はじめに

国立大学法人化第3期を見据えた大学改革プランは、人材育成、国際展開、地域の活性化など大学全体のあり方に影響を与えようとしています。一方で、総合科学技術会議が総合科学技術・イノベーション会議と改称され、平成28年度から始まる第5期科学技術基本計画が検討されており、「イノベーション」と「基礎研究」を結びつけるための計画が策定されると伺っています。そこでは、世の中にイノベーションをもたらすための科学技術とは何か、すなわち、多くの研究者が目指しているインベンションが、効果的にイノベーションにつながる戦略的な施策が欠かせません。

我々附置研究所には、大学改革プランや科学技術基本計画で提唱された施策を着実に実施することが求められますが、これまでもそうであったように、萌芽的な研究と産学連携の両面を見据え、それらをイノベーションに導くためのマネージメントが重要であることには変わりありません。つまり、研究の多様性を担保しつつ、トップダウン的な研究とボトムアップ的な研究をバランスよく両立させることが重要であると思います。さらに、限られた予算の中でそのような研究環境を維持するための一つの方策が、拠点形成による重点化であると考えています。

電子科学研究所は、新たな学際領域の開拓を目指した研究を推進しつつ、平成22年度から「物質・デバイス領域ネットワーク型共同研究拠点(文部科学省)」に参画し、多元物質科学研究所(東北大学)、資源化学研究所(東京工業大学)、産業科学研究所(大阪大学)、先導物質化学研究所(九州大学)と共に、拠点事業全体で毎年400件以上の共同研究の実績を積み重ねてきました。このような日本縦断型の骨太な研究ネットワークへの参画は、電子科学研究所のミッション遂行において極めて重要であります。そこでは、ネットワーク型拠点の特徴を最大限活用することで、課題解決型の戦略的トップダウン研究を実施すると共に、気鋭の若手研究者のボトムアップ研究によって異分野の研究者との交流が加速し、研究の裾野が広がりました。すなわち、ネットワーク型共同研究拠点は、集中と分散の両立を可能にする優れた仕組みであることが実証されました。現在は、法人化第3期に向けて、国内外の若手研究者のさらなるレベルアップを目的としたコア連携ラボを立ち上げ、世界に伍する研究者の養成を目指しているところです。

平成4年に発足した電子科学研究所は、平成22年に研究分野をより明確にするための大幅な改組を行うと共に、平成25年には、研究ミッションが「高度光ナノイメージング技術を駆使した物質・生命科学分野の融合研究の推進」と再定義されました。ここに、国家・国民に分かりやすい研究所のあるべき姿を自己点検し、第三者による評価を受けることを目的として、平成26年度の電子科学研究所の研究活動をまとめました。関係各位の皆様には、忌憚のないご意見をお寄せ下さるようお願い申し上げます。

平成27年6月

北海道大学　電子科学研究所長

西井準治

所 長
教授会
所内各種委員会
光科学研究部門
光システム物理研究分野
光量子情報研究分野
コヒーレント光研究分野
物質科学研究部門
分子光機能物性研究分野
スマート分子材料研究分野
ナノ構造物性研究分野
薄膜機能材料研究分野
生命科学研究部門
光細胞生理研究分野
生体分子デバイス研究分野
生命動態研究分野
数理科学研究部門
複雑系数理研究分野
分子生命数理研究分野
動的数理モデリング研究分野
附属グリーンナノテクノロジー研究センター
グリーンフォトニクス研究分野
光電子ナノ材料研究分野
ナノ光機能材料研究分野
ナノアセンブリ材料研究分野
連携研究部門
理研連携研究分野
産研アライアンス研究分野
社会連携客員研究分野
研究支援部
ニコンイメージングセンター
国際連携推進室
ナノテク連携推進室
技術部
システム開発技術班
装置開発技術班

目　次

組織図

Ⅰ．研究成果・活動
光科学研究部門
光システム物理研究分野 …… 4
光量子情報研究分野 …… 10
コヒーレント光研究分野 …… 12

物質科学研究部門
分子光機能物性研究分野 …… 20
スマート分子材料研究分野 …… 25
ナノ構造物性研究分野 …… 29
薄膜機能材料研究分野 …… 35

生命科学研究部門
光細胞生理研究分野 …… 42
生体分子デバイス研究分野 …… 50
生命動態研究分野 …… 57

数理科学研究部門
複雑系数理研究分野 …… 62
分子生命数理研究分野 …… 68
動的数理モデリング研究分野 …… 79

附属グリーンナノテクノロジー研究センター
グリーンフォトニクス研究分野 …… 86
光電子ナノ材料研究分野 …… 93
ナノ光機能材料研究分野 …… 100
ナノアセンブリ材料研究分野 …… 105

連携研究部門
理研連携研究分野 …… 114

研究支援部
ニコンイメージングセンター …… 118
国際連携推進室 …… 121
ナノテク連携推進室 …… 123

Ⅱ．予算
Ⅱ－１．　研究成果公表に関する各種の統計表 …… 126
Ⅱ－２．　予算 …… 127
Ⅱ－３．　外国人研究者の受入状況 …… 129
Ⅱ－４．　修士学位及び博士学位の取得状況 …… 130

Ⅲ．研究支援体制
Ⅲ－１．　技術部…… 134
Ⅲ－２．　学術情報…… 135

Ⅳ．資料
Ⅳ－１．　沿革…… 138
Ⅳ－２．　建物…… 141
Ⅳ－３．　現員…… 141
Ⅳ－４．　教員の異動状況 …… 142
Ⅳ－５．　構成員…… 143

Ⅰ. 研究成果・活動

光科学研究部門

研究目的

本研究部門では、光や電子の波動性を利用した並列・高速・精密計測技術をベースとして、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計測・光制御・光情報処理、光子を自在に制御・検出するための光量子デバイスや単一光子源、コヒーレントＸ線を用いた新しい計測技術の開発に取り組んでいます。このような研究は、新しい世代の光科学・光技術として、量子工学や生物学などの分野に応用されます。

光システム物理研究分野

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　　酒井恭輔（京大院、工博、2010.12～）
特任助教　石田周太郎（名大院、工博、2012.12～）
研究員　　田中嘉人（阪大院、工博、2008.10～2014.6）
院　生
博士課程　煮雪亮
修士課程　竹井涼、安田有輝、山本岳明、小野寺俊平、
鈴木健正、和田崇

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、金属ナノ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。さらに、ナノ空間の光計測技術や光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、光の偏光・位相による電子状態制御に関する物理の深化を行っている。

２．研究成果

(a)　プラズモニック結晶の四重極子欠陥モード

金属ナノ粒子を波長程度に周期配置するプラズモニック結晶では、大面積な結晶で入射光をとらえるアンテナ効果と周期構造による共鳴効果により、単一の構造に比べて、非常に大きな増強電場が発生する。我々は、これまでに、放射損失が小さく、光と物質のより強い反応の実現が期待される多重極子モードが生じるプラズモニック結晶の検討を行ってきた。その結果、四重極子および六重極子モードを共鳴させる構造設計を明らかにした。多重極子と物質との相互作用を考えると、電場分布と物質の波動関数が一致する領域が興味深い。双極子遷移に加え、多重極子遷移が誘起されるためである。本研究では、多重極子場を分子やタンパクなど物質のサイズまで局在化させる金属ナノ構造の探索を行い、プラズモニック結晶への欠陥導入を検討した。図1(a)に、リング状欠陥を導入した結果を示す。ディスクでは周辺に発生する四重極子場が、リングでは内側にも発生する。その結果、リング中心付近に存在する物質は、ナノメートルオーダーで四重極子場を感じることになる。図1(a)下図に、リング状欠陥とディスクの場合での近接場

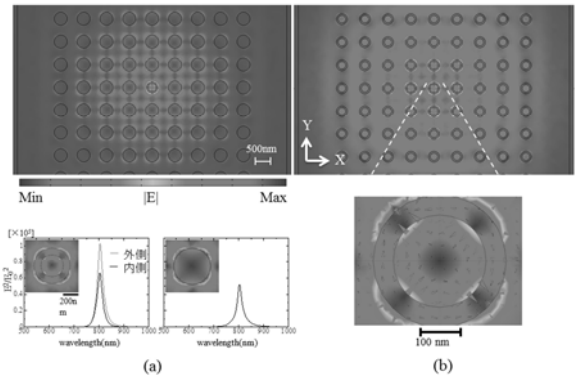


図１　プラズモニック結晶の電界(|E|)分布．(a) リング状欠陥を導入した構造での分布(上図)と近接場スペクトル(下図)．(b) 全てをリングとした場合の分布．拡大図中の三角は、電界ベクトルを示す．

