名、研究題目、研究機関、研究内容)

- 1) 小松崎民樹 (電子科学研究所): 「プロジェクト研究A」、2008～2009年度、電子研-リヨン高等師範学校との共同研究

##### c. 民間等との共同研究 (研究担当者、機関名、研究題目、研究期間、研究内容)

- 1) 西村吾朗、牧 敦、木口雅史、船根司 (日立製作所基礎研究所): 「近赤外1-1.5ミクロン帯応用を目指した基礎的研究」、2008年度、近赤外1-1.5マイクロメータ波長域の生体組織の特性の解析。

##### d. 受託研究 (研究担当者、機関名、研究題目、研究期間、研究内容)

- 1) 高橋聡、小松崎民樹、三本木至宏、鈴木誠 (大阪大学・電子科学研究所・広島大学・東北大学): 「JST/CREST「蛋白質の折り畳み運動解明を目指した一分子観測法の確立 (一分子観察実験のための新しいデータ解析手法の開発)」」、2004～2009年度、遷移過程の直接観測実験を通して、遷移の非統計性、遷移状態概念の再考、熱揺らぎと蛋白質ダイナミックスのあいだの競合・協同性などを解明するため、生体分子時系列情報からその背後に潜む系の動的構造 (=状態空間構造) を抽出・解析する新しい1分子時系列解析手法を開発する。新しい一分子観察法から得られる時系列情報を解析し、「ダイナミックスから見た」蛋白質の折れ畳み運動の新しい構築原理を考察する。
- 2) 西村吾朗 (独立行政法人 新エネルギー・産業技術総合開発機構): 「分子イメージング機器研究開発プロジェクト/新規悪性腫瘍分子プローブの基盤技術開発/分子プローブ評価システムの開発」、2008～2009年度、時間分解蛍光分光法を用い、組織中に含まれる蛍光性分子プローブの位置や濃度を定量的に計測するシステムを開発する。

#### 4.10 予算獲得状況

##### a. 科学研究費補助金 (研究代表者、分類名、研究課題、期間)

- 1) 小松崎民樹、基盤研究 B、生体分子機能および化学反応網における選択性と統計性のダイナミックス基盤の創生、2006～2008年度
- 2) 小松崎民樹、特定領域研究、複雑反応系におけるダイナミックス理論の基礎構築、2008～2009年度

##### f. その他 (研究担当者、機関名、研究題目、研究期間、総経費、研究内容)

- 1) 李振風 (北海道大学): 「Development of Data-Driven Modeling for Multiscale Biological Systems」、2008年度、1000千円、公募型プロジェクト研究支援事業 若手研究

#### 4.12 社会教育活動

##### a. 公的機関の委員

- 1) 小松崎民樹: 日本学術振興会特別研究員等審査会専門委員及び国際事業委員会書面審査員 (化学領域) (2008年8月1日～2009年7月31日)

##### b. 国内外の学会の役職

- 1) 小松崎民樹: Board of directors of the Telluride science research institute CO USA (2006年3月1日～2008年12月31日)
- 2) 小松崎民樹: 生物物理学会誌編集委員 (2007年1月1日～2008年12月31日)

##### c. 併任・兼業

- 1) 小松崎民樹:北海道大学数学連携研究センター 兼任教授 (2008年4月1日～現在)

**d. その他**

- 1) 小松崎民樹: JST/CREST「蛋白質の折り畳み運動解明を目指した一分子観測法の確立(生命現象の解明と応用に資する新しい計測分析基盤技術)」研究分担者(2004年10月1日～2010年3月31日)

**f. 外国人研究者の招聘(氏名、国名、期間)**

- 1) Prof. Michel Peyrard, France (2008年5月7日～2008年5月9日)
- 2) Prof. Kopin Liu, Taiwan (2008年6月4日)
- 3) Prof. Dong Hui Zhang, China (2008年6月4日)
- 4) Dr. Thomas Gregor, USA (2008年8月22日～2008年8月27日)
- 5) Prof. Cris Wiggins, USA (2008年8月22日～2008年8月26日)
- 6) Dr. Tomio Petrosky, USA (2008年8月25日～2008年8月30日)
- 7) Prof. Haw Yang, USA (2008年11月29日～2008年12月2日)
- 8) Dr. Ophir Flomenbom, USA (2008年11月29日～2008年12月2日)
- 9) Prof. Jianshu Cao, USA (2008年12月10日～2008年12月14日)
- 10) Dr. Irina V. Gopich, USA (2008年12月10日～2008年12月14日)
- 11) Prof. R. Stephen Berry, USA (2009年1月28日)

**g. 北大での担当授業科目(対象、講義名、担当者、期間)**

- 1) 全学共通、環境と人間:光・バイオ・分子で拓くナノテクノロジー、小松崎民樹、2008年4月1日～2008年9月30日
- 2) 生命科学院、生命分子科学概論、小松崎民樹、2008年4月1日～2008年9月30日
- 3) 生命科学院、分子情報解析学特論、小松崎民樹、2008年4月1日～2008年9月30日
- 4) 理学院、生化学特別講義、小松崎民樹、2008年4月1日～2008年9月30日
- 5) 生命科学院、生命科学論文購読、小松崎民樹、2008年4月1日～2008年9月30日
- 6) 生命科学院、生命科学実習、小松崎民樹、2008年4月1日～2008年9月30日
- 7) 生命科学院、生命科学研究、小松崎民樹、2008年4月1日～2008年9月30日
- 8) 生命科学院、生命科学特別研究、小松崎民樹、2008年10月1日～2009年3月31日

**i. ポスドク・客員研究員など**

・ポスドク

- 2名(馬場 昭典、河合信之輔(日本学術振興会))

## ナノシステム生理学研究分野

教授 永井健治 (東大院、医博、2005.1~)

准教授 谷 知己 (東大院、理博、2005.3~)

助教 松田知己 (阪大院、理博、2008.4~)

さきがけ研究員 小寺一平

博士研究員 竹本 研

学振外国人特別研究員 Sang-Yeob Kim

DC2 野村真未

MC2 岩崎卓也

MC2 友杉 亘

MC1 植松利亮

MC1 永井大輔

BC4 木村太郎

### 1. 研究目標

ひとつの受精卵が分裂と分化を経て、多様な細胞が機能的につながりあう多細胞個体を形成する。1個体を構成する様々な細胞が相互に連絡をとりあうことによって、個体としての刺激応答をおこなう。分子間、そして細胞間を相互に結びつけるつながりの仕組みを明らかにすることが、このような生命のしくみを解き明かす鍵であろう。ナノシステム生理学分野では、生体分子、細胞レベルの生命現象を研究対象として、遺伝子工学技術に基づく生体分子可視化技術を駆使して、個体の発生や刺激受容と応答に関わる分子間・細胞間相互作用を明らかにすることを大きな研究目標に掲げている。

### 2. 研究成果

(a) 光安定性とプロトン非感受性を兼ね備えた、群青色蛍光タンパク質の開発

*Aequorea* (オワンクラゲ) 由来の緑色蛍光タンパク質 (GFP) 及び、その波長変異体を細胞内の目的タンパク質と融合させ、可視化する技術は細胞生物学において必要不可欠な技術になっている。現在、長波長の蛍光をもつ蛍光タンパク質の種類は豊富である一方で、短波長の蛍光を発する変異体の種類は少ない。そこで、発色団を形成するトリペプチドのうち、66番目のチロシンをフェニルアラニンに置換した *Aequorea* GFP の変異体を作製し、さらに、部位特異的変位導入と遺伝子全長に渡るランダム変異導入を行ったところ、群青色蛍光を発する蛍光タンパク質を得ることに成功した。本タンパク質を37°Cで培養した大腸菌内で発現させるとEBFP比で2倍明るい蛍光を放つことから、夜空で最も明るい青色の恒星にちなみ、Siriusと命名した (図1 a, b)。Siriusの吸収および蛍光極大はそれぞれ355nmおよび424nmで、EBFPの380nmおよび448nmよりもさらに短波長であり、今までに報告された蛍光タンパク質変異体の中で最も短波長の吸収・蛍光極大を有する。

Siriusの驚くべき特徴は、光褪色に非常に強い耐性 (EBFPの60倍) を持つことと (図2a)、プロトンに対する感受性 (pH感受性) が全く無く、極めて安定な蛍光を発することである (図2b)。

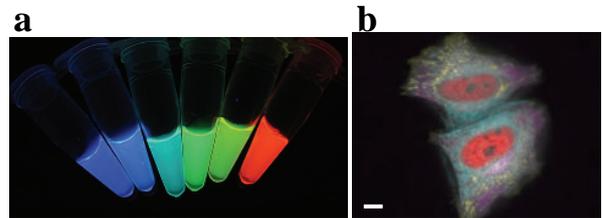


図1. *Aequorea* GFP 変異体の Sirius の精製タンパク質と Sirius を核に発現させ、4重染色した HeLa 細胞。

そこで、Siriusを発現するバクテリアを *Dictyostelium discoideum* (細胞性粘菌) に餌として与えたところ、酸性条件下で起こるファゴサイトーシスの一連の過程を、二光子励起顕微鏡を用いて、長時間にわたり観察することに成功した。これらの特性に加え、Siriusの蛍光スペクトルはCFPの吸収スペクトルと完全にオーバーラップすることから、SiriusはCFPをアクセプターとする理想的なFRETドナーであることが判明した。また、UV領域で励起可能であり、緑色の蛍光を発するSapphireと呼ばれるGFP変異体と、Siriusは、同じ波長で同時に励起することが可能であることが分かった。こうした知見を踏まえて、SiriusとCFPのFRETペアに加え、SapphireとDsRedのFRETペアを併用することで、1波長励起4波長測光によるDual FRETを試みた。その結果、HeLa細胞のアポトーシス過程におけるCa<sup>2+</sup>の上昇とカスパーゼ-3の活性化を同時に可視化することに成功した。今後、このようなDual FRETの手法を用いることにより、生細胞内の同箇所で行われる複数の生理現象をリアルタイムで観察することが可能となるであろう。

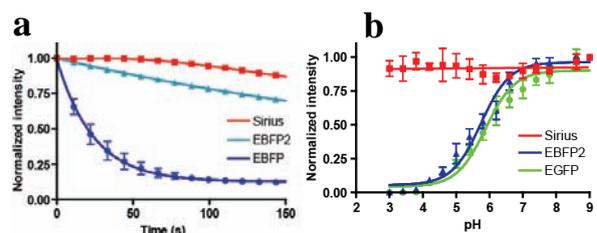


図2. Siriusと既存の蛍光タンパク質の光安定性及び、プロトン感受性の比較。

(b) 光スイッチング蛍光タンパク質を用いた細胞内での分子拡散係数を測定する方法の開発

当研究分野ではCFP(水色蛍光タンパク質)とPA-GFP(光活性化型緑色蛍光タンパク質)をFRET効率が最大になるように連結することで、新規の色変換蛍光タンパク質Phamretを開発した。PhamretはUV光照射により、不可逆的にその蛍光色を水色から黄緑色に変化させる。

このような光刺激によって蛍光特性を変化させる光スイッチング蛍光タンパク質を用いたイメージング技術は標識した目的タンパク質のイメージを取得し、生細胞内での分布の経時変化を観察することを主流に発展してきた。

その一方で、細胞内のタンパク質動態の変化を定量的に解析する方法論の開発の努力もなされている。現在、限られた領域の蛍光タンパク質のみを消光させた後分子の流入による蛍光の回復を測定する fluorescence recovery after photobleaching (FRAP) や微小領域の蛍光強度の揺らぎを検出する fluorescence correlation spectroscopy (FCS) がタンパク質拡散係数の決定に主に用いられている。FRAPは速い拡散、FCSは遅い拡散の測定に不向きであるためそれらは相補的に用いられている。本研究では、FRAP測定法をベースに光スイッチング蛍光タンパク質をタグとして用いる拡散測定法 fluorescent decay after photoactivation (FDAP)を開発した。FRAPでは蛍光の回復カーブが描かれるのに対してFDAPの測定では刺激光の照射により現れた蛍光の減衰のカーブが描かれる(図3)。そして、この方法では短時間の刺激、速いスキャンスピードで測定を行うため、FRAPにおいて速い拡散を示す分子の測定に影響を及ぼす光刺激中の分子の拡散の影響を無視することができる。従ってFRAP法が得意とする遅い拡散に加えて速い拡散の測定にも適用できるようになり、FRAPでは解析困難であった溶液中の $50\mu\text{m}^2/\text{sec}$ 程度の速い拡散を計測することに成功した。蛍光タンパク質分子のHeLa細胞内での拡散速度を解析してFRAP、FCS、FDAPで比較したところFDAPでの解析結果は速い拡散の解析を得意とするFCSの測定結果とよく一致した。このようにFDAPは幅広い速度領域のタンパク質拡散を計測することができる方法であり、細胞内分子動態解析を用いた病態評価への応用が期待される。

さらに、測定系にはFCSで用いるような特別な装置を必要としないのでFDAP法は通常の細胞観察の顕微鏡システムを用いてFCSレベルの速い拡散を調べることができる新しいツールとしてタンパク質動態解析の研究に貢献することが期待される。

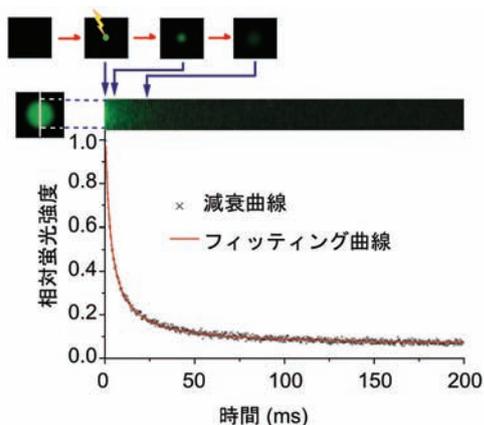


図3. 拡散による Phamret 蛍光減衰曲線の FDAP 解析

(c) 生きた細胞内で機能するタンパク質1分子の構造変化を実時間で観察する技術開発

生細胞内で機能するタンパク質の構造変化を1分子単位、リアルタイムで観察する計測技術を開発している。このモデルとして、蛍光タンパク質で標識した神経成長因子受容

体の構造変化を、標識した蛍光タンパク質発色団分子方向の経時変化から計測している。発色団分子の方向を計測するために、蛍光1分子像のデフォーカス像を高い時間分解能で取得することが必要となる。しかしながら神経成長因子受容体を含め、細胞内で機能するタンパク質は多くの場合ブラウン運動をおこなっており、デフォーカス像を高いS/N比で取得することは困難である。そこで、通常細胞膜でブラウン運動しながら機能する受容体を固定することにより、受容体の構造変化を観察した(図4)。

受容体の固定は、この受容体と結合する神経成長因子をガラス基板上に固定することによっておこなった。この神経成長因子は、この2量体のC末端をビオチン化したのち、ストレプトアビジン修飾したカバーガラス上に固定化した。

固定化した神経成長因子と結合した受容体を1分子単位で観察すると、通常 $0.3\mu\text{m}^2/\text{s}$ 程度の拡散係数で運動する受容体がある一点で止まって見える。この受容体の細胞質ドメインにつなげた蛍光タンパク質発色団の方向変化をデフォーカス像によって経時的に計測した。(図5) 現在受容体の活性を変化させる様々な実験条件で、この方向変化を計測中である。

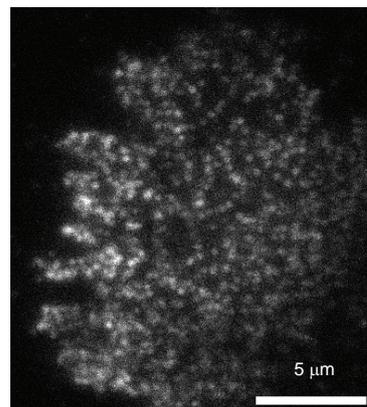


図4. ガラス基板上に固定された神経成長因子と結合する細胞膜上の受容体 Trk-GFP (PC12細胞に発現)の蛍光1分子像

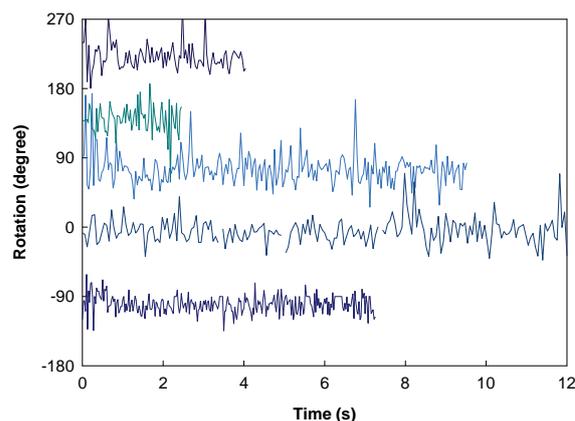


図5. 受容体 Trk-GFP のデフォーカス像から計測した受容体細胞質ドメインの角度変化

(d) 全自動 DNA 組換え方法の開発

昨年度までに開発したDNA解読反応を応用することで、DNAの試験管内組み換えを迅速に行う方法 (FASTR; Fully Automated Single Tube Recombination) を開発した。この技術は、電気泳動やアガロースゲルからのDNA断片精製などを一切必要とせず、PCR産物を酵素カクテルと混ぜて、15

分程度反応させるだけで全ての操作を終えることが出来る迅速で簡便な方法である。

ClassIIS 制限酵素の認識部位を組み込んだプライマーを用い、本方法で使用する DNA 断片を増幅させる。この PCR 産物に DNA 連結酵素と ClassIIS 制限酵素を同時に加えると、図6の赤線で示した箇所において、DNA の切断と再結合を繰り返す平衡反応が起こる。平衡反応の中で、組み換えパートナーの中間体どうしが出会うと DNA 連結酵素による共有結合が起こるが、この産物には図6の水色のボックスで示した ClassIIS 制限酵素の認識部位が存在しないため、これ以上の反応が起こらず最終産物が集積する。この反応に基づく FASTR 技術の完成により、PCR 産物を「混ぜるだけ」で DNA 組み換えを行うことが可能となった。多断片の組み換えによるハイスループットな用途も実現している。また、通常の方法と同様なコンストラクション設計が可能なることから、従来の方法を完全に置き換えることの出来る技術であると期待される。

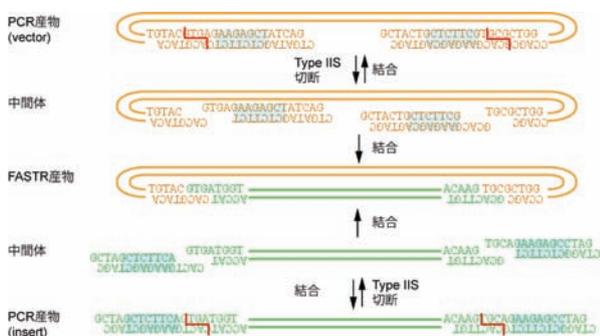


図6. 全自動 DNA 組み換え反応の原理

### 3. 今後の研究の展開

ヒューマンゲノムの全貌が明らかになった現在、タンパク質間相互作用を網羅的に解析するプロテオーム解析が生物学研究の主流の1つになっている。その結果、細胞内分子反応に関わる分子群とそれらの相互作用に関する莫大な量の情報が蓄積してきた。しかしながら、個々の生理現象に潜む一般原理の理解には至っていない。それはひとえに細胞内の様々な事象に関与する分子と分子を矢印で結んだ“静的”理解に留まっているからである。そのようなデータのほとんどが百万個以上の細胞をすりつぶして調製した試料を生化学的に調べるという方法から得られるものであるが、このような方法は生理現象の時空間的スケールを全く無視している。より包括的・根源的な理解のためには個々の生理反応がいつ、どこで、どの程度起こるのか、つまり時空間的な“動的”情報を得る必要があるであろう。また、細胞レベルだけでなく、個体レベルでの情報も得なければならない。その為には生理機能を可視化する技術、個体レベルのイメージング技術、そしてリアルタイムに観察しながら生理機能を“いじる”技術の開発が必要不可欠であ

る。当研究室では、新しい技術を用いた解析による新しい現象の発見を目指して、機能指示薬開発、生理機能操作技術開発、顕微鏡技術開発、生理現象解析の4位1体型研究を今後も展開していくことで、生命の謎に迫りたい。

## 4. 資料

### 4.1 学術論文等

- 1) K. Saito, K. Kobayashi, T. Tani and T. Nagai: “A mercury arc lamp-based multi-color confocal real time imaging system for cellular structure and function.”, *Cell Struct Funct.* 33: 133-141 (2008)
- 2) I. Kotera and T. Nagai: “A high-throughput and single-tube recombination of crude PCR products using a DNA polymerase inhibitor and type IIS restriction enzyme.” *J. Biotechnol.* 137: 1-7,(2008)
- 3) T. Sunabori, A. Tokunaga, T. Nagai, K. Sawamoto, M. Okabe, A. Miyawaki, Y. Matsuzaki, T. Miyata and H. Okano: “Cell-cycle-specific nestin expression coordinates with MORPHOLOGICAL changes in embryonic cortical neural progenitors.”, *J. Cell Sci.* 121 : 1204-1212 (2008)
- 4) T. Matsuda, A. Miyawaki and T. Nagai: “Direct measurement of protein dynamics inside cells using a rationally designed photoconvertible protein.”, *Nature Methods* 5 : 339-345 (2008)

### 4.2 総説、解説、評論等

- 1) 松田知己、永井健治:「新規の光変換蛍光蛋白質プローブを用いた生体イメージングと動態解析」、蛋白質 核酸 酵素、共立出版、53(14) : 1858-1864 (2008)
- 2) 永井健治、松田知己:「光変換タンパク質を用いた生体分子の動態解析法」、実験医学、羊土社、26(17) : 2830-2836 (2008)
- 3) 松田知己、永井健治:「光活性化・光変換蛍光タンパク質を用いたタンパク質動態解析」、バイオインダストリー、25 : 21-26 (2008)

### 4.5 講演

#### a. 招待講演

##### i) 学会

- 1) 永井健治:「蛍光・化学発光タンパク質を巧妙に用いた分子機能・動態の可視化」、日本薬学会関東支部第33回学術講演会、東京 (2008-11)
- 2) T. Nagai: “Imaging biological functions by using FRET-based sensor proteins”, ICCB2008, ソウル, Korea (2008-10)
- 3) T. Nagai: “Engineering fluorescent and bioluminescent proteins to visualize biological functions”, NEWro-science2008, サンパウロ, ブラジル (2008-09)

- 4) 松田知己、宮脇敦史、永井健治：「合理的に設計した光変換蛍光タンパク質による生きた細胞内でのタンパク質動態測定」、日本動物学会第79回大会、福岡大学 (2008-09)
  - 5) 松田知己、宮脇敦史、永井健治：「合理的に設計した光変換タンパク質による生きた細胞のタンパク質動態解析」、第8回 日本蛋白質科学会年会、タワーホール船橋、東京都 (2008-06)
  - 6) T. Nagai: “ビジュアルバイオロジーって?”, 第41回日本発生物学会, 徳島 (2008-05)
  - 7) T. Nagai, W. Tomosugi, T. Matsuda, I. Kotera and K. Saito: “Development of a fluorescent protein with deep blue color”, Focus On Microscopy 2008, 淡路 (2008-04)
  - 8) T. Matsuda, A. Miyawaki and T. Nagai: “Direct measurement of protein dynamics in single living cells using a rationally designed photo-convertible fluorescent protein”, Focus On Microscopy 2008, 淡路 (2008-04)
- ii) 研究会
- 1) T. Matsuda: “Direct measurement of protein dynamics in single living cells using a rationally designed photo-convertible fluorescent protein”, 平成20年度北海道大学電子科学研究所プロジェクト研究(B): 若手国際共同研究 “Recent Advances in Fluorescence Spectroscopic Methods for Biological and Chemical Systems”, Research Institute for Electronic Science, Hokkaido University (2009-02)
  - 2) T. Nagai: “Deciphering enigma of biological function by genetically-encoded molecular spies.”, Current Advances in Live Cell Imaging Workshop, ソウル, Korea (2009-02)
  - 3) 谷知己: 「情報伝達する分子同士の向きを見るー蛍光偏光からのアプローチ」、2分子計測ワークショップ、東京 (2008-12)
  - 4) T. Nagai: “Engineering fluorescent proteins to visualize and manipulate biological functions”, 第11回日米先端科学 (JAFoS) シンポジウム, アーバイン, USA (2008-12)
  - 5) T. Nagai: “Engineering fluorescent proteins to visualize biological functions”, 第8回日米先端工学シンポジウム, 神戸 (2008-11)
  - 6) T. Matsuda and T. Nagai: “Direct measurement of protein dynamics in single living cells using a rationally designed photo-convertible fluorescent protein”, The 11th Hokkaido University-Seoul National University Joint Symposium 分科会6「発光蛍光法による生体イメージング」, 北海道大学 創成科学研究棟 (2008-11)
  - 7) 永井健治: 「合理的な蛍光タンパク質エンジニアリングによる生細胞内タンパク質の機能・動態可視化プローブの開発」、CREST たんぱく質の構造・機能と発現メカニズム、東京 (2008-10)
  - 8) 永井健治: 「蛍光プローブの利用」、第11回細胞生物学ワークショップ、神戸 (2008-08)
  - 9) 永井健治: 「FRETの基礎」、第11回細胞生物学ワークショップ、神戸 (2008-08)
  - 10) 永井健治: 「改変蛍光タンパク質によるタンパク質機能・動態のリアルタイム可視化」、岩手医科大学先端医療研究センター公開シンポジウム「バイオイメージングと分子生物学による脳・血管解明-健康増進に向けた最先端研究」、盛岡 (2008-07)
  - 11) T. Nagai: “Functional imaging of biological events by using genetically-encoded FRET(Fluorescence Resonance Energy Transfer)-based indicators”, Singapore Bioimaging Consortium-Nikon Imaging Centre Workshop 2008, シンガポール, シンガポール (2008-07)
  - 12) T. Nagai: “Engineering fluorescent and bioluminescent proteins”, Institute of Neuroscience, Chinese Academy of Sciences, 上海, 中国 (2008-05)
  - 13) T. Nagai: “Direct measurement of protein dynamics in living cells using a rationally designed photoconvertible fluorescent protein”, NIPS-JST国際ワークショップ, 岡崎 (2008-04)
- iii) コロキウム・セミナー・その他
- 1) T. Nagai: “Deciphering enigma of biological function by genetically-encoded molecular spies”, ENS Joliot Curie Lab, リヨン, France (2009-02)
  - 2) 永井健治: 「改変蛍光タンパク質を利用した生理機能の可視化」、未踏・ナノテクノロジー第151委員会 第86回、つくば (2009-01)
  - 3) 永井健治: 「GFPを巧妙に用いた分子機能・動態の可視化」、京都府立医科大学研究開発センター「第8回学術講演会」、京都 (2009-01)
  - 4) 永井健治: 「GFPは何故光る? -機能指示薬作成法と生理機能の可視化-」、第4回ライブセルイメージング講習会、つくば (2008-10)
  - 5) 永井健治: 「GFPは何故光る? -機能指示薬作成法と生理機能の可視化-」、第17回メディカル・ホトニクスコース、浜松 (2008-07)
  - 6) 松田知己、永井健治: 「蛍光タンパク質を利用した生理機能・分子動態イメージング」、顕微鏡イメージング先端技術セミナー (九州大学大学院医学研究院 教育・研究支援センター、グローバルCOE共催)、九州大学医学部 (2008-07)
  - 7) 谷知己: 「ひとつひとつの生体分子を生きたまま観察してわかること」、富士フイルム研究所セミナー、神奈川 (2008-06)
- b. 一般講演
- i) 学会
- 1) 齊藤健太、小林健太郎、谷知己、永井健治: 「大口径ファイバー白色光源を用いた高速共焦点顕微鏡の開発と評価」、平成20年度日本顕微鏡学会北海道支部学術講演会、北海道札幌市 北海道大学 歯学部講堂 (2008-12)
  - 2) 永井健治: 「生命システムの階層間をまたぐイメージン

- グ技術」、第31回日本分子生物学会年会、神戸(2008-12)
- 3) K. Saito and T. Nagai: “Single live cell and plant Ca<sup>2+</sup> imaging with BRET-based probes”, 日本生物物理学会第46回年会, 福岡県福岡市 (2008-12)
  - 4) 谷知己、齋藤健太、永井健治: 「Trapping single molecules of GFP-tagged nerve growth factor receptor via ligands immobilized on a solid surface」、日本生物物理学会年会、福岡 (2008-12)
  - 5) 谷知己、永井健治、原田慶恵、野村真未: 「Nerve growth factor-induced translocation of TrkA-GFP expressed on PC12 cells」、日本生物物理学会年大会、福岡 (2008-12)
  - 6) 松田知己、宮脇敦史、永井健治: 「合理的に設計した新規光変換タンパク質を利用した生細胞内分子拡散解析法」、第60回日本細胞生物学会大会、横浜 (2008-06 ~ 2008-07)
  - 7) 齋藤健太、永井健治: 「シロイヌナズナにおける重力情報伝達のリアルタイム可視化解析」、第43回日本生物物理学会、札幌コンベンションセンター、札幌 (2005-11)
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) 松田知己、堀川一樹、永井健治: 「生体組織内の1細胞レベルでの機能イメージングを可能にする光活性化型生理機能プローブ」、平成20年度 北大細胞生物研究集会、北海道大学理学部7号館 (2009-03)
  - 2) 永井健治、松田知己: 「光活性化型バイオセンサータンパク質の開発」、「特定領域研究」マルチスケール操作によるシステム細胞工学 (バイオ操作) 第7回公開シンポジウム、仙台 (2009-03)
  - 3) 松田知己: 「光変換蛍光タンパク質による生きた細胞内のタンパク質動態測定」、2008年度 電子科学研究所 研究交流会、北海道大学電子科学研究所 (2009-01)
  - 4) K. Saito and T. Nagai: “Single live cell and plant Ca<sup>2+</sup> imaging with bioluminescence resonance energy transfer (BRET)”, The 10th RIES-Hokudai International Symposium on 綾 [aya], 北海道札幌市 北海道大学 学術交流会館 (2008-12)
  - 5) K. Saito, K. Kobayashi, T. Tani and T. Nagai: “A mercury arc lamp-based multi-color confocal real time imaging for cellular structure and function”, Hokkaido University-Seoul National University Joint Symposium 分科会「発光蛍光法による生体イメージング」、北海道札幌市 北海道大学 創成科学研究機構 (2008-11)
  - 6) 永井健治: 「蛍光タンパク質を利用した生理学研究の新たな展開」、特定領域「バイオ操作」若手研究者第3回ワークショップ、那覇 (2008-07)
  - 7) 永井健治: 「ビジュアルバイオロジーに基づく新たな生命像の構築を目指して」、理化学研究所・北海道大学ジョイントシンポジウム、和光 (2008-04)

#### 4.7 予算獲得状況

- a. 科学研究費補助金 (研究代表者、分類名、研究課題、期間)
- 1) 永井健治、若手研究A、少数分子による自己組織化過程の生体機能シグナル可視化による解析、06~08年度
  - 2) 永井健治、特定領域研究「革新的ナノバイオ」公募班、完全定量1分子共鳴エネルギー移動測定によるタンパク質構造動態解析法の確立、07~08年度
  - 3) 永井健治、特定領域研究「ライフサーベイヤ」公募班、ホモ FRET による複数機能の可視化技術開発、07~08年度
  - 4) 永井健治、特定領域研究「バイオ操作」公募班、光操作によるマルチスケール機能イメージング法の開発、08~09年度
  - 5) 永井健治、挑戦的萌芽研究、光スイッチングバイオセンサーの開発、08~09年度
  - 6) 谷知己、特定領域研究「生体ナノシステム」公募班、構造変化感受性蛍光タンパク質を用いた Trk 受容体リン酸化のライブイメージング、07~08年度
  - 7) 谷知己、基盤研究B、シナプス伝達の調節に関わる神経栄養因子受容体トラフィックの1分子イメージング、07~08年度
- c. 大型プロジェクト・受託研究
- 1) 谷知己、科学技術振興機構、戦略的創造研究推進事業 さきがけ研究、タンパク質1分子モーションキャプチャー技術の開発、2006~2009年度
  - 2) 永井健治、厚生労働省、萌芽的先端医療技術推進事業、ナノレベルイメージングによる分子の機能および構造解析、2007~2009年度
  - 3) 小寺一平、科学技術振興機構、戦略的創造研究推進事業 さきがけ研究、超迅速なゲノム配列決定法の開発、2005~2008年度
  - 4) 永井健治、科学技術振興機構、戦略的創造研究推進事業 さきがけ研究、ナノサイズ高輝度発光光源の創生と生命機能計測への応用、2008~2013年度

#### 4.8 共同研究

##### b. 民間との共同研究

- 1) 永井健治 (ニコン・インストルメンツカンパニー): 「機能指示タンパク質を効率よく観察するための顕微鏡開発」、2007~2008

#### 4.12 社会教育活動

##### a. 公的機関の委員

- 1) 谷知己: 科学技術振興機構 研究開発戦略センター 計測技術常設委員会委員 (2008年06月01日~現在)

##### g. 北大での担当授業科目 (対象、講義名、担当者、期間)

- 1) 全学共通、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論Ⅱ、永井健治、2009年1月30日
- 2) 全学共通、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論Ⅰ、

永井健治、2008年7月2日

- 3) 理学院、発進化学特論、永井健治、2008年10月1日～2008年12月31日
- 4) 理学部、実験生物科学、永井健治、2008年10月1日～2009年1月31日
- 5) 理学部、生物高分子科学、永井健治・谷知己、2008年6月25日
- 6) 理学院、生命理学概論、永井健治・谷知己、2008年6月18日
- 7) 工学部、基礎生物学Ⅰ、永井健治、2008年4月1日～2008年7月31日

#### h. 北大以外での非常勤講師

- 1) 永井健治、大阪大学理学研究科、生物科学特別講義Ⅰ/生物科学特別講義E、2008年6月19日～2008年6月20日
- 2) 永井健治、京都大学薬学、生命薬科学特論Ⅲ/創薬リード探索理論、2008年6月10日

#### i. ポスドク・客員研究員など

・ポスドク（3名）

- 1) Sang-Yeob Kim（日本学術振興会外国人特別研究員）
- 2) 竹本研（博士研究員）
- 3) 小寺一平（科学技術振興機構、戦略的創造研究推進事業「構造機能と計測分析」研究領域・研究者）

#### j. 修士学位及び博士学位の取得状況

・修士課程（2名）

- 1) 友杉亘：光安定性とプロトン非感受性を兼ね備えた群青色蛍光タンパク質の開発（2008年3月）
- 2) 岩崎卓也：GFPの多量体化とFRET効率の関係及びGFP変異体の温度感受性に関する研究（2008年3月）

# 電子情報処理部門

## 研究目的

情報処理論と生体情報学を基礎にして、状況に応じて推論し判断する生体機能を解明し、人間の脳のように柔軟性のある電子情報処理システムの構築を目的としている。



## 情報数理研究分野

教授 西浦廉政 (京大理院、理博、1995.4～)

助教 柳田達雄 (総研大、学術博、1995.6～)

飯間 信 (京大理院、理博、1999.4～)

事務補佐員

酒井真理 (2007.8～2009.8)、辻田由香 (2009.4～)

電子科学研究所研究員

トニーヤス ラルフ、一宮尚志

VBL 研究員 小林康明、袁曉輝、齋藤宗孝、山本美希

院 生

・博士課程 西 慧、伊藤賢太郎

・修士課程 大賀淳史、及川智絵、鈴木勝也、鈴木悠介、  
鳥谷部和孝、畠中耕平

### 1. 研究目標

人間を含めた自然の営みを理解する方法は様々であるが、本研究分野は計算機の中に小自然を作り、その数理的構造を明らかにすることにより、その本質を解明することを目指す。いわば数理の実験工房とでもいうべきものである。対象は一般に複雑かつ大自由度であるが、具体的な実体に基づきつつも、それにとらわれない普遍的構造を取り出すことを試みる。平成20年度はパルスの整流作用と不均一場における2次元スポットダイナミクス、昆虫飛翔の解析的理論、マルコフ連鎖モンテカルロ法による力学方程式のレイイベントの探求等を主目標においた。

### 2. 研究成果

#### (a) パルスの整流作用と不均一場における2次元スポットダイナミクス

不均一場におけるシグナル伝達の問題は生物系、化学系において重要な意味をもつ。自然界には常に非一様性が存在するというのみならず、逆に不均一性を積極的に利用して、様々な情報処理を行うということも行われているからである。昨年度の展望にも述べたが、例えば1次元パルスの一方向の整流作用については大きな進展があった。実際、向きをランダムに指定した初期値から出発して、最終的にはすべて同一方向に進行させることに成功した。これは空間周期的に配列したバンプ型の不均一性において、各バンプの左右のジャンプ点での勾配を変えることにより、通過または反射を制御することが可能となることを用いたものである。また2次元自己駆動粒子解（以下スポットとよぶ）の不均一場での運動についても進展があった。とくに直線上に沿ってジャンプ型の不均一性が存在する場合をグレイ・スコット3種系とよばれる反応拡散系を用いて研究を実施した。この系の場合、ジャンプ付近にディフェクト解は現れないので、ダイナミクスの変化をスポットとディフェクト解の衝突現象とみなすことはできない。代わり

に左右の無限遠にある均一系を想定し、スポットのダイナミクスの変化をそれら無限遠にある分水嶺解による仕分けと見ることにより、全体像が把握することができることが判明した。

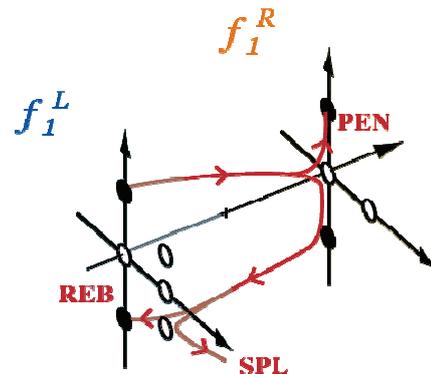


図1. ジャンプの存在する直線を挟んで、左右の無限遠にある均一系ダイナミクスの分水嶺によりスポットの動きが仕分けられる様子を模式的に示した。左無限大から出発し、右向きに進むスポットがジャンプを越えた後、白丸の分水嶺解により通過(PEN)か、左に向きを変えるかを仕分けられ、さらに左無限遠にある別の白丸の分水嶺解により、反射(REB)か分裂(SPL)かに仕分けられる。