スペクトルを示す。ディスクに比べ、リング内外での電場強度の方が大きいことが分かる。これは、リング欠陥へのエネルギーの局在化を意味しており、入射エネルギーを集中させるためには、欠陥構造が有効であることが分かった。図1(b)は、ディスクを全てリングに変化させた場合の結果である。各リングでも内側に四重極子場が形成されている。この場合、四重極子場が多数存在するため、多重極子遷移を観測するための反応基板として役立つことが期待される。今後の実験的な検証により、多重極子場による新たな光反応が見いだされることを期待する。

(b)　角運動量を有するナノ光場形成

角運動量は、一般にスピンと軌道の成分に分類される。光についても、円偏光として現れるスピンに加え軌道成分も存在し、粒子の円運動やネジ状構造物の作製に寄与することが知られている。こうした光のスピンおよび軌道の角運動量を、原子や分子の波動関数と同程度の小さなナノ空間で実現出来れば、電子状態の角運動量制御など、新たな光物質反応が誘起できると期待される。本研究では、各種の角運動量を有する光場を回折限界を超えたナノメートルオーダーの領域に局在させる金属ナノ構造体を探索した。図2に、一例としてスピン(S=1)および軌道(L=1)角運動量を有する光を局在化させる構造を示す。図2(a)で示す入射光(1μm程度の集光点)を、図2(b)に示す五量体に照射すると、

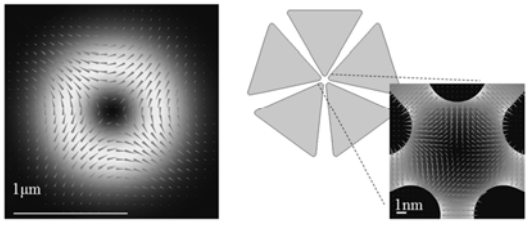


図２　(a) スピン(S=1)および軌道(L=1)角運動量を有する光の集光点での電界分布．(b) 五量体のギャップ部での電界分布．矢印は、電界ベクトルを表す．

その10 nm程度のギャップ部には、入射光と同様の角運動量(S=1、L=1)を有する光場が形成された。このほかにも、(S=1、L=0)や(S=0、L=1)などの角運動量状態を保持する金属ナノ多量体を検討し、目的のスピンと軌道角運動量を保持するための多量体の条件を明らかにした。本検討により、“角運動量を有するナノ光形成”の理解が深まった。今後は、これを応用することにより、原子や分子の状態制御など、新しい光物質制御の実現が期待される。

(c) 局在プラズモン場を用いた超解像トラッピング

レンズを用いて集光したレーザー光によって集光点付近の誘起される勾配力を用いた光捕捉は、ミクロな粒子の操作において、柔軟かつ強力なツールとなっている。この光捕捉で捕えることのできる粒子のサイズと捕捉領域は、光の回折限界によって制限される。局在表面プラズモン(LSP)は、回折限界を超えるナノメートルの領域に光を閉じ込め、入射光に対する増強効果を有する。特に、ギャップモードLSPは、極めて高強度な局在場をギャップ領域に形成でき、この局在場によって誘起される勾配力を用いて回折限界以下の領域にナノ粒子を光捕捉する研究が近年注目を集めている。本研究では、円偏光ビームによって金属ナノギャップ構造（三量体）に誘起されるLSPで捕捉された粒径100 nmの蛍光粒子に働く捕捉ポテンシャルを計測し、直線偏光ビームで励起した二量体ギャップ構造の捕捉ポテンシャルとの比較を行った。図3に金ナノギャップ構造のSEM像と有限要素法に基づく数値解析によって求めた金属ナノギャップ中心における近接場スペクトルを示す。三角形の斜辺の長さとギャップ間距離をパラメタとして、励起光1064 nmに

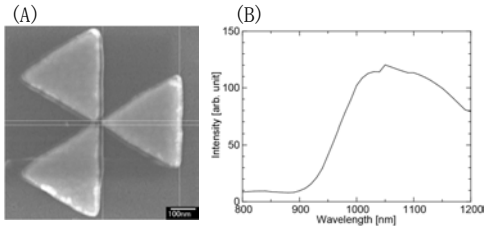


図３　（A）ナノギャップ構造の SEM 像と(B)ナノギャップ中心における近接場スペクトル（共鳴波長：1064 nm）.

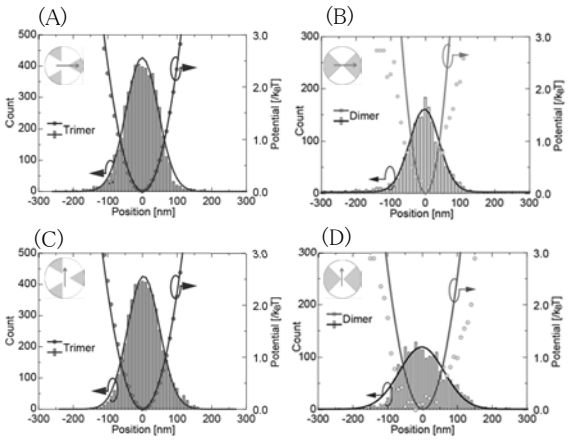


図４　ナノ粒子に作用する捕捉ポテンシャル(A)三量体 x 軸,（B）二量体 x 軸,(C)三量体 y 軸,(D)二量体 y 軸.

共鳴を有する金ナノギャップ構造を設計し、ナノ加工プロセスを用いて構造を作製した。

本構造を用いて、粒径100 nmの単一ナノ粒子の光捕捉実験を行い、2次元位置座標分布から各粒子に働く捕捉ポテンシャルを解析した結果を図4に示す。図4の二量体構造（B、D）では、x、y軸でそれぞれ異なる強さのポテンシャルが形成される。一方、円偏光ビームによって三量体構造に形成したポテンシャルでは、等方的なポテンシャルが形成されることを確認した。この結果は、局在プラズモン場を用いた光捕捉において、ギャップ中に誘起する局在場分布の制御によって光捕捉ポテンシャルの形状を制御できることを示し、捕捉ポテンシャルの制御において、ギャップ中の局在場分布を制御可能な構造の検討が重要であることを示唆している。

(d) 白色光全反射照明を用いたプラズモン場の分光ナノイメージング

光と金属ナノ構造との相互作用により金属ナノ構造の表面近傍に入射光の電場より遙かに強い光局在場が生じ、この光局在場を利用した光―物質間の相互作用の増強効果に関する研究が近年注目を集めている。これまでに我々は、原子間力顕微鏡（AFM）を用いて金属ナノ構造の光局在場を散乱させ、AFMプローブ位置毎の散乱光を検出することにより、ナノ構造の形状とその光局場分布をナノメートルスケールの空間分解能で同時イメージングできるシステムの開発を行ってきた。今回さらに本装置の拡張を行い、散乱スペクトルと形状像、局在場分布像を同時に取得可能な白色光全反射照明を用いた分光ナノイメージングシステムを構築し、金ナノダイマー構造中に誘起される光局在場の高空間分解分光イメージングを行った。

既存の散乱型近接場顕微鏡システムのレーザー光源を白色光源に置き換え、対物レンズを通して試料界面において全反射照明となる様に光学系を調整した。試料の全反射照明による散乱スペクトルの測定を行った後、AFM プローブで試料表面を走査し、形状像の測定を行うと同時に、誘起された光局在場を AFM プローブで散乱させ、分光器により選択した任意の観測波長において光局在場分布の測定を

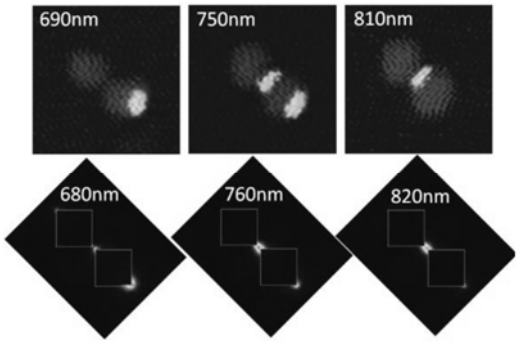


図５ 金ナノダイマー構造に誘起される局在場の分光イメージング結果．P 偏光の光が左上から右下方向に全反射条件を満たす様に入射している．上段：実験結果、下段：数値計算結果.

行った。評価用の試料として、長軸方向からのＰ偏光の全反射入射により、ギャップ部分に強い局在場が誘起される金ナノダイマー構造（一辺100 nm、高さ30 nm、ギャップ距離15 nm）を用いた。図5は、本システムを用いて長軸方向からのＰ偏光の光を全反射入射した際の分光イメージングを行った結果(上段)とその数値解析結果(下段)を示している。結果から、散乱スペクトルのピーク波長（～800 nm付近）においては、予想される通り、ギャップ部分に強い局在場が誘起される様子を確認したが、観測波長を短波長側にシフトさせると、入射方向とは反対側のブロック端にも増強場が誘起され、短波長側になるに従ってギャップ部分が弱まり、ブロック端の局在場が強くなる様子が確認できた。この結果は、数値計算結果とも定性的に良い一致を示しており、長軸方向からのＰ偏光全反射入射の場合、垂直入射では励起出来ない高次の局在モードが誘起され、モード間の干渉効果によって誘起された結果であると考えられ、構築したシステムによる分光イメージングによって初めて明らかとなった結果である。

(e)　共鳴特性を制御した新規ランダムレーザーの発振状態解析

散乱体と発光材料で構成される不均一な構造をもつランダムレーザーは、外部共振器を必要としないため、簡易なレーザー光源として注目されている。これまでに本研究では、ランダム構造の共鳴特性の制御により、従来とは全く異なる特徴（疑似単一モード、低しきい値）を示すランダムレーザーの開発に成功している。この結果は、ランダム構造の共鳴特性の制御により、共振器としての特性が強く現れた結果、従来とは異なるメカニズムに基づきレーザー発振が誘起されている可能性が高いと考え、そのメカニズムについて検討を行った。

図6は、単分散 ZnO 球状粒子（平均粒径～200 nm）薄膜からの擬似単一モードランダムレーザー発振（Defect RL）の(a)ピーク波長、及び、(b)しきい値の温度依存性を示す。また、比較のため、多分散 ZnO 粒子薄膜で観測される通常のランダムレーザー発振（Normal RL）の結果を併せてプロットした。高温領域（$T > 150$ K）では、Defect RL の発振波長は Normal RL に比べて短波長域に観測され、しきい値は一桁程度低いしきい値を示すことが分かった。得られた結果から ZnO 中に誘起されるキャリア密度と利得最大波長の見積りを行ったところ、Normal RL の発振波長は利得の最大波長の温度依存性と良く一致し、そのしきいキャリア密度も Motto 転移密度よりも十分大きい値を示す事が分かった。この結果は、通常のランダムレーザーでは、ZnO の利得特性に支配されたランダムレーザー発振が誘起され、その起源が電子―正孔プラズマ状態である事を示している。一方、単分散 ZnO 球状粒子薄膜中では、室温付近において利得の最大波長ではなく、励起子波長に近い波長で発振が起き、そのしきいキャリア密度も Motto 転移キャリア密度付近である事が分かった。この結果は、単分散 ZnO 粒子薄膜中では、構造の共鳴特性と利得のバランスにより発振特性が決定されている事を示唆しており、ランダム構造の共鳴特性の制御によって、発振の起源も電子―正孔プラズマではなく、励起子由来のレーザー発振の誘起を示唆していると考えられる。

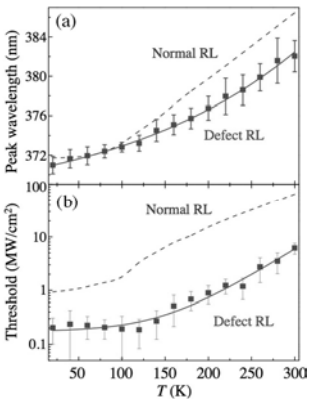


図６（a)発振波長と(b)発振しきい値の温度依存性. 破線と四角はそれぞれ通常のランダムレーザーと新規なランダムレーザーでの結果を示す.

３．今後の研究の展望

本研究分野では現在､｢微小共振器構造を用いた高効率プラズモン励起｣､｢金属ナノ構造中のプラズモン局在モードの自在制御｣､｢不規則構造を利用した高効率光捕集構造の開発｣､｢１分子光捕捉を目指したプラズモニックナノ構造の作製｣等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)輻射場を制御した単一分子の分光計測、(c) トップダウン的手法によるグラフェン量子ドットの作製、(d) もつれ合い光子を用いた２光子反応プロセスの解析、(e)高空間分解分光イメージングシステムによる光局在場解析、(f)単一光子制御デバイスの作製と特性解析、(g)金属ナノ構造体による光制御技術の開発、(h)光の偏光・位相制御によるプラズモンモード制御、(i) 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。

４．資料

4.1　学術論文等

１） K. Sakai, K. Nomura, T. Yamamoto and K. Sasaki : “Excitation of multipole plasmons by optical vortex beams”, Sci. Rep., 5 : 8431/1-8431/5 (2015)

2) R. Niyuki, H. Takashima, H. Fujiwara, and K. Sasaki “Annealing temperature dependence of random lasing properties in a diamond nanoparticle film”, Proc. SPIE 9342, Solid State Lasers XXIV: Technology and Devices, 93420Q (2015)

３） T. Nakamura, H. Fujiwara, R. Niyuki, K. Sasaki, Y.

Ishikawa, N. Koshizaki, T. Tsuji and S. Adachi : “Origins of lasing emission in resonance-controlled ZnO random laser”, New J. Phys., 16 : 093054 (2014)

4） Y. Nishijima, J. B. Khurgin, L. Rosa, H. Fujiwara, and S. Juodkazis: “Tunable Raman selectivity via randomization of a rectangular pattern of nano-disks”, ACS Photonics Vol. 1, Iss. 10, 1006-1012 (2014)

5） Y. Nagao, H. Fujiwara and K. Sasaki : “Analysis of Trap-State Dynamics of Single CdSe/ZnS Quantum Dots on a TiO2 Substrate with Different Nb Concentrations”, J. Phys. Chem. C, 118(35) : 20571-20575 (2014)

6） R. Niyuki, H. Takashima, H. Fujiwara and K. Sasaki : “Ultraviolet random lasing from a diamond nanoparticle film”, Appl. Phys. Lett, 105 : 011112/1-011112/3 (2014)

4.2 総説・解説・評論等

1） 田中 嘉人、笹木 敬司 : 「局在プラズモン場制御による超解像光トラッピング」、レーザー研究、レーザー学会誌、42(10) : 761-765 (2014)

4.7 講演

a. 招待講演

1） 酒井 恭輔* : 「プラズモン構造設計とバイオマスバーナー解析」、COMSOL Conference Tokyo 2014、秋葉原UDXカンファレンス (2014-12)

2） K. Sasaki* : “Micro-and nano-manipulation using optical and plasmonic forces”, IPCSM’14(International Post-graduate Conference on Science and Mathematics 2014), Tanjong Malim, Perak, Malaysia, Malaysia (2014-10)

3） K. Sasaki*, S. Ishida, K. Sakai and Y. Tanaka : “Optical Nanomanipulation Using Nanoshaped Plasmonic Fields”, JSAP-OSA Joint Symposia, Hokkaido University, Sapporo (2014-09)

4） H. Fujiwara*, R. Niyuki and K. Sasaki : “Mode-Controlled Ultraviolet Random Lasers”, HOKUDAI-NCTU Joint Symposium (Extension from RIES-CIS Symposium) on Nano, Photo and Bio Sciences, Hokkaido University, Sapporo (2014-09)

5） K. Sasaki* : “Optical Manipulation with Nanostructured Plasmonic Fields”, Progress In Electromagnetics Research Symposium (PIERS 2014 in Guangzhou), Guangzhou, China, China (2014-08)

6） 笹木 敬司* : 「Nanomanipulation with Designed Plasmonic Nanostructures」、Light Conference-International Conference on Micro/Nano Optical Engineering (ICOME2014)、Changchun, China、China (2014-07)

7） 藤原 英樹* : 「サブミクロン球状粒子を用いたランダム構造内の光局在場制御」、2014年度日本分光学会北海道支部シンポジウム、北海道大学 理学研究院 (2014-07)

b. 一般講演

1） 石田 周太郎*、田中 隆介、笹木 敬司 : 「グラフェンナノ構造における光学特性のサイズ依存性評価」、2015年第62回応用物理学会春季学術講演会、東海大学 湘南キャンパス (2015-03)