#### (b) 昆虫飛翔の解析的理論

昆虫の飛翔では、翼の運動により渦を作り、運動に必要な力を得る場合が多い。しかし渦を用いた飛行の流体力学の基礎方程式に基づく理論はまだ提案されていなかった。その理由は、定常翼の理論とは異なり、はばたき運動に伴う非定常な渦運動が生成する力の特性を理論的に見積もることは難しいとされてきたからである。ここでは今井(1974)の導出した2次元空間における拡張されたBlasiusの公式を用いて外力下でののはばたき飛行を解析し以下の結果を得た。まず、はばたきを開始してから有限時間だけ経った場合の状態を解析し、過度場の双極子成分の時間変化が力の生成に大きな寄与をしていることを明らかにした。次に申請者が開発、研究を続けている数値モデルにおいて、渦パターンを単純化した理論モデルを作り、発生する力を渦パターンの時間変化と結びつける式を導いた。更に空中停止飛行がもつ理論的特異性のあるパラドックスの形で表現した。これは外力下で定常飛行を行う昆虫に働く力が、定常飛行の速度がゼロの場合にはばたき運動および発生する渦構造の詳細にかかわらずゼロになるというものである。この結果は、定常飛行がゼロになる極限でも、最初からゼロである場合でも同様に成り立つ。ただし、定常飛行速度を $U$ とすると、 $U$ がゼロになる極限で昆虫に働く力の時間平均 $F$ のゼロへの収束は非常に遅い。この結果はこれまでに数値モデルで得られている特徴的な分岐構造（安定飛行を表す分岐枝が定常飛行速度がゼロに近い値での端点となる）の理解につながる結果と考えられる。

(c) マルコフ連鎖モンテカルロ法による力学方程式のレアイベントの探求

マルコフ連鎖モンテカルロ法(MCMC)は、物理学ではカノニカル分布のサンプリングに、統計学では事後分布からのサンプリングに、それぞれ広く用いられているが、確率分布で定式化できる任意の現象について適用できる手法である。なかでも、初期値や確率的状態変化のパターンを変数としてサンプルすることで、与えられたシステムを特徴づけるような「珍しい現象」(rare event)を実現することが「第3の用途」として注目されている。本年度は決定論的力学系の初期値をサンプリングし直接的数値計算では得ることが難しい「珍しい現象」を求めた。ここで、珍しい現象とは、不安定な極限集合に収斂する軌道や平均値とは遠い統計的性質を示す軌道である。さらに、サンプリングを初期値空間とパラメータ空間の直積空間へ拡張することにより、大域分岐構造の解明に向けての応用を試みた。これらはシステムの数理的な理解に役立ち、また、システムが正しく同定されているという条件のもとでは、少ない確率でおこる異常な出来事を予測するのにも役立つ可能性がある。

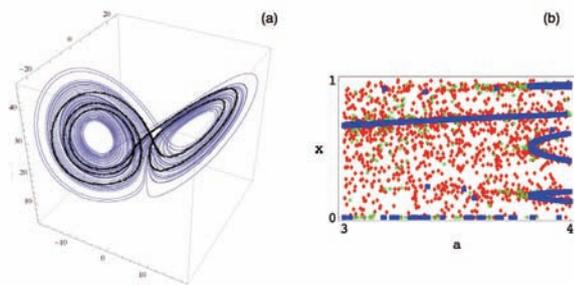


図2. (a)Lorenz 方程式で現れるカオス軌道の中に埋め込まれている不安定周期軌道をマルコフ連鎖モンテカルロ法により抽出した。(b)Logistic 方程式の大域分岐構造をパラメータと初期値の直積空間をマルコフ連鎖モンテカルロ法によりサンプリングする事により求めた。

### 3. 今後の研究の展望

時間的、空間的な階層構造、異なるスケールの共存は複雑な系を取り扱うときには常に考慮せねばならない重要な要素である。具体的には、異なる階層あるいは異なるダイナミクスの領域へ転移するきっかけは何であろうか？ またどのような数理的機構がそれを駆動しているのであろうか？ などが直ちに自然な疑問として出てくる。これらに統一的に答える枠組みはまだできていないが、不安定な解の集合から成るネットワークの構造の解明はひとつの鍵を与えていると思われる。単純化された、しかし本質を捉えたいいくつかの数理モデルにおいて具体的に検証を積み重ね、大きな枠組みの基盤作りが今後の重要な課題となる。

1. 環境という立場からは非一様性は普遍的に存在する。スポット解を移動する生物群と解釈すれば、これは環境の変化に対応して、どのように生物が適応行動をとるのかという問題と同値である。実際、真正粘菌はその頭部が active

な部分であり、それ以外の部分は追従しているフォロアーと考えれば1次元チャンネルにおいては、実質的に自己駆動粒子と見なせる。一様な寒天培地において、部分的に毒性物質あるいは光を用いて、粘菌にとって好ましくない環境を非一様に作る事ができる。嫌いな環境の強さの程度を変える時に、粘菌がそれに応じてどのように行動を変えるかを実験することができる。一方、粘菌の数理モデルを構成することは可能であり、本年度の結果はその基盤となる。今後それらを比較検討することにより、環境変化に伴う適応行動の変化に関わる数理的な理解が大いに進展することが期待される。

2. 流体中に置かれた物体に働く力を理論的に求める問題は古くからある基礎的な問題である。定義上はストレステンソルを物体表面上で積分すればよいが、そのためには物体表面での速度勾配と圧力が必要となり、結局流れ場全体の情報が必要であった。一方ポテンシャル流の場合は物体の形状から流れの情報が決定され、特に遠方での流れの漸近挙動で物体に働く力が求められる。本年の結果は同様な解析がより一般的な渦ありの非定常流でも可能であることをしめしたという意味で意義は大きいと考えられる。今後3次元への拡張およびより現実的な問題へ適用を行うことで、ここで得られた理論の応用が期待される。

3. マルコフ連鎖モンテカルロ法 (MCMC) により力学系の初期値探索を行い「珍しい現象」のサンプリングが可能である事を示した。この手法は初期値探索のみならず、原理的には任意の変数のサンプリングを可能とさせる。この特性を活かす事により MCMC により機能的力学の設計をすることができる。特に、要素力学系を仮定し、それらがネットワーク結合したモデル群は結合パラメータが離散的であるため有効である。例えば、位相振動子や興奮性素子のネットワーク結合系が考えられる。これらは神経網や遺伝子発現網の単純モデルと考える事ができ、結合ネットワーク構造に依存して多様な振る舞いを示す。今後は力学系が与えられた特徴をもつようにネットワーク結合を系統的に MCMC よりサンプリングし力学系の設計を行い、機能力学系が持つ普遍的ネットワーク構造を解明が期待される。

## 4. 資料

### 4.1 学術論文等

- 1) M. Iima and A. S. Mikhailov : “Propulsion hydrodynamics of a butterfly micro-swimmer”, *Europhys. Lett.*, 85 : 44001-p1-44001-p6 (2009)
- 2) T. Ichinomiya, U. P. Blas, S. E. Kurt, Y. Nishiura, I. Mitsuhiro, C. Ying, K. Yasunori and K. Motoyasu : “Temperature accelerated dynamics study on migration process of oxygen defects in UO<sub>2</sub>”, *Journal of Nuclear Materials*, ELSEVIER, 384(3) : 315-321 (2009)
- 3) T. Yanagita and Y. Iba : “Exploration of Order in Chaos with Replica Exchange Monte Carlo”, *Journal of Statistical Mechanics*, 78 : 02043-02018 (2009)
- 4) M. Iima and Y. Nishiura : “Unstable periodic solution controlling collision of localized convection cells in binary fluid mixture”, *Physica D*, 238 : 449-460 (2009)
- 5) M. Yadome, K. Ueda, T. Teramoto, M. Nagayama and Y. Nishiura : “A Nested Sequence of Transitions for Collision Dynamics in Dissipative Systems”, *Bulletin of the Institute of Mathematics, Academia Sinica (New Series)*, 3(4) : 585-601 (2008)
- 6) T. Yanagita, H. Suetani and K. Aihara : “Bifurcation analysis of solitary pulse, synchronized pulses and reentrant waves in laterally coupled excitable fibers”, *Phys. Rev. E*, 78 : 056208-056219 (2008)
- 7) T. Teramoto, M. Gameiro and Y. Nishiura : “Applications of computational homology to 3D morphology transitions”, *数理解析研究所講究録*, 1614 : 166-171 (2008)
- 8) M. Iima : “A paradox of hovering insect in two-dimensional space”, *J. Fluid Mech.*, 617 : 207-229 (2008)
- 9) H. Suetani, T. Yanagita and K. Aihara : “Pulse Dynamics in Coupled Excitable Fibers: Soliton-like Collision, Recombination, and Overtaking”, *International Journal of Bifurcations and Chaos*, 18(8) : 2289-2308 (2008)
- 10) T. Yanagita and T. Onozaki : “A Model of Market Structure Dynamics with Boundedly Rational Agents”, *Agent-Based Approaches in Economics and Social Complex System V*, Springer-Verlag, V : 255-266 (2008)
- 11) Y. Tasaka, K. Ito and M. Iima : “Visualization of a rotating flow under large-deformed free surface using anisotropic flakes”, *Journal of Visualization*, 11(2) : 163-172 (2008)

### 4.2 総説・解説・評論等

- 1) 飯間信 : 「Analysis of hovering insect in two-dimensional space」、数理解析研究所講究録、1631 : 98-106 (2009)
- 2) 飯間信 : 「蝶の飛翔に潜む数理構造」、日本応用数学会誌、18(4) : 39-51 (2008)
- 3) 西浦廉政 : 「非線形科学は新たな世界観を与えうるか」、科学、岩波書店、78(11) : 1209-1213 (2008)

- 4) 飯間信、田坂裕司、伊藤賢太郎 : 「回転流れにおける表面大変形の遷移および分岐」、数理解析研究所講究録、1601 : 80-85 (2008)
- 5) 飯間信 : 「はばたき飛翔の流体力学」、日本物理学会誌、63 : 629-633 (2008)
- 6) 飯間信、田坂裕司、佐藤譲、眞山博幸 : 「自由表面大変形を伴う円筒容器内の回転流れの実験および数理解析」、日本流体力学会年会2008講演論文集 (2008)
- 7) 鳥谷部和孝、飯間信、西浦廉政 : 「2種混合流体における局対流セルダイナミクスの2次元直接数値計算」、日本流体力学会年会2008講演論文集 (2008)
- 8) 飯間信 : 「2次元流体中で周期運動する翼に働く力の表式とその昆虫飛翔への応用」、日本流体力学会年会2008講演論文集 (2008)

### 4.3 国際会議議事録等に掲載された論文

- 1) T. Teramoto, K. Ueda, X. Yuan and Y. Nishiura : “Information exchange between moving particles and defects”, *Proceedings or Information and Communications Technology* : 238-249 (2009)
- 2) M. Iima : “Robustness of an insect’s hovering: a transition of flapping free-flight”, *Proceedings of ICTAM 2008* (2008)

### 4.5 著書

- 1) 西浦廉政 : 「非平衡ダイナミクスの数理」、岩波書店 (2009)
- 2) 飯間信 : 「羽ばたき飛翔の数理」、昆虫ミメティクス - 昆虫の設計に学ぶ -、エヌ・ティ・エス、下澤樞夫、針山孝彦編、分担執筆 : 672-677 (2008)

### 4.7 講演

#### i) 学会

- 1) M. Iima and Y. Nishiura : “Collision Dynamics of Localized Waves in a Model Equation of Binary Fluid Convection”, 2008 SIAM Conference on Nonlinear Waves and Coherent Structures, Rome, Italy (2008-07)

#### ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 飯間信 : 「昆虫のはばたき飛行における漸近渦構造の役割」、非線形現象の数値シミュレーションと解析2009、札幌 (2009-03)
- 2) M. Iima : “Theory of flapping flight using vortices”, Sapporo Winter School Part II. Nonequilibrium Pattern Formation in Chemical and Biological Systems, Sapporo (2009-02)
- 3) Y. Nishiura, T. Teramoto, K. Ueda, X. Yuan and K. Suzuki : “Oblique collisions in dissipative systems”, Sapporo Winter School, Conference Hall, Hokkaido University (2009-02)
- 4) 西浦廉政 : 「不安定からの発想」、生命数理セミナー、

ホテル甘露の森会議室（北海道虻田郡ニセコ町）  
(2009-01)

- 5) Y. Nishiura, T. Teramoto, X. Yuan and K. Ueda: "A Role of Network of Unstable Patterns in Dissipative Systems", Dynamics of Patterns, Mathematisches Forschungsinstitut Oberwolfach, Germany (2008-12)
- 6) M. Iima: "Numerical and theoretical analysis of freely flying insects - stability, vortex patterns, and far-field structure -", The 10th RIES-Hokudai International Symposium on AYA, 札幌 (2008-12)
- 7) Y. Nishiura: "A role of network of unstable patterns in dissipative systems", Nonlinear dynamics and pattern formation ~Advanced Mathematical Sciences 1~明治大学グローバルCOEプログラム【現象数理学の形成と発展】, 川崎市・明治大学生田校舎 (2008-11)
- 8) T. Yanagita: "Design of Functional Oscillatory Networks with Replica Exchange Monte Carlo", "Interfacial dynamics on the boundaries of physics, chemistry, biology and mathematics", Hokkaido Univ. (2008-11)
- 9) 飯間信: 「渦構造からみた昆虫飛翔とその安定性 - 近接場と遠方場からみた飛行力学-」、非線形解析セミナー、横浜 (2008-11)
- 10) 飯間信: 「昆虫飛翔の数値モデルと理論モデル」、「偏微分方程式と現象: PDEs and Phenomena in Miyazaki 2008 (略称: PPM2008)」、宮崎 (2008-11)
- 11) Y. Nishiura: "A role of network of unstable patterns in dissipative systems", The Japan-France International Laboratory (LIA-197) ReaDiLab, Mathematical Understanding of Complex Systems arising in Biology and Medicine, Meiji University (2008-10)
- 12) 西浦廉政: 「数学は新たな世界観を与えうるか」、理化学研究所理事長ファンドワークショップ「数学・数理学の推進と国際研究拠点の形成に向けて」、エピナール那須 (那須高原) (2008-09)
- 13) T. Yanagita and A. Mikhailov: "Evolutionary Design of Robust Oscillatory Networks", Pattern Formation in Biological Networks, Max-Planck Institute, Germany (2008-09)
- 14) Y. Nishiura: "A role of network of unstable patterns in dissipative systems", Dynamics Days Asia Pacific 5(DDAP5), The 5th International Conference on Nonlinear Science, 奈良市 (2008-09)
- 15) M. Iima: "Analysis of hovering insect in two-dimensional space", 流体と気体の数学解析, 京都 (2008-07)
- 16) M. Iima: "A stability of free-flight using vortex: a universal mathematical structure", Analytical and Computational Fluid Dynamics 2008, Seoul, Korea (2008-06)
- 17) Y. Nishiura: "Sensitivity of localized waves to the geometry of heterogeneity", Fifth International Symposium Engineering of Chemical Complexity, Berlin, Germany

(2008-05)

### iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 西浦廉政、寺本敬、上田肇一、袁曉輝、鈴木勝也: 「Collision dynamics in dissipative systems」、2nd Mathematical Sciences Colloquium、(独)理化学研究所、埼玉県和光市 (2009-03)
- 2) 柳田達雄: 「マルコフ連鎖モンテカルロ法による力学系の解析とデザイン」、研究会『非線形の科学』第2回、鹿児島大学 (2009-03)
- 3) Y. Nishiura: "Oblique collisions in dissipative systems", 岐阜非線形セミナー, 岐阜大学 地域科学部棟 (2009-03)
- 4) 飯間信: 「姿勢制御による大摂動からの安定性回復について」、第3回蝶の移動知セミナー、大阪 (2008-12)
- 5) 飯間信: 「Numerical models of freely flying insects and their universal structure」、複雑系セミナー、和光 (2008-08)
- 6) 柳田達雄、小野崎保: 「市場構造のダイナミクス ~ 独占・寡占の数理学モデル」、JST ERATO 合原複雑数理学モデルプロジェクトセミナー、東京大学生産技術研究所 (2008-06)
- 7) 飯間信: 「分岐解析による昆虫飛翔制御機構解明の試み」、第2回蝶の移動知セミナー、大阪 (2008-06)
- 8) Y. Nishiura: "Particle Patterns in Dissipative Systems", 2007/2008 IAM-PIMS-MITACS Distinguished Colloquium Series, University of British Columbia, Canada (2008-04)
- 9) 飯間信: 「2次元はばたき飛行の理論」、NSCセミナー、札幌 (2008-12)

### 4.8 シンポジウムの開催 (組織者名、シンポジウム名、参加人数、開催場所、開催期間)

- 1) M. Iima, M. Sano, T. Ohta, I. Tsuda, A. S. Mikhailov, D. Helbing, D. Armbruster and Y. Nishiura: "Sapporo Winter School Part 1 Networks of Interacting Machines Part 2 Nonequilibrium Pattern Formation in Chemical and Biological Systems", 104人, Conference Hall, Hokkaido University (Sapporo) (2009年2月10日~2009年2月14日)
- 2) Y. Yamaguchi, Y. Nishiura, T. Nakagaki, Y. Sato, K. Sasaki, T. Ueda, K. Ijro, A. Ishibashi and I. Tsuda: "The 10th RIES-Hokudai International Symposium on "綾"", 100人, Hokkaido University (Sapporo) (2008年12月8日~2008年12月9日)
- 3) 遠藤徳孝、水口毅、小西哲郎、西森拓、岡村誠、柳田達雄: 「地形のダイナミクスとパターン」、20人、九州大学応用力学研究所 (福岡) (2008年11月15日~2008年11月16日)

### 4.10 予算獲得状況

- a. 科学研究費補助金 (研究代表者、分類名、研究課題、期間)
  - 1) 柳田達雄、基盤研究 C 一般、結合興奮素子系の自己

- 組織的 スパイクパターン形成と機能、2007～2008年度
- 2) 西浦廉政、萌芽研究、計算論ホモロジーの応用による材料科学の展開、2007～2009年度
  - 3) 飯間信、若手研究 B、渦を用いたはばたき飛行の流体力学に基づく理論的・数値的手法による解明、2007～2008年度
  - 4) 西浦廉政、基盤研究 S、非線形非平衡反応拡散系理論の確立、2006～2010年度
- f. その他 (研究担当者、機関名、研究題目、研究期間、総経費、研究内容)
- 1) 柳田達雄、西森拓、小西哲郎、水口毅、遠藤徳孝、岡村誠 (九州大学応用力学研究所): 「地形のダイナミクスとパターン」、2007～2008年度、本研究集会では、これらの現象を流れとそれに伴う物質移動による境界の自発的運動として捉え、異分野での理論、数値計算、実験・観測など異なる方法論の研究者が最新の知識を共有することにより、新たな知見を見いだすことを目的とする。
  - 2) 柳田達雄、伊庭幸人 (統計数理研究所): 「マルコフ連鎖モンテカルロ法による力学系の解析」、2006～2008年度、本共同研究では決定論的力学系の初期値をサンプリングし直接的数値計算では得ることが難しい「珍しい現象」を求める。
  - 3) 西浦廉政 (独立行政法人日本原子力研究開発機構): 「原子燃料細粒化プロセスの縮約的な解析理論に関する研究」、2006～2008年度、原子燃料ペレットの長期燃料で生じるリム組織 (カリフラワー構造) 等の形態形成プロセスモデルに関し、格子モンテカルロ計算により、面状欠陥形成・発達の再現を計る。

#### 4.12 社会教育活動

##### a. 公的機関の委員

- 1) 西浦廉政: 日本学術会議連携委員 (2006年8月20日～現在)
- 2) 柳田達雄: 科学技術政策研究所 科学技術動向センター 専門調査員 (2004年4月1日～現在)
- 3) 飯間信: 雑誌「物性研究」編集委員 (2001年4月1日～2009年3月31日)

##### b. 国内外の学会の役職

- 1) 西浦廉政: Chaos, Associate Editor (2009年1月1日～現在)
- 2) 西浦廉政: 日本応用数理学会評議員 (2006年4月1日～現在)
- 3) 西浦廉政: 日本数学会評議員 (2006年3月1日～現在)
- 4) 西浦廉政: European Journal of Applied Mathematics, Associate Editor (2005年1月1日～現在)
- 5) 西浦廉政: Physica D, Editor (2002年4月1日～現在)
- 6) 西浦廉政: Japan Journal of Industrial and Applied Mathematics, Associate Editor (1997年4月1日～現在)
- 7) 西浦廉政: Hokkaido Mathematical Journal, Editor (1995

年4月1日～現在)

##### e. 新聞・テレビ等の報道

・新聞

- 1) 菊池誠、西森拓、柳田達雄: 読売新聞 2008年4月21日 「サイエンス: 現象予測 数式で手軽に」

##### g. 北大での担当授業科目 (対象、講義名、担当者、期間)

- 1) 理学部、数理科学A、飯間信、2008年10月1日～2009年3月31日
- 2) 理学部、数理科学演習、柳田達雄、2008年10月1日～2009年3月31日
- 3) 理学部、計算数学4、西浦廉政、2008年4月1日～2008年9月30日
- 4) 理学院、数学基礎研究I、西浦廉政、2008年4月1日～2008年9月30日
- 5) 理学院、数学基礎研究II、西浦廉政、2008年10月1日～2009年3月31日
- 6) 理学院、数学基礎研究III、西浦廉政、2008年4月1日～2008年9月30日
- 7) 理学院、数学基礎研究IV、西浦廉政、2008年10月1日～2009年3月31日
- 8) 理学院、数学研究、西浦廉政、2008年4月1日～2009年3月31日
- 9) 理学部、数学講読、柳田達雄、2008年4月1日～2009年3月31日
- 10) 理学院、数学研究、柳田達雄、2008年4月1日～2009年3月31日
- 11) 理学院、数学基礎研究I、柳田達雄、2008年4月1日～2009年3月31日

##### i. ポスドク・客員研究員など

・ポスドク (6名)

山本美希 (工学部 VBL)、トーニヤス ラルフ、小林康明 (工学部 VBL)、袁曉輝 (工学部 VBL)、齋藤宗孝 (工学部 VBL)、一宮尚志 (電子科学研究所)

##### j. 修士学位及び博士学位の取得状況

・修士課程 (6名)

大賀淳史、及川智絵、鈴木勝也、鈴木悠介、鳥谷部和孝、畠中耕平

・博士後期課程 (2名)

西 慧、伊藤賢太郎

・修士論文

- 1) 鈴木勝也: 3種反応拡散系におけるスポット解の斜め衝突について
- 2) 鳥谷部和孝: 2種混合流体の局在対流セルの衝突ダイナミクス - 衝突軌道の成すネットワーク構造 -
- 3) 畠中耕平: 離散格子系におけるパルス解の伝搬不全現象の解析

## 神経情報研究分野

准教授 青沼仁志（北大院、理博、2001.1～）  
助教 西野浩史（岡山大院、学博、2000.10～）  
博士研究員 佐倉 緑（北大院、工博、2005.10～）  
高嶋 聡（北大院、理博、208.4.～2008.11）  
技術補助員 加味根あかり（2009.1～）  
村田祐亮（2009.1～）  
院 生 菊地美香(D1)

### 1. 研究目標

動物は、無限定環境下で状況に応じて行動し適応している。脳神経系は外界からの情報を処理し適応行動を創り出すひとつの器官である。神経細胞が相互に信号をやり取りする神経回路網は、どの様にして感覚信号の中から情報を抽出し、記憶と照合し、運動系を制御する信号を生成するのであろうか？本研究分野では、神経細胞から脳を組み立てる設計原理を明らかにするため、神経細胞の数が少なく構造も簡単な昆虫の神経系について、神経生物学及びロボット工学の手法を用いて神経細胞レベルにおける信号の流れと神経系の動作を調べている。

### 2. 研究成果

生物に見られる多様で適応的な行動は、生物が長い時間をかけて進化させた。神経系は生物が進化させたひとつの器官であり、この神経系の働きで、生物は複雑に変化する予測不可能な環境下でもすばやく状況に合った適応的な行動をとることができる。行動発現にかかわる環境要因には様々なものがある。たとえば、個体が複数集まると個体間の相互作用が生じ、その状況に応じた行動を発現する。すなわち、社会はひとつの環境要因として捉えることができる。我々は、生物の社会的な適応行動の発現メカニズムの解明を目指し、昆虫をモデル動物として研究を進めている。昆虫の身体は脊椎動物などに比べると遙かに小さく、微小な脳神経系はわずか $10^6$ 程度の細胞からなるが、優れた感覚受容機構、情報処理機構、運動発現機構をもち環境に適応している。我々は、昆虫の神経系を対象とし、行動の実時間で選択され決定する際の神経機構を明らかにすることを目指している。すなわち、動物がいかんして環境の変化に対して適応的な行動を発現するのかを理解することで、神経系の設計や動作を解明しようとしている。

動物の学習・記憶・知能をはじめ、動機づけによる行動の修飾、階層的ルールに基づく行動選択や決定など、高次行動制御の神経生理学的機序を解明するためには、従来の行動観察や細胞レベルでの生理学的な解析に加え、構成論的・システム論的アプローチを取り入れることが有効である。我々は、実時間での適応行動の発現メカニズムを理解するうえで、特に、社会をひとつの環境要因として捉え、

社会適応のメカニズム解明に挑んでいる。そこで、「社会適応」を、個体が他個体との相互作用（経験）により発現行動を柔軟に切り替えることのできる適応機構として、その神経機構の解明をめざしている。

動物は、他の個体と相互に作用しあいながら集団という環境の中でも適応的に行動できる機能を有している。すなわち、動物は、程度の差こそあれ他個体との相互作用により社会を形成し、協調・競合しながら生存している。このような社会への適応機能を生み出すメカニズムを解明するため、動物の個体認識・個体間相互作用・コミュニケーション・社会性形成などの高次行動の発現にかかわる神経生理機構について研究した。

昆虫のフェロモン行動は、一般的に定型的なものが多いが、経験により修飾されることも知られている。この様なフェロモン行動をモデル系とし、動物の状況に応じた行動切り替えや発現にかかわる神経機構、学習や記憶、可塑性の神経機構を解明する事を目指している。

クロコオロギを実験材料に、個体間の相互作用と、その社会的な経験により、引き続く行動がいかんを選択され適応的な行動が発現するのか、その神経基盤を解明しようとしている。クロコオロギのオスは他のオス個体に遭遇すると互いに威嚇し喧嘩を始める(図1)。この喧嘩行動は、相手の体表物質を受容すると解発される行動である。ところが、喧嘩に負けた個体はその後一定時間の間、他のオス個体に遭遇しても喧嘩をせずに忌避行動を示すことが知られている。このような昆虫のフェロモン行動をモデルに、行動履歴に伴う行動の修飾や行動切り替えの神経機構について研究を進めた。



図1. オスのクロコオロギ同士の闘争行動。  
体表物質を検出すると相手を威嚇し、次第に激しい攻撃行動へとかわる。

行動学的実験から、闘争に敗れた経験は短期的な記憶となり、次の行動選択に関与することが示された。これまでの研究から、コオロギの匂い学習や記憶の成立過程には一酸化窒素(NO)シグナルが関与すること、脳内ではNOが合成され、標的細胞の可溶性グアニル酸シクラーゼ(sGC)を活性化しcGMP量を増加させることを示してきた。NOが如何にして経験による行動の切替えに関与するのかを解明するため、薬理的に予め脳内のNO合成酵素あるいはsGCを阻害し、喧嘩に負けた雄の行動パターンの変化を評価したところ、NO/cGMPカスケードがフェロモン行動の発現

や修飾において機能的な役割を担うことが示唆された。

コオロギの闘争行動の発現機構には体液中の生体アミン、特にオクトパミン(OA)が関与することが知られている。一方、我々は、喧嘩経験の記憶や順位形成には脳内のNO/cGMPシグナル伝達系が関与することを明らかにしてきた。コオロギの脳には、NO合成酵素(NOS)ニューロンや、OAニューロンが存在する。喧嘩行動の発現機構において、NO/cGMPシグナル伝達系とOAによる調節系が独立に働くのか、それとも修飾作用を修飾する関係になるのかを確かめるため、薬理学実験を行った。特に、最初の対戦ではNO/cGMPシグナル系を阻害しても通常と同様に逃走行動を示すが、その対戦に於いて、敗者の個体は、2度目の対戦でも有意に攻撃行動を示すことがわかっている。一方、触角を除去した個体でも、NO/cGMPシグナル系を薬理的に阻害したときと同様に、敗者は2度目の対戦でも攻撃行動を発現する割合が高くなった。このことから、触角を介して攻撃行動を発現する経路にNO/cGMPシグナル系が関わっている可能性が示唆された。そこで、NOシグナル系が、闘争行動のどの段階で機能的に働くのかを調べるために、NO合成酵素阻害剤であるL-NAMEを最初の対戦前、もしくは、対戦後に投与し、NO産生のタイミングと闘争により敗退したあとの行動選択の関係を調べた。NOは、脳内で10-100nM程度の濃度で放出され、およそ100  $\mu$  m/secの速さで拡散する神経修飾物質である。NOS阻害剤L-NAMEは、投与後、80分後に効果が表れることを確かめた。NOSを阻害すると、2度目の対戦時に、敗者の個体が攻撃行動を発現する割合が増えることから、NOが、どのタイミングで働く必要があるのか確かめるため、最初の対戦直後にNOSの活性を阻害したところ、敗者個体は攻撃行動を示さなかった。このことから、NOは、最初の対戦時に働くことで、敗者は、闘争における敗退経験を記憶し、他個体に対する忌避行動を示すようになることが示唆された。オスコオロギでは、オスの体表物質による刺激で脳の触角葉からNOが放出されることから、触角で他個体を感じて威嚇や攻撃行動を始める時に放出されるNOが、敗者では敗退経験によるオスに対する忌避行動を持続的に発現することにかかわると考えられる。

また、化学感覚情報の識別や情報処理に関わる神経機構を解明する研究にも取り組んだ。

我々が普段嗅いでいる「匂い」の物質は分子量50~500程度の揮発性の化学物質の単体、もしくはその複合物である。匂い物質は空気中に均一に存在しているわけではなく、「ブルーム」と呼ばれる匂い物質の塊としてパッチ状に存在し、その大きさや空間分布は時々刻々と変化していることが知られている。このように絶え間なく変化する匂いの位置を検出する神経基盤を動物が持つのかどうかについては、これまでほとんど検討されていない。夜行性の昆虫は視覚的な手がかりが存在しない状況下で、遠方の匂い源に定位できる。匂いは触角全域に分布する数万個の嗅覚感覚子中にある匂い受容細胞によって受容される。特定の匂いを処

理する受容細胞の軸索は一次嗅覚中枢(触角葉)の中の特定の糸球体に収束する。たとえば、オスのゴキブリの触角にはメスの性フェロモンに特異的に応じる感覚子が多数存在する(図2左)。それらの受容細胞の軸索は触角葉中で最大の糸球体(大糸球体)に収束する(図2右)。本研究では、触角神経への色素注入により、性フェロモン受容細胞の軸索が触角内での3次元的位置に応じて、大糸球体の異なる領域に投射することを発見した(図3)。このことは、匂いが触角のどこにヒットしたのかを高解像度で表現しうる地図が中枢中に存在することを意味する。類似の地図はミツバチにおいても確認されたため、匂いの位置検出システムが昆虫間で普遍的に保存されていることが示唆される。現在は電気生理学的手法を用いて、触角の特定領域に受容野を持つ介在ニューロンの同定を進め、匂いの位置や方向がどのように符号化されているのかを明らかにしようとしている。

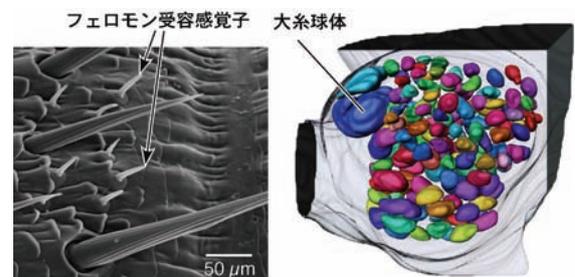


図2. ゴキブリ触角上の性フェロモン受容感覚子(左)と触角葉中の大糸球体(右)

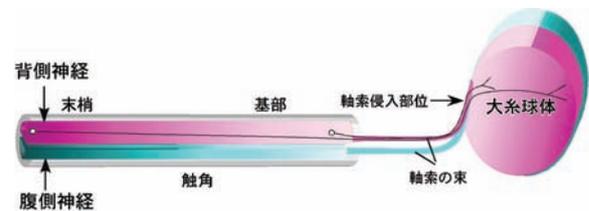


図3. ゴキブリ触角内でのフェロモン受容細胞の位置と糸球体中の軸索終末の位置との3次元の対応関係

このような生物学実験により得られた個々の知見は詳細ではあるが、時空間的には断片化している。我々は、これらの生物学的な知見を基に、昆虫の適応行動の発現機構について行動モデルの構築と、神経生理モデルの構築に取り組んできた。行動モデルでは、行動実験で得られた知見からボトムアップ的に動的システムモデルを構築し、計算機シミュレーションでその動作を検証した。神経生理モデルでは、神経生理学や薬理学実験などで得られた知見をもとに拡散方程式と微分方程式からなる動的モデルを構築し、シミュレーション実験を行った。これらのモデルから、神経系と環境との相互作用による多重フィードバック構造が適応行動の創発に重要であることが、新たな仮説として得られ、現在、構築したモデルの妥当性について生物学実験により検証を進めている。

### 3. 今後の研究の展望

適応行動の発現を司る神経生理機構を解明するため、昆虫のフェロモンを介したコミュニケーション行動の発現機構についてさらに研究を進めている。従来の生物学研究は、研究で得られた細胞・ネットワーク・個体の各階層における知見は詳細ではあるが断片的で、階層間のギャップが埋まらないまま研究が進められているのが現状である。我々は、各階層における詳細な生物学の知見をシステム工学やロボット工学の方法論で繋ぎ合わせ、動的システムモデルを構築し、さらにシミュレーションと生物学実験による検証を行うことで、階層間のギャップを埋め、社会構築の設計原理、社会適応の神経機能の設計原理解明をめざしている。

得られた生物学の知見をもとに、動的な行動モデルや神経生理モデルを構築し、そのモデルの動作と実際の動物の行動発現や神経回路の動作を比較しながら、繰り返し検証することで、適応行動の発現に関わる神経系の設計原理が理解できる。将来的には、動物の個体認識や個体認識など個体間相互作用、コミュニケーションや社会適応にかかわる神経系の設計原理を理解することができ、新しい情報処理システムの構築につながることを期待できる。

### 4. 資料

#### 4.1 学術論文等

- 1) H. Aonuma, Y. Kitamura, K. Niwa, H. Ogawa and K. Oka : “Nitric oxide-cGMP signaling in the local circuit of the cricket abdominal nervous system”, *Neuroscience*, 157 : 749-761 (2008)
- 2) M. Sakura, T. Hiraguchi, K. Ohkawara and H. Aonuma : “The compartment structures of the antennal lobe in the ant *Aphaenogaster smythiesi japonica*”, *Acta Biol Hungarica*, (59) : 183-187 (2008)
- 3) R. Okada, H. Ikeno, N. Sasayama, H. Aonuma, D. Kurabayashi and E. Ito : “The dance of the honeybee: how do honeybees dance to transfer food information effectively?”, *Acta Biol Hungarica*, 59 : 157-162 (2008)
- 4) 佐倉緑、頼経篤史、青沼仁志 : 「クロコオロギの喧嘩行動における触角の役割」、第20回自律分散システム・シンポジウム資料、SICE、08 SY 0002 : 153-156 (2008)
- 5) 足利昌俊、菊地美香、平口 鉄太郎、佐倉緑、千葉 龍介、青沼仁志、太田順 : 「クロコオロギにおける他者識別能力の解析」、第20回自律分散システム・シンポジウム資料、SICE、08 SY 0002 : 325-330 (2008)
- 6) 矢野史朗、池本有助、青沼仁志、浅間一、千葉龍介 : 「コロコオロギの成長過程における環境条件と闘争性の関係のモデル」、第20回自律分散システム・シンポジウム資料、SICE、08 SY 0002 : 331-336 (2008)

- 7) T. Funato, D. Kurabayashi, M. Nara and H. Aonuma : “Switching Mechanism of Sensor-Motor Coordination through Oscillator Network Model”, *IEEE Trans. Systems, Man and Cybernetics - Part B*, 38(3) : 764-770 (2008)
- 8) O. Yono and H. Aonuma : “Cholinergic neurotransmission from mechanosensory afferents to giant interneurons in the terminal abdominal ganglion of the cricket, *Gryllus bimaculatus*”, *Zool. Sci.*, 25 : 517-525 (2008)
- 9) H. Watanabe, H. Nishino and M. Mizunami : “The salivary conditioning with antennal gustatory unconditioned stimulus in an insect”, *Neurobiol Lern Mem*, 90 : 245-254 (2008)
- 10) Y. Ishikawa, H. Aonuma and T. Miura : “Soldier-specific modification of the mandibular motor neurons in termites”, *PLoS ONE*, 3(7) : e26171-e26178 (2008)
- 11) R. Okada, H. Ikeno, H. Aonuma and E. Ito : “Biological Insights into Robotics: Honeybee Foraging Behavior by Waggle Dance”, *Advanced Robotics*, 22(15) : 1665-1681 (2008)

#### 4.2 総説、解説、評論等

- 1) 西野浩史 : 「昆虫が「死んだふり」をするわけーコロコオロギに学ぶ擬死行動の機能としくみ」、*Biophilia*、アドスリー、4(3) : 16-21 (2008)
- 2) 青沼仁志、佐倉緑、足利昌俊、藤木智久、藤井喬、川端邦明、太田順、浅間一 : 「昆虫の社会的経験にもとづく行動選択のモデル化 Modeling of social experience dependent behavior selection in insect」、第18回インテリジェント・システム・シンポジウム講演論文集、SICE、08 SY 0010 : 305-310 (2008)

#### 4.3 国際会議議事録等に掲載された論文

- 1) H. Ikeno, R. Kanzaki, H. Aonuma, M. Takahata, M. Mizunami, K. Yasuyama, N. Matsui, F. Yokohari and S. Usui : “Development of Invertebrate Brain Platform: Management of Research Resources for Invertebrate Neuroscience and Neuroethology”, *ICONIP*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2007(Part II) : 905-914 (2008)

#### 4.7 講演

##### i) 学会

- 1) 青沼仁志 : 「Modelling of experience dependent behavior - Fighting among male crickets」、International Conference for Nonlinear Sciences SAPPORO WINTER SCHOOL, Sapporo (2009-02)
- 2) 青沼仁志 : 「闘蟋から神経行動学へ」、日本動物学会第54回北海道支部大会、札幌 (2008-08)
- 3) 高梨琢磨、中牟田潔、Skals Neils、西野浩史 : 「マツノマダラカミキリの振動反応性とその受容器としての腿