2） 煮雪 亮*、石川 善恵、越崎 直人、辻 剛志、中村 俊博、藤原 英樹、笹木 敬司 : 「局在モードを制御した新規ランダムレーザーの発振状態解析」、2015年第62回応用物理学会春季学術講演会、東海大学 湘南キャンパス (2015-03)

3） 酒井 恭輔*、山本 岳明、大村 竜矢、笹木 敬司 : 「プラズモニック結晶のリング状欠陥 - 四重極子モード-」、2015年第62回応用物理学会春季学術講演会、東海大学 湘南キャンパス (2015-03)

4） 安田 有輝*、藤原 英樹、酒井 恭輔、石田 周太郎、田中 嘉人、笹木 敬司 : 「金属ナノ構造中の局在プラズモン場の高空間分解分光イメージング」、2015年第62回応用物理学会春季学術講演会、東海大学 湘南キャンパス (2015-03)

5） R. Niyuki*, H. Takashima, H. Fujiwara and K. Sasaki : “Observation of ultraviolet lasing emission from a diamond nanoparticle film”, SPIE Photonics West 2015, The Moscone Center, San Francisco, USA (2015-02)

6） H. Fujiwara*, R. Niyuki, Y. Ishikawa, N. Koshizaki, T. Tsuji and K. Sasaki : “Control of random lasing properties within a submicrometer-sized ZnO spherical particle film”, SPIE Photonics West 2015, The Moscone Center, San Francisco, USA (2015-02)

7） 藤原 英樹* : 「共鳴特性を制御したランダム構造中における新奇光応答特性」、新学術領域「高次複合光応答分子システムの開拓と学理の構築」第二回公開シンポジウム、千里ライフサイエンスセンター (2015-01)

8） 藤原 英樹*、石田 周太郎、酒井 恭輔、笹木 敬司 : 「マイクロ・ナノ構造を用いた光システムの実現」、平成26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 (2015-01)

9） 安田 有輝*、藤原 英樹、笹木 敬司 : 「白色光全反射照明を用いた散乱型近接場顕微鏡システムの開発」、第50回応用物理学会北海道支部/第11回日本光学会北海道地区合同学術講演会、旭川市勤労者福祉会館 (2015-01)

10）藤原 英樹*、煮雪 亮、笹木 敬司 : 「ダイヤモンドナノ粒子紫外ランダムレーザー発振特性の加熱温度依存性」、第50回応用物理学会北海道支部/第11回日本光学会北海道地区合同学術講演会、旭川市勤労者福祉会館 (2015-01)

11）K. Sakai*, K. Nomura, T. Yamamoto and K. Sasaki : “Dark Mode Plasmonic Crystal”, Nanometa 2015, Seefeld, Austria, Austria (2015-01)

１２）S. Ishida* and K. Sasaki : “Fabrication of graphene nano-disks and analysis of their Raman spectra”, The 15th Rise-Hokudai International Symposium, Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo, Sapporo (2014-12)

１３）R. Niyuki*, Y. Ishikawa, N. Koshizaki, T. Tsuji, H. Fujiwara and K. Sasaki : “Development of Ultraviolet Diamond Random Laser”, The 15th Rise-Hokudai International Symposium, Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo, Sapporo (2014-12)

１４）石田周太郎*, 笹木敬司 : 「グラフェンナノディスクの微細加工とその光学特性評価」、第 2 回アライアンス若手研究交流会、大阪大学　産業科学研究所 (2014-11)

１５）越崎 直人*、石川 善恵、藤原 英樹 : 「サブミクロン球状粒子の作製とその光学応用」、第58回日本学術会議材料工学連合講演会、京都テルサ (2014-10)

１６）酒井 恭輔*、山本 岳明、野村 健介、竹内 雄哉、笹木 敬司 :「プラズモンセンサーへ向けた多重極子モードの解析」、2014年光化学討論会、北海道大学 札幌キャンパス (2014-10)

１７）R. Niyuki*, H. Fujiwara and K. Sasaki : “Development of unique random laser”, Belgium and Japan Joint Symposium on Nanoplasmonics and Nanoimaging Chemistry, Hokkaido University, Sapporo (2014-10)

１８）K. Sasaki* : “Photon nano-shaping with plasmonic angular-momentum control”, Belgium and Japan Joint Symposium on Nanoplasmonics and Nanoimaging Chemistry, Hokkaido University, Sapporo (2014-10)

１９）H. Fujiwara* : “Approach to control of the light emitting devices based on nanoparticles”, Belgium and Japan Joint Symposium on Nanoplasmonics and Nanoimaging Chemistry, Hokkaido University, Sapporo (2014-10)

２０）S. Ishida* and K. Sasaki : “Fabrication of graphene nano-disk and analysis of their optical properties”, Belgium and Japan Joint Symposium on Nanoplasmonics and Nanoimaging Chemistry, Hokkaido University, Sapporo (2014-10)

２１）石田 周太郎*、関根 裕明、笹木 敬司 : 「電子ビーム描画を用いたグラフェンナノディスクの作製と光学特性評価」、2014年 第75回応用物理学会秋季学術講演会、北海道大学 札幌キャンパス (2014-09)

２２）煮雪 亮*、藤原 英樹、笹木 敬司 : 「ダイヤモンドナノ粒子薄膜におけるランダムレーザー発振特性の改善」、2014年 第75回応用物理学会秋季学術講演会、北海道大学 札幌キャンパス (2014-09)

２３）山本 岳明*、 酒井 恭輔、 竹内 雄哉、笹木 敬司 : 「金ナノディスク周期構造における六重極子プラズモンモード」、2014年 第75回応用物理学会秋季学術講演会、北海道大学 札幌キャンパス (2014-09)

２４）竹井 涼*、酒井 恭輔、笹木 敬司 : 「2次元ナノギャッププラズモンによるナノ光渦の生成」、2014年 第75回応用物理学会秋季学術講演会、北海道大学 札幌キャンパス (2014-09)

２５）R. Niyuki*, Y. Ishikawa, T. Tsuji, H. Fujiwara and K. Sasaki : “Random lasing at a defect in a ZnO nanoparticle film”, IONS Asia 5 Hokkaido, Hokkaido University, Sapporo (2014-09)

２６）R. Takei*, K. Sakai and K. Sasaki : “Enhanced optical activity of chiral molecules in 2-D nanogap plasmonic fields”, IONS Asia 5 Hokkaido, Hokkaido University, Sapporo (2014-09)

２７）S. Ishida*, T. Wada, R. Tanaka and K. Sasaki : “Nanoparticle trapping using plasmonic nanostructure and potential analysis”, 1st Optical Manipulation Conference(OMC) ’14, PACIFICO Yokohama (2014-04)

２８）K. Sakai*, K. Nomura and K. Sasaki : “Angular momentum transfer from photons to plasmons”, 1st Optical Manipulation Conference(OMC) ’14, PACIFICO Yokohama (2014-04)

２９）H. Kawagoe*, S. Ishida, M. Aramaki, Y. Sakakibara, E. Omoda, H. Kataura and N. Nishizwa : “Improvement of Sensitivity and Penetration Depth in Ultrahigh-resolution Optical Coherence ”, Advanced Lasers and Photon Sources (ALPS) ’14, PACIFICO Yokohama (2014-04)

4.8　シンポジウムの開催

１）　笹木 敬司 : 「物質・デバイス領域共同研究拠点特定研究[A-1]公開ワークショップ」、20人、大阪大学吹田キャンパス 銀杏会館 (吹田市) (2015年02月24日)

２）　K. Sasaki : “Belgium and Japan Joint Symposium on Nanoplasmonics and Nanoimaging Chemistry”, 50人, Hokkaido University (Sapporo) (2014年10月10日)

３）　伊藤 肇、藤原 英樹 : 「第2回物質と光作用シンポジウム」、20人、北海道大学遠友学舎 (札幌) (2014年09月14日～2014年09月15日)

4.9　共同研究

１）辻剛志 (九大先導研)「均一化ナノ粒子を用いたランダムレーザー発振制御に関する研究」(2012 年 9 月～現在)

２）越崎直人、石川善恵 (産総研)「サブミクロン球状粒子のランダムレーザー応用に関する研究」(2012 年 10 月～現在)

３）中村俊博 (群馬大)「局在モード制御されたランダムレーザー発振の状態解析に関する研究」(2013 年 4 月～現在)

4.10　予算獲得状況 (研究代表者、分類、研究課題、期間)

ａ．　科学研究費補助金

１）　笹木 敬司、基盤研究 A 一般、局在プラズモン角運

動量制御による光ナノシェーピング、2014～2017 年度

2） 笹木 敬司、萌芽研究、光駆動ファノ共鳴ダイナミックモード原子間力顕微鏡、2014～2015 年度

3） 笹木 敬司、基盤研究 A 一般、もつれ合い局在プラズモンによる超高効率 2 光子反応プロセス 、2011～2014 年度

c． 大型プロジェクト・受託研究

1） 藤原 英樹、公益財団法人 村田学術振興財団、ダイヤモンドナノ粒子を用いた紫外ランダムレーザー光源開発とその高効率化に関する研究、2014～2015 年度

2） 石田 周太郎、公益財団法人 村田学術振興財団、グラフェンナノドットアレイ構造を用いた可視光増強場デバイスの開発、2014 年度

4.12 社会教育活動

a．公的機関の委員

1） 藤原 英樹 ：科学研究費委員会専門委員 （2013年12月01日～2014年11月30日）

2） 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 （2014年06月20日～2016年03月31日）

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年05月26日～2016年03月31日）

4） 笹木 敬司 ：日本学術振興会産学協力研究委員会「フォトニクス情報システム第179委員会」委員 （2006年04月01日～2016年03月31日）

b．国内外の学会の役職

1） 笹木 敬司 ：第75回応用物理学会学術講演会 現地実行委員 （2014年09月17日～2014年09月20日）

2） 藤原 英樹 ：第75回応用物理学会学術講演会 現地実行委員 （2014年09月17日～2014年09月20日）

3） 藤原英樹：光科学異分野横断萌芽研究会 組織委員 (2013年4月～2015年3月)

c．兼任・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 年 04 月 01 日～2016 年 03 月 31 日）

e．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､光情報システム学特論､笹木 敬司、2014 年 10 月 01 日～2015 年 03 月 31 日

2） 工学部、電磁気学、藤原 英樹、2014 年 10 月 01 日～2015 年 03 月 31 日

3） 工学部、光エレクトロニクス、笹木 敬司、2014 年 04 月 01 日～2014 年 09 月 30 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、2014 年 04 月 01 日～2015 年 03 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、2014 年 04 月 01 日～2015 年 03 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、2014 年 04 月 01 日～2015 年 03 月 31 日

7） 情報科学研究科、電子情報工学実験 III、酒井 恭輔、2013 年 4 月 1 日～2014 年 9 月 30 日

8） 情報科学研究科、電子情報工学実験IV、酒井 恭輔、2013年10月1日～2015年3月31日

9） 情報科学研究科、電子情報工学実験VI、藤原 英樹、2013年10月1日～2015年3月31日

f．ポスドク・客員研究員など

・ポスドク（1名）：

1） 田中嘉人（電子科学研究所博士研究員）

g．修士学位及び博士学位の取得状況

修士学位（3名）：

1） 山本 岳明 ：金ナノ周期構造における多重極子プラズモンモードの解析 ～結晶配置と点欠陥～

2） 竹井 涼 ：プラズモン角運動量制御によるナノ光成形に関する研究

3） 安田 有輝 ：白色光照明を用いた局在プラズモン場の分光ナノイメージング

光量子情報研究分野

准教授　辻見裕史（北大院、理博、2007.6～）
院　生
博士課程
柳澤朋李
修士課程
中村翔太、鈴木俊介

１．研究目標

本研究分野では、電子材料の相転移に伴って顕在化する高機能性の発現機構を原子振動レベルから解明することを目的に、フェムト秒、ピコ秒パルスレーザーを用いた実時間領域光散乱法とCWレーザーを用いたラマン、ブリルアン、ハイパーラマン分光による周波数領域光散乱法とを相補的に使用して実験研究を行っている。研究対象は幅広く、強誘電体結晶、量子常誘電体結晶、リラクサー、ガラス、複雑液体等を扱っている。

２．研究成果

(a)　$SrTiO_3$におけるブロード・ダブレットの起源

$SrTiO_3$では常圧で0～40 Kという広い温度範囲で量子常誘電状態が実現されており、この状態においてブロード・ダブレット(BD) という特異な光散乱ピークが観測されている[1]。BDは通常の物質では決して存在し得ない励起ピークであり、量子常誘電状態だけに現れる新素励起かも知れないと大いに興味が持たれている。研究目的は、BDの物理的起源の解明にある。ところで、$SrTiO_3$の[010]cや[110]c方向に一軸性圧力σを印加して行くと、量子常誘電状態から量子強誘電状態に移行することが報告されている [2, 3]。この移行に伴うBDの挙動から、その起源に関する知見を得るために、温度T= 16.5 K、一軸性圧力下で180° 光散乱実験を行った。散乱ベクトル$\boldsymbol{q}$ の方向は[001]cとした。

図1(a)は、光散乱スペクトルの[010]c一軸性圧力依存性である。常圧のスペクトル（図1(a)最上段）を見ると、BDが約20 GHz、LAモードが約75 GHzに存在する。圧力を増加すると、BDの強度が臨界圧力σ_c= 12.3 kgf/mm^{2}以上で増大する。また、横波音響P1モードがσ_c以上でのみで約40 GHzに現れる。BDとP1モードはσ_c以上で、いずれも強度が増すので、似た圧力依存性を示している。また、BDとP1モードはσ_c以上でほぼ同じ偏光特性を示す。これらも考慮すると、P1モードとBDの物理的起源は、それぞれ、$SrTiO_3$“結晶母体”と“極性領域”（母体中に分散している領域）とを伝搬する横波音響波であると結論づけた。

図1(b)は光散乱スペクトルの[110]c一軸性圧力依存性である。常圧においてBDが現れているが、圧力を増加すると強度が減少して観測できなくなる。また、P1モードは臨界圧力（高くてもσ=78.0 kgf/mm^{2}より低い圧力）以上でも現れない。すなわち、BDと横波P1モードは[110]c圧力印加においても、互いに似た挙動を示す。

[010]c一軸性圧力の場合は、σ_c以上で$SrTiO_3$の結晶母体の対称性が単斜晶になるので、横波音響波P1モードが観測できたけれども、[110]c一軸性圧力の場合は、対称性が斜方晶になるのでP1モードが観測できなかったと考えられる。一方、BDに関しては、[010]c一軸性圧力の場合は臨界圧力で強誘電性E_uソフトモードが凍結すると、BDが伝搬する極性領域が拡大するので、その強度を増すが、[110]c一軸性圧力の場合は、このソフトモードが凍結しないので、BDの強度が増大しないと結論付けた。

[1] B. Hehlen *et al.*; PRL **12** (1995) 2416. [2] H. Uwe and T. Sakudo; PRB **13** (1976) 271. [3] Y. Fujii *et al.*; JPSJ *56* (1987) 1040.

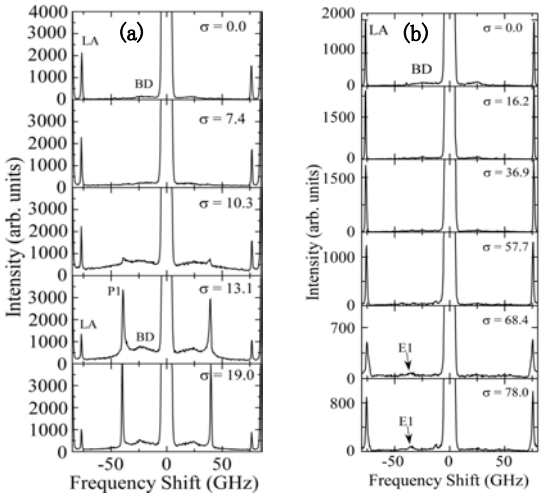


図 1(a)　180° 光散乱実験における[010]$_c$一軸性圧力依存性（偏光：HH）(b)　180° 光散乱実験における[110]$_c$一軸性圧力依存性（偏光：HH+HV）

(b)　$KTaO_3$におけるブロード・ダブレットの起源

$KTaO_3$は $SrTiO_3$ と共に、室温で ABO_3 型ペロフスカイト構造を持つ誘電体として有名な物質の一つである。$KTaO_3$においても、常圧で 0～30 K という温度範囲で量子常誘電状態が実現されており、この状態においてブロード・ダブレット(BD) が観測されている[4]。研究の目的は BD の物理的起源が$SrTiO_3$のものと同じなのか否かを明らかにすることである。このために、温度 T= 15.5 K、[010]c 一軸性圧力下で 90° 光散乱実験を行った。散乱ベクトル $\boldsymbol{q}$ の方向は[001]c に取った。