- 節内弦音器官」、第53回応用動物昆虫学会、北海道大学 (札幌市) (2009-03)
- 4) 山崎まどか、佐倉緑、青沼仁志、松山茂、秋野順治、山岡亮平：「クロコオロギ雄の喧嘩行動誘起フェロモン」、第53回日本応用動物昆虫学会大会、札幌 (2009-03)
  - 5) 藤井喬、川端邦明、青沼仁志、鈴木剛、足利昌俊、太田順、浅間一：「クロコオロギの行動選択機構のモデリングに関する研究」、第14回ロボティクスシンポジウム、登別 (2009-03)
  - 6) H. Watanabe, H. Nishino, M. Nishikawa and F. Yokohari : “Analysis of the neural processings of thermo and hygro-sensory signal in the insect brain”, Australian Neuroscience Society 29th Annual Meeting, Canberra, Australia (2009-01)
  - 7) 佐倉緑、頼経篤史、青沼仁志：「クロコオロギの攻撃行動発現における一酸化窒素シグナル系の関与」、日本動物学会第79回大会、福岡大学 (2008-09)
  - 8) 岡田龍一、池野英利、木村敏文、大橋瑞江、青沼仁志、伊藤悦朗：「巢内での追従バチの行動パターン」、日本動物学会第79回大会、福岡大学 (2008-09)
  - 9) 西野浩史、岩崎正純：「ゴキブリ嗅覚投射ニューロンの形態学的解析」、日本動物学会第79回大会、福岡大学 (2008-09)
  - 10) 渡邊英博、西野浩史、横張文男：「ワモンゴキブリ前大脳における湿度情報処理の神経生理学的解析」、日本動物学会第79回大会、福岡大学 (2008-09)
  - 11) 山崎まどか、佐倉緑、青沼仁志、秋野順治、山岡亮平：「オスクロコオロギの体表物質に含まれる攻撃行動誘起成分」、日本比較生理生化学会第30回大会、北海道大学 (2008-07)
  - 12) 西野浩史、西川道子、横張文男：「ミツバチ触角葉糸球体の機能マッピング」、日本比較生理生化学会第30回大会、北海道大学 (2008-07)
  - 13) 山崎まどか、佐倉緑、青沼仁志、秋野順治、山岡亮平：「オスクロコオロギの体表物質に含まれる攻撃行動誘起成分」、日本比較生理生化学会第30回大会、札幌 (2008-07)
  - 14) K. Kawabata, T. Fujiki, T. Fujii, H. Aonuma, Y. Ikemoto, M. Ashikaga, J. Ota, T. Suzuki and H. Asama : “Towards synthetic understanding of neural system of adaptive behavior selection in the fighting behavior of male crickets”, FENS2008, Geneva, Switzerland (2008-07)
  - 15) M. Ashikaga, M. Sakura, M. Kikuchi, T. Hiraguchi, R. Chiba, H. Aonuma and J. Ota : “Modeling of adaptive behavior of crickets in crowd”, FENS2008, Geneva, Switzerland (2008-07)
  - 16) H. Aonuma, J. Murakami and T. Nagao : “Nitric oxide mediated biogenic amine system underlying agonistic behavior in the crickets”, FENS2008, Geneva, Switzerland (2008-07)
  - 17) 船戸徹郎、奈良維仁、倉林大輔、青沼仁志、足利昌俊：「振動子網を用いた昆虫規範ロボット群の挙動分化」、日本機械学会 ロボティクス・メカトロニクス講演会、長野県上田市 (2008-06)
  - 18) 藤井喬、川端邦明、青沼仁志、鈴木剛、足利昌俊、太田順、浅間一：「コオロギの適応的行動選択モデルに関する研究」、日本機械学会 ロボティクス・メカトロニクス講演会、長野県上田市 (2008-06)
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) H. Aonuma : “Modelling of social interaction dependent behavior selection in the cricket”, Workshop on Dynamical Circuits in the Brain, Sapporo (2008-09)
  - 2) J. Ota, H. Aonuma, H. Asama, K. Kawabata and M. Ashikaga : “Multidisciplinary contributions from neuroethology and engineering—Understanding experience dependent behavior selection in crickets”, IROS2008: IEEE/RSJ Int’l Conf. on Intelligent Robots and Systems, Acropolis Convention Center, Nice, France (2008-09)
  - 3) 青沼仁志：「Experience dependent behavior selection in the cricket」、International Seminar: Evolutionary Studies in Behavioral Neuroscience、総合研究大学院大学 (2008-07)
  - 4) H. Aonuma : “Multidisciplinary contributions from neuroethology and engineering—Understanding experience dependent behavior selection in crickets”, 4th International Symposium on Adaptive Motion of Animals and Machines (AMAM 2008), Cleveland, USA (2008-06)
  - 5) 青沼仁志：「コオロギの闘争経験に基づく行動選択 Fighting experience dependent behavior selection in the cricket」、Seminar on Ecological and Physiological Studies about Sociality of Insects、兵庫県立大学 (2009-01)
  - 6) 青沼仁志：「コオロギの振り舞いから学ぶ人間社会」、環境・自然を考える会、札幌 (2008-08)
  - 7) H. Nishino : “Topographic organization of olfactory afferents: insights into evolution of olfactory sensory system in insects”, International seminar: Evolutionary Studies in Behavioral Neuroscience, 湘南国際村センター (2008-06)
  - 8) 水野達也、佐倉緑、足利昌俊、青沼仁志、太田順：「ハンディキャップコオロギを用いたコオロギの攻撃行動発現機構のモデル化」、第21回自律分散システムシンポジウム、鳥取 (2009-01)
  - 9) 足利昌俊、佐倉緑、菊地美香、平口鉄太郎、青沼仁志、太田順：「コオロギ群における社会的順位形成過程のモデル化」、第21回自律分散システムシンポジウム、鳥取 (2009-01)
  - 10) 青沼仁志、佐倉緑、足利昌俊、藤木智久、藤井喬、川端邦明、太田順、浅間一：「昆虫の社会的経験にもとづく行動選択のモデル化」、第18回インテリジェント・シ

ステム・シンポジウム、広島 (2008-10)

- 11) 水野達也、佐倉緑、足利昌俊、青沼仁志、太田順：「ハ  
ンディキャップコオロギを用いたコオロギの内部メカ  
ニズムの解明」、無脊椎動物神経生物学研究会、旭川市  
蔵囲夢デザインギャラリー (2008-09)
- 12) 青沼仁志、太田順：「コオロギの社会的経験による行動  
の発現と切り替えー行動のモデル化ー」、無脊椎動物  
神経生物学研究会、旭川市蔵囲夢デザインギャラリー  
(2008-09)
- 13) 岡田龍一、池野英利、木村敏文、大橋瑞江、青沼仁志、  
伊藤 悦朗：「ミツバチの8の字ダンスにおける巢内で  
のダンスバチと追従バチの行動パターン」、無脊椎動物  
神経生物学研究会、旭川市蔵囲夢デザインギャラリー  
(2008-09)

#### 4.8 シンポジウムの開催 (組織者名、シンポジウム名、参 加人数、開催場所、開催期間)

・一般のシンポジウム

- 1) 青沼仁志：「無脊椎動物神経生物学研究会」、30人、旭  
川市蔵囲夢デザインギャラリー (旭川市) (2008年9月  
15日～2008年9月17日)

#### 4.9 共同研究

##### d. 受託研究 (研究担当者、機関名、研究題目、研究期間、 総経費、研究内容)

- 1) 支朗白井、英利池野、R. Kanzaki, M. H. Aonuma and M.  
Takahata (理化学研究所)：“無脊椎動物脳プラットホ  
ームの開発と運用”，2005～2009年度，無脊椎動物を対  
象とする神経生理、化学、行動学に関連する情報を共  
有するシステムの開発、構築を進めるもので、NIJCに  
おけるプラットホームの一貫として運用を進めていく  
計画である。

#### 4.10 予算獲得状況

##### a. 科学研究費補助金 (研究代表者、分類名、研究課題、 期間)

- 1) 西野浩史、基盤研究 C、匂い位置検出ニューロンの活  
動動態の解明、2008～2010年度
- 2) 青沼仁志、特定領域研究、環境に適応するための高次  
行動を制御する神経生理機構のシステムの理解、2005  
～2009年度

#### 4.11 受賞

- 1) M. Nishikawa, F. Yokohari, H. Aonuma and E. Tsujii :  
Zoological Science Award “Serotonin-immunoreactive  
Neurons in the Antennal Sensory System of the Brain in  
the Carpenter Ant, *Camponotus japonicus*” (The Zoo-  
logical Science of Japan) 2008年9月

#### 4.12 社会教育活動

##### b. 国内外の学会の役職

- 1) 青沼仁志：日本動物学会北海道支部 役員 (2009年1  
月1日～2011年12月31日)
- 2) 青沼仁志：Advanced Robotics, Special Issue on Mobili-  
gence, Guest Co-Editor (2007年9月13日～2008年12月  
31日)
- 3) 青沼仁志：計測自動制御学会自立分散システム部会運  
営委員 (2007年1月1日～2008年12月31日)
- 4) 青沼仁志：The Neuroinformatics Japan Center・  
Invertebrate Brain Platform委員 (2006年4月1日～2010  
年3月31日)
- 5) 青沼仁志：移動知教科書出版ワークグループ委員  
(2008年4月1日～2010年3月31日)

##### c. 併任・兼業

- 1) 青沼仁志：理化学研究所 客員研究員 (2006年11月1日  
～2010年3月31日)

##### f. 外国人研究者の招聘 (氏名、国名、期間)

- 1) Ken Lukowiak, Canada (2009年2月13日～2009年2月19  
日)

##### g. 北大での担当授業科目 (対象、講義名、担当者、期間)

- 1) 全学共通、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論 I  
～ナノバイオシステム論の展開：“知”の探求～、青沼  
仁志、2008年7月1日～2008年7月3日
- 2) 全学科共通 「複合科目・健康と社会・脳科学：分子か  
ら高次機能発現まで」青沼仁志 2006年11月17日
- 3) 生命科学院、行動システム制御科学特論、西野浩史、  
2008年4月1日～2008年9月30日
- 4) 生命科学院、生命システム科学基礎論、青沼仁志、2008  
年4月1日～2008年9月30日
- 5) 生命科学院、生命科学実習、青沼仁志、2008年4月1日  
～2009年3月31日
- 6) 生命科学院、生命科学論文講読、青沼仁志、2008年4  
月1日～2009年3月31日
- 7) 生命科学院、行動システム制御科学特論、青沼仁志、  
2008年4月1日～2008年9月30日
- 8) 生命科学院、生体制御科学概論、青沼仁志、2008年4  
月1日～2008年9月30日

##### i. ポスドク・客員研究員など

- ・ポスドク (2名)  
佐倉 緑 (神経情報)  
高嶋 聡 (神経情報)

##### j. 修士学位及び博士学位の取得状況

- ・大学院生・学位取得  
博士課程 (1名)  
菊池美香

## 計算論的生命科学研究分野

教授 津田一郎 (京都大学、理博、2005.10～)  
准教授 佐藤 謙 (東京大学、博士(学術)、2006.4.～)  
助教 山口 裕 (北海道大学、博士(理学)、2008.4～)  
博士研究員 Kang Hunseok (ペンシルバニア州立大学、  
理学(数学)、2008.4～)  
学術研究員  
田所 智 (北海道大学、理博、2003.9～)  
黒田 茂 (北海道大学、修士(理学)、2005.4～)  
研究生 安岡卓男 (愛媛大学医、MD、2001.4～)  
玉井信也 (東京大学、修士(学術)、2006.4～)  
事務補佐員 平 厚子 (2003.9～)  
院 生 伊藤孝男(D3)、前田真秀(D3)、渡部大志(D3)、  
黒田 拓(D2)、塚田啓道(D2)、太田康亮(M2)、  
奈良貴仁(M1)

### 1. 研究目標

計算論的生命科学は、電子科学研究所と理学院数学専攻との共同事業の一環として構築された。分子、細胞、システムにまでわたる生命現象の複雑さを数理的に解明するとともに、新しい生命システム論の構築をめざしている。複雑系としての生命システムの機構を解明することを目指し、新しい複雑システム論を構築する。特に、記憶、思考・推論の脳神経機構および認知機構の解明のための数理的アプローチを確立するとともに、非線形大自由度力学系の理論の構築を目標とする。今年度は、具体的には次の研究を行なう。ニホンザルの思考・推論実験を玉川大学脳科学研究所にて行なう (a)。海馬CA1の生理学的モデルの詳細な検討、および実験データの解析を行い、カントルコーディングの理論を精密化する (b)。カオスの遍歴の数学的機構に関する研究 (c)。ヤマハ発動機製のエンジン出力に見られるカオスの解析と制御 (d)。ランダム力学系に関する研究 (e)。

### 2. 研究成果

(a) サルは三段論法を理解するだろうか。1997年に玉川大学工学部塚田実教授とともにこの疑問に答える実験研究を行えるように北海道大学、玉川大学双方で準備してきた。実際にスタッフをそろえ実験を開始したのは2000年からである。ニホンザルを使った思考・推論実験を玉川大学脳科学研究所、同工学部と共同で行ってきた。現在のサルに対して3年間実験を繰り返し、最初の結果が3年前に得られた。タスクは2回の連続する連想にもとづくカテゴリー形成とそのメンバーの推論を行うように工夫された。行動実験においてサルは推移、反射を駆使した推論を行えるという結果を得た。さらに、対応するニューロン活動が前頭前野外側部から得られ、少なくとも3種類のニューロンが見

つかった。結果は*Nature Neuroscience*誌に掲載された。さらに次の段階の実験を進めている。(津田)

(b) 人や動物にみられるエピソード記憶の形成過程を数理的、神経生理学的に研究した。まず神経回路網レベルで、空間パタンの時系列入力の情報表現について理論的、計算論的に行い、理論的予測を行い、実験によって検証した。実際、海馬のニューラルネットをモデル化し、海馬の役割に関する計算論的な研究を行った。海馬CA3とCA1のネットワーク構造を調べ数学的な取り扱いが簡単な離散時間・連続状態モデルをつくりそのダイナミクスを調べた。その結果、モデルCA3では事象記憶の列が生成され、各事象記憶間を連結する軌道はカオス軌道であり、いわゆるカオスの遍歴が生じることが分かった。また、モデルCA1ではモデルCA3で生成された時系列情報がモデルCA1のニューロンの膜電位に生じるカントル集合にコードされることが分かった。これが生物学的に意味のあるコーディングかどうかを調べる目的で、CA1ニューロンを神経生理学的なPinsky-Rinzelの2-コンパートメントモデルでモデル化し、ランダム時系列入力に対するCA1ニューロンネットワークの活動度を調べた。その結果、時系列の履歴が膜電位空間やスパイク時系列の空間にカントル集合として表現されることがわかった。これをスパイクニューロンとバースティングニューロンの場合について、それぞれNMDAチャンネルとAMPAチャンネルの効果とともに調べた。AMPAチャンネルだけを活性化させた場合は、スパイクニューロンでは10msec近傍で、バースティングニューロンでは50msec—200msecの入力パターン間隔において、カントルコーディングが成立し、AMPAチャンネルとともにNMDAチャンネルを活性化させた時には、スパイクニューロンにおいては10-30msec近傍の間隔において、バースティングニューロンにおいては、50-200msec間隔でカントルコーディングが成立することを確定した。さらに、入力時系列がある特定のパターンを示すときに膜電位の一次元写像を構成すると、入力時系列の要素であるパタンの種類に応じて、その数だけ縮小アフィン変換が構築されていることがわかった。さらに、玉川大学工学部塚田稔研究室との共同研究として、ラット海馬スライスでのカントルコーディングの有無を調べる実験を引き続き行なった。さまざまな入力時系列に対して、CA1の膜電位に入力時系列を表現する階層的なパターンが現れ、この階層パターンの生成規則は、理論モデルが予測する複数のアフィン変換が得られた。これらの実験結果は、ラット海馬が時系列入力をカントルコーディングを行なっている可能性を強く示唆する結果である。さらに、実験精度を上げるために、2光子レーザー顕微鏡を使ったグルタメートのアンケーシングによる同時多点刺激法の準備を行った。(山口、黒田、津田)

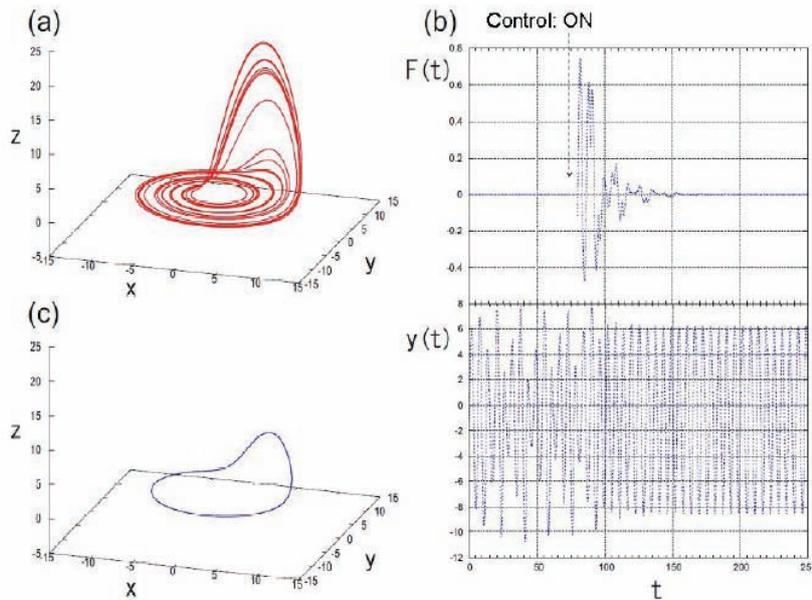
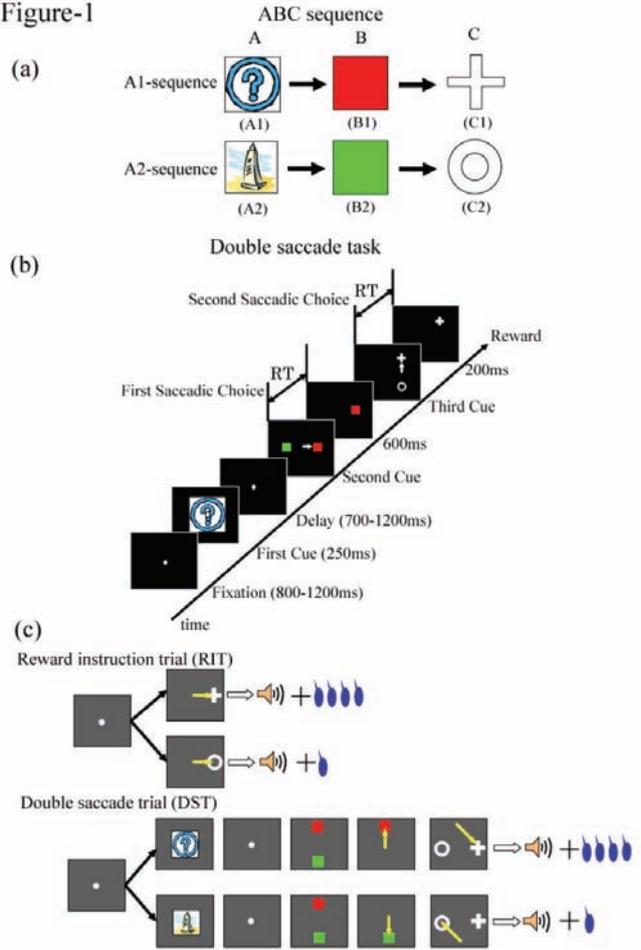
(c) カオスの遍歴の機構に関する数学的な理論を作った。複数のシナリオを考えた。

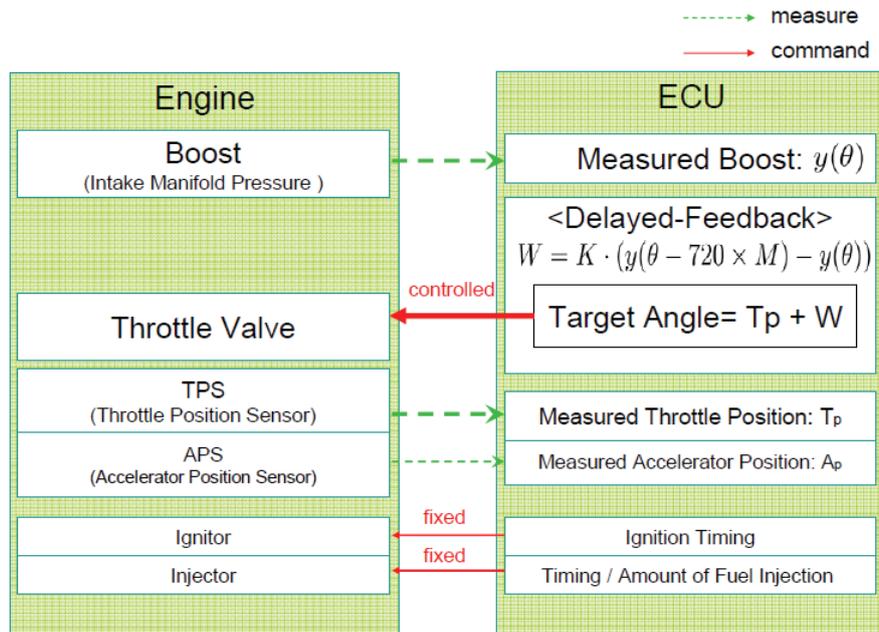
1. 三つ組 (カオスの不変集合、ミルナーアトラクター、リドルドベイシン)。
2. 不動点型ミルナーアトラクターの相互作用。
3. Heterodimensional cycle の存在。
4. 法双曲型不変多様体の存在。
5. フラクタルベイシン境界にともなったミルナーアトラクターの存在。この場合はノイズ付きでカオスの遍歴になる。(津田)

(d) ヤマハ発動機製のエンジン出力に見られる不規則変化の原因の究明とハーネシングを目的として、エンジン出力のカオス解析を行なった。決定論的カオスの存在を以前に発見したので、今回は制御可能性を調べた。エンジンの内部構造は複雑を極めるため、何が本質的なパラメータかの判別は難しい。そこで、カオス軌道を与えられた周期を持つ内在する周期軌道への引き込みが容易なピラガス法を採用し、これをデータに津田-田原-岩永の方法を使って直接適用した。その結果、カオス軌道は消滅し、与えられた周期をもつ周期軌道が得られた。さらに、実機のヤマハエンジンに直接この制御方式を適用し、制御可能性を実証をヤマハで行った。松本がヤマハに就職し、研究は第一段階が終了した。アメリカの国際会議や国内会議での発表を行い、いくつかの論文を発表した。(松本、津田)

(e) 回転流体系の乱流-層流転移という無限次元の複雑な現象からノイズ付きの一次元写像が抽出された。このモデルにより、実験時系列と、乱れの強さのヒステリシスが再現された。(佐藤)

Figure-1





### 3. 今後の研究の展望

脳神経系の高次機能である連続連想記憶、エピソード記憶、思考・推論に関する数理モデルによる研究は、理論の予測と実験による検証の段階に入り、予測の一部が実証された。さらに、モデルと実験系を共に海馬全体、さらには海馬と新皮質相互作用系へと発展させ、将来的にはラットの行動実験に伴う in vivo 計測によって、理論の予測するエピソード記憶に対するカオスの遍歴とコントロールコーディングの実証を行っていききたい。サルを使った思考推論実験に関しては、将来的には、さらに高度な推論実験、思考の実験タスクを考えたい。サルの実験はリスクが大きいため、ラットの行動実験も視野に入れている。さらに、将来的にはコミュニケーションの脳内機構の解明を目指す。脳のダイナミクス、生命活動に対する正しい解釈を与えるための枠組みとして大自由度力学系、ゲーム理論、進化ダイナミクスに関する理論を提供したい。特に、遍歴の機構の解明と抽象化された雛形モデルの構築を目指す。また、進化・発生におけるダイナミクスの機構の解明のための数理的方法論の確立を目指す。さらには、相空間の次元が変化するような新しい力学系—発展型力学系—の基礎理論の構築を目指したい。

## 4. 資料

### 4.1 学術論文等

- 1) X. Pan, K. Sawa, I. Tsuda, M. Tsukada and M. Sakagami, Reward prediction based on stimulus categorization in primate lateral prefrontal cortex. *Nature Neuroscience* 11, 703-712 (2008). published online 25 May 2008; doi: 10.1038/nn.2128.

- 2) K. Matsumoto, H. Diebner, I. Tsuda and Y. Hosoi, Application of chaos theory to engine systems, In Proc. of Small Engine Technology Conference, Society of Automotive Engineers, 2008-32-0010(SAE) /20084710 (JSAE), 2008.
- 3) I. Tsuda, Number Created by the Interaction Between Consciousness and Memory: A Mathematical Basis for Preference, *Integrative Psychological and Behavioral Science* 42(2), 153-156(2008). published online 25 May 2008; doi:10.1007/s12124-008-9062-y.
- 4) I. Tsuda, Y. Yamaguti, S. Kuroda, Y. Fukushima and M. Tsukada, A Mathematical Model for the Hippocampus: Towards the Understanding of Episodic Memory and Imagination. *Prog. Theor. Phys. Suppl.* 173 (2008) 99-108.
- 5) I. Tsuda, Hypotheses on the functional roles of chaotic transitory dynamics, *CHAOS* 19, 015113-1 - 015113-10 (2009).
- 6) Yuzuru Sato, Makoto Iima, and Yuji Tasaka, Random Dynamics from Time Serieses of Rotating Fluid, *Proceedings of JSIAM08*, p317-318, (2008).

### 4.2 総説・解説・評論等

- 1) 津田一郎、エピソード記憶：海馬のカオスモデル、*応用数理*, Vol.18, No.3, SEP. (2008) 2-19.
- 2) 津田一郎、エピソード記憶の数学的構造、*BRAIN and NERVE*, 第60巻、第7号(2008) 771-782.

### 4.7 講演

#### i) 学会

- 1) 松本和宏、津田一郎、細井幸治、エンジンシステムに

- におけるカオス性とその制御、自動車技術会2008年春季大会、パシフィコ横浜、横浜、5月21日-23日、2008年。
- 2) 福島康弘、塚田稔、津田一郎、山口裕、黒田茂、海馬CA1野錐体細胞の閾値上応答におけるカントール性、第31回神経科学大会、東京国際フォーラム、東京、7月9日-11日、2008年。
  - 3) 津田一郎、時間のメタモルフォーシス、特別講演、日本金属学会・鉄鋼協会北海道支部夏季講演大会、北海道大学、7月24日、2008年。
  - 4) Yuzuru Sato, “Random Dynamics from Time Serieses of Rotating Fluid,” contributed talk, JSIAM Conference, University of Tokyo, Tokyo, Japan, (2008).
  - 5) 山口裕、乗法ノイズをもつ離散時間-連続値型連想記憶回路について、日本物理学会第64回年次大会、立教大学池袋キャンパス (2009-03).
  - 6) 福島康弘、塚田稔、津田一郎、山口裕、黒田茂、海馬CA1野錐体細胞の閾値上応答におけるカントール性、第31回神経科学大会、東京国際フォーラム (2008-07).
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) Kazuhiro Matsumoto, Hans H. Diebner, Ichiro Tsuda, and Yukiharu Hosoi, Application of Chaos Theory to Engine Systems, Small Engine Technology Conference, Midwest Airlines Center, Milwaukee, September 9-11, 2008.
  - 2) 津田一郎、脳神経系における測定の理論、招待講演、Dynamics of Complex Systems, organized by M. Yuri, 北海道大学、9月1日-3日、2008年。
  - 3) Ichiro Tsuda, Temporal metamorphosis as a dynamical mechanism of episodic memory, Invited talk, DDAP5, Nara Public Hall, Sept. 9-12, 2008.
  - 4) 津田一郎、海馬の数学モデル：エピソード記憶の理解に向けて、招待講演、Motor Controlの会、日本ペーリソングーインゲルハイム主催、千里ライフサイエンスセンター、11月28日、2008年。
  - 5) 津田一郎、Chaotic itinerancy in the hippocampal CA3 and contractive affine transformations in CA1 provide a dynamical interpretation of complex memory、招待講演、ニューロコンピューティング研究会 (NC)、北海道大学百年記念会館、1月19日-20日、2009年。
  - 6) I. Tsuda, Hypotheses on the functional roles of chaotic transitory dynamics, International Conference for Nonlinear Sciences - SAPPORO WINTER SCHOOL, Conference Hall, Hokkaido University, February 10-14, 2009.
  - 7) I. Tsuda, Hypotheses on the functional roles of chaotic transitory dynamics, Invited talk, Dynamic Brain Forum'09 (DBF'09), Atami, Japan, March 2-4, 2009.
  - 8) Yuzuru Sato, Random Dynamics from Time Serieses of Rotating Fluid, invited talk, Dynamics Days Asia-Pacific, Nara, Japan, (2008).
  - 9) Yuzuru Sato, Random Dynamics from Time Serieses of Rotating Fluid, invited talk, Dynamics of Complex systems, Hokkaido University, Sapporo, Japan, (2008).
  - 10) Yuzuru Sato, Re-visiting Noise-induced Order, invited talk, Artificial Life: Half-way through, University of Tokyo, Tokyo, Japan, (2008).
  - 11) Yuzuru Sato, Noise-induced Phenomena in one-dimensional maps, invited talk, ASI,RIKEN, Saitama, Japan, (2008).
  - 12) Y. Yamaguti, S. Kuroda, I. Tsuda, Y. Fukushima and M. Tsukada, Cantor Coding in a Model of Hippocampus, 11th Tamagawa Dynamic Brain Forum, Atami (2009-03).
  - 13) S. Tadokoro, Y. Yamaguti, H. Fujii and I. Tsuda, Transitory behaviors in diffusively coupled neural oscillators, 11th Tamagawa Dynamic Brain Forum, Atami (2009-03)
  - 14) 山口裕、エピソード記憶形成の数理モデル、2008年度電子研究交流会、北海道大学電子科学研究所 (2009-1).
  - 15) 山口裕、黒田茂、津田一郎、福島康弘、塚田稔、エピソード記憶形成の数理モデル、数学教室談話会、北海道大学 (2008-5).
- iii) コロキウム・セミナー等・その他
- 1) I. Tsuda, Hippocampus follows transitory dynamics in an episodic context, The 120th complex systems seminar, July 2, 2008, RIKEN.
  - 2) 津田一郎、脳における時間のメタモルフォーシス、数学教室大談話会、北海道大学数学教室、7月17日、2008年。
  - 3) Yuzuru Sato, Program Organizer, Workshop “Chaos and Its Applications II”, ASI, RIKEN, Saitama, Japan.
  - 4) Yuzuru Sato, Organizer, Mathematical Sciences Colloquium Series, RIKEN, Saitama, Japan.
  - 5) Yuzuru Sato, Organizer, Mathematical Sciences Tutorial Series, RIKEN, Saitama, Japan.
- 4.8 シンポジウムの開催 (組織者名、シンポジウム名、参加人数、開催場所、開催期間)
- 1) 津田一郎、笹木敬司、西浦廉政、上田哲男、石橋晃、居城邦治、佐藤謙、山口裕 “The 10th RIES-Hokudai International Symposium on 綾[aya]” (100名、札幌 (北海道大学)、2008年12月8日~9日)
- 4.10 予算獲得状況
- a. 科学研究費補助金 (研究代表者、分類名、研究課題、期間)
- 1) 津田一郎、基盤研究 B 一般、カオスの遍歴のシナリオに関する研究、2006~2009年度
  - 2) 津田一郎、特定領域研究、エピソード記憶形成に関する海馬の数理モデルと実験的検証、2008~2009年度
  - 3) 津田一郎、特定領域研究、動的素子のネットワークに於ける環境に対する適用メカニズムの研究、2008~2009年度

4) 津田一郎、萌芽研究、カオスネットワークの進化、2008～2010年度

f. その他 (研究担当者、機関名、研究題目、研究期間、総経費、研究内容)

1) 津田一郎、北海道大学、平成20年度、新設組織基盤整備経費、数学連携研究センター

#### 4.12 社会教育活動

##### c. 併任・兼業

1) 津田一郎、独立行政法人科学技術振興機構、「戦略的創造研究推進事業」領域アドバイザー (2008年6月6日～2009年3月31日)

2) 津田一郎、独立行政法人理化学研究所 分子情報生命科学特別研究ユニット、客員主管研究員 (2008年5月1日～2009年3月31日)

3) 津田一郎、独立行政法人理化学研究所 脳科学総合研究センター、客員主管研究員 (2008年5月1日～2009年3月31日)

4) 津田一郎、文部科学省、「科学技術国際協力の総合的推進」専門家 (2008年10月4日～8日)

5) 津田一郎、科学技術動向研究センター、専門調査員 (2008年4月1日～2009年3月31日)

6) 津田一郎、北陸先端科学技術大学院大学、アカデミックアドバイザー (2008年11月27日～2009年3月31日)

7) 津田一郎、北陸先端科学技術大学院大学、評価・審査委員会委員 (2008年11月23日～2009年3月31日)

8) 津田一郎、玉川大学術研究所、非常勤特別研究員客員教授 (2008年4月1日～2009年3月31日)

9) 津田一郎、財団法人 国際高等研究所、特別委員 (2008年4月1日～2009年3月31日)

10) 津田一郎、財団法人 国際高等研究所、「生物進化の持続性と転移」研究プロジェクト研究代表者 (2008年4月1日～2009年3月31日)

11) 津田一郎、財団法人 国際高等研究所、「認識と運動における主体性の数理脳科学」研究プロジェクトメンバー (2008年4月1日～2009年3月31日)

12) 津田一郎、大阪大学工学研究科知能・機能創成工学専攻、招へい教員 (招へい教授) (2008年4月1日～2009年3月31日)

13) 津田一郎、九州大学大学院システム情報科学府、非常勤講師 (2008年4月1日～2009年3月31日)

14) 津田一郎、広島大学、外部評価委員 (2008年7月22日～2008年9月30日)

15) 津田一郎、日本ベーリンガーインゲルハイム株式会社、講師 (2008年10月28日)

16) 津田一郎、北海道大学数学連携研究センター兼務教員 (2008年4月1日～2009年3月31日)

17) 佐藤謙、独立行政法人理化学研究所 分子情報生命科学特別研究ユニット、客員研究員 (2008年5月1日～2009年3月31日)

18) 佐藤謙、独立行政法人理化学研究所 脳科学総合研究センター、客員研究員 (2008年5月1日～2009年3月31日)

19) 山口裕、北海道大学数学連携研究センター兼務教員 (2008年4月1日～2009年3月31日)

##### d. その他

1) 津田一郎、ダイナミックブレインプラットフォーム委員会委員 (2008年4月1日～2009年3月31日)

2) 山口裕、ダイナミックブレインプラットフォーム委員会委員 (2008年4月1日～2009年3月31日)

##### f. 外国人研究者の招聘 (氏名、国名、期間)

1) Leslie Kay, USA (2008年9月20日～2008年9月27日)

2) Peter Erdi, Hungary (2008年11月1日～2008年11月22日)

3) Marko Robnik, Slovenia (2008年11月19日～2008年11月21日)

4) Johan Lauwereyns, New Zealand (2009年1月15日～2009年1月17日)

##### g. 北大での担当授業科目 (対象、講義名、担当者、期間)

1) 津田一郎、全学共通、一般教育演習、2008年10月1日～2009年3月31日

2) 津田一郎、全学共通、微分積分学1、2008年10月1日～2009年3月31日

3) 津田一郎、理学部、数理科学基礎、2008年4月1日～2008年9月30日

4) 津田一郎、理学部、計算数学特論3、2008年4月1日～2008年9月30日

5) 津田一郎、理学部、現代数学への招待、2008年4月1日～2008年9月30日

6) 津田一郎、理学部、計算数学講義3、2008年4月1日～2008年9月30日

7) 津田一郎、医学研究科、脳科学研究の展開IV「脳科学研究パラダイム」カオス理論、2008年4月1日～2009年3月31日

8) 理学部、コンピュータ、山口裕、2008年10月1日～2009年3月31日

##### h. 北大以外での非常勤講師 (担当者、教育機関、講義名、期間)

1) 津田一郎、大阪大学工学部、知能・機能創成工学に関する研究と教育について、2008年4月1日～2009年3月31日

2) 津田一郎、九州大学システム情報科学府、情報工学特別講義、2008年4月1日～2009年3月31日

##### i. ポスドク・客員研究員など

・ポスドク

Kang Hunseok (電子科学研究所)

・学術研究員

田所 智 (電子科学研究所)

黒田 茂 (電子科学研究所)

・研究生

安岡卓男 (電子科学研究所)

玉井信也 (電子科学研究所)

## スマート分子研究分野

教授 玉置信之 (千葉大院、工博、2008.10～)  
 助教 亀井 敬 (東北大院、工博、2008.10～)  
 深港 豪 (九州大院、工博、2008.12～)  
 博士研究員 Meethale Chelaveettil Basheer (2008.10～)  
 事務補助員 平出ありさ

### 1. 研究目標

生体内では、DNA、タンパク質、糖、脂質などが、生体内外の刺激を受け、分子構造、集合状態、他の分子との相互作用を変化させることで結果的に情報を処理して、何らかの最終的な化学的または物理的变化として出力を行う、いわゆる「スマート分子」として働いている。われわれは、スマート分子を合成によって創成することを目的として、光等の刺激によって構造変化を示す分子の合成、分子構造変化によって誘起される分子集合状態や他の分子との相互作用の変化の解析を行っている。具体的には、光エネルギーを利用した分子内の回転運動の制御、光エネルギーを使って位置を変化させる光駆動分子機械の創成、光応答性分子による液晶分子配列の制御、物理的キラル場による分子キラリティーの誘起を目指している。

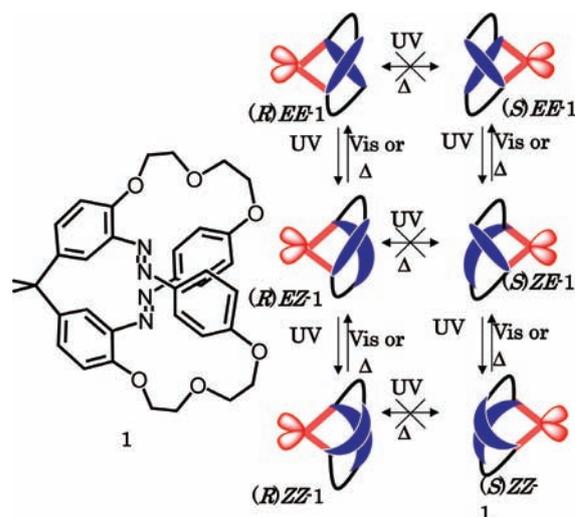
### 2. 研究成果

#### (a) 新規光応答性キラル液晶の開発と光学的性質

液晶とは、流動性がありかつ分子配列に一定の規則性がある状態、いわゆる液晶相を示す物質で、現代のディスプレイにはなくてはならない物質である。一方で、スマート分子の素材としても興味を持たれる。すなわち、様々な刺激で誘起される分子構造変化の情報を、分子間相互作用を介して伝播し、結果的に増幅された光学特性を出力できる。本研究では、光の刺激を受けて分子配列を変化させ、最終的に反射波長や旋光性の変化という形で出力する液晶素子を開発する目的で高効率の「光応答性キラル添加剤」の開発を目指した。キラル添加剤は、一軸の光学異方性のみを有する棒状液晶であるネマティック液晶に添加すると分子配列にねじれを誘起し、キラルネマティック液晶相を発現する。その性能は、単位濃度あたりの液晶に誘起できるねじりの大きさ(ねじり力)や液晶に対する溶解性で評価される。キラル添加剤が光反応によって可逆的に分子構造を変化させ、結果的にねじり力が変化する場合は、光応答性キラル添加剤と呼ばれ、液晶に添加すると光刺激のみで液晶の分子配列のねじりを可逆的に変化させ、選択反射波長や旋光性を非接触で変化させることが可能となる。これまでに面不斉を示すアゾベンゼン誘導体を新規に合成し、その中でアゾベンゼンとナフタレンを環状に結合した単環化合物が優れた光応答性キラル添加剤となることを示してきた。今回は、ビスシクロ型面不斉アゾベンゼンの光応答

性キラル添加剤としての特性を評価した。

ビスシクロ型面不斉アゾベンゼンの構造を図1左に示す。本化合物は、光異性化反応を示す部位が二箇所あるため、単環型でアゾベンゼン部位を一つ有する化合物よりも光による構造変化が大きいと予想される。本化合物は、アゾベンゼン部位の幾何異性としてトランス-トランス体(*EE*)、トランス-シス体(*EZ*)、シス-シス体(*ZZ*)の3つが存在し、そのそれぞれに一对の鏡像異性体(RとS)が存在する。アゾベンゼン部位のシス-トランス異性化の間にラセミ化反応を起こすことはない(図1右)。一方の鏡像異性体のトランス体を単離し、市販のネマティック液晶に添加したところ、十分に高い相溶性を示した。光異性化反応に伴うねじり力の変化を測定したところ、興味深いことに、4-ペンチルシアノビフェニル(5CB)やZLI-1132のようなビフェニル(もしくはシクロヘキシルフェニル)型のネマティック液晶中では、光反応前後においてねじり力の向きが逆転する現象が観察された(表1)。この結果は、光信号の入力に対する出力として、単に反射波長のシフトだけでなく、旋光度の符号の逆転を用いることができ、出力信号としてのS/Nをより大きくすることが可能と考えられる。



**Fig. 1** Chemical structure of bicyclic azobenzene **1** and photo- and thermal isomerization scheme of each enantiomer.

**Table 1.** Helical twisting power ( $\beta/\mu\text{m}^{-1}$ ) of dopants in different NLC hosts as determined by Cano's wedge method and the observed change in values by irradiation<sup>a</sup>.

Dopant	Host NLC	$\beta$ ( $\mu\text{m}^{-1}$ )			$\Delta\beta$ [%] <sup>b</sup>
		Initial	PSSuv	PSSvis	
<b>(R)E,E-1</b>	5CB	-6	+32	+26	633
	ZLI-1132	-7	+28	+23	500
	DON-103	+5	+37	+28	640
<b>(S)E,E-1</b>	5CB	+6	-32	-26	633
	ZLI-1132	+7	-28	-23	500
	DON-103	-5	-37	-28	640

<sup>a</sup> Positive and negative values represent right- and left-handed helical twists, respectively. <sup>b</sup> Percent change in  $\beta$  observed from initial to PSS<sub>UV</sub>.

### (b) 新規光応答性キラル液晶の開発と機械的性質

近年、Feringaらは、光応答性キラルネマティック液晶上でマイクロサイズのガラスロッドを光反応のみで回転させることに成功している。1ナノメートル程度しかない添加剤分子の光反応による構造変化が、液晶分子によるマイクロサイズの分子配列構造を回転させ、結果的に液晶上のマイクロサイズのガラスロッドを回転させるのである。すなわち、キラルネマティック液晶は、光エネルギーを回転運動に変換する分子機械のメディアにもなりえる。しかし、本系はヘリカル不斉や軸不斉を有する限定された化合物を光応答性キラル添加剤として用いた場合に示されているのみで、現象の一般性などわかっていない点が多い。そこで我々が新規に合成した面不斉型の光応答性キラル添加剤を用いて同様の分子機械が実現できるのか、また、光のみによる左右両方向のガラスロッドの回転運動が可能であるかを調べた。

合成した化合物は、環内に2,5-ジメトキシベンゼンを有する環状アゾベンゼンである(図2)。本化合物中の2,5-ジメトキシベンゼンは立体障害のために自由回転が起こらな

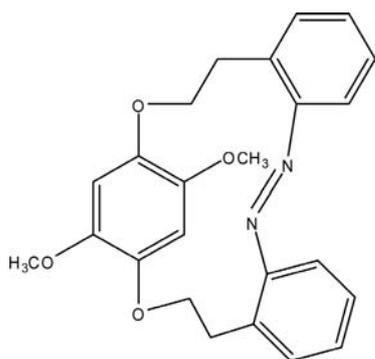


Fig. 2 Chemical structure of compound 2

い。したがって、面不斉に基づく一対の鏡像異性体が安定に存在する。本化合物をネマティック液晶に添加するとキラルネマティック相が誘起され、436nm 光と >500nm 光の照射によるアゾベンゼン部位のトランス-シス異性化反応に伴いそのねじり力は変化した。この液晶上にマイクロサイズのガラスロッドを添加し、436nm 光と >500nm 光を交互に照射するとそれぞれ逆方向にガラスロッドが回転することがわかった(図3)。この結果は、本現象がキラル添加剤の構造によらずかなり一般的なものであること、および、左右両方向のガラスロッドの回転を波長の異なる光を使う光反応のみで実現できることを示したものである。

### 3. 今後の研究の展望

今年度の研究により、環状化合物内のアゾベンゼン部位のシストランス異性化反応により、媒体である液晶の分子配列の右巻き、左巻きをスイッチできること、さらに、ねじりの強さを変えて結果的にマイクロサイズのガラスロッドを光の作用のみで左右に自由に回転できることを示した。しかし、これまでの成果では光エネルギーは単にスイッチに使われているのみである。一方で、生体内の分子機械は、ATPの化学エネルギーを繰り返し利用して細胞内の物質移動などの仕事を行なっている。われわれ以外の研究も含めて、スイッチではなく真に仕事を行う人工分子機械は未だ合成されてはいない。今後は、光異性化反応による構造変化の繰り返しを真に仕事に変える分子システムを構築したい。そのための第一段階として、分子の構造変化で別の分子、または、分子内の別の分子ユニットの運動を正確にON-OFFで制御する仕組みを構築する。また、生体のモータータンパクの仕組みを一部利用した半合成光駆動分子機械の構築を試みる。

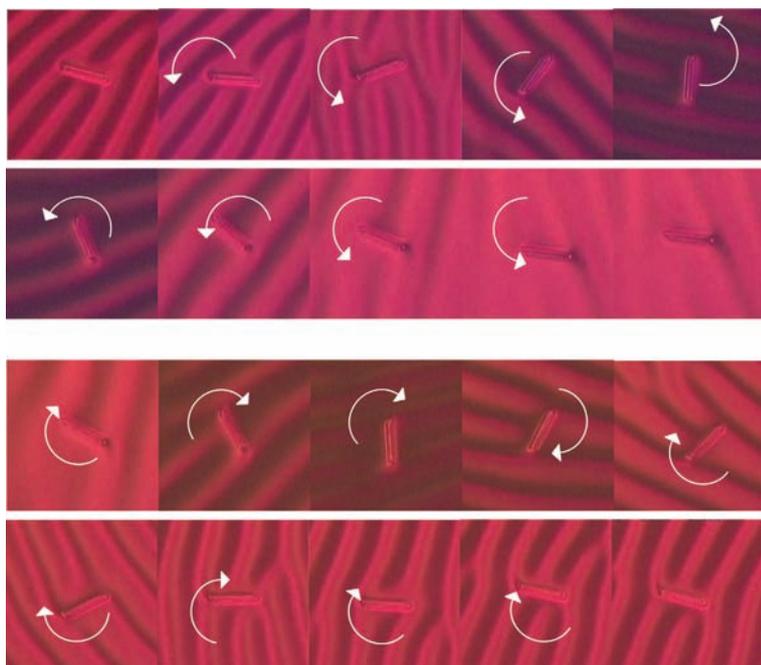


Fig. 3 Optical microscope images (X 20) of a rotating glass rod on a chiral liquid crystal containing 1.1 wt% of 2 with lines due to helical molecular order upon 436 nm (first 10 pictures) and >500 nm (second 10 pictures) irradiation.

## 4. 資料

### 4.1 学術論文等

- 1) Y. Norikane, D. Riju and N. Tamaoki : “Photochromism of a spiroperimidine compound in polymer matrices”, *New Journal of Chemistry*, (33) : 1327-1331 (2009)
- 2) T. Kamei, H. Akiyama, H. Morii, N. Tamaoki and T. Q. Uyeda : “Visible-Light Photocontrol of (E)/(Z) Isomerization of the 4-(Dimethylamino)azobenzene Pseudo-Nucleotide Unit Incorporated into an Oligonucleotide and DNA Hybridization in Aqueous Media”, *Nucleosides, Nucleotides and Nucleic Acids*, Taylor & Francis, 28(1) : 12-28 (2009)
- 3) N. S. Kumar, S. Abraham, K. V. Ratheesh, N. Tamaoki, S. Furumi and S. Das : “Indane-1,3-dione and cholesterol containing butadiene derivatives:Photoresponsive liquid crystalline glasses for imaging applications”, *Journal of Photochemistry and Photobiology A:Chemistry* (2008)
- 4) F. Zhang, M. Funahashi and N. Tamaoki : “Thin-film transistors based on liquid-crystalline tetrafluorophenylter thiophene derivatives:thin-film structure and carrier transport”, *Organic Electronics* , ELSEVIER, 10 : 73-84 (2008)

### 4.2 総説、解説、評論等

- 1) 舟橋正浩、玉置信之:「螺旋構造を持つ液晶性半導体」、光技術コンタクト、社団法人日本オプトメカトロニクス協会、(47) : 17-22 (2009)

### 4.7 講演

#### b. 一般講演

##### i) 学会

- 1) 園田与理子、後藤みどり、都築誠二、秋山陽久、玉置信之:「フッ素置換ジフェニルポリエンの結晶相[2+2]光重合」、日本化学会第89春季年会2009、日本大学理工学部船橋キャンパス (2009-03)
- 2) 本橋壮志、木原秀元、玉置信之、松村一成、秋山陽久:「アセトラセンの光二量化により得られるポリマーのアモルファス結晶相移転を利用した階調パターンニングの形成」、高分子学会茨城地区若手の会、レイクサイドつくば (2008-10)

##### ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 玉置信之、秋山陽久:「光駆動の分子機械を創成するための基盤研究」、特定領域研究「フォトクロミズムの攻究とメカニカル機能の創出」第3回公開シンポジウム、京都テルサ (2009-01)
- 2) 深港豪:「反応点に共役的にペリレンイミド色素を導入したジアリールエテンのフォトクロミズム」、特定領域研究「フォトクロミズムの攻究とメカニカル機能の創出」第3回公開シンポジウム、京都テルサ (2009-01)

### iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) N. Tamaoki : “Photochromic compounds with planar chirality and their chiro-optical property”, JSPS-CNRS Seminar New Horizons of Photochromism-From Design of Molecules to Applications-, Hotel du Golf(Arras), France (2008-10)

### 4.9 共同研究

#### d. 受託研究 (研究担当者、機関名、研究題目、研究機関、総経費、研究内容)

- 1) 深港豪 (科学技術振興機構(JST)):「単一分子蛍光計測で探るキラリティーの本質」、2008~2011年度、37800千円、分子のキラリティー(不斉)は生命現象に密接に関わる重要な性質です。通常の分子集団系では、分子それぞれに不斉が存在しても、ラセミ混合物では不斉を議論できません。もし、分子一つ一つの不斉を測定できれば、たとえラセミ混合物においても不斉の議論が可能となります。本研究では、単一分子蛍光計測を応用し、円偏光励起および円偏光蛍光により分子一つ一つのキラリティーを直接測定することを目指します。

#### g. 委任経理金 (奨学寄付金)

- 1) 深港豪 (徳山科学技術振興財団):「不可視型ジアリールエテンを用いた2光子フォトクロミック分子材料の開発」、2008年度、2000千円、本申請では、申請者が開発した「不可視型フォトクロミックジアリールエテン」を用いた、大きな2光子吸収断面積を有し、効率良い2光子フォトクロミズムを示すジアリールエテン分子の開発を目的としている。

### 4.10 予算獲得状況

#### a. 科学研究費補助金 (研究代表者、分類名、研究課題、期間)

- 1) 玉置信之、特定領域研究、光駆動の分子機械を創成するための基盤研究、2007~2010年度
- 2) 深港豪、若手研究 B 一般 (1)、非破壊的に情報読み出し可能な単一分子光スイッチの開発、2006~2008年度

### 4.12 社会教育活動

#### c. 併任・兼業

- 1) 深港豪:さきがけ「光の利用と物質材料・生命機能」領域研究者 (2008年10月1日~2012年3月31日)
- 2) 玉置信之:東京大学 大学院工学系研究科 教授 (2008年10月1日~現在)

#### g. 北大での担当授業科目 (対象、講義名、担当者、期間)

- 1) 理学院、分子組織科学特論、玉置信之、2008年10月1日~2008年11月30日

#### i. ポスドク・客員研究員など

- ・ポスドク (1名)



# ナノテクノロジー研究センター

## 研究目的

ナノテクノロジーは半導体技術、材料技術、バイオテクノロジー、情報技術、環境技術などを支える基盤技術であり、次世代産業創成のキーテクノロジーである。本センターは、分野横断・領域融合的な研究組織により、分子・原子の自己組織化によるボトムアップ戦略を基軸として半導体テクノロジーにおけるトップダウン戦略を融合した新しいナノサイエンス領域を創成するとともにわが国におけるナノテクノロジーネットワークの一翼を担う研究施設である。



## ナノデバイス研究分野

助 教 眞山博幸（北大院、博(工)、2003.5～）

### 1. 研究目標

ボトムアップ・ナノテクノロジーの手法を用い、エレクトロニクス、フォトニクス、バイオニクス等のデバイス開発を行う。その際、自己組織化、メソスコピック、フラクタル、超分子等の概念を、開発の指導原理として活用する。本年度はフラクタル・ナノテクノロジーの開拓に集中して研究を行った。

数学の概念であるフラクタルを、機能性材料開発の指導原理として利用する。ナノサイズのフラクタル構造を現実の物質に実現し、それを特徴的な物性の発現に結びつける。更に、発現した特徴的物性を応用する開発研究まで展開する。フラクタル表面は、純数学的には無限大の表面積を有する。現実の物理世界において、無限大の表面積はあり得ないが、フラクタル表面は大変大きな実表面積を持つことを意味する。この大きな実表面積が、例えば濡れの現象に応用された時、超撥水／超撥油表面を実現する。この様に、ナノサイズのフラクタル構造を現実の物質に実現し、様々な機能性デバイスを開拓する。

### 2. 研究成果

#### 1) フラクタル・ナノテクノロジーの開拓

##### (a) フラクタル構造による超撥水／超撥油表面の開発と応用

フラクタル表面は、大きな凹凸の中に小さな凹凸があり、小さな凹凸の中に更に小さな凹凸があるといった、入れ子（自己相似）構造を有している。従って、その実表面積は見掛けの表面積に比べて著しく大きくなる。一方、固体表面の濡れは、実表面積の増大によって強調される。濡れる（接触角が $90^\circ$ より小さな）表面はより濡れる様になり、はじく（ $90^\circ$ より大きな）表面はよりはじく様になる。濡れのこの性質により、フラクタル表面は完全に濡れる超親水表面や、完全にはじく超撥水表面になる。更に、フッ素系の化合物を表面に配列させることにより、油をはじく超撥油表面を得ることが出来る。

図1に、アルキルケテンダイマーというある種のワックスの、フラクタル表面上の水滴の写真を示す。接触角は $174^\circ$ である。この表面の電子顕微鏡写真を図2に示す。大きなアジサイの花様の凹凸の中に、鱗片状の結晶がぎっしりつまっており、フラクタル的な入れ子構造であることが分かる。この表面が、 $0.2\text{--}34\mu\text{m}$ の範囲でフラクタル（自己相似）構造であること、そのフラクタル次元が2.29であること等が、解析の結果分かった。

アルキルケテンダイマーは、接触角が $174^\circ$ の超撥水表面を形成するが、残念ながらその性能に耐久性がなく、実用

化への障害になっている。



図1. 超撥水フラクタル表面上の水滴。材料はアルキルケテンダイマーで、接触角は $174^\circ$

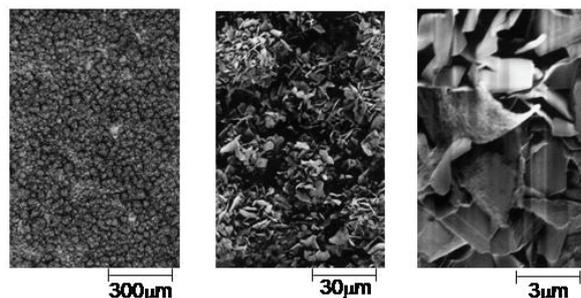


図2. フラクタル表面の電子顕微鏡像。凹凸の入れ子構造が見取れる

##### (b) ワックス表面における自己組織的フラクタル構造形成のメカニズム解明

先のアルキルケテンダイマー・ワックスは、自己組織的（自発的）にフラクタル表面を形成する。この自発的フラクタル表面形成のメカニズムを解明することは、フラクタル構造を自在に作製して利用したり、フラクタル次元の制御等に有効であると考えられる。そこで、各種のワックスの融液を固化することによって表面を作製し、その撥水性、表面構造、相挙動を研究した。その結果、ワックスが融液から固化する際に、一度準安定な結晶相になり、その後熱力学的に最も安定な結晶相に転移する過程（多形転移）が、フラクタル表面形成に必須であることが判明した。その様な準安定相を有するワックスがフラクタル表面を形成し、直接安定相に固化するワックスは平滑な表面となり、超撥水性も示さないことが、少なくとも研究に用いた15種のワックスに関しては、例外なく確かめられた。

さらに結晶構造の変化（多形転移）の過程でフラクタル表面構造、特にリン片構造が形成されることから、結晶構造変化の際に生じる変形エネルギーと新たに形成されるリン片の表面エネルギーのバランスに注目すると実際に観察されるリン片のサイズを記述できることを見出した（同じような表面リン片構造の形成はチョコレートの表面客家現象でも見られることが知られている）。図3はフラクタル表面を形成する油脂の一つであるトリステアリンの多形転移の模式図である。図4は結晶構造の変化とリン片形成の関係の模式図である。結晶構造転移に伴ってまず縦方向に圧縮が生じ、新しい表面（亀裂）が形成され、その後、横方

向に膨張してリン片が立ち上がる。このメカニズム解明により、リン片サイズのデザイン、油脂の分子構造のデザインが可能となり、最終的には現象をデザインすることができるようになった。

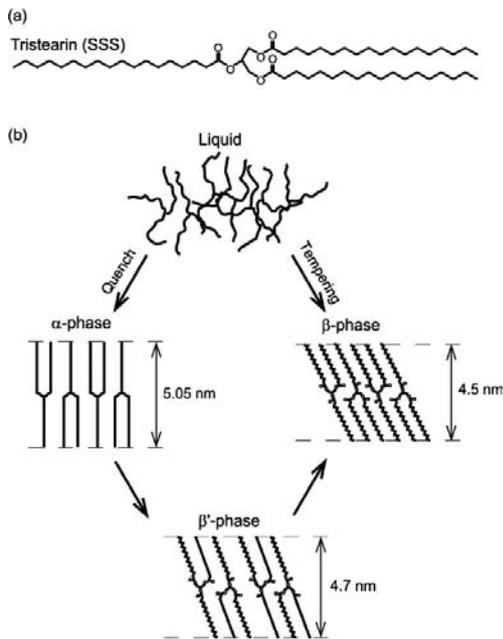


図3. トリステアリンの分子構造(a)と多形転移(b)

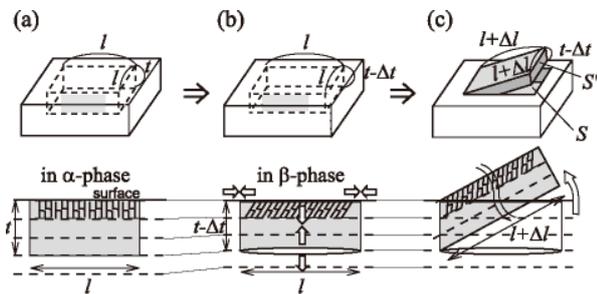


図4. 結晶構造変化とリン片形成の模式図。仮想的なリン片サイズを考え、変形エネルギーと新たに生じる表面エネルギーのつりあいを考える。

### (c) フラクタル立体の創製

フラクタル表面の実現と応用だけではなく、フラクタル立体の創製にも取り組んできた。フラクタル立体は、純数学的には体積が0で、表面積が無限大の物体である。実世界でフラクタル立体を実現すれば、大変体積が小さく表面積の大きな物体が出来るはずである。当研究室では、上記の自己組織的にフラクタル構造を形成するアルキルケテンダイマー・ワックスを利用し、表面にフラクタル構造を有する微粒子を鋳型として用いることによって、その合成に成功した。具体的には、アルキルケテンダイマーの微粒子を噴霧法で作製し、その表面がフラクタル構造になってから寄せ集め、その集積微粒子間をテトラメチルオルトシリケート溶液で満たし、ゾル/ゲル法で固化してから、鋳型の微粒子を焼成することによって除去した。得られたシリ

カのフラクタル立体を、図5に示す。この立体のフラクタル次元、空隙率等の測定結果は、Menger spongeと呼ばれる数学モデルとよく一致することが分かった。また、内部に50 nmから30 μmまで連続的に大きさの異なる孔が存在することも確認された。この新規な材料の特徴的な性質の開拓を、現在研究中である。

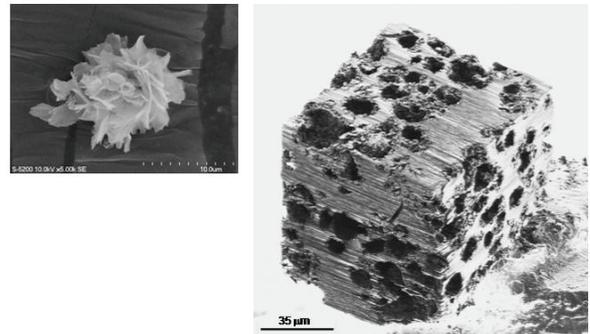


図5. シリカのフラクタル立体(右)と、その合成に鋳型として利用された、アルキルケテンダイマーのフラクタル微粒子の電子顕微鏡写真(左)。

## 3. 今後の研究の展望

フラクタル・ナノテクノロジーの研究では、先ず超撥水/超撥油性の実用化を目指す。そのために必要なことは、超撥水/超撥油性の耐久性向上と表面構造メカニズムの解明である。フラクタル立体については、現在合成に成功した段階で、今後は特異な物性/機能を見出すことが重要である。現在その研究が進行中である。また、フラクタル立体と関連して、フラクタル次元での相転移臨界現象の研究も進行中である。例えば、フラクタル磁性体の臨界点に関する理論および実験的研究を行っており、フラクタル次元と臨界点近傍の物性との間に密接な関係があることを見出している。

## 4. 資料

### 4.1 学術論文等

- 1) H. Mayama : “Blooming theory of tristearin”, *Soft Matter*, Royal Society of Chemistry, 5(4) : 856-859 (2009)
- 2) H. Mayama, T. Minami and K. Tsujii : “Spontaneous Formation of Super Water-Repellent Fractal Surfaces in Mixed Wax systems”, *J. Phys. Chem. B*, 112(46) : 14620-14627 (2008)
- 3) D. Yamaguchi, H. Mayama, S. Koizumi, K. Tsujii and T. Hashimoto : “Investigation of the self-assembled fractal porous-silica over an extremely wide length scale via combined small-angle scattering method”, *The European Physical Journal B*, 63 : 153-163 (2008)
- 4) N. Izumi, T. Minami, H. Mayama, A. Tanaka, S. Nakamura, S. Yokojima, K. Tsujii and K. Uchida : “Super Water-Repellent Fractal Surfaces of a Photochromic Diarylethene Induced by UV Light”, *J. J. Appl. Phys.*, 47 : 7298-7302 (2008)

### 4.2 総説、解説、評論等

- 1) 飯間信、田坂裕司、佐藤譲、眞山博幸 : 「自由表面大変形を伴う円筒容器内の回転流れの実験および数理的解析」、日本流体力学会年会2008講演論文集 (2008)

### 4.7 講演

#### a. 招待講演

- 1) 眞山博幸 : 「非整数次元を有する多孔質体：フラクタル立体の創製」、第10回フォトニックフラクタル研究会、大阪大学接合科学研究所 (大阪) (2007-07)

#### b. 一般講演

##### i) 学会

- 1) 眞山博幸 : 「油脂表面の白化現象：ファットブルーミングのメカニズム」、日本物理学会第64回年次大会、立教大学、立教池袋中学・高校 (2009-03)
- 2) 眞山博幸、澤田石 哲郎、辻井薫、下村政嗣 : 「コロイド分散液の気液界面における結晶成長のリミットサイクル」、日本物理学会2008年秋季大会、岩手大学上田キャンパス (2008-09)
- 3) 眞山博幸、小野祐輔、辻井薫 : 「マルチスケールにおけるフラクタル立体の階層構造」、日本物理学会2008年秋季大会、岩手大学上田キャンパス (2008-09)
- 4) 眞山博幸、澤田石哲郎、辻井薫、下村政嗣 : 「コロイド分散液の気液界面におけるパターンの形成メカニズム」、第61回コロイドおよび界面化学討論会、九州大学 (六本松キャンパス) (2008-09)
- 5) 眞山博幸、小野祐輔、辻井薫 : 「細孔容積と比表面積測定によるフラクタル・ポーラスシリカの幾何学」、第61回コロイドおよび界面化学討論会、九州大学 (六本松キャンパス) (2008-09)

- 6) 南貴之、眞山博幸、辻井薫 : 「混合ワックス系における超撥水フラクタル表面の形成」、第61回コロイドおよび界面化学討論会、九州大学 (六本松キャンパス) (2008-09)

- 7) 飯間信、田坂裕司、佐藤譲、眞山博幸 : 「自由表面大変形を伴う円筒容器内の回転流れの実験および数理的解析」、日本流体力学会年会2008、神戸 (2008-09)

##### ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 南貴之、眞山博幸、辻井薫 : 「超撥水フラクタル表面の形成機構」、第53回高分子夏季大学、洞爺湖万世閣 (2007-07)
- 2) 眞山博幸、山口大輔、小泉智、橋本竹治、辻井薫 : 「中性子散乱実験によるフラクタル立体の次元性」、日本化学会北海道支部2007年夏季研究発表会、旭川工業高等専門学校 (旭川) (2007-07)
- 3) 小野祐輔、眞山博幸、辻井薫 : 「フラクタル構造を有するポーラスシリカの表面積・細孔分布」、日本化学会北海道支部2007年夏季研究発表会、旭川工業高等専門学校 (旭川) (2007-07)
- 4) 南貴之、眞山博幸、辻井薫 : 「ワックスによる超撥水フラクタル表面の形成機構」、日本化学会・北海道支部・2007年夏季研究発表会、旭川工業高等専門学校 (旭川) (2007-07)
- 5) T. Minami, H. Mayama and K. Tsujii : “Formation mechanism of super water-repellent fractal structures on wax surfaces”, The 9th RIES-Hokudai International Symposium on 「創」, Hokkaido University (Sapporo) (2008-01)
- 6) H. Mayama and K. Tsujii : “Fractal dimension of fractal porous silica in real and reciprocal spaces”, The 9th RIES-Hokudai International Symposium on 創 [Sou], Creative Research Initiative “Sousei”, Hokkaido University (2008-01)
- 7) 南貴之、眞山博幸、辻井薫 : 「ワックス表面における超撥水フラクタル構造の形成メカニズム」、第42回高分子学会北海道支部研究発表会、北海道大学 (札幌) (2008-01)

# ナノ理論研究分野

教授 徳本洋志 (阪大院、理博、2002.11～)  
 助教 畔原宏明 (東工大院、工博、2004.2～)  
 学術研究員 浮田桂子 (弘前大学、2006.6～)  
 院生 藤枝 正 (2006.4～)  
 共同研究 岡嶋孝治准教授 (情報科学研究科)  
 清水哲夫、安藤 淳、菅 洋志、田中深幸  
 (産業技術総合研究所)  
 (株)寿産業  
 (株)札幌エレクトロプレイティング

## 1. 研究目標

ナノ理論研究分野では、ボトムアップナノテクノロジーの基幹技術の1つである走査プローブ顕微鏡 (SPM) 技術と優れたナノ材料であるナノカーボン材料 (カーボンナノチューブやグラフェン) の高度化を目指す。この両者を組み合わせた新規バイオナノ計測・診断 (単一分子、単一細胞の構造と機能の相関解明) 技術の開発に力を入れている。特に、生細胞の機能解明に繋がる静的・動的・化学的情報を力学的手法 (AFM) を用いて、細胞内の混沌とした中で Non-Specific な相互作用 (ポリマー物理的) や細胞膜表面で Specific な相互作用 (分子生物学的) をその場観察・計測する技術の確立を目指す (図1、図2参照)。さらに、これら

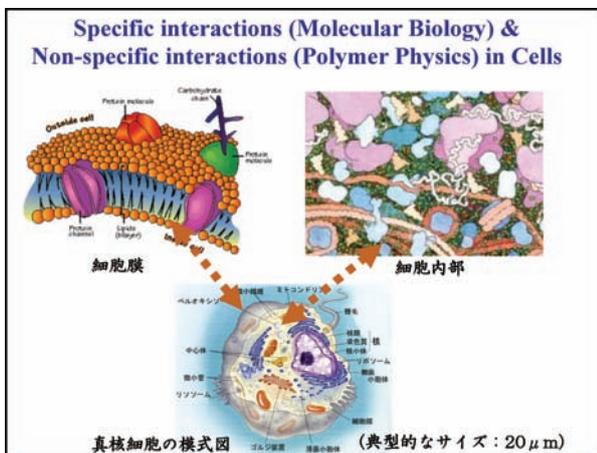


図1. 生細胞における細胞内部および細胞膜の概念図。

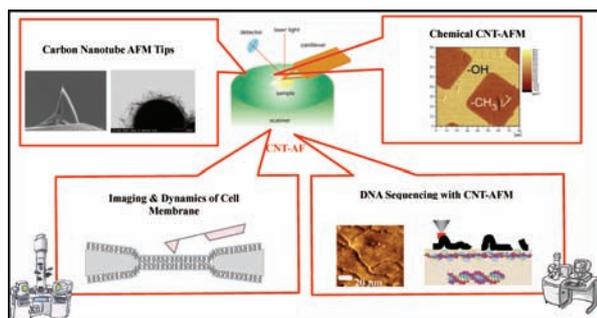


図2. 本課題の具体的内容。

の研究成果を下に、ナノテクノロジー新領域 (複合領域ナノサイエンス) 創製に向け分野横断的・融合的な研究課題の探索を行う。

## 2. 研究成果

(a) 原子間力顕微鏡による細胞レオロジーに関する研究

本研究は情報科学研究科・生命人間情報科学専攻 生体システム工学講座 細胞情報工学研究室の河原剛一教授、岡嶋准教授 (2007.3までナノ理論研究分野助教授)、学生 (平塚伸一郎、水谷祐輔) との共同研究で進めたものである

(a-1) AFMによる生細胞の複素弾性率計測

細胞のレオロジーは、運動性や分裂、蛋白質の合成などの細胞機能と密接に関係している。AFMを用いて外場振動 (0.5~200Hz、振幅10nm) に対する力学応答を測定することにより、生細胞のミリ秒領域の複素弾性率を精密に測定できる。これまでの研究では数個の細胞の測定から議論されてきたが、より定量的な解析のためには充分な量の細胞について計測することが必要である。そこで、本研究ではこれまでに構築してきたAFMとマイクロレイ技術を組

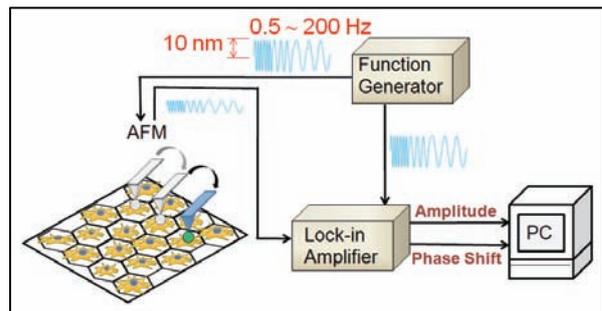


図3. マイクロレイ細胞培養技術とフォースモジュレーション法の測定概念図。

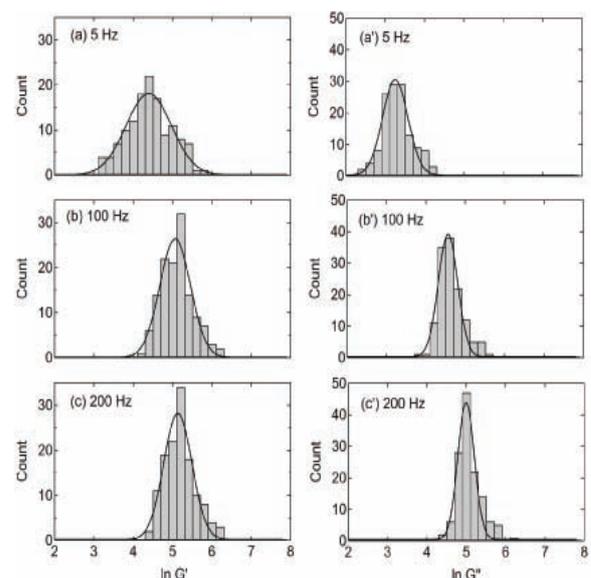


図4. フォースモジュレーションで測定した繊維芽細胞 NIH3T3 (約130個) の5Hz(a)、100Hz(b)、200Hz(c)における複素弾性率 $G^*$ の実部(左)と虚部(右)の頻度分布。実線はLog-Normal Distribution関数にフィットさせたものである。

み合わせた測定法を用いて、多数細胞（130個、マウス由来の繊維芽細胞 NIH3T3）の複素弾性率を測定した。図3に本研究で開発し計測に用いたフォースモジュレーション法の概略を示す。参照周波数におけるカンチレバーの変位振幅と位相をロックイン検出して、細胞の複素弾性率を算出するものである。こうして得られたいくつかの周波数で得られた130個の細胞の複素弾性率（実部と虚部）の頻度分布を図4に示した。これらの図に表れている最大頻度における値の周波数依存性を求めると、図5のようになり、周波数に対してべき関数である structural damping model でよくフィットできることがわかった。

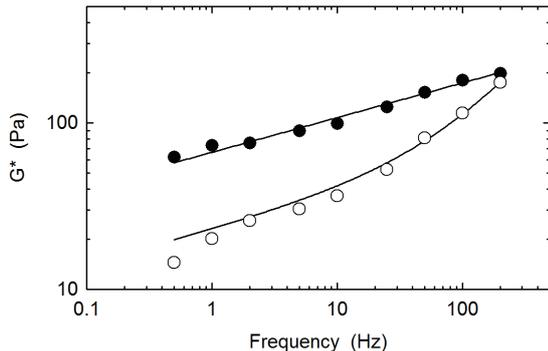


図5. フォースモジュレーションで測定した複素弾性率  $G^*$  の実部 (●) と虚部 (○) の周波数依存性。

(a-2) AFMによる多数細胞の接着過程の細胞弾性率計測  
既に記述したようにAFMによる単一細胞の力学計測はこれまで1個もしくは数個の細胞の力学計測によって細胞の評価を行ってきた。しかし、同一環境下で同一細胞を用いた場合でも形態・機能において極めてばらつきが大きく、数個の細胞の測定結果から力学特性を定量化することは容易ではない。従って、多数の細胞を測定し統計的な分布を明らかにすることが望まれる。そこで、本研究では独自に開発したマイクロアレイ技術とAFM・光学顕微鏡を組み合わせた装置（図6）を用いて、AFMにより多数の細胞の力学特性を高速に計測すること昨年に引き続き行った。細胞接着初期過程では、細胞骨格がダイナミックに変化している。そこで、ハニカム状に加工された microarray に細胞を播種し配列させることで定量的に細胞の初期接着過程の平均的な力学的特性の測定を可能にし、接着時間に伴った細胞の力学的特性の比較・検討を昨年に引き続き行った。

実験にはコロイドプローブカンチレバーを用いた。図7はマイクロアレイに細胞（マウス由来の繊維芽細胞 NIH3T3）を播種し12時間培養した際の核の染色画像(a)であり、配列が確認できた。(b)と(c)は、3時間および12時間培養した後のF-actinの染色ラベリングの結果である。図8は培養6時間後の細胞のヤング率の度数分布である。培養3, 6, 9時間と培養時間に伴って、細胞のヤング率は有意に増加することを示した。接着開始より伸展する際、細胞骨格の重合が促進することから、定量的に細胞の力学的特性を計測することが可能であることが分かり、今後細胞へ

の様々な外的刺激に対する力学的特性を介した応答変化を評価できる可能性を示した。

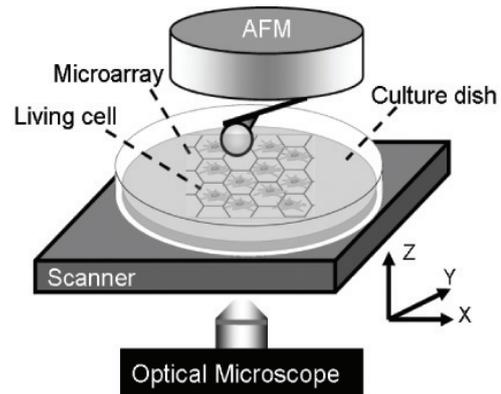


図6. 独自に開発したマイクロアレイ技術とAFM・光学顕微鏡を組み合わせた装置

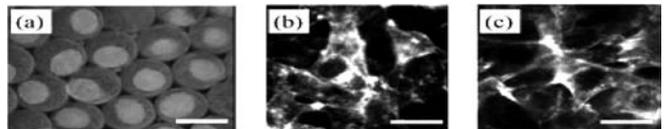


図7. マイクロアレイにマウス由来の繊維芽細胞 (NIH3T3) を播種し12時間培養した際の核の染色画像(a)、3時間(b)および12時間(c)培養した後のF-actinの染色ラベリング像。

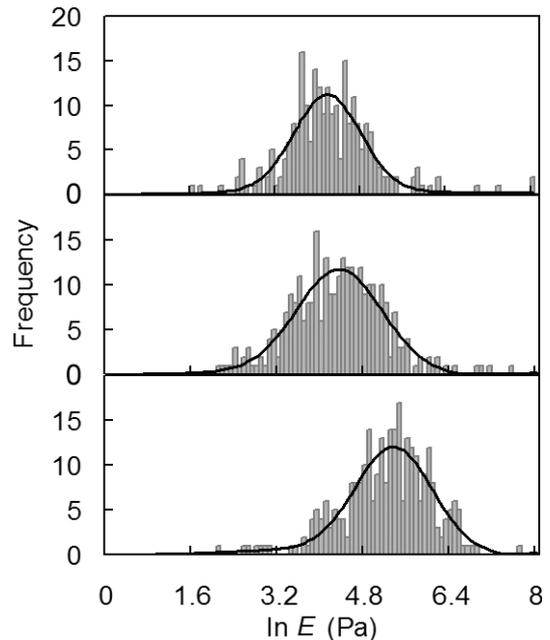


図8. 上から培養3.6, 9 時間後の細胞のヤング率の度数分布

(b) バイオ分析用CNT-AFMテクノロジーに関する研究  
カーボンナノチューブ (CNT) を用いバイオ・生体関連材料の極微小領域の構造を解析・分析するAFM新技術を開発することを目的に、脂質二分子膜（細胞模擬膜）への探針挿入技術、CNT探針先端の化学修飾技術およびCNT探針を用いた化学力AFMプローブ作製技術等の要素技術の研究を昨年度に引き続き行った。