図 2 は光散乱スペクトルの[010]c 一軸性圧力依存性である。常圧のスペクトル（図 2 の最上段）をみると、周波数が低いほうから BD、TA モードと LA モードが見える。一軸性圧力を印加していくと BD の強度が小さくなり、臨界圧力（σ_c = 47 ～ 58 kgf/mm^2）以上において BD が消えて行く。σ_c以上では、結晶母体の対称性が斜方晶になるので、BD も P1 も観測できなかったと解釈できる。BD と P1 の挙動は、[110]c 方向に一軸性圧力を掛けた $SrTiO_3$ の場合と同

じなので、E_uソフトモードの一軸性圧力に対する挙動が関係しているのかも知れないと考えている。

一方、正体不明のS1ピークがσ_c以上のみで現れる。このピークの起源を明らかにするために、σ_c以上で光偏光特性を調べた。その結果、S1はc_{44}、c_{55}横波音響波（TA、TA1、TA2）ではなくて、HH偏光の時だけ現れる特異なピークであることは分かったが、その同定はできていない。

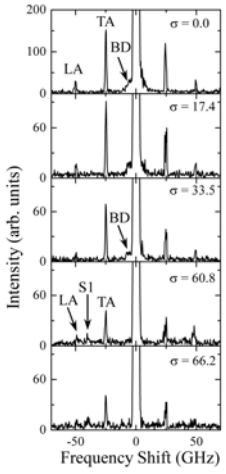


図 2　90° 光散乱実験における[010]$_c$一軸性圧力依存性（偏光：VV+VH）

[4] E.Farhi: THESE d'UNVERSITÉ MONTPELLIER (1998).

3．今後の研究の展望

量子常誘電体の量子誘電状態は、量子ゆらぎと電気双極子・双極子相互作用が拮抗してる、いわゆる量子臨界領域である。この事実をもとに。Nbドープ$SrTiO_3$ですでに発見されている超伝導と、$SrTiO_3$の電界効果による超伝導の発現機構を、量子臨界領域における長さと時間のスケールの観点から議論しようとしている。さらに、電場誘起の$SrTiO_3$の２次元超伝導状態の発現機構は、強相関電子系金属の量子臨界領域での超伝導状態のものと相似性がある。そして後者の場合、電子準粒子間の相互作用が２次元的であれば、スピン相関の相関時間は発散するものの、相関距離は有限にとどまる（局所的）という理論が提案されているのも興味深い。Nbドープ$SrTiO_3$においても「ブロード・ダブレットから求まる量子常誘電状態を特徴づける長さのスケールは100 nm程度（局所的）であるが、時間のスケールは1000秒程度（発散傾向）である」という我々が見いだしている実験事実との類似性に着目すれば、誘電体であれ金属であれ、量子臨界領域近傍における超伝導状態の発現機構を時空間スケーリングの観点から統一的に解釈できると予想しており、これを実験的に実証してゆく。

4．資料

4.1　講演

a. 招待講演

ｉ）学会

１）S. Nakamura and Y. Tsujimi*: “Broad Doublet Spectra in the Quantum Paraelectric State of $SrTiO_3$”, 12th Russia/CIS/Baltic/Japan Symposium on Ferroelectricity (Riga, Latvia, September 29–October 2, 2014).

b. 一般講演

ｉ）学会

１）中村翔太*、辻見裕史：「一軸性圧力下における量子常誘電体のブロードダブレット光散乱スペクトルⅢ」、日本物理学会第70回年次大会、早稲田大学(2015-03).

4.2　受賞

１）中村翔太　日本物理学会第70回年次大会（2015年）領域10学生奨励賞

4.3　社会教育活動

a. 北大での担当授業科目

１）理学部物理学科、相転移物性物理学（物質構造と構造相転移Ⅰ）、辻見裕史、2013年前期集中講義

２）理学部物理学科、相転移物性物理学（物質構造と構造相転移Ⅱ）、辻見裕史、2013年後期集中講義

b. 修士学位及び博士学位の取得状況

・修士課程（1名）

１）中村 翔太（北海道大学理学院研究科）

c. その他

１）障碍者支援機器開発にボランティア参画
http://dekimouse.org/wp/kiki/dekiipad/

コヒーレント光研究分野

教　授　西野吉則（阪大院、理博、2010.4～）
助　教　木村隆志（阪大院、工博、2011.4～）
　　吉田力矢（岡大院、理博、2014.4～）
技術補助員　倉本真弓（2012.10～）
事務補助員　齋藤優希（2013.1～2014.6）
　　山崎涼子（2014.7～）
院生　Krishna Khakurel（DM2）、川村 仁志（MC2）、
　　佐尾 真侑（MC2）、藤澤 勇太（MC2）、
　　佐々木智也（MC1）、高畠雄輝（MC1）、
　　山本耕平（MC1）

１．研究目標

X線は、伝統的に、結晶試料に対する原子構造解析に威力を発揮してきた。さらに、位相の揃ったコヒーレントX線を用いることにより、例えば、細胞や細胞小器官など、結晶化できない試料に対しても、高空間分解能での構造解析への扉が開く。X線の高い透過性を活かすことにより、透過電子顕微鏡では困難な、マイクロメートルを超える厚みのある試料も、薄切片にする必要なく、丸ごと3次元的にイメージングできる。これにより、試料が機能する自然な状態に近い内部構造の観察が実現する。

本研究分野では、放射光や自由電子レーザーなどの先端的短波長コヒーレント光源の特徴を最大限活かし、マクロな世界から原子の世界までをイメージングする基礎および応用研究を展開する。これは、我々にとって関心の対象となるマクロな機能を、原子・ナノ構造と結びつけて理解する上で極めて重要であり、生命科学から物質科学に至る幅広い科学分野で、新しい科学的知見を与えるブレークスルーをもたらすと期待する。

２．研究成果

(a)　Ｘ線自由電子レーザーを用いた複雑系生体分子の構造可視化に向けた研究

新世代のX線であるＸ線自由電子レーザー（XFEL）を用いた複雑系生体分子の構造可視化を目指して、我々の研究グループでは、パルス状コヒーレントＸ線溶液散乱（PCXSS）法を独自に提案し、その構築を進めている。XFELがフェムト秒オーダーのパルス幅をもつことを利用して、Ｘ線照射による試料の損傷プロセスの時間スケールよりも短い露光で、溶液中で自然な状態にある生物試料をスナップショットイメージングすることを目標とする。

PCXSS法では、生物試料を溶液中で自然な状態に保つことのできる環境セルチップを用いる。環境セルチップは、窒化ケイ素薄膜をＸ線の入出射窓とするシリコン基板を2枚貼り合わせて、その間の微小ギャップに溶液試料を封じ込める構造をもつ。環境セルチップに大強度の集光XFELビームを照射すると、シングルショットで窒化ケイ素薄膜の窓が破壊される。このため、高いデータ取得効率で測定を行うためには、1枚のチップに多数の環境セルを集積した環境セルアレイが必要となる（図1）。環境セルアレイチップの作製には、北海道大学のクリーンルーム内のナノ加工装置類を利用した。

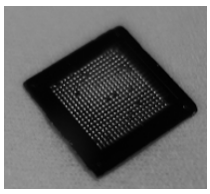


図１　開発した高集積度環境セルアレイチップ

平成26年度は、環境セルアレイチップの組み立てにおいて2つのシリコン基板を精度良くアライメントする環境セルアレイチップアライメント装置やチップ洗浄自動化装置などの開発を行った。