(b-1) 微小孔保持マイクロ人工膜の作成と力学応答

リポソームや脂質二分子膜といった人工膜はバイオセンシング、ドラッグデリバリーシステム、薬物吸収評価システムの膜材料として注目されている。本研究では集束イオンビーム加工観察装置を用い、シリコン薄板に穿孔加工を行い(図9)、その微小孔において自立する人工膜を形成する技術の確立を目指した。Dimyristoyl phosphatidyl choline からなる人工膜を作成し、AFMを用いて形状を確認することができた(図10)。また、フォースカーブの測定結果より、この膜の見かけの剛性はカンチレバーと同程度(およそ0.05N/m)であることが判った。

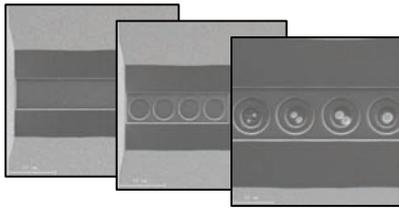


図9. FIBによるシリコン薄板への穿孔加工例

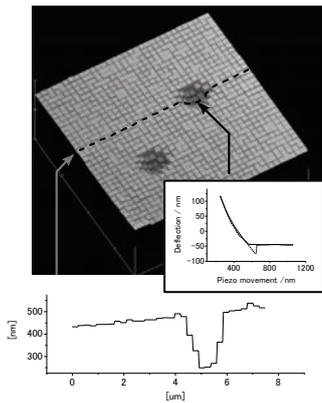


図10. 微小孔保持マイクロ人工膜の地形像(8.5nN)、断面図およびフォースカーブ測定結果

(b-2) 多層CNT探針を用いた水素結合相互作用測定法の開発

分子間相互作用解析を1分子レベルで行なうことを目指し、多層CNT探針に生体関連分子を修飾する技術および液中でのフォースカーブ測定に使用する技術の開発とともに、CNT先端の官能基数の解析を試みた。

これまでに開発してきた-COOH基で終端した多層CNT探針先端に-SH基の導入、引き続き-S-S-結合を会して化学修飾によりシトシン分子を付加するスキームを図11に示す。一方、グアニン修飾基板はいわゆるチオールを介して金基板上に自己組織化により作製した。こうして作製した探針および試料を用いてデカン中でのCNT探針とグアニン修飾基板との間に働く吸着力測定を4000回以上繰り返した結果と、そのヒストグラムを図12示す。測定を繰り返すことによる吸着力の変化は認められず、CNT探針の十分な耐久性があるとともに、結合破断力に分布があることが分る。これは、各回の破断実験において関与している分子数

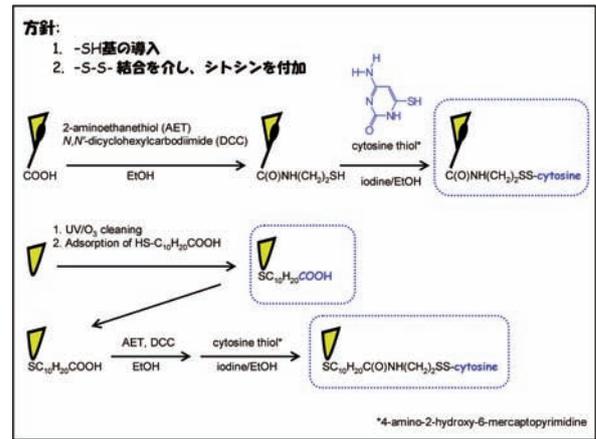


図11. 多層CNT探針先端の化学修飾反応スキーム

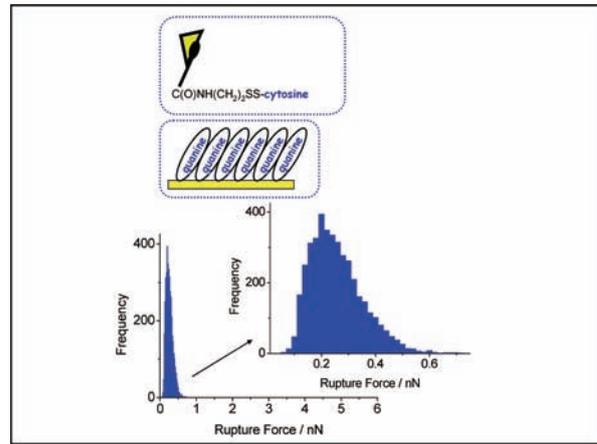


図12. CNT探針を用いた吸着力測定結果とヒストグラム

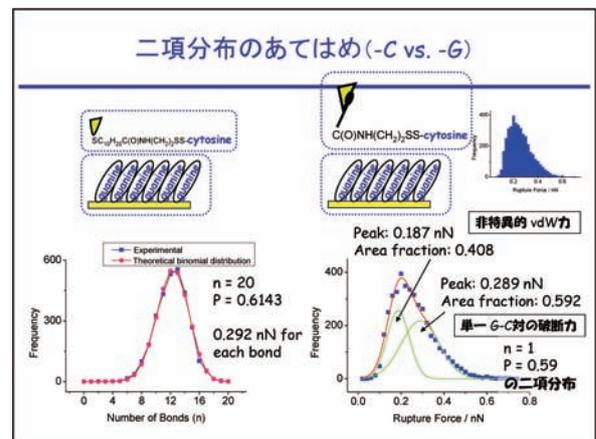


図13. CNT探針を用いた吸着カヒストグラムを二項分布で解析した結果。ここでは、Si探針をシトシン修飾した結果も示す。

(探針上の分子数をn、試料表面上の分子数をxとする)が異なることを反映しているものと思われる。そこで、この

$$p(x) = {}_n C_x p^x (1-p)^{n-x}$$

で記述できるとして解析すると、図13に示すようになる。Si探針を修飾したときには平均として20個のシトシン分子(確率は0.61、0.292nN/bond)が、CNT探針の場合には1個の分子(確率は0.59、0.289nN/bond)が結合していること

が分った。同様の計測を-COOH (探針) vs -COOH (試料)、CNT 探針と Si 探針について行い、解析を行った結果を図14にまとめた。以上の結果、単一分子修飾CNT探針が可能であること、二項分布のあてはめによる単一結合力の見積もりは-COOH vs. -COOHで85pN、GC 対で290pNと約3倍となり、合理的な結果であることが分った。

解析結果まとめ					
探針 (in decane)	試料	n*	p**	単一結合あたり破壊力/nN	
				二項分布	ポアソン分布を仮定
-COOH	-COOH	N.A.	N.A.	N.A.	0.0706 *** (in hexane)
-COOH	-COOH	16	0.307	0.086	←△→ 0.055
-COOH (CNT)	-COOH	9	0.211 回転自由度 小さい?	0.085	←○→ 0.085
-cytosine	-guanine	20	0.614 約3倍	0.292	←××→ (最適解なし)
-cytosine (CNT)	-guanine	1	0.592 正しい?	0.289	

\*n: 試料表面に接触できる探針側の分子数  
\*\*p: 結合に成功する確率  
\*\*\* T. Han, J. M. Williams, T. P. Beebe, Jr., Anal. Chim. Acta., 307, 365 (1995).

図14. 二項分布により解析した結果のまとめ

(c) ナノカーボン材料の応用創製に関する研究

本研究は、(株)寿産業の國奥秀雄氏・徳井博樹氏・矢野雅己氏、(株)札幌エレクトロプレイングの嶋村清隆氏・相馬道明氏、産業技術総合研究所の清水哲夫氏・安藤淳氏・菅洋志氏・田中深幸氏との共同研究で進めたものである。特に、(株)寿産業には研究費の援助に対して感謝いたします。

(c-1) グラフェンシート創製の研究

グラフェンシートは炭素原子がsp<sup>2</sup>軌道で結合した炭素原子一個の厚さのシートで、特異な物理現象(ディラック・フェルミオン、ドーピングによりn型・p型伝導にもなりえる、など)を有している。2004年以降に、グラファイトから一層のグラフェンシートを剥がす、1,400℃の高温加熱によりSiC表面に成長する、などによりグラフェンシートを作製できるようになり、重要な研究材料となった。更に、グラフェンシートは、カーボンナノチューブ(CNT)に匹敵する電気・機械・化学特性を有している。このような特長に注目が集まり、米国やヨーロッパでは研究開発が勢力的に行われている。日本では物性研究に中心がおかれ、CNTに比べて応用研究は非常に少なく、電子源としての応用が試みられている程度で研究の緒についたところである。低温で高品質のグラフェンシートを多量に成長することができれば、基礎から応用にいたる研究を革新的に展開できると期待できる。

本研究では、寿産業株式会社・札幌エレクトロプレイング株式会社と共同研究体制を組み、リサイクルの一つとして廃タイヤ由来炭化物の高機能化の研究を行ってきた。この研究に、無電解Niメッキを比較的高温(50~90℃)で行うとNi粒子表面にグラフェンシートが成長すること

を見出した。その後、主に電子顕微鏡観察・ラマン散乱測定・X線回折(XRD)・XPS測定を中心として評価を行い、グラフェンシートであることを確実にものとし製造特許の申請を行った。と同時に、成長制御とナノスケール評価との関連を行った。その結果、メッキ作業に先立って炭化物をボールミルによりいわゆるストラクチャー構造を小さくすると同時に十分に水分散することにより、通常は20~50nm程度であったグラフェンシートの大きさを10倍程度まで大きくすることができた(図15)。

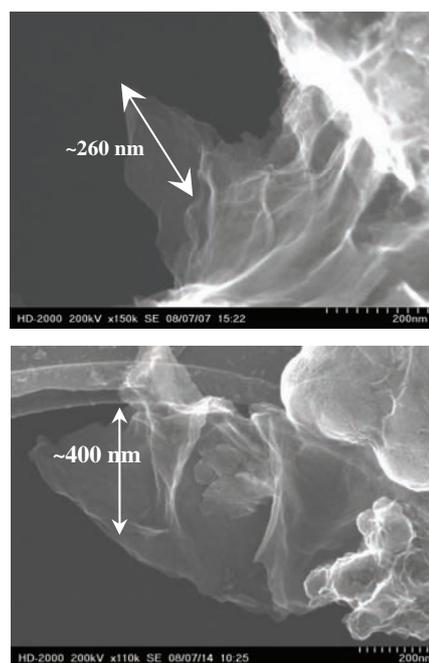


図15. メッキNi粒子上に成長した各種サイズのグラフェンシートのSEM写真。260nm(左)と400nm(右)まで成長したグラフェンシートのSEM写真。

(c-2) 無電解Niメッキ成長グラフェンの電子線構造解析

無成長したグラフェンシートのSEM写真を図15に示す。これらの試料は、メッキ液の温度を高めによりゆるい異常無電解Niメッキを施した後、真空吸引濾過・エタノール水で洗浄・乾燥し、さらにエタノール液中で数十分超音波照射により大きな塊を小さく砕きSTEM用のメッシュに滴下・乾燥し、日立製HD2000-STEM装置(200kV)で観察したものである。SEM像からグラフェンシートがカーテン様に成長していること、STEM像からその中心は球状に近いNi粒子(STEM像の黒い部分)、周辺に電子透過性のよい部分(グラフェンシート)が存在していること分る。また、実際にSTEM像の黒い中心部分と周辺部についてEDAX計測をするとこれらのことが確認できる。

SEM像(図15)において、コントラストの強い白く輝いている部分が多く見られる。この部分はグラフェンシートが写真面に対して垂直方向にそそり立っている(メクレあがっている)ため二次電子イールドが大きいためである。そこで、この部分に注目し原子オーダーのSTEM観察を行うと、図16に示すように左上方のSEM像の丸で囲った白く

光った部分では右上方から左下方へ揃った層状の構造（層間隔は約4.53Å、約20層）が明瞭に見られている。この値は、メッキ中に層間にいろいろの物質が挿入されグラファイトの層間隔（3.354Å）に比べて十分に大きな値となっている。一方、電子線に対して垂直な面を見つけることもできる。この部分について日立製HD2000-STEMシステムの装置の最適化を行った上でナノ電子線回折を行うと図17に示すように6回対称のスポットパターンが観察でき、しっかりとしたグラフェンとなっていることが分かる。しかし、グラファイトシートのサイズが小さいため複数のシートからの信号が重なっていることや電子線が試料に対して垂直に入射していないことなどを反映して、グラフェンシートによる明瞭な6回対称のパターンが得られない場合が多い。

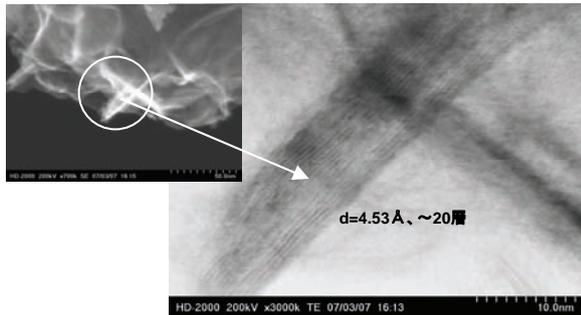


図16. SEM像（左上方）の白く光った部分の超高分解能STEM写真（右）。

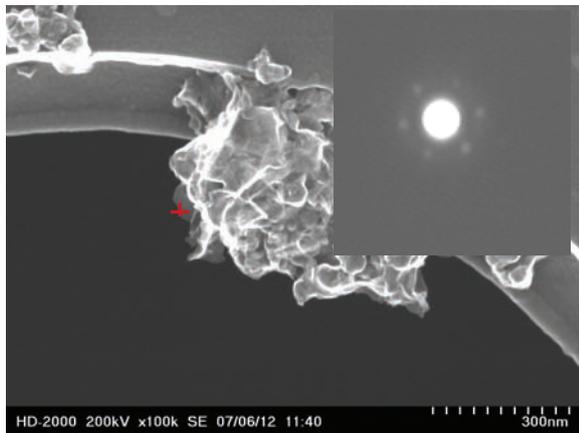


図17. 数10nmに成長したグラフェンシートのSEM写真と+印の点で測定した電子線回折像（挿入図）。

#### (c-2) 無電解Niメッキ成長グラフェンのAFM構造解析

表面構造をナノスケールで観察するために、STEM用のNiグリッド上に成長したグラフェンシートを特別の処理をしないままAFM観察した(図18)。基板Niの作成過程で形成した割目構造がAFM像とSEM像に現れているが、それ以上のナノスケールの構造は観察できなかった。そこで、いろいろの場所での電流特性を測定したところ、図19のようになった。すなわち、凸では+3V以上、-1.5V以下で電流が流れ、エッジ部では凸部より流れにくく、凹部では殆ど流れなかった。これらの結果を踏まえ、電気計測をナノギャップ電極デバイスを用いて測定することとした。

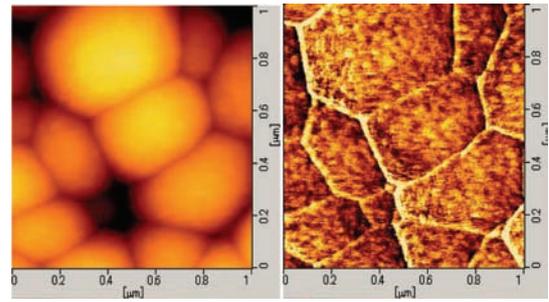


図18. Niグリッド上に成長したグラフェンシートのAFM像（左：凹凸像、中：微分像；1μ角）。

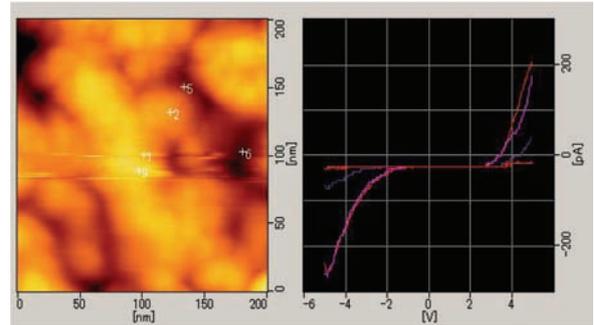


図19. AFMによるいろいろの場所での電流・電圧測定。

#### (c-3) ナノグラフェンシートの低電界電気測定

昨年度、無電解Niメッキで作製したナノグラフェンの低電界電気測定には2種の方法で行った。その一つは、ナノグラフェンNi粒子一個をナノギャップ電極上に固定し、DC電流を2端子で測定するものである。その結果、ナノグラフェンが半導体であること、電極とナノグラフェン・Ni粒子の接触がトンネル的な接合になっていること、 $(dI/dV)/(I/V)$ を計算し電圧に対してプロットするとV字型になりグラフェンの典型的な状態密度関数と類似していることを見出した。

その二つ目は、Ni粒子からグラフェンを剥し取り、エタノール分散液として採取したものをSiO<sub>2</sub>基板に滴下しナノグラフェンシート作製し電流・電圧特性を計測した結果を示す。本測定では、背面ゲートを有するナノギャップ電極デバイスに滴下し、いわゆるFET的な動作特性を測定した(図20)。結果は第21図に示すようになり、ゲート電圧に大きく依存するソース・ドレイン電流が得られた。電流値自体はnA領域で非常に小さく（考えられる原因は、電極との接触抵抗、酸化グラフェンによる高抵抗、などが考えられる）、応用を考える上では問題であるが、ゲートによって電流値が増大することは希望が持てる場所である。

この測定では、グラフェンシートがSiO<sub>2</sub>に直接接触しているか、それとも電極間を差し渡しの構造になっているのか不明である。そこで、まず、SiO<sub>2</sub>基板にグラフェン分散液を滴下・乾燥し（シート厚は、約350nm）、その上から電極を配置することを試みた(図22)。この構造の作製は、収束イオンビーム（FIB）を用いてまずグラフェンシートの内側電流を流す部分（チャンネル部）を残してそれ以外の部分は全て取り除きSiO<sub>2</sub>を表面に出し、その後、FIBによ

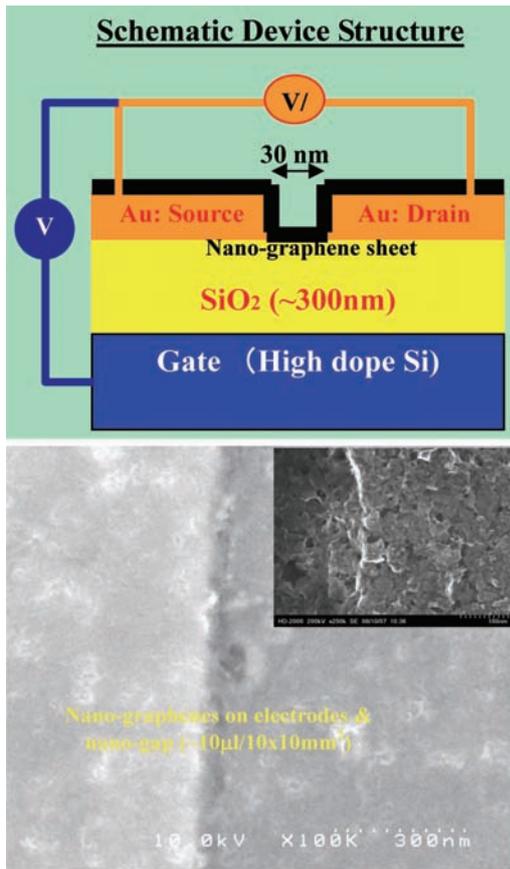


図20. 背面ゲート電極を有するナノギャップデバイス (上) とその上のグラフェンシートのSEM写真 (下、挿入図は高分解能のSEM写真)。

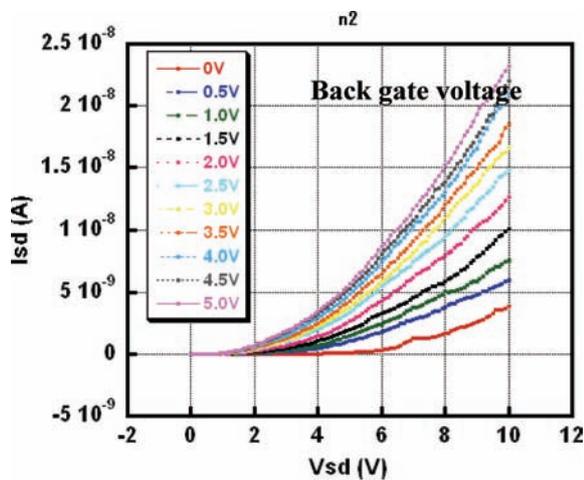


図21. ナノギャップ電極デバイス上に滴下したナノグラフェンシートのFET動作。チャンネルを構成しているグラフェンがナノサイズであるために接合型FETが構成されているためか、電流特性が飽和型ではなくスーパーリニアな振る舞いをしている。

りカーボンを堆積し4つの電極 (①~④) を作製した (図22)。長方形のパッドに電流・電圧測定プローバーの電極を接触させるものである。4端子測定を目的としたが、①と③にしかプローバー探針が接触できなかったため2端子測定になってしまった。その結果は、ほぼ上述の結果を再現できた。既に記述したように、ここに作製したグラフェンシートは酸化されているものと考え、ヒドラジン水和液に

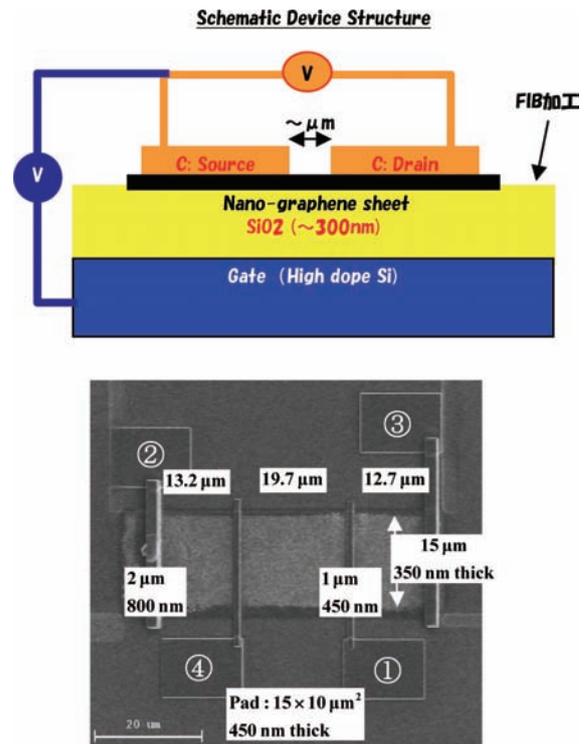


図22. SiO<sub>2</sub>上に直接グラフェンシートを滴下し、その上に電極を配置したデバイスとFIBで作製したデバイスのSEM写真。

よる還元を行うと、例えば10Vでの電流値を見ると還元前には2  $\mu$  A (5x10<sup>6</sup>  $\Omega$ )であったものが還元後には10  $\mu$  A (1x10<sup>6</sup>  $\Omega$ )まで増加した。この試料についても背面ゲート電極に電圧を印加し電流・電圧特性を計測したところゲート電圧効果が見られた (7Vで0.1mAの電流が流れることもあった) が、その振る舞いに再現性に乏しかった。デバイスの寸法を考慮しグラフェンシートの比抵抗を求めると、210  $\Omega \cdot \text{cm}$  (還元前) と41  $\Omega \cdot \text{cm}$  (還元後) となった。ここに用いているグラフェンシートはナノサイズのグラフェンが多数の界面で集合した構造になっており、高抵抗になっているものと思われる。しかし、比較的純度の高いシリコン半導体の値 (1~10<sup>3</sup>  $\Omega \cdot \text{cm}$ ) に近いものではあるため、このシートにドーピングがうまくできれば抵抗を下げることができ、シリコン類似した応用が期待できる。

### 3. 今後の研究の展望

電子科学研究所では、物理・化学・生物学から電子工学・情報科学・システム工学・生命科学までを広く融合した「複合領域ナノサイエンス」分野の研究をスローガンに掲げ、附属ナノテクノロジー研究センターを設置し、新研究領域の開拓を目指している。これまでの光・生命・分子に関する研究の蓄積ポテンシャルに加え、CNT-SPMを用いたナノテクノロジーに関する研究を融合すると、オリジナル研究領域を開拓でき、今後は、情報科学研究科生命人間情報科学専攻の岡嶋孝治准教授と緊密な連携をとりながら研究を進める。

## 4. 資料

### 4.1 学術論文等

- 1) T. Fujieda, M. Okai and H. Tokumoto : “Energy Spread of Field Emission Electrons from Single Pentagons in Individual Multi-Walled Carbon Nanotubes”, *JJAP*, 応用物理学会, 47(4) : 2021-2023 (2008).
- 2) H. Azebara : “Distinct Chemical Contrast in Adhesion Force Images of Hydrophobic-Hydrophilic Patterned Surfaces Using Multiwalled Carbon Nanotube Probe Tips”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 47(5) : 3594-3599 (2008).
- 3) T. Fujieda, M. Okai, K. Hidaka, H. Matsumoto and H. Tokumoto : “Behavior of Catalytic Particle at Tip of Carbon Nanotube during Field Emission”, *APEX*, 応用物理学会, 1(1) : 014002-1-014002-3 (2008).
- 4) Y. Mizutani, M. Tsuchiya, S. Hiratsuka, K. Kawahara, H. Tokumoto, and T. Okajima: Elasticity of Living Cells on a Microarray during the Early Stages of Adhesion measured by Atomic Force Microscopy, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 47 (2008) 6177.

### 4.2 総説、解説、評論等

- 1) 徳本洋志他「ナノグラフェンの低温成長と物性解析」単行本「グラフェンの昨日と応用展望」(監修: 徳本洋志、齊木幸一朗) 第15章、(株) CMC (2009).

### 4.7 講演

#### b. 一般講演

##### i) 学会

- 1) 平塚伸一郎、水谷祐輔、土屋雅博、河原剛一、徳本洋志、岡嶋孝治: 「多数細胞のAFMレオロジー計測: 生細胞の複素弾性率の統計解析」、2007年秋季 第68回応用物理学会学術講演会、中部大学 (2008-09)
- 2) 水谷祐輔、平塚伸一郎、土屋雅博、河原剛一、徳本洋志、岡嶋孝治: 「AFMによる心筋細胞の収縮挙動の計測」、2007年秋季 第68回応用物理学会学術講演会、中部大学 (2008-09)
- 3) 浮田桂子、勝股宗弘、徳本洋志、國奥秀雄、徳井博樹、相馬道明、嶋村清隆、秋田成司: 「ニッケルナノ粒子表面上のグラフェンフォレスト」、ナノ学会第6回大会、九州大学医学部百年記念講堂 (2008-05)
- 4) 徳本洋志、浮田桂子、國奥秀雄、徳井博樹、嶋村清隆、田中深幸、菅洋志、清水哲夫: 「無電解メッキ成長グラフェンシートの構造と物性」、2007年秋季 第68回応用物理学会学術講演会、中部大学 (2008-09)
- 5) S. Hiratsuka, Y. Mizutani, K. Kawahara, H. Tokumoto and T. Okajima : “The number distribution of complex shear modulus of living cells by AF”, ISPM2008, Seattle, USA, USA (2008-06)
- 6) Y. Mizutani, M. Tsuchiya, S. Hiratsuka, K. Kawahara, H.

Tokumoto and T. Okajima : “Elasticity of Cardiac Cells on a Microarray under Oxidative Stress Measured by Atomic Force Microscopy”, ISPM2008, Seattle, USA, USA (2008-06)

- 7) H. Azebara, K. Ide and H. Tokumoto : “A Facile Method for Conversion of the Terminal Functional Group of Multiwalled Carbon Nanotube Probe Tips for Atomic Force Microscopy”, The 2008 International Conference on Nanoscience + Technology, Keystone, USA (2008-07)
  - 8) K. Ukita, M. Katsumata, H. Tokumoto, H. Kunioku, H. Tokui, M. Sohma, K. Shimamura, T. Shimizu, H. Suga and S. Akita : “Low Temperature Growth of Graphene Sheets and their Characterization”, 2008 International Conference on Nanoscience + Technology (ICN+T 2008), Keystone, Colorado, USA, USA (2008-07)
  - 9) T. Okajima, Y. Mizutani, S. Hiratsuka, M. Tsuchiya, H. Tokumoto and K. Kawahara : “Statistical Diagnostics of Single Live Cells by Atomic Force Microscopy”, 2008 International Conference on Nanoscience + Technology (ICN+T 2008), Keystone, Colorado, USA, USA (2008-07)
  - 10) T. Okajima, Y. Mizutani, S. Hiratsuka, M. Tsuchiya, H. Tokumoto and K. Kawahara : “Statistics of cellular mechanics investigated by AFM”, AFM BioMed Conference, Monterey, USA, USA (2008-10)
  - 11) H. Azebara and H. Tokumoto : “Bond Rupture Force Measurement Using Carbon Nanotube Probe Tips”, The 4th Vacuum and Surface Sciences Conference of Asia and Australia, Matsue (2008-10)
  - 12) H. Tokumoto, K. Ukita, M. Katsumata, H. Kunioku, H. Tokui, M. Sohma, K. Shimamura, M. Tanaka, H. Suga and T. Shimizu : “Unique Preparation of Graphene Sheets and their Characterization”, VASSCAA-4, Matsue, Shimane (2008-10)
  - 13) 安藤淳、浮田桂子、徳本洋志、田中深幸、清水哲夫、菅洋志 ; 「Nanocharacterization of graphene sheets and thin graphite films」 ICSPM16 (20.12.12)
- #### ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- ・国際シンポジウム
- 1) H. Azebara and H. Tokumoto : “Statistical Analysis of a Single Hydrogen Bond Rupture Force Based on Repetitive Pull-off Force Measurements”, The 16th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, Shizuoka (2008-12)
  - 2) H. Azebara and H. Tokumoto : “Analysis of the Number of Functional Groups of a Multiwalled Carbon Nanotube Probe Tip for Chemical Force Microscopy”, The 10th RIES-Hokudai International Symposium on “aya”, Sapporo (2008-12)
  - 3) H. Azebara, K. Ide and H. Tokumoto : “Chemical Modification of Carbon Nanotubes and Their Use in Adhesive

Interaction Force Measurements Using an Atomic Force Microscope”, International Symposium on “Nanotoxicology Assessment and Biomedical, Environmental Application of Fine Particles and Nanotubes”, Sapporo (2008-06)

・一般シンポジウム

- 1) 徳本洋志「グラフェン」学振167委員会第53回研究会(21.1.8)
- 2) 畔原宏明、浮田桂子、徳本洋志:「ナノカーボン材料による機能素子の開発」、阪大産研・東北大多元研・北大電子研・東工大資源研「ポストシリコン物質・デバイス創製基盤技術アライアンス」平成20年度(2008年度)成果報告会、北海道大学 学術交流会館(2008-12)
- 3) 畔原宏明、徳本洋志:「一分子力学計測に向けたカーボンナノチューブ探針の開発」、第一回北大若手研究者交流会、北海道大学 学術交流会館(2008-11)

#### 4.9 共同研究

- c. 民間等との共同研究(研究担当者、機関名、研究題目、研究期間、研究内容)
- 1) 徳本洋志、寿産業、札幌エレクトロプレイティング、タイヤ由来炭化物の高機能化、2005年度～2008年度、タイヤ由来の炭化物からグラフェンシートを製造する。
  - 2) 徳本洋志、産業技術総合研究所、ナノグラフェンシートの電氣的評価、2007年～2008年度、北大で作製したナノグラフェンシートの電氣的評価を産業技術総合研究所で行う。

#### 4.10 予算獲得状況

- a. 科学研究費補助金(研究代表者、分類名、研究課題、期間)
- 1) 畔原 宏明、萌芽研究、ナノサイズ脂質二分子膜を固定相とする1分子レベル分析クロマトグラフィー装置の創製、2007～2008年度
- d. 奨学寄付金(研究担当者、機関名、研究課題、研究期間、総経費、研究内容)
- 1) 徳本洋志、寿産業、廃タイヤ由来ゴムの高機能化に関する研究、100万円、2005年度～2008年度、タイヤ由来の炭化物からグラフェンシートを製造とナノスケール評価
- f. その他(研究担当者、機関名、研究題目、研究期間、総経費、研究内容)
- 1) 荻野千秋、畔原宏明、梅津光央、折笠広典(産業技術研究助成事業、NEDO):高分解能生体分子プローブカンチレバーの創製による生体認識イメージング技術の開発、2006～2010年度、6,000千円、核酸、タンパク質等の分子間相互作用解析による固定化分子の高精度分析のため、原子間力顕微鏡の触診デバイスであるカンチレバー先端へのカーボンナノチューブ(CNT)修飾、更に、CNT先端への生体分子修飾を行い、新規な“分子認識能とイメージング機能”を備えたバイオセンシ

ングシステム開発を行う。これにより、原子レベルでの分解能を有し、無機材料の表面微細構造解析ツールとして定評ある走査型プローブ顕微鏡技術をバイオ分野へ展開し、バイオチップ等の評価技術確立を目指す。

#### 4.12 社会教育活動

##### a. 公的機関の委員

- 1) 徳本洋志:「ナノリスクに関するネットパネル」専門家パネリスト(2007年12月28日～2009年4月30日)
- 2) 徳本洋志:シーズ発掘試験査読評価委員(2007年4月1日～2009年3月31日)
- 3) 徳本洋志:ATIバイオSPM研究会委員(2006年4月1日～2009年3月31日)
- 4) 畔原宏明:新世代研究所ナノカーボン研究会委員(2006年4月1日～2009年3月31日)
- 5) 徳本洋志:日本学術会議 産学協力研究委員会 未踏・ナノデバイステクノロジー第151委員会 企画委員(2004年1月1日～現在)
- 6) 徳本洋志:文部科学省 科学技術政策研究所 科学技術動向研究センター 専門委員(2002年11月1日～現在)
- 7) 徳本洋志:日本学術会議 産学協力研究委員会 マイクロビームアナリシス第141委員会 委員(2000年4月1日～現在)
- 8) 徳本洋志:日本学術会議 産学協力研究委員会 ナノプローブテクノロジー第167委員会 委員(2000年4月1日～現在)

##### b. 国内外の学会の役職

- 1) 徳本洋志:日本真空協会 個人理事(2005年4月1日～現在)
- 2) 徳本洋志:応用物理学会 薄膜・表面物理分科会 幹事(2004年4月1日～2010年3月31日)
- 3) 徳本洋志:STM05国際会議組織委員長(2003年7月1日～現在)
- 4) 徳本洋志:IUVSTA(International Union for Vacuum Science, Technique and Applications)のナノ分科の日本代表委員(2003年4月1日～現在)
- 5) 徳本洋志:STM国際会議国際評議員、国際プログラム委員(2002年4月1日～現在)

##### c. 併任・兼業

- 1) 徳本洋志:ナノテクノロジー影響の多領域専門家パネル会議委員(2006年9月1日～現在)

##### d. その他

- 1) 徳本洋志:財団法人新世代研究所 評議員(2003年4月1日～現在)

##### g. 北大での担当授業科目(対象、講義名、担当者、期間)

- 1) 情報科学研究科、バイオナノ工学特論、徳本洋志、2007年10月1日～2009年3月31日
- 2) 情報科学研究科、ナノ工学概論、徳本洋志、2007年10月1日～2009年3月31日
- 3) 全学共通、光・バイオ・分子で拓くナノテクノロジー、

徳本洋志、2008年7月14日

- 4) 情報科学研究科、生命人間情報科学専攻特別演習、畔  
原宏明、2007年4月1日～2009年3月31日

**j. 修士学位及び博士学位の取得状況**

- 博士課程（1名）

藤枝 正

- 博士論文

- 1) 藤枝正:『カーボンナノチューブ電子源の電界放出特性  
に関する研究』(2008)

## バイオ分子ナノデバイス研究分野

教授 居城邦治（東工大院、工博、2004.3～）

准教授 新倉謙一（東工大院、工博、2005.1～）

助教 松尾保孝（北大院、工博、2004.8～）

博士研究員 塚本里加子（2008.3～2008.11）

院 生

博士課程

田中あや、神谷亮介、門間太志、福平由佳子、

大竹範子、西尾 崇

修士課程

永川桂大、栃木 隆、関口翔太、石川綾子

学部生

南原克行、渡辺雪江

### 1. 研究の目的

生物は高度な分子認識と自己集合・自己組織化によって組織化された分子集合体システムを駆使して、効率の良いエネルギー変換や物質生産、情報変換を達成している。本研究分野ではこのような生物の持つ機能とナノテクノロジーとを融合することで、電子デバイスからバイオに至る幅広い分野をターゲットとした分子素子や機能性材料の構築を目指して研究を行っている。タンパク質、核酸、脂質、糖といった生物の主役分子を駆使することで高度な機能を持った素子を作製できると期待される。例えば、分析手法や分子素子の開発のために、生命活動の中心にあるDNA分子に着目している。DNAの持つ分子メモリー機能、分子認識、自己会合性を利用することで分子配列を塩基配列情報で制御し、一分子のDNAの塩基配列を位置情報に変換するシステム構築やDNA分子の情報を転写した分子ナノ組織体の構築を目指している。また、細胞内に核酸を高効率で導入するウイルスのタンパク質だけを使った再構築ウイルスカプセルによる薬剤の細胞内への効率よい導入法の開発や生体分子を提示したナノ粒子の細胞内動態の観察による細胞内の新しい認識の発見を目指している。これらの研究を通じてバイオ・ナノサイエンス研究の新展開を目指す。

### 2. 研究成果

#### (a) 単電子デバイスの作製を目指した金ナノ粒子結合単一DNAの合成

近年、自己組織化や自己集合を利用したボトムアップ型ナノテクノロジーに注目が集まっている。DNAはその高い分子認識性や構造の多様性を持つため、ナノ構造体を作製するためのビルディングブロックとして注目されている。これまで我々は長鎖二本鎖DNAを鋳型とした選択的無電解メッキにより金属ナノワイヤーを作製してきた。ナノワイヤーに金属ナノ粒子を組み合わせることで単電子デバイスを作製することが可能になる。DNAと金属ナノ粒子を用

いて複雑なナノ構造を作製する場合、ナノ粒子表面にDNAの分子数を制御して提示する技術は必須であるものの、数を正確に制御してDNAを固定することは困難であった。そこで、オリゴヌクレオチド(ODN)を結合させた金ナノ粒子をゲル電気泳動することで、ODNの数を制御した金ナノ粒子を分離し、DNA polymeraseを用いて金ナノ粒子に結合したODNの伸長反応を行い、任意の長さの単一DNA結合金ナノ粒子を得ることに成功した(図1)。このようにして得られた単一長鎖DNA結合金ナノ粒子からクーロン島を基本とする単一電子デバイスを作製できると期待される。

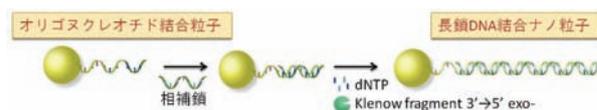


図1. 金ナノ粒子に固定化したオリゴヌクレオチドの酵素による伸長反応

#### (b) 薬剤放出機構を備えたウイルスナノカプセルの創製

薬剤輸送において、細胞への導入効率が高く、細胞内で薬剤を選択的に放出する材料開発は重要な課題である。我々はそこでウイルスカプセルというナノキャリアーに注目し、薬剤を目的の場所で放出するための材料の構築を目指した(図2)。ウイルスカプセルは遺伝子導入のキャリアーとして古くから使われているが、低分子薬剤やタンパク質のキャリアーとしての応用例はほとんど無い。これはウイルスの内部に自由に分子を格納したり、あるいは細胞内の目的のオルガネラで薬剤を放出する機構を組み込む技術が確立していなかったためである。細胞内で選択的に薬剤を放出するために、細胞内の各オルガネラでpHが異なることに着目した。特にエンドソームやリソソーム中ではpHが5程度にまで低下するため、それらのpHに応答して薬剤放出が可能な仕組みをウイルスカプセル内部に施した。具体的にはウイルスカプセルの自己集合の際に内部に特異的にヒスチジンタグが取り込まれるように設計し、ヒスチジンタグを介して金属キレートによって薬剤をウイルスカプセル内部に格納することに成功した。薬剤としてローダミンを内包したウイルスカプセルを細胞に添加すると、細胞内でウイルスカプセルからローダミンが放出されることが確認できた(図3)。

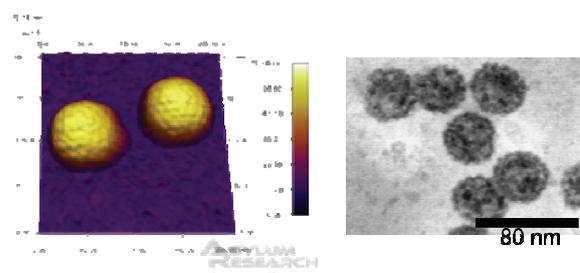


図2. ウイルスカプセル(VLP)のSTEM像及びAFM像

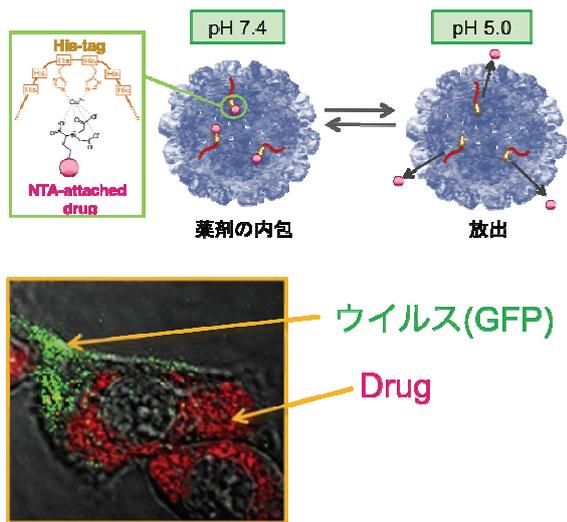


図3. ウイルスカプセルからのpH依存的な細胞内薬剤(ローダミン)放出

(c) 金属ナノ粒子の規則的配列を原理とした新規ウイルス検出法の開発

インフルエンザをはじめウイルスを高感度に検出する技術・手法は常に求められている。遺伝子を増幅するPCR法などは一般的に広く認められた手法ではあるが、ある濃度のウイルスが必要である点、また時間やコストの面でも改良が求められている。我々はウイルスのもつシアル酸認識能に着目し、ウイルス表面で金微粒子を配列化させることを狙った。これにより金微粒子の大きなプラズモン吸収波長のシフトを誘起させることを原理とした新しいウイルス検出を試みた。シアル酸で被覆された金微粒子とウイルスカプセルを混合すると、金微粒子はウイルスカプセル上に結合していることがわかった。さらに配列化した金微粒子のプラズモン吸収が長波長シフトし、色の変化としてウイルスを検出できることがわかった。

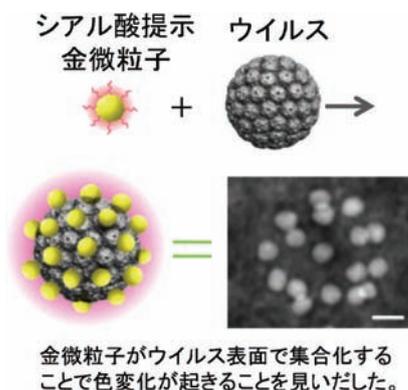


図4. ウイルスのシアル酸認識を利用した金属微粒子を規則配列化。

(d) 薬剤の細胞内導入を促進させる脂質様分子の開発

細胞膜は細胞外環境との相互作用を担い、細胞接着やシグナル伝達を調節する重要な器官である。一方、細胞膜は薬剤の細胞内送達の最初のバリアーとして機能する。薬剤の細胞膜の透過性を上げることは薬剤開発にとって非常に重要な課題であるが、細胞膜を透過しやすい分子の開発は十分に行われてこなかった。我々は細胞膜への結合ではなく、細胞膜透過を目指し、様々な疎水性の分子(脂質様分子)を化学合成し、それらの細胞内動態を共焦点蛍光顕微鏡およびフローサイトメーターで詳細に検討した。細胞への取り込み効率が異なる代表的な2つの脂質様分子の例を図5に示した。図5の緑色の丸は蛍光色素を表している。興味深いことに直線状の飽和アルキル鎖を有する脂質様分子(左)では細胞膜への集積が見られたが、アルキル鎖から枝上にメチル基を結合させると細胞内への急速な取り込みが観察された。細胞膜の基本構造は脂質2分子膜であるが、細胞膜にトラップされることなく細胞内へ侵入できるこれらの分子の発見は薬剤送達において広い応用につながることを期待できる。

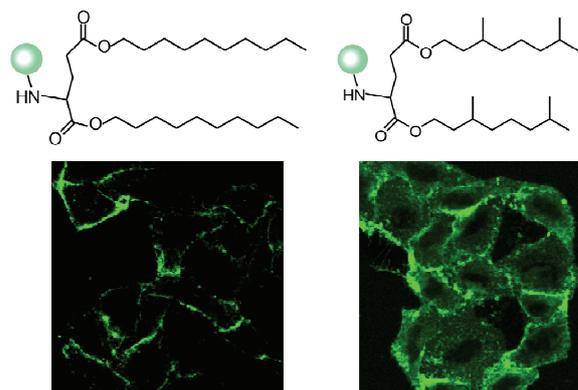


図5. HeLa細胞への脂質様分子の取り込みの様子(共焦点顕微鏡画像)。

3. 今後の研究の展望・将来計画

近年バイオ分子のもつ高い自己組織化能を駆使することにより、ナノスケールで構築されている複雑な構造体を、より簡便に作り出す技術が注目されている。我々は生物あるいは生体分子を鋳型とすることで、電子デバイス・光学素子・医療素子などへと展開してきた。今後は我々の構築したナノ材料の機能をさらに検証し、バイオ分子の有用性を示していく。

## 4. 資料

### 4.1 学術論文等

- 1) T. Nishio, K. Niikura, Y. Matsuo and K. Ijro : “Enhanced Accumulation of Carbohydrate-Displaying CdTe Quantum Dots in Cells Responding to Cellular Chemical Stresses”, *international journal of nanoscience*, 8 : 219-222 (2009)
- 2) R. Kamitani, K. Niikura, T. Okajima and K. Ijro : “Design of cell surface-retained polymers for artificial ligand display”, *ChemBioChem*, 10 : 230-233 (2009)
- 3) H. Yabu, R. Jia, Y. Matsuo, K. Ijro, S. Yamamoto, F. Nishino, T. Takaki, M. Kuwahara and M. Shimomura : “Preparation of Highly Oriented Nano-Pit Arrays by Thermal Shrinking of Honeycomb-Patterned Polymer Films”, *Advanced Materials*, 20(21) : 4200-4204 (2008)
- 4) K. Niikura, S. Sekiguchi, T. Nishio, T. Masuda, H. Akita, Y. Matsuo, K. Kogure, H. Harashima and K. Ijro : “Oligosaccharide-mediated Nuclear Transport of Nanoparticles”, *ChemBioChem*, 9 : 2623-2627 (2008)
- 5) 山本貞明、田中賢、藪 浩、伊藤絵美子、前田悠、森田由香、居城邦治、下村政嗣 : 「自己組織化マイクロパターン高分子表面が創り出すバイオ界面」、表面、46(8) : 393-409 (2008)
- 6) A. Tanaka, Y. Matsuo, K. Niikura and K. Ijro : “Stabilization of Multiassembly by Addition of a Phosphate Group at the 5'-Sticky End ”, *Chemistry Letters*, 37(7) : 758-759 (2008)
- 7) H. Yabu, Y. Hirai, Y. Matsuo, K. Ijro and M. Shimomura : “Double-layered Metal Mesh Film Having a Limited Viewing Angle Property Prepared by Electroless Plating of Self-organization Honeycomb Film”, *Macromolecular Symposia*, 267 : 100-104 (2008)
- 8) A. Tanaka, Y. Matsuo, Y. Hashimoto and K. Ijro : “Sequence-specific platinum metal deposition on enzymatically synthesized DNA block copolymer”, *Chem. Commun.*, 36 : 4270-4272 (2008)

### 4.4 著書

- 1) 松尾保孝、居城邦治 : 「DNA-金属デバイス」、バイオナノプロセス、シーエムシー出版、第26章、257-265 (2008).
- 2) 新倉謙一 : 「糖鎖で被覆した金属および半導体ナノ粒子の合成と応用」、複合糖質の化学と最新応用技術、シーエムシー出版、228-234 (2009).

### 4.6 特許 (発明者、特許番号、特許名、出願年月日)

- 1) 増田智也、秋田英万、小暮健太郎、西尾崇、新倉謙一、居城邦治、原島秀吉 : 特願2009-069438、核輸送性脂質膜構造体、2009年3月23日
- 2) 山本貞明、森田有香、居城邦治、下村政嗣、田中賢、

藪浩 : 特願2008-230159、未分化の間葉系幹細胞を培養するための培養基材、2008年9月8日

- 3) 原島秀吉、秋田英万、増田智也、小暮健太郎、西尾崇、新倉謙一、居城邦治 : 特願2008-115388、オリゴアルキレングリコールで修飾された脂質膜構造体、2008年4月25日

### 4.7 講演

#### i) 学会

- 1) 平井悠司、藪 浩、松尾保孝、居城邦治、下村政嗣 : 「銀-高分子ハイブリッドピラー構造を用いた表面増強ラマン散乱測定」、2009年春季第56回応用物理学関係連合講演会、筑波大学 (2009-03 ~ 2009-04)
- 2) 渡辺雪江、田中あや、松尾保孝、居城邦治 : 「DNAを鋳型とした金属の析出における塩基選択性」、日本化学会第89春季年会、日本大学 (2009-03)
- 3) 南原克行、新倉謙一、神谷亮介、居城邦治 : 「特定の細胞周期に取り込まれる脂質誘導体の探索」、日本化学会第89春季年会、日本大学 (2009-03)
- 4) 石川綾子、松尾保孝、居城邦治 : 「核酸塩基と金の選択的な吸着を利用したサブナノサイズ金ナノ粒子の作製」、日本化学会第89春季年会、日本大学 (2009-03)
- 5) 大竹(石塚)範子、新倉謙一、鈴木忠樹、永川桂大、澤洋文、居城邦治 : 「アンカー分子を用いたウイルス様ナノカプセルへのタンパク質内包」、日本化学会第89春季年会、日本大学 (2009-03)
- 6) 森田有香、山本貞明、藪 浩、居城邦治、本望修、下村政嗣 : 「マイクロパターン化表面によるラット骨髄由来間葉系幹細胞の増殖促進」、日本化学会第89春季年会、日本大学 (2009-03)
- 7) 永川桂大、新倉謙一、大竹(石塚)範子、鈴木忠樹、松尾保孝、澤洋文、居城邦治 : 「ウイルス様ナノカプセルを鋳型とした金ナノ粒子の3次元配列化」、日本化学会第89春季年会、日本大学 (2009-03)
- 8) 関口翔太、新倉謙一、西尾崇、松尾保孝、居城邦治 : 「オリゴ糖の高密度提示によって促進される微粒子の核移行」、日本化学会第89春季年会、日本大学 (2009-03)
- 9) Y. Hirai, H. Yabu, Y. Matsuo, K. Ijro and M. Shimomura : “Silver-Polystyrene Hybrid Pincushion Films for Surface Enhanced Raman Scattering substrates prepared by self-organization and vapor deposition First International Conference on Multifunctional”, Hybrid Materials 2009, Tours, France (2009-03)
- 10) K. Ijro, Y. Matsuo and A. Tanaka : “DNA Sequence-Selective Fabrication of Platinum Nanowires”, AsiaNANO2008, Biopolis, Singapore (2008-11)
- 11) T. Nishio, K. Niikura, Y. Matsuo, H. Akita, H. Harashima and K. Ijro : “Water soluble carbohydrate-displaying quantum dots for glycoprotein mimics in cells.”, AsiaNANO2008, Biopolis, Singapore (2008-11)

- 12) A. Ishikawa, Y. Matsuo, K. Niikura and K. Ijro : “Control of Au Nanoparticle Preparation by Selective Adsorption of Nucleic Acids onto Au”, AsiaNANO2008, Biopolis, Singapore (2008-11)
- 13) R. Kamitani, K. Niikura, T. Okajima and K. Ijro : “Control of cell adhesion by cell-surface modification with polymer-appended ligands”, AsiaNANO2008, Biopolis, Singapore (2008-11)
- 14) K. Nagakawa, K. Niikura, N. Ohtake(Ishizuka), T. Suzuki, Y. Matsuo and K. Ijro : “Metal nanoparticle array on a viral surface through the sugar-recognition”, AsiaNANO2008, Biopolis, Singapore (2008-11)
- 15) F. Monma, Y. Matsuo, K. Niikura and K. Ijro : “Fabrication of Langmuir-Blodgett monolayers of single-stranded DNA wrapped SWNT”, AsiaNANO2008, Biopolis, Singapore (2008-11)
- 16) N. Ohtake(Ishizuka), K. Niikura, T. Suzuki, K. Nagakawa, H. Sawa and K. Ijro : “Protein-enclosed nano capsules based on the self-assembly of viral proteins”, AsiaNANO2008, Biopolis, Singapore (2008-11)
- 17) S. Sekiguchi, K. Niikura, T. Nishio, Y. Matsuo and K. Ijro : “Importance of Multiple Display of Oligosaccharides on Nanoparticles for Their Efficient Nuclear Imports”, AsiaNANO2008, Biopolis, Singapore (2008-11)
- 18) Y. Watanabe, M. Tanaka, Y. Matsuo, K. Niikura and K. Ijro : “Nucleobase-Selective Metallization of Homosequence DNA Synthesized by DNA Polymerase”, AsiaNANO2008, Biopolis, Singapore (2008-11)
- 19) K. Nambara, K. Niikura, R. Kamitani and K. Ijro : “Cell cycle-dependent uptake of lipid-like compounds in HeLa cells”, AsiaNANO2008, Biopolis, Singapore (2008-11)
- 20) K. Ijro : “DNA Sequence Specific Fabrication of Metal Nanostructures”, Korea-Japan Joint Forum (KJF) 2008, Chitose (2008-10)
- 21) F. Monma, Y. Matsuo and K. Ijro : “Fabrication of SWNT thin films by Langmuir-Blodgett method”, Korea-Japan Joint Forum (KJF) 2008, Chitose (2008-10)
- 22) K. Nagakawa, K. Niikura, N. Ohtake(Ishizuka), T. Suzuki, Y. Matsuo, H. Sawa and K. Ijro : “Gold nanoparticle Array based on viral structure”, Korea-Japan Joint Forum (KJF) 2008, Chitose (2008-10)
- 23) A. Ishikawa, Y. Matsuo and K. Ijro : “CONTROL OF Au NANOPARTICLE PREPARATION BY BASEDEPENDENT ADSORPTION OF NUCLEIC ACIDS ONTO Au”, Korea-Japan Joint Forum (KJF) 2008, Chitose (2008-10)
- 24) 居城邦治、田中あや、石川綾子、新倉謙一、松尾保孝 : 「DNAを鋳型とした金属ナノ構造の形成制御」、第57回高分子討論会、大阪市立大学 (2008-09)
- 25) 新倉謙一、神谷亮介、岡嶋孝治、居城邦治 : 「細胞膜への結合能を持つ高分子による細胞表面改変技術の開発」、第57回高分子討論会、大阪市立大学 (2008-09)
- 26) 山本貞明、田中賢、森田有香、藪 浩、居城邦治、下村政嗣 : 「ハニカムフィルム上での多能性未分化細胞の増殖」、第57回高分子討論会、大阪市立大学 (2008-09)
- 27) 栃木隆、田中賢、浜田淳一、前田悠、山本貞明、居城邦治、下村政嗣 : 「自己組織化ハニカム構造高分子薄膜によるヒト癌細胞の増殖の抑制」、第57回高分子討論会、大阪市立大学 (2008-09)
- 28) K. Ijro, Y. Matsuo and A. Tanaka : “DNA Sequence Selective Fabrication of Platinum Nanowires on DNA Block Copolymer”, The 4th IUPAC Sponsored International Symposium on Macro- and Supramolecular Architectures and Materials (MAM-08), Dusseldorf, Germany (2008-09)
- 29) 門間太志、松尾保孝、居城邦治 : 「Langmuir-Blodgett 法による水溶化CNTの薄膜作」、秋季第69回応用物理学会学術講演会、中部大学 (2008-09)
- 30) 永川桂大、新倉謙一、大竹(石塚)範子、鈴木忠樹、松尾保孝、澤洋文、居城邦治 : 「光局在場を目指したウイルスカプセル表面における金ナノ粒子の規則配列化」、秋季第69回応用物理学会学術講演会、中部大学 (2008-09)
- 31) 石川綾子、松尾保孝、居城邦治 : 「核酸塩基と金の選択的な吸着を利用した金ナノ粒子の分散制御」、秋季第69回応用物理学会学術講演会、中部大学 (2008-09)
- 32) 上田哲也、石川綾子、高島秀聡、藤原英樹、松尾保孝、居城邦治、笹木敬司、竹内繁樹 : 「単一オリゴヌクレオチド/銀ハイブリッドナノ粒子の発光特性解析」、2008 秋季 第69回応用物理学会学術講演会、中部大学春日井キャンパス (2008-09)
- 33) 平井悠司、藪 浩、松尾保孝、居城邦治、下村政嗣 : 「銀蒸着自己組織化ピラー構造の表面増強ラマン散乱基板への応用」、秋季第69回応用物理学会学術講演会、中部大学 (2008-09)
- 34) K. Ijro : “2-D organic and inorganic nanofabrication through molecular recognition of DNA at the air-water interface”, SPIE Optics + Photonics 2008, San Diego, California, USA (2008-08)
- 35) 永川桂大、新倉謙一、大竹(石塚)範子、鈴木忠樹、松尾保孝、澤洋文、居城邦治 : 「ウイルスの糖鎖認識能を利用した金ナノ粒子の規則配列化」、生体機能関連化学若手の会サマースクール、小原温泉 かつら屋、宮城県 (2008-08)
- 36) Y. Hirai, H. Yabu, Y. Matsuo, K. Ijro and M. Shimomura : “Wettability of various inorganic nano-structures prepared based on honeycomb-patterned polymer masks prepared by Self-organization process”, 6th International Symposium on Contact Angle, Wettability and Adhesion, Maine, USA (2008-07)
- 37) 平井悠司、藪 浩、松尾保孝、居城邦治、下村政嗣 : 「自

- 己組織化高分子構造を用いた表面増強ラマン錯乱測定への応用」、第57回高分子学会年次大会、パシフィコ横浜 (2008-05)
- 38) 田中あや、松尾保孝、居城邦治：「機能性分子の一次元配列を目指した鋳型DNAの酵素合成」、第57回高分子学会年次大会、パシフィコ横浜 (2008-05)
- 39) 大竹(石塚)範子、新倉謙一、鈴木忠樹、永川桂大、澤洋文、居城邦治：「シアル酸提示基盤への固定化によるウイルス様微粒子の細胞内取り込み促進」、第57回高分子学会年次大会、パシフィコ横浜 (2008-05)
- 40) 西尾崇、新倉謙一、秋田英万、松尾保孝、原島秀吉、居城邦治：「糖鎖量子ドットプローブを用いた細胞ストレス可視化法の開発」、第57回高分子学会年次大会、パシフィコ横浜 (2008-05)
- 41) 石川綾子、松尾保孝、居城邦治：「DNA/銀複合ナノ粒子の作製と発光メカニズムの解明」、第57回高分子学会年次大会、パシフィコ横浜 (2008-05)
- 42) Y. Fukuhira, H. Kaneko, K. Ijro, H. Yabu and M. Shimomura : “Surfactant Dependence on Fabrication of Ordered Microporous Film of Poly(lactide)”, World Biomaterials Congress 2008, Amsterdam, Netherland (2008-05 ~ 2008-06)
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) K. Niikura : “Sugar-Displaying Quantum Dots as a Bioimaging Tool”, “Recent Advances in Fluorescence Spectroscopic Methods for Biological and Chemical Systems”, Hokkaido (2009-02)
- 2) 門間太志、松尾保孝、居城邦治：「LB法による水溶性CNT単分子膜の作製」、第43回高分子学会北海道支部研究発表会、北海道大学 (2009-02)
- 3) 南原克行、新倉謙一、神谷亮介、居城邦治：「細胞周期選択的に取り込まれる脂質様化合物の探索」、第43回高分子学会北海道支部研究発表会、北海道大学 (2009-02)
- 4) 渡辺雪江、田中あや、松尾保孝、新倉謙一、居城邦治：「塩基配列選択的な金属ナノワイヤーの作製をめざした修飾DNAの合成」、第43回高分子学会北海道支部研究発表会、北海道大学 (2009-02)
- 5) 大竹(石塚)範子、新倉謙一、鈴木忠樹、永川桂大、澤洋文、居城邦治：「タンパク質内包ウイルスナノカプセルの作製と細胞への導入」、第43回高分子学会北海道支部研究発表会、北海道大学 (2009-02)
- 6) 関口翔太、新倉謙一、西尾崇、松尾保孝、居城邦治：「糖鎖依存的な核移行における多糖化と高密度化の効果」、第43回高分子学会北海道支部研究発表会、北海道大学 (2009-02)
- 7) 居城邦治、田中あや、松尾保孝：「生体分子とナノ金属のハイブリッドによる新規ナノデバイスの構築をめざして」、「ポストシリコン物質・デバイス創製基盤技術アライアンス」平成20年度成果報告会、北海道大学 (2008-12)
- 8) K. Nagakawa, K. Niikura, N. Ohtake(Ishizuka), T. Suzuki, Y. Matsuo, H. Sawa and K. Ijro : “Gold Nanoparticle Array using Virus Like Particles as a Scaffold”, The 10th RIES-Hokudai International Symposium on “綾” [aya], Sapporo (2008-12)
- 9) S. Sekiguchi, K. Niikura, T. Nishio, Y. Matsuo and K. Ijro : “The Surface Modification of Quantum Dots for the Transportation into Cellular Nucleus”, The 10th RIES-Hokudai International Symposium on “綾” [aya], Sapporo (2008-12)
- 10) Y. Hirai, H. Yabu, Y. Matsuo, K. Ijro and M. Shimomura : “Application of Metal-Polymer Hybrid Pincushion Films Prepared by Self-Organization and Vapor Deposition”, ISEM2008 Returns, Tokyo (2008-12)
- 11) 居城邦治：「AFMで測るDNAの分子認識」、バイオSPM研究会、東京 (2008-11)
- 12) K. Ijro : “Fabrication of Nanowires by Base-Selective Metallization of DNA”, Japan-Korea-China Mini-symposium on Nanotechnology, Biotechnology and Catalysis -Satellite Session-, Sapporo (2008-11)
- 13) Y. Hirai, H. Yabu, Y. Matsuo, K. Ijro and M. Shimomura : “Simple fabrication for the surface enhanced Raman scattering substrate prepared by self-organization and vapor deposition”, JAPAN-KOREA Polymer Young Scientist Symposium 2009, Niigata (2008-10)
- 14) 大竹(石塚)範子、新倉謙一、鈴木忠樹、澤洋文、居城邦治：「ウイルスタンパク微粒子への薬剤内包と高効率細胞内導入」、第3回バイオ関連化学合同シンポジウム2008、東京工業大学 (2008-09)
- 15) 永川桂大、新倉謙一、大竹(石塚)範子、鈴木忠樹、松尾保孝、澤洋文、居城邦治：「ウイルスの糖鎖認識能を利用した金ナノ粒子の規則配列化」、第3回バイオ関連化学合同シンポジウム2008、東京工業大学 (2008-09)
- 16) 田中あや、松尾保孝、居城邦治：「DNAの塩基配列に選択的なプラチナナノワイヤーの作製」、第3回バイオ関連化学合同シンポジウム2008、東京工業大学 (2008-09)
- 17) 関口翔太、新倉謙一、西尾崇、松尾保孝、居城邦治：「糖鎖提示が可能とする微粒子の核内輸送」、第3回バイオ関連化学合同シンポジウム2008、東京工業大学 (2008-09)
- 18) 石川綾子、松尾保孝、居城邦治：「核酸塩基と金の選択的な吸着を利用した金ナノ粒子の作製」、2008年度北海道高分子若手研究会、ないえ温泉 ホテル北乃湯 (2008-08)
- 19) 関口翔太、新倉謙一、西尾崇、松尾保孝、居城邦治：「微粒子の核移行を目的とした糖鎖修飾法」、2008年度北海道高分子若手研究会、ないえ温泉 ホテル北乃湯 (2008-08)

- 20) 西尾崇、新倉謙一、松尾保孝、秋田英万、小暮健太郎、原島秀吉、居城邦治：「糖鎖量子ドットを用いた細胞ストレス検出の検討」、第20回生体機能関連化学 若手の会サマースクール、小原温泉 かつら屋(宮城県) (2008-08)
- 21) 福平由佳子、伊東雅弥、兼子博章、田中賢、山本貞明、下村政嗣、居城邦治：「体適合性ハニカム構造フィルムの作製と癒着防止材への応用」、第37回医用高分子シンポジウム、東京医科歯科大学 (2008-07)
- 22) N. Ohtake(Ishizuka), K. Niikura, T. Suzuki, K. Nagakawa, H. Sawa and K. Ijro : “Sialic Acid-Promoted Cellular Uptake of Immobilized Virus-Like Particles”, XXIV International Carbohydrate Symposium (ICS2008), Oslo, Norway (2008-07 ~ 2008-08)
- 23) K. Niikura, R. Kamitani, T. Okajima and K. Ijro : “Clustered Display of Synthetic Carbohydrates on the Cell Surface using Membrane Anchored Polymer”, XXIV International Carbohydrate Symposium (ICS2008), Oslo, Norway (2008-07 ~ 2008-08)
- 24) S. Sekiguchi, T. Nishio, K. Niikura, Y. Matsuo and K. Ijro : “Specific Transportation of Quantum Dots into Cellular Nucleus by displaying Oligosaccharides”, XXIV International Carbohydrate Symposium (ICS2008), Oslo, Norway (2008-07 ~ 2008-08)
- 25) 神谷亮介、新倉謙一、岡嶋孝治、居城邦治：「機能性高分子による細胞表層への人工レセプター分子の提示」、第18回バイオ・高分子シンポジウム、上智大学 (2008-07)

### iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 新倉謙一：「糖鎖提示によるナノ微粒子・タンパクの核内移行促進」、平成21年大阪大学蛋白研セミナー、大阪大学 (2008-07)

### 4.8 シンポジウムの開催 (組織者名、シンポジウム名、参加人数、開催場所、開催期間)

- 1) 居城邦治、新倉謙一、松尾保孝(高分子学会 北海道支部)：平成20年度科学研究費補助金事業「未来高分子教室：高分子で展開するバイオ・光・ナノテクが織りなす実体験ゾーン」、北海道大学 (2008.10.18)

### 4.9 共同研究

#### b. 民間等との共同研究

- 1) 居城邦治、本望修 (札幌医科大学)：「骨髄由来の細胞を用いた新規な再生医療法の開発」(2006.10.1~現在)
- 2) 長田義仁(理化学研究所)、居城邦治、上田哲男：「分子情報生命科学に関する研究」(2008.4.1~2012.11.30)

#### d. 受託研究 (研究担当者、機関名、研究題目、研究期間、総経費、研究内容)

- 1) 居城邦治、松尾保孝、NEDO 産業技術研究助成事業：「非対称ナノハニカム構造を持つ高機能癒着防止膜とその

自己組織化プロセスの開発」(2007~2009年度)

- 2) 居城邦治、新倉謙一、松尾保孝、科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業：「金属・半導体の表面加工とバイオメテック・エンジニアリング」(2008~2013年度)
- 3) 居城邦治、科学技術振興機構：「安定同位元素イメージング技術による産業イノベーション」(2007~2011年度)

### 4.10 予算獲得状況

#### a. 科学研究費補助金 (研究代表者、分類名、研究課題、期間)

- 1) 居城邦治、基盤研究 B 一般、DNA コンジュゲート導電性高分子による単一分子エレクトロニクス素子の作製 (2007~2008年度)
- 2) 新倉謙一、基盤研究 B、シャペロンの糖鎖認識を原理とした新規細胞ストレスセンシング法の開発 (2007~2009年度)
- 3) 新倉謙一、萌芽研究、ウイルスを鋳型とした金属微粒子3次元規則配列構造の構築 (2007~2008年度)
- 4) 松尾保孝、若手研究 B、DNA 結合たんぱく質の単一分子計測に向けた伸長固定化 DNA チップの作製 (2007~2008年度)
- 5) 松尾保孝、特定領域研究、DNA と結合した銀ナノ粒子の作製と発光メカニズムの解明 (2008年度)
- 6) 神谷亮介、特別研究員奨励費、細胞分化誘導を目指したプロテオグリカン様糖鎖フィルムの創製 (2006~2008年度)
- 7) 大竹(石塚)範子、特別研究員奨励費、ウイルス様カーゴカプセル固定化基板によるセルトランスフェクションアレイの開発 (2007~2009年度)
- 8) 田中あや、特別研究員奨励費、DNA 上で一次構造を制御した導電性高分子の合成および単一分子の電気特性測定 (2008年度)
- 9) 西尾崇、特別研究員奨励費、糖鎖とシャペロンの相互作用を利用した新規細胞ストレス検出法の確立 (2008~2010)

#### f. その他

- 1) 岡嶋孝治、田中賢、新倉謙一、石井勝弘 (産業技術研究助成事業)：「単一細胞表層の全方向ナノダイナミクス計測技術の開発」、2006~2009年度、本研究では、生細胞表層のマイクロドメイン構造および表面ダイナミクスを測定する手法を確立する。研究開発期間の前半は、細胞の表層を選択的に計測することができる、原子間力顕微鏡 (AFM) 法とエバネッセント波動的光散乱法 (EW-DLS) とを組み合わせた細胞表層の全方向計測装置を試作する。そして、糖鎖ナノプローブ合成技術と細胞培養制御技術を利用して細胞表層の定量測定が可能なナノ計測技術を確立する。研究期間の後半は、本研究で開発したナノ計測技術を用いて、多数個の正常細胞と異常細胞の解析結果から、生細胞表層の

時空間構造と疾患との相関を解明する。

- 2) 松尾保孝、ノーステック財団研究開発助成事業 タレント補助金業:「生細胞イメージング用の新規発光性金属ナノ粒子の開発」、(2008年度)

#### 4.11 受賞

- 1) 大竹範子:「アンカー分子を用いたウイルス様ナノカプセルへのタンパク質内包」、第89日本化学会春季年会「学生講演賞」(2009.3.27-30)
- 2) 森田有香、山本貞明、藪浩、伊藤絵美子、居城邦治、本望修、下村政嗣:「マイクロパターン化表面によるラット骨髄由来間葉系幹細胞の増殖促進」、第89日本化学会春季年会「優秀講演賞(産業)」(2009.3.27-30)
- 3) 田中あや:「Preparation of nanostructure using molecular recognition of sequence-designed DNA」、北海道大学大塚賞(2009.3.19)
- 4) K. Nagakawa, K. Niikura, N. Ohtake, T. Suzuki, Y. Matsuo, H. Sawa and K. Ijro: Best Poster Award “Metal Nanoparticle Array on a Viral Surface through the Sugar-Recognition”(AsiaNANO 2008) 2008年11月
- 5) F. Monma, Y. Matsuo, K. Niikura and K. Ijro: Best Poster Award “Fabrication of Langmuir-Blodgett Monolayers of Single-Stranded DNA Wrapped SWNT”(AsiaNANO 2008) 2008年11月
- 6) K. Nambara, K. Niikura, R. Kamitani and K. Ijro: Best Poster Award “Cell Cycle-dependent Uptake of Lipid-like Compounds in HeLa Cells”(AsiaNANO 2008) 2008年11月
- 7) 石川綾子:「核酸塩基と金の選択的な吸着を利用した金ナノ粒子の作製」、高分子学会北海道支部優秀賞(2008.8)
- 8) 関口翔太:「微粒子の核移行を目的とした糖鎖修飾法」、高分子学会北海道支部優秀賞(2008.8)
- 9) 永川桂大:「ウイルスの糖鎖認識機能を利用した金ナノ粒子の規則配列化」、第20回生体機能関連化学若手の会サマースクール実行委員会優秀賞(2008.8.6)
- 10) 神谷亮介:「細胞膜修飾高分子を用いた細胞操作技術の開発」、日本化学会学生講演(2008.4)

#### 4.12 社会教育活動

##### a. 公的機関の委員

- 1) 新倉謙一:経済産業省 地域技術開発支援事業に係わる事前評価委員(2007年5月14日~2009年8月31日)

##### b. 国内外の学会の役職

- 1) 居城邦治、新倉謙一、松尾保孝:高分子学会未来高分子教室実行委員(2008年4月1日~2008年10月18日)
- 2) 新倉謙一:高分子学会男女共同参画委員(2007年4月1日~2011年3月31日)
- 3) 居城邦治:社団法人高分子学会北海道支部幹事(2004年4月1日~現在)

- 4) 居城邦治:社団法人高分子学会バイオ・高分子研究会運営委員(2002年4月1日~現在)

- 5) Kuniharu Ijro: Asian Conference on Nanoscience & Nanotechnology (AsiaNANO), Steering Committee (2004年度~現在)

- 6) 松尾保孝:日本化学会・生体機能関連化学部会若手の会幹事(2005年~現在)

##### c. 併任・兼業

- 1) 居城邦治:独立行政法人 理化学研究所 基幹研究所 分子情報生命科学特別研究ユニット 客員主管研究員(2007年12月1日~2009年3月31日)

- 2) 居城邦治:独立行政法人 科学技術振興機構「戦略的創造研究推進事業」領域アドバイザー(2006年6月19日~2010年6月18日)

- 3) 居城邦治:社)日本化学会「欧文誌」編集委員会 編集委員(2006年3月1日~現在)

##### f. 外国人研究者の招聘(氏名、国名、期間)

- 1) Jae-Yong Kim, Korea (2009年2月12日)
- 2) Chang Kyung Kim, Korea (2009年2月12日)
- 3) In Sung Park, Korea (2009年2月12日)
- 4) Simon Song, Korea (2009年2月12日)
- 5) Hee Joon Ahn, Korea (2009年2月12日)
- 6) Haiwon Lee, Korea (2009年2月12日)
- 7) Cheon Gyu Cho, Korea (2009年2月12日)
- 8) Sung-Hwan Han, Korea (2009年2月12日)
- 9) Jin Wook Han, Korea (2009年2月12日)
- 10) Sunyoung Park, Korea (2009年2月12日)
- 11) Hyun Ae Lee, Korea (2009年2月12日)
- 12) Young Suk Kim, Korea (2009年2月12日)
- 13) Hanna Kim, Korea (2009年2月12日)
- 14) Semi Heo, Korea (2009年2月12日)

##### g. 北大での担当授業科目(対象、講義名、担当者、期間)

- 1) 理学院、物理化学特別講義 I [Special Lecture on Physical Chemistry I] (分子組織化学)、居城邦治、2008年10月1日~2009年3月31日
- 2) 全学共通、環境と人間(光・バイオ・分子で拓くナノテクノロジー)、居城邦治、2008年4月1日~2008年09月30日
- 3) 全学共通、環境と人間(先端の化学)、居城邦治、2008年4月1日~2008年09月30日
- 4) 理学院、特別研究 I、居城邦治、2008年4月1日~2009年3月31日
- 5) 理学院、特別研究 II、居城邦治、2008年4月1日~2009年3月31日
- 6) 理学院、特別研究 III、居城邦治、2008年4月1日~2009年3月31日
- 7) 理学院、特別研究 IV、居城邦治、2008年4月1日~2009年3月31日
- 8) 理学院、特別研究 V、居城邦治、2008年4月1日~2009年3月31日

- 9) 理学院、論文購読Ⅰ、居城邦治、2008年4月1日～2009年3月31日
- 10) 理学院、論文購読Ⅱ、居城邦治、2008年4月1日～2009年3月31日
- 11) 理学院、論文購読Ⅲ、居城邦治、2008年4月1日～2009年3月31日
- 12) 理学院、論文購読Ⅳ、居城邦治、2008年4月1日～2009年3月31日
- 13) 理学院、論文購読Ⅴ、居城邦治、2008年4月1日～2009年3月31日
- 14) 全学共通、環境と人間（先端の化学）、居城邦治、2008年4月1日～2008年9月30日

**h. 北大以外での非常勤講師(担当者、教育機関、講義名、期間)**

- 1) 居城邦治、筑波大学数理物質科学研究科、化学特別講義Ⅰ、2008年09月1日～2009年3月31日
- 2) 居城邦治、名古屋大学工学研究科、有機材料設計特論1、2008年4月14日～2009年3月31日

**i. ポスドク・客員研究員など**

- ・ポスドク（1名）  
塚本里加子（電子科学研究所）

**j. 修士学位及び博士学位の取得状況**

- ・修士課程（4名）  
永川桂大、栃木隆、関口翔太、石川綾子
- ・博士課程（6名）  
田中あや、神谷亮介、門間太志、福平由佳子、大竹範子、西尾崇
- ・修士論文
  - 1) 永川桂大：ウイルスを鋳型とした金属ナノ粒子の規則配列化とプラズモンナノ材料への応用
- ・博士論文
  - 1) 田中あや：Preparation of nanostructure using molecular recognition of sequence-designed DNA (塩基配列がデザインされたDNAの分子認識によるナノ構造体の作製)
  - 2) 神谷亮介：Design of artificial ligand-appended polymers for non-covalent modification of cell surface (非共有結合型細胞表層修飾のための人工リガント提示ポリマーの分子設計)
  - 3) 福平由佳子：Study of Honeycomb-patterned film for Medical Devices (医療用ハニカム構造フィルムに関する研究)