PCXSS法は生物試料のみならず、溶液中でのみ構造を保ち機能する物質材料の、溶液中ナノイメージングにも威力を発揮する。一例を挙げると、生体分子デバイス研究分野との共同で行った、水中で自己集合したヤヌス様金ナノ粒子体の、PCXSS法によるナノイメージングがある。本試料は、ドラッグデリバリー等への応用を目指して開発された。表面の半分が親水性、もう半分が疎水性をもつヤヌス様の金ナノ粒子（直径 5 nm）を、単純な配位子交換によって作製する新たな手法を開発した。そして、このヤヌス様金ナノ粒子が水中で 160 nm 程の大きさに自己集合することを見いだした。従来の電子顕微鏡では、水中の試料の観察は困難であり、また試料を基板上で乾燥させると構造が保たれない懸念がある。そこで、当研究分野が構築したPCXSS法によって、水中のナノ構造を放射線損傷なくイメージングした。測定はX線自由電子レーザー施設 SACLA で行った。環境セルアレイチップにヤヌス様金ナノ粒子自己集合体の水溶液を封入し、パルス幅 10 fs 程、光子エネルギー4.0 keV のXFELをマイクロメートルサイズに集光して、1 パルス照射した。図2（左）に実験で得られたシングルショットのコヒーレント回折パターンを示す。さらに、計測したコヒーレント回折パターンに、反復的位相回復法を適用することにより図２（右）に示す試料像を得た。PCXSS法でイメージングした試料像は、150 nm 程の大きさをもち、動的光散乱法の実験による 160±50 nm という結果と一致した。一方、走査透過電子顕微鏡で観察した乾燥

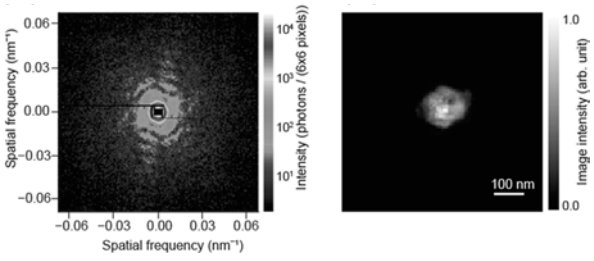


図２　ＰＣＸＳＳ法による水中のヤヌス様金ナノ粒子自己集合体のナノイメージング

した試料は 200 ～800 nm の直径があり、乾燥により試料が変形した事が示唆された。PCXSS法で観察した試料は、でこぼこの表面をした不定形の球形である。先行研究における計算機シミュレーションでは、ヤヌス様粒子は、ウォーム（昆虫の幼虫）の様な形状に自己集合することが示されていることから、今回作製したヤヌス様金ナノ粒子がつぎはぎ構造をしていることが推察される。本研究内容を論文にまとめ、Langmuir 誌に掲載された（R. Iida *et al.*, Langmuir 31, 4054−4062 (2015).）。

さらに、PCXSS法の産業応用を開始した。平成26年度より公募が始まった、SACLA 産学連携プログラムにトヨタ自動者株式会社と共同で申請し（課題名「XFELを用いた自動車用ナノマテリアルの形態や状態の把握」）採択された。平成26年度は、SACLAを用いて、リチウムイオン電池や自動車触媒に用いられるナノ材料に対するPCXSS測定を行ったほか、リチウムイオン電池に対する *in situ* XAFS測定を行った。

(b) コヒーレントＸ線を用いた走査透過Ｘ線顕微鏡システムの構築

放射光X線の優れた性能を最大限に活用した顕微鏡として、電子密度マッピング機能と、元素、化学結合状態の分析機能を併せもつ走査・透過X線顕微鏡システムの構築を大阪大学グループと共同で進めている。本顕微鏡システムでは、コヒーレントX線の波面を制御することで、X線強度の損失無しで、X線のビームサイズを自由自在にマイクロからナノレベルまで変えることができる。ビームサイズ制御には、色収差のない、形状可変アダプティブ全反射集光鏡を用いる。この顕微鏡システムの生命科学分野への展開として、広範ながんに治療効果が認められる白金製剤の作用機序の解明を目指している。

本顕微鏡は 2 段のアダプティブ KB 集光システムによって構成される。平成26年度は、第一焦点に設置するアポダイゼーションスリットの開発を行った。第一焦点におけるビームウエストの光軸方向の長さはおよそ 1 mm である。このビームウエスト中に4象限スリットを置けるよう、直径 200 μm の金ワイヤ4本から構成されたアポダイゼーションスリットを作製した。4本の金ワイヤのうち 2 本を XZ ピエゾステージに据え付け、スリットの開口を 1 nm 精度で制御可能な機構とした。

作製したアポダイゼーションスリットを硬X線アダプティブ KB 集光システムに組込み、SPring-8 において大阪大学グループと共同で性能評価実験を行った。第一焦点のアポダイゼーションスリットを制御することにより、第二焦点の集光ビームプロファイルのサテライトピークを低減可能なことを確認した。

さらに、アポダイゼーションスリットを組み込んだ硬X線アダプティブ KB 集光システムを用いて、走査型蛍光X線顕微鏡実験を行った（図3）。アダプティブ KB 集光システムを用いて形成した硬Ｘ線集光ビームを、クロム製のライン＆スペース（5 μm 幅、5 nm 厚）のテストパターンに照射し、アポダイゼーションスリットの有無による測定結果の違いを調べた。テストパターンは、北大の電子ビーム描画装置（エリオニクス　ELS-F125-U）を利用して、200 nm の窒化ケイ素薄膜上に作製した。アポダイズ集光ビーム照明によって蛍光Ｘ線シグナルのバックグラウンドが低減され、ライン＆スペースのコントラスト比が非アポダイズ集光ビーム照明時と比較しておよそ三倍向上することを確認した。

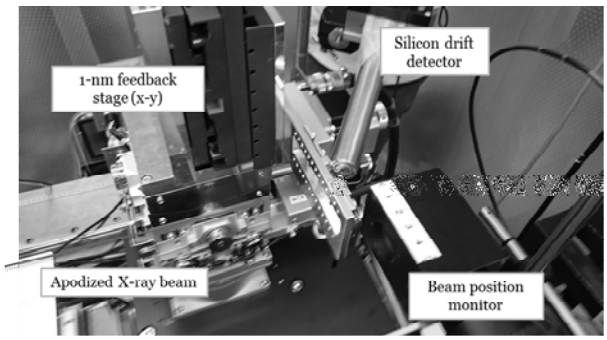


図３　新たに構築した硬Ｘ線アポダイズ集光ビームを用いた走査型蛍光Ｘ線顕微鏡ユニット

また、2 段のアダプティブ KB 光学系により実現される集光ビームを用いると、非孤立試料にも適用可能なアポダイズ照明コヒーレント回折イメージングが実現する。平成25年度までに、第一焦点の空間フィルターを制御し、X線集光ビームの照射関数をコヒーレントX線回折イメージングに適するようアポダイズ可能なことを、波動光学シミュレータにより確認している。アポダイズ照明を利用することにより、細胞のような非一様な電子密度分布がある試料に対しても、試料像の再構成が可能であることをシミュレーションにより示した。

また、アポダイズ照明コヒーレント回折イメージングの実証実験を、可視光レーザーを用いて進めている。平成25年度までに、二段集光光学系を用いて第一焦点のアポダイゼーションスリットの開口を制御することにより、第二焦点の集光ビームをアポダイゼーション可能なことを確認している。平成26年度は、第二焦点におけるアポダイズ集光ビームをテストパターンに照射し、計測したコヒーレント回折パターンから、アポダイズ照明された部分の試料像の再構成を試みた。従来の非アポダイズ集光ビームを用いた再構成像は、全体的に不明瞭であるのに対し、新たに開発したアポダイズ集光ビームを用いた再構成像では大幅な改善がみられた。

(c) 超高速光誘起構造変化の動画イメージング

新規X線源であるXFELは、フェムト秒オーダーのパルス幅をもつため、これまで困難であった原子レベルの位置敏感性をもった超高速測定が可能となる。XFELのこの特徴を活かし、光誘起構造変化をピコ・フェムト秒の時間分解能で動画観察することを目指した研究を進めている。研

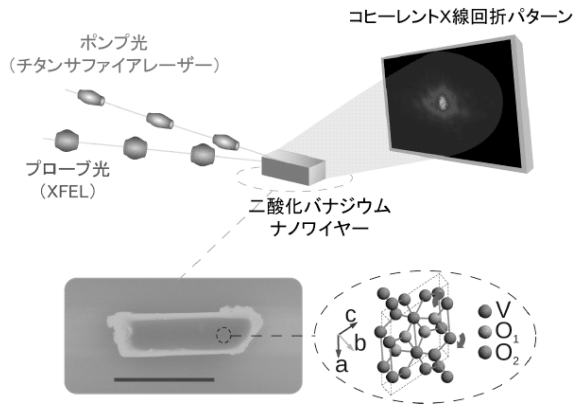


図４　ポンププローブ法とコヒーレントＸ線回折を組み合わせた実験の模式図

究では、サブミクロンサイズの結晶材料中の格子歪み分布をイメージングできるブラッグ反射配置X線回折顕微法と、超高速時間分解測定法であるポンプープローブ法を組み合わせた手法を用いる。図4に実験の模式図を示す。