# 極限フォトンプロセス研究分野

教授 三澤弘明 (筑波院、理博、2003.5～)  
 准教授 ヨードカジス・サウリウス  
 (Ph.D at Vilnius Univ., Lyon-I Univ., 2004.4～)  
 助教 村澤尚樹 (北大院、博(情報科学)、2008.6～)  
 院 生  
 博士課程  
 西島喜明、横田幸恵、Md. モニール・イスラム  
 修士課程  
 高島聡章、西 泰史、荒木 剛

## 1. 研究目標

光の波長よりもサイズの小さい金属ナノ微粒子に光を照射すると、局在型の表面プラズモン共鳴が誘起され、回折限界よりも遥かに小さいナノメートルの領域に光電場を局在化させることができる。特に、金属微粒子同士がシングルナノメートル幅で近接したナノギャップ金属構造では、そのギャップ間において入射光電場強度の $\sim 10^5$ 倍にも及ぶ極めて高い光電場増強が誘起されることが理論的に予測されている。この光電場増強効果は、表面増強ラマン散乱(SERS)や高効率な高次高調波発生などの非線形光学現象を容易に誘起することが可能であることから、局在表面プラズモンに関する様々な研究が、現在実験・理論の両面から精力的に行われている。本研究グループでは、高度微細加工技術により金属ナノ構造体を高精度に作製し、高い光電場増強効果を示す金属ナノ構造を新規ナノ光化学反応場と位置づけ、種々の光化学反応へ適応するとともに、構造設計の最適化から光化学反応の選択率制御を達成する光化学反応場を構築することを目的として研究を行っている。

## 2. 研究成果

電子線リソグラフィ／リフトオフ法を用いてガラス、シリコンなどの固体基板上に2つの金ナノブロック構造がナノメートルの空隙を有して隣接するナノギャップ金構造を作製し、非線形光重合反応を用いて構造体に局在する光電場増強効果について検討し、ハロゲン光のような微弱光を用いても非線形光重合反応を誘起できることを明らかにした。また、金ナノブロック構造の長軸方向の偏光照射によって誘起される高次のプラズモンモードを非線形光重合反応により可視化することに成功した。

(i) 非線形光重合反応による光電場増強の効果

作製した金ナノ構造体基板上にネガ型フォトレジスト(SU-8、光吸収帯 400nm 以下、Microchem Co.) をスピコートし、フェムト秒レーザー光 (Tsunami, Spectra Physics, 波長: 800nm、繰り返し周波数: 82MHz、パルス幅: 120fs) を任意の光強度・時間で照射した。ナノギャップ金構造体(図1(a))に構造体に対して平行のレーザー光 ( $1.6 \times 10^3$

W/cm<sup>2</sup>) を0.01秒偏光照射した後、現像した基板の電子顕微鏡写真を図1(b)に示す。図より構造間のギャップにのみ光重合体が形成されていることがわかる。一方、入射光偏光を構造体に対して垂直となるように照射した場合(照射時間: 10秒)、各構造体の端に光重合体が形成された(図1(c))。構造体のプラズモン共鳴バンドが700-800nm であること、及び時間領域差分法(FDTD)による電場強度プロファイルのシミュレーション結果(図1(d), (e))から、形成された光重合体は電場増強に基づく2光子重合反応によるものであると考えられる。

同様にギャップ幅6nmのナノギャップ金構造体を作製し、ネガ型フォトレジストをスピコートした後に、光源としてハロゲンランプ(波長: 600-900nm、光強度: 210 mW/cm<sup>2</sup>、照射時間: 3時間)を照射、現像したときの構造体の電子顕微鏡写真を図2に示す。図よりギャップ領域にのみ光重合体が形成される様子がわかる。これは照射光の偏光方向に依存して重合体の形成される位置が変化したこと、ガラス基板上やナノギャップ以外の金属ナノ構造上では反応が進行していないこと、そして反応開始剤の吸収波長が400nm 以下であることから、ナノギャップ中において増強された強い近接場光 ( $|E|^2 \sim 10^4$ ) が、反応開始剤の2光

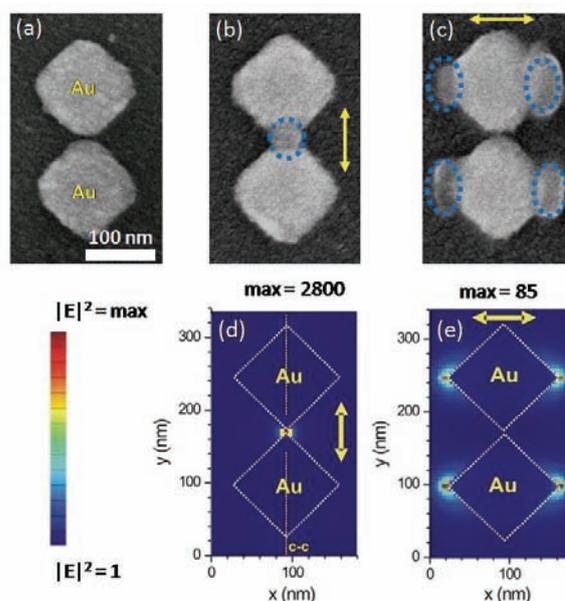


図1. (a) ナノギャップ金構造体の電子顕微鏡写真(構造間距離: 5nm)、(b, c) 構造体に対して平行及び垂直方向に偏光照射したときに形成された光重合体(点線囲み部分)、(d, e) FDTDによるシミュレーション結果(矢印は偏光方向)

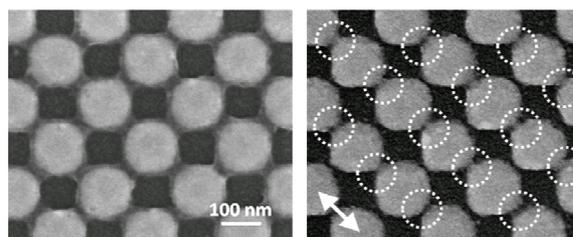


図2. ハロゲン光 ((a) 無偏光、(b) 直線偏光(矢印の方向)) 照射によって形成された光重合体の電子顕微鏡写真

子吸収を誘起し、光重合反応の進行が促進され事にに基づくと考えられる。本結果は、微弱光（インコヒーレント光）を用いても多光子吸収の誘起と局所ナノ空間選択励起が実現可能であることを実証した世界初の研究成果である。

(ii) 局在表面プラズモンの高次モードを利用した空間選択的多光子光重合反応

ガラス基板に電子線リソグラフィ／リフトオフ法により金ナノブロック構造体（構造体1つのサイズ： $55 \times 385 \times 32 \text{ nm}^3$ ）を作製した。構造体の透過吸収スペクトルを測定した結果、1750nm、1048nm、および785nmにそれぞれプラズモンの共鳴ピークが計測された。作製した金ナノブロック構造体基板上にネガ型フォトレジスト（SU-8、光吸収帯

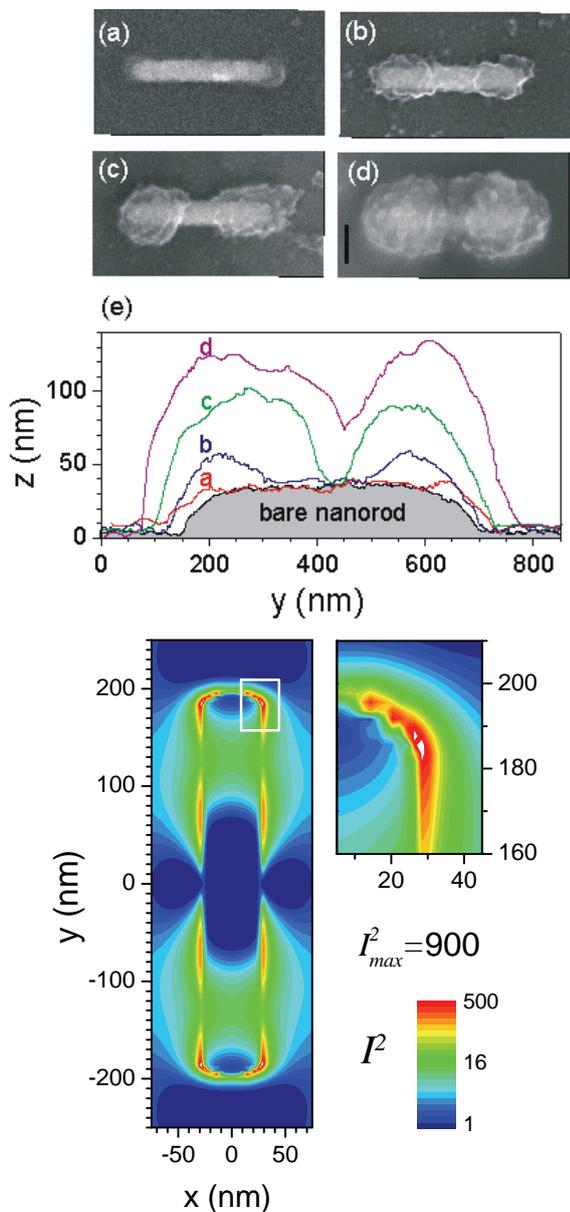


図3. 金ナノブロック構造上に形成された光重合体の電子顕微鏡像 (a) 照射レーザー光強度： $2.6 \text{ W/cm}^2$ 、照射時間：1200 s、(b)  $7.7 \text{ kW/cm}^2$ 、30 s、(c)  $7.7 \text{ kW/cm}^2$ 、120 s、(d)  $7.7 \text{ kW/cm}^2$ 、300 s、(e) 構造体の長軸方向の断面プロファイル、(f) 時間領域差分法による光電場強度分布のシミュレーション結果

400nm以下、Microchem Co.) をスピコートし、フェムト秒レーザー光 (Tsunami, Spectra Physics, 波長：800nm、繰り返し周波数：82MHz、パルス幅：120fs) を任意の光強度・時間照射した。図3(a)に、金ナノブロック構造の長軸に対して平行な偏光レーザービーム ( $2.6 \text{ kW/cm}^2$ ) を1200秒間照射した後、現像した基板の電子顕微鏡写真を示す。図より、構造体の両端部分に重合体が形成されている様子が観察された。一方、構造体の他の部分、及びガラス基板には重合体が形成されていないことから、金ナノブロック構造体の光電場強度の高い位置のみが空間選択的に光重合反応が進行したことが考察される。また、レーザー光強度を  $7.7 \text{ kW/cm}^2$  にし、照射時間を30～300秒に変化させると、構造体の両端より内側にも重合体の形成と照射時間とともに形成量の増加が観察された (図3(b)-(d))。構造体のプラズモン共鳴スペクトル、原子間力顕微鏡による構造体の断面プロファイル (図3(e))、および時間領域差分法 (FDTD) によるシミュレーション結果 (図3(f)) より、非線形重合反応の空間プロファイルは金ナノブロック構造の長軸方向に沿った高次のプラズモン共鳴モードを反映したものであることが明らかとなった。また、構造体の形状 (アスペクト比) を変化させて同様に実験を行ったところ、構造体上に形成された光重合体のパターンが変化し、その空間パターンは時間領域差分法による光電場強度分布のシミュレーション結果と良い一致を示した。これらの結果から、局在表面プラズモンの高次の共鳴モードを利用することで、空間選択的に多光子光重合反応が誘起されることを実験的に明らかにした。

### 3. 今後の研究の展望

以上の研究より、非線形光重合反応を利用することでナノギャップ金構造が示す光電場増強効果について明らかにした。また、金ナノブロック構造体の長軸方向の光照射によって誘起される高次のプラズモンモードの電場強度空間分布を非線形光重合反応によって可視化することが可能であることを示した。今後は、高い光電場増強効果を示すナノ・マイクロ構造を用いて、光子一つ一つの有するエネルギーや情報を自在に変換する場を高度に集積し、高い量子収量に加えて、高選択的な光反応を実現する化学反応場を構築すること、さらにこのような構造を用いて赤外光においても駆動する光電変換デバイスの構築を目指して研究を展開する予定である。

## 4. 資料

### 4.1 学術論文

- 1) E. Brasselet, N. Murazawa, S. Juodkakis and H. Misawa: “Statics and Dynamics of Radial Nematic Liquid-crystal Droplets Manipulated by Laser Tweezers”, *Phys. Rev. E*, 77: 041704 (2008).
- 2) O. A. Louchev, S. Juodkakis, N. Murazawa, S. Wada and H. Misawa: “Coupled Laser Molecular Trapping, Cluster Assembly, and Deposition Fed by Laser-induced Marangoni Convection”, *Opt. Exp.*, 16(8): 5673-5680 (2008).
- 3) S. I. Kudryashov, V. D. Zvorykin, A. A. Ionin, V. Mizeikis, S. Juodkakis and H. Misawa: “Acoustic Monitoring Microplasma Formation and Filamentation of Tightly Focused Femtosecond Laser Pulses in Silica Glass”, *Appl. Phys. Lett.*, 92: 101916-(1-3) (2008).
- 4) M. Takagi, T. Kitabayashi, S. Koizumi, H. Hirose, S. Kondo, M. Fujiwara, K. Ueno, M. Hiroaki, Y. Hosokawa, H. Masuhara and S. Watitani: “Correlation Between Cell Morphology and Aggrecan Gene Expression Level During Differentiation from Mesenchymal Stem Cells to Chondrocytes”, *Biotechnology Letters*, 30(7): 1189-1195 (2008).
- 5) K. Ueno, S. Juodkakis, T. Shibuya, Y. Yokota, V. Mizeikis, K. Sasaki and H. Misawa: “Nanoparticle Plasmon-Assisted Two-Photon Polymerization Induced by Incoherent Excitation Source”, *J. Am. Chem. Soc.*, 130(22): 6928-6929 (2008).
- 6) K. Ueno, Y. Yokota, S. Juodkakis, V. Mizeikis and H. Misawa: “Nano-Structured Materials in Plasmonics and Photonics”, *Current Nanoscience*, 4: 232-235 (2008).
- 7) E.G. Gamaly, S. Juodkakis, H. Misawa, B. Luther-Davies, A. V. Rode, L. Hallo, P. Nicolai, and V. T. Tikhonchuk: “Formation of Nano-voids in Transparent Dielectrics by Femtosecond Lasers”, *Current Applied Physics*, 8(3-4): 412-415 (2008).
- 8) E. G. Gamaly, S. Juodkakis, V. Mizeikis, H. Misawa, A. V. Rode, W. Z. Krolikowski, and K. Kitamura: “Three-dimensional Write-read-erase Memory Bits by Femtosecond Laser Pulses in Photorefractive LiNbO<sub>3</sub> Crystals”, *Current Applied Physics*, 8(3-4): 416-419 (2008).
- 9) K. K. Seet, V. Mizeikis, K. Kannari, S. Juodkakis, H. Misawa, N. N. Tétreault and S. John: “Templating and Replication of Spiral Photonic Crystals for Silicon Photonics”, *IEEE J. Quantum Electron.*, 14(4): 1064-1073 (2008).
- 10) K. Hatanaka, T. Ida, H. Ono, S. Matsushima, H. Fukumura, S. Juodkakis and H. Misawa: “Chirp Effect in Hard X-ray Generation from Liquid Target When Irradiated by Femtosecond Pulses”, *Opt. Exp.*, 16(17): 12650-12657 (2008).
- 11) Y. Nishijima, K. Ueno, S. Juodkakis, V. Mizeikis, H. Misawa, M. Maeda and M. Minaki: “Tunable Single-mode Photonic Lasing from Zirconia Inverse Opal Photonic Crystals”, *Opt. Exp.*, 16(18): 13676-13684 (2008).
- 12) S. Juodkakis, V. Mizeikis, M. Sudzius, H. Misawa, K. Kitamura, S. Takekawa, E. G. Gamaly, W. Z. Krolikowski, and A.V. Rode: “Laser Induced Memory Bits in Photorefractive LiNbO<sub>3</sub> and LiTaO<sub>3</sub>”, *Appl. Phys. A*, 93: 129-133 (2008).
- 13) S. Juodkakis and H. Misawa: “Laser Processing of Sapphire by Strongly Focused Femtosecond Pulses”, *Appl. Phys. A*, 93: 857-861 (2008).
- 14) K. Sun, N. Suzuki, L. Zheyu, R. Araki, K. Ueno, S. Juodkakis, M. Abe, S. Noji and H. Misawa: “Electrophoretic Chip for Fractionation of Selective DNA Fragment”, *Electrophoresis*, 29(19): 3959-3963 (2008).
- 15) K. Hatanaka, K. Yomogihata, H. Ono, K. Nagafuchi, H. Fukumura, M. Fukusima, T. Hashimoto, S. Juodkakis, H. Misawa: “Hard X-ray Generation Using Femtosecond Irradiation of PbO Glass”, *Journal of non-crystalline solids*, 534(52-54): 5485-5490 (2008).
- 16) S. Juodkakis, Y. Nishi, H. Misawa: “Femtosecond Laser-assisted Formation of Channels in Sapphire Using KOH Solution”, *Physica Solidi-Rapid Research Letters*, 2(6): 275-277 (2008).
- 17) H. Nabika, N. Iijima, B. Takimoto, K. Ueno, H. Misawa, K. Murakoshi: “Segregation of Molecules in Lipid Bilayer Spreading through Metal Nanogates”, *Anal. Chem.*, 81(2): 699-704 (2009).
- 18) N. Murazawa, K. Ueno, V. Mizeikis, S. Juodkakis, and H. Misawa: “Spatially Selective Nonlinear Photopolymerization Induced by the Near-Field of Surface Plasmons Localized on Rectangular Gold Nanorods”, *J. Phys. Chem. C*, 113(4): 1147-1149 (2009).
- 19) Y. Nishijima, K. Ueno, S. Juodkakis, V. Mizeikis, H. Fujiwara, K. Sasaki, and H. Misawa: “Lasing with Well-defined Cavity Modes in Dye-infiltrated Silica Inverse Opals”, *Opt. Exp.*, 17(4): 2976-2983 (2009).
- 20) H. Iwase, S. Kokubo, S. Juodkakis, and H. Misawa: “Suppression of Ripples on Ablated Ni Surface via a Polarization Grating”, *Opt. Exp.*, 17(6): 4388-4396 (2009).

### 4.2 総説・解説・評論等

- 1) 三澤弘明:「レーザでウエハ切断」、レーザ加工学会誌、15 : 126-127 (2008).
- 2) 三澤弘明:「光の時代における光化学」、光化学、39 :

65 (2008).

- 3) 三澤弘明:「フェムト秒レーザによる微細加工技術」、電子材料、48: 80-87 (2009).

#### 4.3 国際会議議事録等に掲載された論文

- 1) S. Juodkazis, V. Mizeikis, S. Matsuo, K. Ueno, and H. Misawa: “Three-Dimensional Micro- and Nano-Structuring of Materials by Tightly Focused Laser Radiation”, Bull. Chem. Soc. Jpn., 81: 411-448 (2008).

#### 4.4 著書

- 1) S. Juodkazis, V. Mizeikis, and H. Misawa: “Three-Dimensional Structuring of Resists and Resins by Direct Laser Writing and Holographic Recording”, Advances in Polymer Science 213 -Photoresponsive Polymers I-, ed. by S.R. Marder and K.-S. Lee, Springer-Verlag: 157-206 (2008).

#### 4.6 特許

・国内特許

- 1) 上野貢生、三澤弘明:特願2008-192763、フォトレジストパターンの作製方法、2008年7月25日。

#### 4.7 講演

##### i) 学会

- 1) Hiroaki Misawa: “Photochemistry on Nano-Engineered Gold Particles”, XXII IUPAC Symposium on Photochemistry 2008, Gothenburg, Sweden (2008-07).
- 2) Y. Nishijima, K. Ueno, S. Juodkazis, V. Mizeikis, H. Misawa, M. Maeda, M. Minaki: “Studies of lasing from zirconia inverse opal photonic crystals doped by Rhodamine dyes”, XXII IUPAC Symposium on Photochemistry 2008, Gothenburg, Sweden (2008-07).
- 3) Y. Yokota, K. Ueno, V. Mizeikis, S. Juodkazis, H. Misawa: “Study of surface-enhanced Raman scattering assisted by collective plasmonic modes of closely-spaced gold nanoblocks”, XXII IUPAC Symposium on Photochemistry 2008, Gothenburg, Sweden (2008-07).
- 4) S. Takabatake, K. Ueno, Y. Nishijima, V. Mizeikis, S. Juodkazis, H. Misawa: “Development of nanolithography techniques utilized non-linear excitation process enhanced on gold nano gap structure”, XXII IUPAC Symposium on Photochemistry 2008, Gothenburg, Sweden (2008-07).
- 5) N. Murazawa, K. Ueno, V. Mizeikis, S. Juodkazis, H. Misawa: “Non-linear photopolymerization induced by localized near-field on gold nanoblocks”, XXII IUPAC Symposium on Photochemistry 2008, Gothenburg, Sweden (2008-07).
- 6) S. Juodkazis: “Femtosecond Pulses - Tool of 3D Structuring of Materials” (invited), Int. Conf. on

Photo-Excited Processes and Applications (ICPEPA), Royton Hotel, Sapporo (2008-09).

- 7) 三澤弘明:「量子ビームによる微細構造形成と新機能発現」(招待講演)、第57回高分子討論会、大阪市立大学、大阪 (2008-09).
- 8) 井村考平、岡本裕巳、上野貢生、三澤弘明:「円形金ナノプレートの近接場分光特性」、第69回応用物理学会学会術講演会、中部大学、愛知 (2008-09).
- 9) 高島聡章、上野貢生、西島喜明、ビガンタス ミゼイキス、サウリウス ヨードカジス、三澤弘明:「ナノ光リソグラフィによるレジストナノパターンの形成」、第69回応用物理学会学会術講演会、中部大学、愛知 (2008-09).
- 10) 高島聡章、上野貢生、西島喜明、V. Mizeikis, S. Juodkazis、三澤弘明:「プラズモン増強を利用した非線形光化学反応によるフォトレジストのナノパターンニング」、2008年光化学討論会、大阪府立大学、大阪 (2008-09).
- 11) 宮本博徹、上野貢生、大西大、坂口拓生、麦野遥一、V. Mizeikis, S. Juodkazis、三澤弘明:「金ナノ円周構造の光学特性と光増強効果」、2008年光化学討論会、大阪府立大学、大阪 (2008-09).
- 12) 池谷伸太郎、上野貢生、横田幸恵、西島喜明、V. Mizeikis、S. Juodkazis、三澤弘明:「ナノギャップ金構造の光学特性 -アップコンバージョンシステムの構築に向けて-」、2008年光化学討論会、大阪府立大学、大阪 (2008-09).
- 13) 村澤尚樹、上野貢生、V. Mizeikis, S. Juodkazis、三澤弘明:「局在プラズモンの高次モードを用いた空間選択的多光子光重合反応」、2008年光化学討論会、大阪府立大学、大阪 (2008-09).
- 14) 井村考平、岡本裕巳、上野貢生、三澤弘明:「金ナノディスクの近接場顕微分光」、第2回分子科学討論会2008、福岡国際会議場、福岡 (2008-09).
- 15) 岡本裕巳、井村考平、キム スイル、上野貢生、三澤弘明:「金ナノヴォイド構造の近接場顕微分光」、第2回分子科学討論会2008、福岡国際会議場、福岡 (2008-09).
- 16) S. Juodkazis: “Three-Dimensional Femtosecond Laser Fabrication”(invited), PRiME (Pacific Rim Meeting on electrochemical and solid-state science), Hilton Hawaiian Village Hotel, Honolulu, USA (2008-10).
- 17) Hiroaki Misawa: “Photochemistry on Nano-Engineered Gold Structures” (Invited), 5<sup>th</sup> Asian Photochemistry Conference (5<sup>th</sup> APC), Jihua Convention Center, Beijing, China (2008-11).
- 18) 三澤弘明、上野貢生、高島聡章:「光アンテナを利用したレジスト材料のナノ加工」、第27回固体・表面光化学討論会、徳島大学、徳島 (2008-11).
- 19) S. Juodkazis: “Monitoring of microplasma formation and filamentation of tightly focused femtosecond laser pulses in dielectrics” (invited), SPIE Photonics West 2009, San Jose

- McEnergy Convention Center, San Jose, USA (2009.01).
- 20) 高島聡章、上野貢生、西島喜明、V. Mizeikis, S. Juodkazis, 三澤弘明:「プラズモン増強効果を利用したナノ空間における光化学反応」、日本化学会第89春季年会、日本大学船橋キャンパス、千葉 (2009-03).
  - 21) 横田幸恵、上野貢生、V. Mizeikis, S. Juodkazis, 三澤弘明:「ナノギャップ金構造による増強ラマン効果」、日本化学会第89春季年会、日本大学船橋キャンパス、千葉 (2009-03).
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) 三澤弘明:「フェムト秒レーザープロセスによるフォトニック結晶の作製」(招待講演)、電子情報通信学会集積光デバイス技術時限研究専門委員会第3回研究会、登別温泉ホテルまほろば、登別 (2008-05).
  - 2) Hiroaki Misawa: “Nano-structured Materials in Photonics and Plasmonics” (Invited), 4<sup>th</sup> SFB 513 Workshop, University of Konstanz, Germany (2008-05).
  - 3) S. Juodkazis: “Three-dimensional nano-/micro fabrication by femtosecond laser pulses in dielectric materials” (invited), The 7th symposium SiO<sub>2</sub>, advanced dielectrics and related devices, the Centre de Congrès in Saint-Etienne, France (2008-06).
  - 4) Hiroaki Misawa: “Non-linear Photochemical Reactions Induced in the Near-field Region of Sub-wavelength Optical Antennae under Incoherent Excitation” (invited), The 2nd Japan-Taiwan Joint Symposium on Organized Nanomaterials and Nanostructures Related to Photoscience, Kyoto University Clock Tower Centennial Hall, Kyoto (2008-11).
  - 5) 三澤弘明:「光ナノアンテナの構造設計とSERSへの展開」(招待講演)、日本分光学会 高感度表面・界面分光部会第1回シンポジウム、産業技術総合研究所つくばセンター、つくば (2008-12).
  - 6) 三澤弘明、上野貢生、サウリウス ヨードカジス: 「金属ナノ構造による光の捕捉・局在・増幅」(招待講演)、SORSTシンポジウム(2) フレキシブルデバイス/マテリアルの未来像、コクヨホール、東京 (2009-02).
  - 7) S. Juodkazis: “Three-Dimensional Structuring of Materials via Light-Field Localization”(invited), First International Symposium on Atomically Controlled Fabrication Technology: Surface and Thin Film Processing, Icho-Kaikan, Osaka University, Suita, Osaka (2009-02).
  - 8) Hiroaki Misawa: “Photochemistry on Nano-Engineered Au Structures” (Invited), The Second International Symposium on Interdisciplinary Materials Science (ISIMS-2009), Tsukuba International Congress Center, Tsukuba (2009-03).
- iii) コロキウム・セミナー等・その他
- 1) Hiroaki Misawa: “Non-Linear Photochemical Reactions on Nano-Engineered Gold Nanoparticles”(Invited), Asian

Academic Seminar 2009, Kanagawa Science Park Hall, Kawasaki (2009-03).

#### 4.8 シンポジウムの開催 (組織者名、部門名、シンポジウム名、参加人数、開催場所、開催期間)

- 1) 三澤弘明、益田秀樹、山田淳、村越敬:「文部科学省科学研究費補助金 特定領域研究 『光-分子強結合反応場の創成』 第3回シンポジウム」、北海道大学、札幌 (2008-06).
- 2) 三澤弘明、益田秀樹、山田淳、村越敬:「化学者のためのプラズモン講座-ナノ・マイクロ構造を利用した効率的な光エネルギー変換-」、名古屋大学、名古屋 (2009-01).
- 3) 三澤弘明、益田秀樹、山田淳、村越敬:「文部科学省科学研究費補助金 特定領域研究 『光-分子強結合反応場の創成』 第4回公開シンポジウム」、名古屋大学、名古屋 (2009-01).
- 4) 三澤弘明、益田秀樹、山田淳、村越敬: 日本化学会第89春季年会 特別企画「ナノ・マイクロ構造体による増強光エネルギー変換」、日大西船橋キャンパス、船橋 (2009-03).

#### 4.9 共同研究

##### c. 民間等との共同研究

- 1) 三澤弘明、上野貢生 (ローム):「局在プラズモンを用いた受光素子」、2006~2009年度、テラヘルツと呼ばれる帯域の電磁波を検出する簡便なデバイスを構築するために、局在プラズモン技術を用いて新規の検出素子を研究開発する。
- 2) 三澤弘明、上野貢生 (三洋化成工業):「微粒子配列制御技術に関する研究」、2005~2008年度、単分散高分子微粒子を用いて新規な微粒子組織化制御技術を開発する。その技術を用いたデバイスの開発を進める。
- 3) 三澤弘明 (北海道立工業試験場):「ナノインプリント法による高機能微細構造の創製と応用に関する研究」、2008~2009年度、ナノインプリント法による微細加工技術を確立し、応用製品を開発する。
- 4) 三澤弘明、上野貢生、ピガンタス・ミゼイキス (日立化成工業):「高屈折率感光性樹脂の二光子吸収リソグラフィによるフォトニック結晶の作成と評価」、2008年度、高屈折率感光性樹脂を用いることによりフォトニックバンドギャップの大きいフォトニック結晶を作製する。
- 5) 三澤弘明、上野貢生 (松下電器産業):「相変化記録の微細記録限界に関する研究」、2008年度、局在プラズモンを利用し、相変化材料の微細記録限界を検証する。
- 6) 三澤弘明、ヨードカジス・サウリウス、上野貢生 (エア・ウォーター):「レーザー技術を活用した、結晶改質技術の検討」、2008~2009年度、レーザー技術に応用し化学物半導体 (SiC) の表面結晶構造の改質効果の有無を確認すると共に、シリコンを出発原料としたモノ

シラン生成の可能性を確認する。

#### d. 受託研究

- 1) 三澤弘明、上野貢生、孫 凱、李哲煜：先端計測分析技術・機器開発事業（科学技術振興機構）、「単一細胞内遺伝子発現プロファイル解析」、2008年度～2009年度：DNAなどの生体分子に関して1分子レベルでの分取を可能にするマイクロチップを開発する。

### 4.10 予算獲得状況

#### a. 科学研究費補助金

- 1) 三澤弘明、特定領域研究、光-分子強結合反応場の創成、2007～2010年度
- 2) 三澤弘明、特定領域研究、金属ナノ構造を用いた光局在場の創製と光化学反応への応用、2007～2010年度
- 3) ヨードカジス・サウリウス、基盤研究 B 一般、衝撃波によるナノ構造物質の形成、2007～2010年度
- 4) 村澤尚樹、若手研究 スタートアップ、積層型金属ナノ構造体の作製とその光学特性評価、2008～2009年度
- 5) 西島喜明、特別研究員奨励費、フォトニック結晶を用いた新規光化学デバイスの作製およびその評価、2008～2009年度

#### d. 奨学寄付金

- 1) 三澤弘明（財団法人新生資源協会）：「集光フェムト秒レーザーパルスによるサファイアの3次元微細加工」、2007～2008年度（1,600千円）、近赤外波長域のフェムト秒レーザーパルスをサファイア基板中に集光照射すると、多光子吸収により焦点付近にのみアモルファス相の形成が誘起される。このアモルファス相の化学的性質は、結晶相とは著しく異なることが示されている。本研究においては、形成したアモルファス相の短周期・長周期構造、およびその未解明な物性を解明することを目的とする。

#### e. COE関係（研究担当者、機関名、研究題目、研究期間、研究内容）

- 1) 三澤弘明（北海道大学）：「局在表面プラズモン共鳴に基づく光電場増強を利用した光-エネルギー変換素子の構築」、2007年度～2011年度、半導体微細加工技術によってナノギャップ金属構造体を作製し、種々の非線形光学効果の増強を利用した顕微分光計測法や非線形光重合反応を用いることにより、ナノギャップ金属構造体に局在する光電場増強効果を解明するとともに、この原理を利用した高効率の光-エネルギー変換素子を構築することを目的として研究を行う。

### 4.12 社会教育活動

#### a. 公的機関の委員

- 1) 三澤弘明：文部科学省 科学技術政策研究所 科学技術動向研究センター 専門調査委員（2006年4月1日～2010年3月31日）
- 2) 三澤弘明：文部科学省 ナノテクノロジー・ネットワー

ク運営委員会 委員（2008年7月1日～2009年3月31日）

- 3) 三澤弘明：文部科学省 科学技術・学術審議会専門委員（2007年12月14日～2009年1月31日）
- 4) 三澤弘明：電気通信大学共同研究員（2008年4月1日～2010年3月31日）
- 5) 三澤弘明：科学技術振興機構 戦略的創造研究推進事業 研究領域「光の利用と物質材料・生命機能」領域アドバイザー（2008年5月9日～2010年5月30日）
- 6) 三澤弘明：文部科学省「元素戦略プロジェクト」審査委員会 外部専門家（2008年7月1日～2009年3月31日）
- 7) 日本学術振興会 先端科学(FoS)シンポジウム事業委員会 専門委員（2008年8月1日～2009年3月31日）
- 8) 三澤弘明：日本学術振興会 科学研究費委員会専門委員（2008年12月1日～2009年11月30日）
- 9) 三澤弘明：NEDO ピアレビュー（2009年3月1日～2011年3月31日）

#### b. 国内外の学会の役職

- 1) 三澤弘明：Associate Editor, TNANO (IEEE Transactions on Nanotechnology) (2007年3月23日～2009年11月30日)
- 2) 三澤弘明：電子情報通信学会 超高速光エレクトロニクス研究専門委員会 専門委員（2007年3月12日～2008年12月31日）
- 3) 三澤弘明：日本化学会北海道支部 幹事（2008年3月1日～2009年2月28日）
- 4) 三澤弘明：ACS Applied Material & Interfaces, Editorial Advisory Board (2009年1月1日～現在)

#### c. 併任・兼業

- 1) 三澤弘明：浙江大学客員教授（2005年11月1日～現在）
- 2) 三澤弘明：株式会社レーザーシステム 取締役（2004年6月1日～現在）
- 3) 三澤弘明：徳島大学産学連携関連分野客員教授（2006年11月1日～現在）
- 4) 三澤弘明：西安交通大学客員教授（2009年1月3日～現在）

#### e. 新聞掲載記事

- 1) 三澤弘明：2008.7.11、日経産業新聞（日刊）、「危険物の探知容易に 爆薬や麻薬 テラヘルツ波利用 北大、増強素子：ナノテクノロジーを駆使し、靴の中の危険物を短時間で検出可能な、テラヘルツ波を集め強める素子を開発した。これまでのテラヘルツ波は信号が微弱で靴内の探知に1時間程度かかっていたが、今回開発された素子で信号を増強すれば数百分の一で検出可能となる。」

#### f. 外国人研究者の招聘（氏名、国名、期間）

- 1) Sajeev John、カナダ、2008年8月27日～30日
- 2) Brasselet Etienne、フランス、2008年7月10日～8月4日、12月7日～19日、3月9日～27日
- 3) Vaitkus Juozas、リトアニア、2008年10月19日～25日
- 4) Staliuna Kestutis、イタリア、2009年2月5日～13日
- 5) Paul Leiderer、ドイツ、2009年3月17日～18日

**g. 北大での担当授業科目（対象、講義名、担当者、期間）**

- 1) 全学教育、基礎化学 I、三澤弘明、2008年4月1日～2008年9月30日
- 2) 全学教育、Conversational English、ヨードカジス・サウリウス、2008年10月1日～2009年3月31日
- 3) 全学教育、環境と人間：光・バイオ・分子で拓くナノテクノロジー「光で物質を操る」、三澤弘明、2008年5月9日
- 4) 工学研究科、バイオオプティクス特論、三澤弘明、2008年10月1日～2009年3月31日
- 5) 工学研究科、バイオオプティクス特論、ヨードカジス・サウリウス、2008年10月1日～2009年3月31日
- 6) 工学部、電気回路、三澤弘明、2008年10月1日～2009年3月31日
- 7) 工学部、情報エレクトロニクス演習（電気回路）、村澤尚樹、2008年10月1日～2009年3月31日
- 8) 工学部、科学技術英語演習、ヨードカジス・サウリウス、2008年4月1日～2008年9月30日
- 9) 工学部、生体工学概論「バイオセンシング」、三澤弘明、2008年12月17日

**i. ポスドク・客員研究員など**

- 1) 孫 凱（科学技術振興機構 先端計測分析技術・機器開発事業「単一細胞内遺伝子発現プロファイル解析」・博士研究員）
- 2) 村澤尚樹（北海道大学グローバルCOEプログラム「触媒が先導する物質科学イノベーション」・博士研究員、～2008.6.15まで）
- 3) ミゼイクス・ビガンタス（文部科学省 科学研究費補助金特定領域研究「金属ナノ構造を用いた光局在場の創製と光化学反応への応用」・博士研究員、～2008.12.31まで）
- 4) 李 哲煜（科学技術振興機構 先端計測分析技術・機器開発事業「単一細胞内遺伝子発現プロファイル解析」・学術研究員）
- 5) 呉 伯涛（文部科学省 科学研究費補助金特定領域研究「金属ナノ構造を用いた光局在場の創製と光化学反応への応用」・博士研究員、2008.10.16～）
- 6) 周 時鳳（新生資源協会財団助成金「集光フェムト秒レーザーパルスによるサファイアの3次元微細加工」・博士研究員、2008.12.15～）
- 7) 孫 泉（文部科学省 科学研究費補助金特定領域研究「金属ナノ構造を用いた光局在場の創製と光化学反応への応用」・博士研究員、2009.1.1～）

**j. 修士学位及び博士学位の取得状況**

・博士課程（1名）

- 1) 西島喜明：Spectroscopic Studies of Opal and Inverse Opal Crystals（微粒子集積型微小構造の光学的性質に関する研究）（2009年3月）

## 寄附研究部門

### 研究目的

バイオイメージング技術に関する更なる技術改良、或いは新技術開発およびその生物学研究への応用を推進し、本学と顕微観察技術関連企業との連携強化ならびに本学における教育研究の豊富化、活性化や国際的な交流を目的としている。



## ニコンバイオイメージングセンター

教授 永井健治 (東大院、博士(医学)、2005.10～)

教授 上田哲男 (北大院、博士(薬学)、2005.10～)

特任准教授 堀川一樹

(京大院、博士(理学)、2006.12～)

特任助教 齊藤健太

(北大院、博士(理学)、2005.10～)

技術職員 小林健太郎

(北大院、博士(理学)、2005.10～)

### 1. 研究目標

近年、蛍光バイオイメージング技術の需要が増大し、その需要に呼応して遺伝子導入技術、蛍光タンパク質をはじめとする分子マーキング技術や機能指示薬作成技術が向上した。また、顕微鏡やカメラなどの機器の性能も飛躍的に向上してきている。しかしながら、これらの最新技術・機器を用いれば最新のデータがすぐさま得られる訳ではないところにバイオイメージング技術の難しさがある。

本研究部門は、北海道大学のみならず日本全国の研究者に最新の生物顕微鏡を利用できる環境を提供するための施設として(株)ニコンインステックの協力により設立され、多数の協賛企業の援助を受けて活動している。研究者と企業の双方と緊密な連絡を取り合うことによってニーズとシーズを結びつけ、利用者の要望を速やかに反映させたバイオイメージングに関する更なる技術改良や新技術開発、およびその生物学研究への応用を推進し、そして本学と顕微観察技術関連企業との連携強化ならびに本学における教育研究の量と質の充実や活性化、国際的な交流を目指している。

以上の目的を達成するため、以下に掲げる項目に沿った活動を行っている。

1. 最先端の顕微鏡とイメージング関連機器を設置し、基礎研究の環境を提供する。
2. 顕微鏡に馴染みのない研究者からハイエンドユーザーまで、さまざまなレベルに合わせて顕微観察法のトレーニングコースを行う。
3. イメージング操作について専属スタッフが指導を行う。
4. 顕微鏡ユーザーのアイデアを反映した新型顕微技術の開発を行う。

### 2. 研究成果

#### (a) 利用実績 (平成20年4月～平成21年3月)

平成20年度の延べ利用人数・利用時間は、317人・2256時間にのぼる。研究者の所属の内訳は、北海道大学学内では所内はもちろんのこと、低温科学研究所・創成研究機構・医学部・薬学部・生命科学研究院・情報科学研究科などが挙げられる(図1)。学外では、札幌医科大学・九州工業大

学の研究者の利用があった。

開設当初の一ヶ月の総利用人数・時間は20人・100時間程度にとどまっていたものの、研究者間での広がりやポスターによって学内外へ活動をアピールすることにより、年間利用人数・利用時間も増えている(図2)。平成20年度は研究所移転のため一ヶ月程度使用不可能な時期があったとはいえ、月間総利用は最大で40人・400時間へととなった。また、当センターでの観察による研究成果として、平成20年度では利用者による3報の論文が学術雑誌に掲載された。

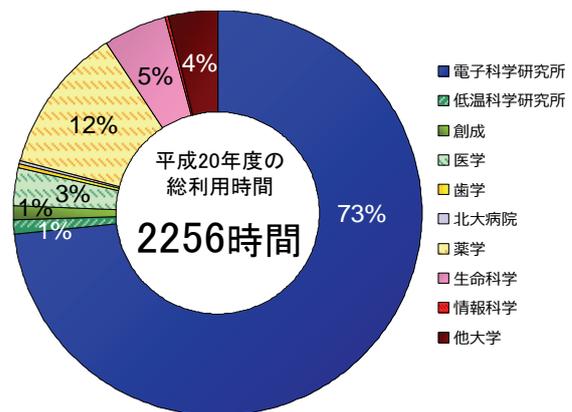


図1. 平成20年度イメージングセンター利用者の主な所属内訳

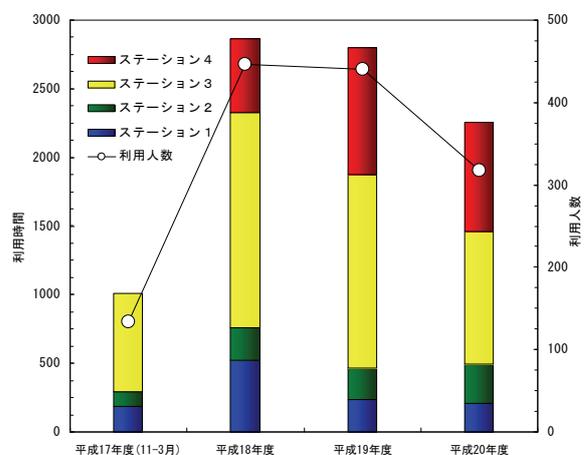


図2. 年度別イメージングセンター利用状況

#### (b) バイオイメージング技術と知識の普及

利用を希望する研究者には機器の利用方法の指導を行っており、初心者にはイメージングや蛍光色素に関する相談も受け付けている。これらを通じて顕微鏡やその関連技術、細胞生物学に関する知識や技術の普及に貢献している。

特に平成20年11月に北海道大学と大阪大学のCOEが開催して20名程度が参加した細胞生物学ワークショップでは、一週間にわたって人員、機材、観察試料提供など全面的に協力を行った。

### (c) 顕微鏡技術の開発

マイクロレンズ付きニポウディスク走査方式の共焦点スキヤユニット(CSU10, CSU22, 横河電機)は、多点同時走査により高速観察とサンプルへの光毒性軽減を可能とする。当センターではCSUシリーズをより安価に利用するために、CSUの光源として従来用いられてきたレーザーに変えて水銀ランプを用いた画像取得を試みた。レーザーと水銀アークランプを光源とした場合で比較したところ、空間分解能には差がなかった。照射強度の均一性に関しては、レーザーを光源とした場合よりも水銀アークランプを光源とした場合の方が高かった。また、多色蛍光画像を取得する場合において、レーザーであれば基本的には蛍光色素の数だけ光源が必要となるが、水銀ランプであれば蛍光波長選択フィルタにより波長を自由に選択できる。このように安価で拡張性の高いシステムが構築でき、バイオイメージング分野における今後の利用が期待される。

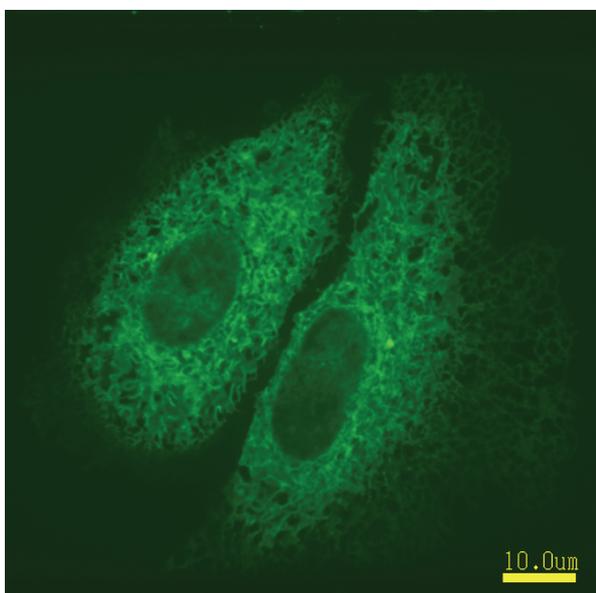


図3. 水銀アークランプを利用したCSU共焦点システムで観察したHeLa細胞小胞体のイメージング。

## 3. 今後の研究の展望

引き続き、蛍光バイオイメージング機材の提供およびイメージングの指導・トレーニングを行う。また、協賛企業と協力して新型顕微鏡の開発を行う。

## 4. 資料

### 4.1 学術論文等

- 1) K. Saito, K. Kobayashi, T. Tani and T. Nagai : “A mercury arc lamp-based multi-color confocal real time imaging system for cellular structure and function”, Cell Struct. and Funct., 33(1) : 131-141 (2008)

### 4.7 講演

#### a. 招待講演

##### i) 学会

- 1) T. Nagai, W. Tomosugi, T. Matsuda, I. Kotera and K. Saito : “Development of a fluorescent protein with deep blue color”, Focus On Microscopy 2008, 淡路 (2008-04)

#### b. 一般講演

##### i) 学会

- 1) 齊藤健太、小林健太郎、谷知己、永井健治 : 「大口径ファイバー白色光源を用いた高速共焦点顕微鏡の開発と評価」、平成20年度日本顕微鏡学会北海道支部学術講演会、北海道札幌市 北海道大学 歯学部講堂 (2008-12)
- 2) 齊藤健太、永井健治 : “Single live cell and plant  $Ca^{2+}$  imaging with BRET-based probes”, 日本生物物理学会第46回年会, 福岡 (2008-12)
- 3) 谷知己、齊藤健太、永井健治 : “Trapping single molecules of GFP-tagged nerve growth factor receptor via ligands immobilized on a solid surface”, 日本生物物理学会第46回年会、福岡 (2008-12)

##### ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) K. Saito, K. Kobayashi, T. Tani and T. Nagai : “A mercury arc lamp-based multi-color confocal real time imaging for cellular structure and function”, Hokkaido University-Seoul National University Joint Symposium 分科会「発光蛍光法による生体イメージング」、北海道札幌市 北海道大学 創成科学研究機構 5F (2008-11)
- 2) K. Saito and T. Nagai : “Single live cell and plant  $Ca^{2+}$  imaging with bioluminescence resonance energy transfer (BRET)”, The 10th RIES-Hokudai International Symposium on 綾 [aya], 北海道札幌市 北海道大学 学術交流会館 (2008-12)
- 3) 松田知己、堀川一樹、永井健治 : 「生体組織内の1細胞レベルでの機能イメージングを可能にする光活性化型生理機能プローブ」、平成20年度 北大細胞生物研究会、北海道大学理学部7号館 (2009-03)

### 4.8 シンポジウムの開催 (組織者名、シンポジウム名、参加人数、開催場所、開催期間)

#### ・一般のシンポジウム

- 1) 永井健治、金城政孝、堀川一樹、齊藤健太 : 「第12回細胞生物学ワークショップ」、20名、2008年11月9日～2008年11月14日、北海道大学 電子科学研究所 (札幌市)

#### 4.9 共同研究

##### d. 受託研究

- 1) 堀川一樹、JST さきがけ、相互作用に支配される細胞集団の協調的振る舞い、2006年10月-2010年3月

#### 4.10 予算獲得状況

##### a. 科学研究費補助金 (研究代表者、分類名、研究課題、期間)

- 1) 堀川一樹、若手研究スタートアップ、エンハンサートランプ法とライブイメージングを軸とした聴覚システム発生機構の研究、2006年-2008年

## Ⅱ. 予 算



## II-1. 研究成果公表に関する各種の統計表

### 1. 学術論文

部門等		年	平成17年	平成18年	平成19年	平成20年
電子材料 物性部門	欧 文		40 (36)	42 (27)	30 (25)	29 (29)
	邦 文		0	1	0	2 (2)
電子機能 素子部門	欧 文		24 (24)	28 (28)	20 (20)	19 (19)
	邦 文		0	0	1 (1)	3 (3)
電子計測 制御部門	欧 文		22 (20)	12 (12)	23 (21)	14 (14)
	邦 文		4 (2)	4 (4)	1 (1)	3 (2)
電子情報 処理部門※	欧 文		38 (38)	45 (43)	42 (40)	56 (54)
	邦 文		3 (1)	1 (1)	2 (2)	4 (1)
ナノテクノロジー 研究センター	欧 文		35 (35)	30 (28)	16 (15)	39 (38)
	邦 文		1	6	3 (1)	2 (2)
計	欧 文		155 (149)	155 (136)	117 (108)	123 (121)
	邦 文		7 (3)	12 (5)	7 (5)	12 (8)

( )内の数はレフェリー付き。  
※客員研究分野は除外した。

### 2. 総覧、解説、評論等及び著書数

部門等		年	平成17年	平成18年	平成19年	平成20年
電子材料 物性部門	総説等		3	7	4	4
	著 書		2 (1)	1	1	1
電子機能 素子部門	総説等		5	8	3	4 (1)
	著 書		3	2	6	1
電子計測 制御部門	総説等		4	4	14 (1)	5
	著 書		3 (1)	2 (1)	4	0
電子情報 処理部門※	総説等		19	11	14	16 (1)
	著 書		4	7	3	6 (2)
ナノテクノロジー 研究センター	総説等		13 (2)	20	5 (1)	8 (3)
	著 書		10	5 (2)	8	3 (1)
計	総説等		44 (2)	48	37 (2)	31 (4)
	著 書		22 (2)	17 (3)	19	9 (2)

( )内の数は欧文  
※客員研究分野は除外した。  
※共著に関しては、出版物の数で表示（出版物の数×研究者ではない）。したがって「合計」が表から算出したものと一致しない場合あり。  
※年（年度）をまたがっている場合、それぞれの年（年度）でカウントしている。

### 3. 国際学会・国内学会発表件数

部門等		年	平成17年	平成18年	平成19年	平成20年
電子材料 物性部門	国際学会		35 (5)	24 (8)	32 (9)	43 (12)
	国内学会		65 (4)	50 (1)	60 (5)	45 (1)
電子機能 素子部門	国際学会		33 (7)	28 (5)	18 (3)	25 (6)
	国内学会		50 (12)	34 (3)	40 (4)	24 (1)
電子計測 制御部門	国際学会		36 (6)	19 (6)	26 (7)	19 (9)
	国内学会		34 (7)	38 (6)	55 (10)	35 (5)
電子情報 処理部門※	国際学会		27 (7)	21 (6)	17 (7)	16 (3)
	国内学会		57 (6)	30 (4)	38 (9)	56 (10)
ナノテクノロジー 研究センター	国際学会		49 (5)	35 (2)	13 (3)	34 (5)
	国内学会		61 (6)	83 (5)	30 (1)	57 (5)
計	国際学会		173 (30)	123 (27)	94 (25)	105 (28)
	国内学会		249 (35)	226 (19)	197 (26)	169 (20)

国際学会・国内学会の（ ）内の数は招待講演数

※客員研究分野は除外した（研究所全体の統計の場合）。

※共著に関しては、講演数で表示（講演数×研究者ではない）。したがって「合計」が表から算出したものと一致しない場合あり。

※年（年度）をまたがっている場合、それぞれの年（年度）でカウントしている。

## II-2. 予算

### II-2-1) 全体の予算

(単位：千円)

年 度	平成17年度	平成18年度	平成19年度	平成20年度
業 務 費	197,656	173,648	169,473	169,867
科学研究費補助金	363,000(62)	292,610(62)	279,947(59)	329,741(72)
その他の補助金	4,528(3)	15,400(2)	4,357(4)	20,460(7)
寄 附 金	17,700(11)	38,346(27)	42,856(16)	32,012(12)
受託事業等経費	223,768(46)	248,840(44)	226,609(32)	427,412(34)
(受託研究費)	140,868(19)	145,018(24)	184,803(20)	393,081(20)
(共同研究費)	82,900(27)	103,822(20)	41,806(12)	34,331(14)
合 計	806,652	768,844(135)	723,242(111)	979,492(125)

( ) 内の数は受入件数

### II-2-2) 外部からの研究費受入状況

#### 部門別の受入状況

(単位：千円)

部 門 等	研 究 費	平成19年度	平成20年度
電子材料物性部門	科学研究費補助金	87,560(16)	121,890(19)
	その他の補助金	1,200(1)	3,200(2)
	寄 附 金 I	1,999(2)	2,200(2)
	寄 附 金 II	8,500(1)	0
	受託事業等経費	61,661(7)	111,577(7)
	(受託研究費)	56,671(5)	106,913(5)
	(共同研究費)	4,990(2)	4,664(2)
小 計	160,920(27)	238,867(30)	
電子機能素子部門	科学研究費補助金	6,804(5)	7,880(4)
	その他の補助金	0	1,800(1)
	寄 附 金 I	1,500(2)	10,000(2)
	寄 附 金 II	10,337(1)	0
	受託事業等経費	9,769(3)	18,839(4)
	(受託研究費)	1,539(1)	12,269(2)
	(共同研究費)	8,230(2)	6,570(2)
小 計	28,410(11)	38,519(11)	
電子計測制御部門	科学研究費補助金	55,154(14)	77,177(21)
	その他の補助金	2,197(2)	12,880(2)
	寄 附 金 I	0	500(1)
	寄 附 金 II	943(3)	430(1)
	受託事業等経費	30,232(7)	108,313(7)
	(受託研究費)	19,182(4)	99,817(5)
	(共同研究費)	11,050(3)	8,496(2)
小 計	88,526(26)	199,300(32)	

電子情報処理部門	科学研究費補助金	46,700(10)	35,005(14)
	その他の補助金	0	0
	寄附金 I	1,300(2)	0
	寄附金 II	1,280(2)	1,582(1)
	受託事業等経費	8,225(5)	7,634(4)
	(受託研究費)	6,366(2)	6,254(2)
	(共同研究費)	1,859(3)	1,380(2)
	小計	57,505(19)	44,221(19)
寄附研究部門 (ニコンバイオイメージングセンター)	科学研究費補助金	1,400(1)	3,250(1)
	その他の補助金	0	0
	寄附金 I	0	0
	寄附金 II	14,500(2)	14,500(1)
	受託事業等経費	3,000(1)	31,850(1)
	(受託研究費)	3,000(1)	31,850(1)
	(共同研究費)	0	0
	小計	18,900(4)	49,600(3)
附属ナノテクノロジー 研究センター	科学研究費補助金	82,329(13)	84,538(13)
	その他の補助金	960(1)	2,580(2)
	寄附金 I	0	0
	寄附金 II	2,500(1)	2,800(4)
	受託事業等経費	113,722(9)	149,199(11)
	(受託研究費)	98,045(7)	135,978(5)
	(共同研究費)	15,677(2)	13,221(6)
	小計	199,511(24)	239,117(30)

( )内の数は受入件数

寄附金 I 申請による財団等からの研究助成金 寄附金 II I以外のもの

### II-3. 外国人研究者の受入状況

#### a. 年度別統計表

部門等	年	平成17年度	平成18年度	平成19年度	平成20年度
電子材料物性部門		0	1	8	6
電子機能素子部門		4	4	2	13
電子計測制御部門		9	24	12	13
電子情報処理部門		14	4	8	1
ナノテクノロジー研究センター		10	1	1	0
計		37	34	25	33

## II-4. 修士学位及び博士学位の取得状況

### II-4-1) 修士学位

#### 平成20年度

##### ・理学院

- 永川 桂大：ウイルスを鋳型とした金属ナノ粒子の規則配列化とプラズモンナノ材料への応用  
石川 綾子：核酸の分子認識を利用した塩基選択的的金属析出制御とナノ構造体の作製  
関口 翔太：オリゴ糖の高密度提示によって促進されるナノ微粒子の核内輸送  
鈴木 勝也：3種反応拡散系におけるスポット解の斜め衝突について  
鳥谷部 和孝：2種混合流体の局在対流セルの衝突ダイナミクス - 衝突軌道の成すネットワーク構造-  
畠中 耕平：離散格子状におけるパルス解の伝搬不全現象の解析  
栃木 隆：微細表面構造への癌細胞の接着挙動と増殖性に関する研究

##### ・環境科学院

- 谷田 真人：伝令付き単一光子源の2光子干渉性に関する研究  
工藤 史人：ナノポーラス構造を持つリング状 polyoxomolybdate 結晶の物性

##### ・情報科学研究科

- 伊藤 早紀：光子源からの光子取り出し効率向上を目指した半導体形状制御とその評価  
佐藤 充：GaAsSb/GaAs Type-II 単一量子井戸構造における伝導帯障壁制御と発光過程の評価  
高田 真：Nb 埋め込み InAs 量子ドットからの光子取り出し効率向上に関する研究  
佐藤 弘康：Nb 超伝導微細電極形成技術と InAs 量子ドット発光デバイスへの応用に関する研究  
中村 真一郎：「非線形光量子デバイスの実現に向けた研究」 「A study toward the realization of nonlinear optical quantum devices」  
浅井 健志：テーパファイバ・微小球共振器間の結合状態制御と位相シフトスペクトルに関する研究 “A tapered fiber coupled with a microsphere resonator - the control of the coupling condition and its phase shift spectrum”  
谷田 真人：「伝令付き単一光子源の2光子干渉性に関する研究」 “The study on the visibility of two-photon interferences between heralding single-photon sources”  
市橋 和明：「フォトンフォース計測を用いた2粒子間相互作用解析法」 “Analysis method for interaction between two microparticles by use of photon force measurement”  
上田 哲也：「光子統計解析による単一発光体の発光メカニズムの研究」 “A study on the mechanism of single light emitters by use of photon statistics”

### II-4-2) 博士学位

#### 平成20年度

##### ・理学院

- 福平 由佳子：Study of Honeycomb-patterned film for Medical Devices (医療用ハニカム構造フィルムに関する研究)  
大竹(石塚) 範子：Studies of functionalized virus-like particles and stimuli-responsive drug release (機能性ウイルス様微粒子と刺激に応答した薬剤放出に関する研究)  
神谷 亮介：Design of artificial ligand-appended polymers for non-covalent modification of cell surface (非共有結合型細胞表層修飾のための人工リガント提示ポリマーの分子設計)  
伊藤 賢太郎：

##### ・環境科学院

- 青沼 昌樹：超分子ローター構造を導入した電気伝導性  $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]$  錯体の構築

##### ・情報科学研究科

- 西島 喜明：Spectroscopic Studies of Opal and Inverse Opal Photonic Crystals (微粒子集積型微小構成の光学的性質に関する研究)

Ⅱ-4-3) 大学院生在籍数

研究科名	修 士		博 士	
	19年	20年	19年	20年
理 学 院	28	28	29	26
工 学 研 究 科	5	5	5	4
医 学 研 究 科	2	2	0	0
環 境 科 学 院	8	9	6	6
情 報 科 学 研 究 科	28	26	6	4
理 学 研 究 科	2	2	0	1
計	73	72	46	41

### Ⅲ. 研究支援体制

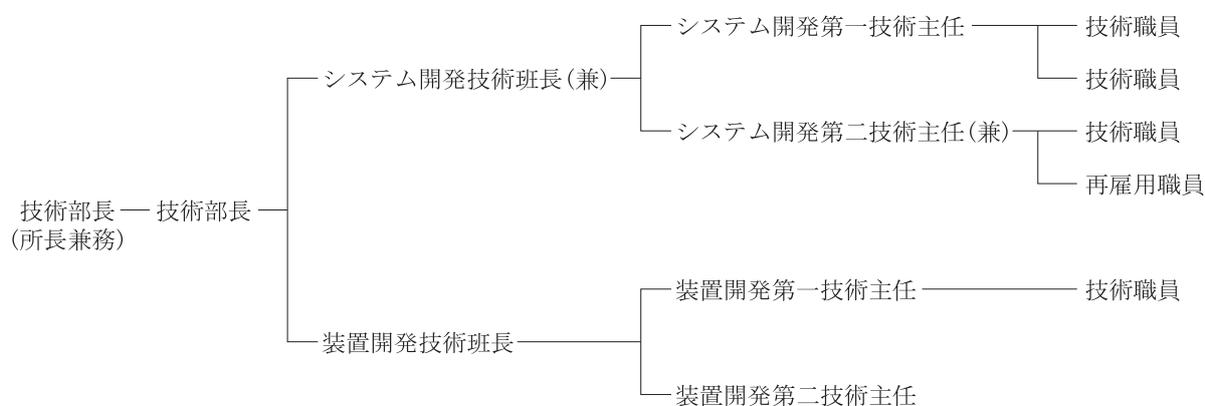


### III-1. 技術部

技術部は、システム開発技術班と装置開発技術班からなる。

システム開発技術班は、各自の専門技術を用いて、クリーンルーム維持・管理、電子回路設計、機器制御、パイオイメージング、半導体ナノ微細加工、広報・情報・ネットワーク・研究所のウェブサイト管理運営などといった、技術的な支援を行っている。この他に、電子科学研究所の共通の機器・設備の管理、液化窒素ガス汲み出し作業従事者への安全講習会、学術講演会の支援依頼への対応など、研究所全体に関わる支援も行っている。

装置開発技術班は、研究分野により要請される特殊実験機器の開発・製作にあたっている。機械工作室では、ステンレスの精密切削とアルゴン溶接、大型旋盤・縦フライス盤などの工作機械を用いて、多くの実験装置の開発・製作を行っている。近年は、アルミ溶接技術による特殊要請にも対応できる体制を備えている。ガラス工作室では、光学レンズ・プリズム等の加工と研磨、ステンレス製計測装置へのコバールを介しての硝子の溶着の技術・その他大型デュワー瓶、各種石英セルの製作を行っている。また、同班は所外からの技術相談、装置製作などの技術支援要請にも応えている。



## III-2. 学術情報

平成20年の北キャンパス移転に伴い電子科学研究所図書室は(旧)北キャンパス図書室と統合し、平成20年8月に電子科学研究所・触媒化学研究センター・創成科学共同研究機構の3部局共通の図書室である「北キャンパス図書室」として運営されることとなった。

### a. 図書・学術雑誌

単行本は、各研究分野で購入し管理されている。図書室には参考図書を中心に配架されている。学術雑誌は、共通分野で利用され研究所として必要と認められたものは、図書室で管理されている。この他、各分野の必要性から、各分野で購入・管理されている雑誌もある。

平成14年度より電子ジャーナルが本格的に導入されるにあたり、研究所内の雑誌の重要度調査を行い、購入洋雑誌の見直しをした結果、購入洋雑誌の種類が減少した。

電子ジャーナルの本格的な導入以後、学外への文献複写依頼は年々減少傾向である。

#### 1. 蔵書冊数

年 度	平成17年	平成18年	平成19年	平成20年*
和 書	5,409	5,415	5,806	5,554
洋 書	20,751	20,915	20,983	17,390
計	26,160	26,330	26,789	22,944

#### 2. 所蔵雑誌種類数

年 度	平成17年	平成18年	平成19年	平成20年*
和雑誌	368	369	121	116
洋雑誌	454	454	390	412
計	822	823	511	528

#### 3. 購入外国語雑誌受入種類数

年 度	平成17年	平成18年	平成19年	平成20年*
和雑誌	42	38	34	41
洋雑誌	34	30	29	29
計	76	68	63	70

#### 4. 学外文献複写数

年 度	平成17年	平成18年	平成19年	平成20年*
依 頼	112	64	65	78
受 付	237	175	136	252

\* 北キャンパス図書室全体としての数字

### b. 学術情報システム

閲覧室には情報検索用パソコンが利用者用として提供されていて、誰もが自由に必要な情報を得ることができ。プリンターも1台設置されているので、入手した情報のプリントアウトも可能である。

平成14年度からは電子ジャーナルが本格的に導入され、学内の利用に限定されるが、15000タイトルを超える電子ジャーナルの利用が可能で、フルテキストを購読できる。

また、情報検索端末からはインターネットを通じ、北海道大学で導入している学術文献データベースを利用することができる。利用できるデータベースの種類は豊富で、“Web of Science”や“SciFinder Scholar”といった著名な文献書誌・抄録データベースや、“LexisNexis Academic”等の新聞記事データベース、辞典類や出版情報等50種を超えるサービスが利用可能である。また、インターネットを通じて“Pub Med”等の無料データベースを利用したり、国内外の大学図書館等の情報を得ることもできる。

カードロックシステムを導入しており、研究所内の教職員院生は24時間図書室の利用が可能となっている。

## IV. 資 料



## IV-1. 沿革

### 超短波研究所

- 昭和16. 1 超短波研究室が設置される
- 18. 1 超短波研究所に昇格  
第二部門、第四部門、第六部門、第七部門開設
- 18. 3 第三部門開設
- 19. 1 第一部門、第五部門開設
- 20. 1 第八部門開設

### 応用電気研究所

- 21. 3 応用電気研究所と改称する  
部門構成：電気第一部門、電気第二部門、物理第一部門、物理第二部門、化学部門、  
医学及び生理第一部門、医学及び生理第二部門、数学部門
- 24. 5 北海道大学附置研究所となる
- 36. 4 メディカルエレクトロニクス部門新設
- 37. 4 電子機器分析部門新設
- 38. 4 メディカルトランスデューサ部門新設
- 39. 2 研究部門は一部名称変更等により次のとおりとなる(昭和38年4月1日適用)  
電子回路部門、電波応用部門、物理部門、化学部門、生理部門、生体物理部門、  
応用数学部門、メディカルエレクトロニクス部門、電子機器分析部門、メディカルトランスデューサ  
部門
- 39. 4 メディカルテレメーター部門新設
- 42. 6 強誘電体部門新設
- 46. 4 生体制御部門新設
- 48. 4 附属電子計測開発施設新設
- 50. 4 光計測部門新設(10年時限)
- 53. 4 感覚情報工学部門新設
- 60. 3 光計測部門廃止(時限到来)
- 60. 4 光システム工学部門新設(10年時限)

### 電子科学研究所

- 平成4. 4 研究所改組により電子科学研究所となる
- 14. 4 附属電子計測開発施設を附属ナノテクノロジー研究センターに改組転換
- 15. 5 電子情報処理研究部門感覚情報研究分野を廃止
- 17. 4 電子計測制御研究部門適応制御研究分野を廃止  
電子計測制御研究部門ナノシステム生理学研究分野を新設
- 17. 10 電子材料物性研究部門光材料研究分野をナノ光高機能材料研究分野に名称変更  
電子情報処理研究部門信号処理研究分野を極限フォトンプロセス研究分野に名称変更  
電子情報処理研究部門計算論的生命科学研究分野を新設  
寄附研究部門「ニコンバイオイメージングセンター研究部門」を新設(開設期間3年)  
英国ニューカッスル大学ナノスケール科学技術研究所との学術交流協定締結
- 19. 10 電子材料物性研究部門相転移物性研究分野を量子情報フォトンクス研究分野に名称変更  
電子機能素子研究部門超分子分光研究分野を廃止  
電子計測制御研究部門自律調節研究分野を分子生命数理研究分野に名称変更
- 20. 1 バングラデシュダッカ大学物理化学生物薬学先端科学研究センターとの学術交流協定締結
- 20. 1 台湾師範大学光電科学技術研究所との学術交流協定締結
- 20. 4 国立台湾大学物理学科との研究交流に関する覚書締結
- 20. 6 カリフォルニア大学ロサンゼルス校カリフォルニアナノシステム研究所を代表するカリフォルニア大  
学評議会との学術交流協定締結

(20. 6 大学間交流協定に移行 責任部局：大学院理学研究院)

- 20.10 電子情報処理研究部門極限フォトンプロセス研究分野をスマート分子研究分野に名称変更  
附属ナノテクノロジー研究センターナノ材料研究分野を極限フォトンプロセス研究分野に名称変更  
附属ナノテクノロジー研究センターナノデバイス研究分野をバイオ分子ナノデバイス研究分野に名称変更  
寄附研究部門「ニコンバイオイメージングセンター研究部門」開設期間更新（更新期間3年）

[歴代所長]

超短波研究室	昭和16年2月20日～昭和18年1月31日	蓑島 高	
超短波研究所	昭和18年2月1日～昭和21年3月31日	蓑島 高	
応用電気研究所	昭和21年4月1日～昭和21年9月10日	蓑島 高	
	昭和21年9月11日～昭和35年7月31日	浅見 義弘	
	昭和35年8月1日～昭和38年7月31日	東 健一	
	昭和38年8月1日～昭和45年3月31日	松本 秋男	
	昭和45年4月1日～昭和48年3月31日	望月 政司	
	昭和48年4月1日～昭和51年3月31日	馬場 宏明	
	昭和51年4月1日～昭和54年3月31日	吉本 千禎	
	昭和54年4月1日～昭和57年3月31日	馬場 宏明	
	昭和57年4月1日～昭和60年3月31日	山崎 勇夫	
	昭和60年4月1日～昭和63年3月31日	達崎 達	
	昭和63年4月1日～平成4年4月9日	安藤 毅	
	電子科学研究所	平成4年4月10日～平成6年3月31日	安藤 毅
		平成6年4月1日～平成9年3月31日	朝倉 利光
		平成9年4月1日～平成13年3月31日	井上 久遠
	平成13年4月1日～平成15年3月31日	下澤 楯夫	
	平成15年4月1日～平成15年9月30日	八木 駿郎	
	平成15年10月1日～平成17年9月30日	西浦 廉政	
	平成17年10月1日～平成21年9月30日	笹木 敬司	
	平成21年10月1日～現在	三澤 弘明	

[名誉教授]

昭和32年4月	(故) 蓑島 高
昭和37年4月	(故) 浅見 義弘
昭和43年4月	(故) 東 健一
昭和45年4月	(故) 松本 秋男
昭和55年4月	(故) 吉本 千禎
昭和57年4月	(故) 横澤彌三郎
昭和62年4月	(故) 羽鳥 孝三
	馬場 宏明
	松本 伍良
昭和63年4月	達崎 達
	山崎 勇夫
平成7年4月	安藤 毅
平成9年4月	朝倉 利光
	小山 富康
平成13年4月	井上 久遠
	永井 信夫
平成18年4月	八木 駿郎
平成19年4月	狩野 猛
	下澤 楯夫
	下村 政嗣
	伊福部 達

## IV-2. 建物

本研究所は、平成15年度に現在の創成科学研究棟新築（北21西10）に伴い、ナノテクノロジー研究センター及び関連研究分野が北12条西6丁目から移転し、平成20年度には北キャンパス総合研究棟5号館が新築された。

建物名称	構造	建面積 m <sup>2</sup>	延面積 m <sup>2</sup>	建築年度
ナノテクノロジー研究センター	鉄筋コンクリート造5階建	—	4,154	平成15年度
北キャンパス総合研究棟5号館	鉄筋コンクリート造5階建	1,104	5,303	平成20年度
計		—	9,457	

## IV-3. 現員（平成20年度）

（7月1日現在）

職名	人数
教授	15 (3)
准教授	13
講師	1
助教	17
特任准教授	2
特任助教	1
教員小計	49 (3)
技術部	9
合計	58 (3)

（ ）内の数字は客員で外数

#### IV-4. 教員の異動状況 (平成20年度)

##### ○ 転入状況

ナノテク支援室	特任准教授	上野 貢生	20. 4. 1	北海道大学電子科学研究所助教
電子計測制御研究部門	助 教	松田 知己	20. 4. 1	(財)医療機器センター非常勤職員
電子情報処理研究部門	助 教	山口 裕	20. 4. 1	北海道大学大学院理学研究科学生
電子情報処理研究部門	助 教	村澤 尚樹	20. 6. 16	北海道大学電子科学研究所博士研究員
電子計測制御研究部門	助 教	寺本 央	20. 6. 16	北海道大学電子科学研究所博士研究員
電子情報処理研究部門	教 授	玉置 信之	20.10. 1	(独)産業技術総合研究所研究グループ長
電子情報処理研究部門	助 教	亀井 敬	20.10. 1	(独)産業技術総合研究所研究特別研究員
電子情報処理研究部門	助 教	深港 豪	20.12. 1	九州大学大学院工学研究院助教
電子材料物性研究部門	助 教	藤原 正澄	21. 1. 1	大阪市立大学大学院理学研究科学生

##### ○ 転出状況

電子計測制御研究部門	准教授	小山 幸子	21. 1. 13	限り退職
電子計測制御研究部門	教 授	栗城 眞也	21. 3. 31	定年退職
ナノテクノロジー研究センター	教 授	徳本 洋志	21. 3. 31	定年退職
ナノテク支援室	特任准教授	上野 貢生	21. 3. 31	ナノテク支援室准教授

(21. 4. 1)

#### IV-5. 構成員 (平成20年度)

所 長 笹 木 敬 司

##### 電子材料物性研究部門

###### 光電子物性研究分野

教 授 太 田 信 廣  
准教授 中 林 孝 和  
助 教 飯 森 俊 文

###### 量子情報フォトンクス研究分野

教 授 竹 内 繁 樹  
准教授 辻 見 裕 史  
助 教 岡 本 亮  
助 教 藤 原 正 澄

###### 有機電子材料研究分野

教 授 中 村 貴 義  
准教授 芥 川 智 行  
助 教 野 呂 真一郎

###### ナノ光高機能材料研究分野

教 授 末 宗 幾 夫  
准教授 熊 野 英 和  
助 教 笹 倉 弘 理

##### 電子機能素子研究部門

###### 量子機能素子研究分野

教 授 石 橋 晃  
講 師 近 藤 憲 治  
助 教 海 住 英 生

##### 細胞機能素子研究分野

教 授 上 田 哲 男  
准教授 中 垣 俊 之  
助 教 高 木 清 二

##### 電子計測制御研究部門

###### 光システム計測研究分野

教 授 笹 木 敬 司  
准教授 藤 原 英 樹

###### 量子計測研究分野

教 授 栗 城 眞 也

###### 分子生命数理研究分野

教 授 小松崎 民 樹  
准教授 李 振 風  
助 教 西 村 吾 朗  
助 教 寺 本 央

###### ナノシステム生理学研究分野

教 授 永 井 健 治  
准教授 谷 知 己  
助 教 松 田 知 己

##### 電子情報処理研究部門

###### 情報数理研究分野

教 授 西 浦 廉 政  
助 教 柳 田 達 雄  
助 教 飯 間 信

###### 神経情報研究分野

准教授 青 沼 仁 志  
助 教 西 野 浩 史

###### 計算論的生命科学研究分野

教 授 津 田 一 郎  
准教授 佐 藤 讓  
助 教 山 口 裕

###### スマート分子研究分野

教 授 玉 置 信 之  
助 教 亀 井 敬  
助 教 深 港 豪

###### 並列分散処理研究分野 (客員)

教 授 池 田 富 樹

(東京工業大学資源科学研究所)

教 授 小 中 元 秀

(防災科学技術研究所)

教 授 瀬 川 尚 彦

(電通北海道)

##### 寄附研究部門 (ニコンバイオイメージングセンター)

寄附研究部門教員(兼) 上 田 哲 男

〃 永 井 健 治

特任准教授 堀 川 一 樹

特任助教 齊 藤 健 太

##### ナノテクノロジー研究センター

センター長(兼) 三 澤 弘 明

###### バイオ分子ナノデバイス研究分野

教 授 居 城 邦 治

准教授 新 倉 謙 一

助 教 松 尾 保 孝

助 教 眞 山 博 幸

###### 極限フォトンプロセス研究分野

教 授 三 澤 弘 明

准教授 JUODKAZIS SAULIUS

助 教 村 澤 尚 樹

###### ナノ理論研究分野

教 授 徳 本 洋 志

助 教 畔 原 宏 明

ナノテク支援室

特任准教授	上野貢生
非常勤研究員	RAHAMAN MD.DALILUR
研究支援推進員	高島秀聡
〃	高橋美美
〃	杉山瑠那
〃	中山佐知子
学術研究員	星山満雄
〃	浮田桂子
〃	李哲煜
〃	黒田茂
〃	張郁芬
〃	高橋平七郎
〃	望月進
〃	小山正孝
〃	笠沼由香
〃	岩崎正純
博士研究員	フンソックカン
〃	井筒康洋
〃	大塚明香
〃	伊藤賢太郎
〃	馬場昭典
〃	MEETHALE CHELA VEETIL BASHEER
〃	佐倉緑
〃	田中嘉人
〃	呉伯涛
〃	孫凱
〃	周時鳳
〃	孫泉
〃	戴振宏

技術部

技術部長(兼)	笹木敬司
技術長	大沼英雄
システム開発技術班	
班長	大沼英雄
第一・第二技術主任	伊勢谷陽一
技術職員	今村逸子
〃	小林健太郎
〃	遠藤礼暁
嘱託職員	土田義和
装置開発技術班	
班長	太田隆夫
第一技術主任	平田康史
第二技術主任	女池竜二
技術職員	武井将志
事務補佐員	山口由美子
〃	平厚子
〃	山田美和
技術補佐員	福本愛
〃	菅原侑子
〃	木村古乃美
事務補助員	柴田久恵
〃	木村美香
〃	佐々木公美
〃	三浦亜希子
〃	笠置水美
〃	酒井真理
〃	菊地美耶
〃	阿部香代
〃	四ツ屋泉
〃	平出ありさ
〃	沼田優子
〃	数瀬しのぶ
技術補助員	清一人
〃	山口将大
〃	鳥谷部和孝
〃	西泰史
〃	高嶋聡章
〃	在原百合子
〃	李昕
〃	青山岳人
〃	BASEER NUBLA
〃	関大輔
〃	村田祐亮
〃	加味根あかり
〃	王麗

(平成21年3月末日現在)