平成26年度は、平成25年度までに行った二酸化バナジウムナノワイヤーが起こす金属-絶縁体相転移に伴う構造相転移に対する時間分解コヒーレントX線回折実験の結果を論文にまとめ、Nano Letters 誌に掲載された（M. C. Newton *et al.*, Nano Lett. 14, 2413-2418 (2014).）。

さらに、関連する実験として、二酸化バナジウムに対して、大型放射光施設 SPring-8 において、X線照射に伴う試料構造のゆっくりとした数百秒スケールでの変化をコヒーレントX線回折実験によって調べる研究を行った。実験により、X線照射による鋭い端面をもった金属ドメインの出現を示唆する、コヒーレントX線回折パターンが得られた。

３．今後の研究の展望

XFELは現在、日本とアメリカの2カ所でのみ利用可能な先端的光源である。日本のXFEL施設SACLAは、平成24年3月に供用運転が開始され、当研究分野ではこの新規光源を利用した研究を推進している。具体的には、溶液中で自然な状態にある生物試料をイメージングする研究や、溶液中でのみ構造を保ち機能を発揮するナノ物質をイメージングする研究や、原子レベルの位置敏感性とフェムト秒の時間分解能を併せ持つ未踏のイメージングを行う研究を行った。研究は順調に進んでおり、さらなる論文発表を目指す。

放射光を用いた研究では、コヒーレントＸ線を用いた走査透過Ｘ線顕微鏡システムの開発と、生物学や医療をターゲットにしたイメージング研究を引き続き推し進める。

また、平成26年度より開始した、トヨタ自動車株式会社との共同研究を、さらに広範なＸ線解析手法に広げ、展開する。

４．資料

4.1　学術論文等

1）T. Goto, H. Nakamori, T. Kimura, Y. Sano, Y. Komura, K. Tamasaku, M. Yabashi, T. Ishikawa, K. Yamauchi and S. Matsuyama : “Hard X-ray nanofocusing using adaptive focusing optics based on piezoelectric deformable mirrors”, *Rev. Sci. Instrum.*, 86(4): 043102 (2015)

2) T. Ishiga, T. Wakita, R. Yoshida, H. Okazaki, K. Tsubota, M. Sunagawa, K. Uenaka, K. Okada, H. Kumigashira, M. Oshima, K. Yutani, Y. Muro, T. Takabatake, Y. Muraoka and T. Yokoya : “Electronic Structure of CeM_2Al_{10} (M = Fe, Ru, and Os) Studied by Soft X-ray Resonant and High-resolution Photoemission Spectroscopies”, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 83 (9): 094717 (2014)

3) R. Yoshida, T. Yamamoto, Y. Ishida, H. Nagao, T. Otsuka, K. Saeki, Y. Muraoka, R. Eguchi, K. Ishizaka, T. Kiss, S. Watanabe, T. Kanai, J. Itatani and S. Shin : “Ultrafast Photoinduced Transition of an Insulating VO_2 Thin Film into a Non-Rutile Metallic State”, *Phys. Rev. B*, 89(20) : 205114 (2014)

4) T. Someya, H. Fukidome, Y. Ishida, R. Yoshida, T. Iimori, R. Yukawa, K. Akikubo, S. Yamamoto, S. Yamamoto, T. Yamamoto, T. Kanai, K. Funakubo, M. Suemitsu, J. Itatani, F. Komori, S. Shin and I. Matsuda : “Observing hot carrier distribution in an n-type epitaxial graphene on a SiC substrate”, *Appl. Phys. Lett.*, 104 (16): 161103 (2014)

5) M. C. Newton, M. Sao, Y. Fujisawa, R. Onitsuka, T. Kawaguchi, K. Tokuda, T. Sato, T. Togashi, M. Yabashi, T. Ishikawa, T. Ichitsubo, E. Matsubara, Y. Tanaka and Y. Nishino : “Time-Resolved Coherent Diffraction of Ultrafast Structural Dynamics in a Single Nanowire”, *Nano Lett.*, 14(5) : 2413-2418 (2014)

4.2　総説・解説・評論等

1）西野 吉則、木村 隆志、城地 保昌、別所 義隆 : 「X線自由電子レーザーによる生きた細胞のナノイメージング」、放射光、28(1) : 18-24 (2015)

2）西野 吉則 : 「X線自由電子レーザーが拓く生きた細胞のナノレベル観察」、科学、岩波書店、85(1) : 76-78 (2014)

3）木村 隆志、城地 保昌、別所 義隆、西野 吉則 : 「フェムト秒X線レーザーによる溶液中の生きた細胞観察」、応用物理、83(10) : 830-833 (2014)

4）西野 吉則 : 「X線自由電子レーザーを用いて超高速構造変化を原子レベルで観察に成功」、セラミックス、49(10) : 906 (2014)

5）K. Maeshima, Y. Nishino and Y. Joti : “Irregular organization in the human chromosomes revealed by X-ray scattering”, *SPring-8 Research Frontieres 2013*: 32-33

(2014)

6）西野 吉則、木村 隆志、城地 保昌、別所 義隆：「X線レーザーによるナノレベルでの生きた細胞内部の観察」、Isotope News、(723)：2-4 (2014)

4.3 国際会議議事録等に掲載された論文

1）T. Goto, S. Matsuyama, H. Nakamori, T. Kimura, Y. Sano, Y. Komura, K. Tamasaku, M. Yabashi, T. Ishikawa and K. Yamauchi：“Development of a one-dimensional two-stage focusing system with two deformable mirrors”, *Proceedings of SPIE*, 9208：920802 (2014)

4.4 著書

1）西野 吉則：「X線・軟X線顕微鏡技術開発の最前線と生命科学への応用」、強光子場の化学 分子の超高速ダイナミクス（CSJ カレントレビュー18）、化学同人、日本化学会編：129-133 (2015)

2）西野 吉則：「X線・放射光利用による分析」、マイクロビームアナリシス・ハンドブック、オーム社、日本学術振興会 マイクロビームアナリシス第141委員会編：476-482 (2014)

4.5 講演

a．招待講演

ⅰ）学会

1）西野 吉則*、木村 隆志、城地 保昌、別所 義隆：「X線レーザー回折による生きた細胞のスナップショットイメージング」、第 63 回高分子討論会、長崎大学文教キャンパス (2014-09)

2）Y. Nishino*, T. Kimura, Y. Joti and Y. Bessho：“Imaging live cells by X-ray laser diffraction”, the 18th International Microscopy Congress (IMC 2014), Prague, Czech Republic (2014-09)

ⅱ）研究会・シンポジウム・ワークショップ

1）Y. Nishino*：“Nano Imaging Under Controlled Environment Using X-ray Free-Electron Lasers”, The 1st Joint Workshop between Institute of Physics(IOP), Academia Sinica & Research Institute for Electronic Science(RIES), Hokkaido University (The 1st IOP-RIES Joint Workshop), 北海道大学 (2015-03)

2）Y. Nishino*：“Live cell nano-imaging free from radiation damage by using X-ray free-electron laser”, 文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム第 13 回ナノテクノロジー総合シンポジウム開催（JAPAN NANO 2015）, 東京ビッグサイト (2015-01)

3）木村 隆志*、城地 保昌、別所 義隆、西野 吉則：「パルス状コヒーレントX線溶液散乱法のための溶液試料ホルダの開発」、第 13 回ナノテクノロジー総合シンポジウム、東京ビッグサイト (2015-01)

4）西野 吉則*：「X線自由電子レーザーによる環境制御ナノイメージング」、2014 年度第 2 回バイオ単分子研究会、軽井沢 (2014-12)

5）木村 隆志*、城地 保昌、別所 義隆、西野 吉則：「X線自由電子レーザーによる液中試料のコヒーレントX線回折イメージング」、第10回励起ナノプロセス研究会、ホテルニセコいこいの村 (2014-09)

6）Y. Nishino*：“Coherent imaging by x-ray laser diffraction”, The 2nd international Science at FELs Conference, Villigen, Switzerland (2014-09)

7）木村 隆志*：「X線自由電子レーザーを用いた溶液中試料イメージング法の開発」、JSPS マイクロビームアナリシス第 141 委員会 第 157 回研究会、名城大学 名駅サテライト (2014-09)

8）木村 隆志*、城地 保昌、別所 義隆、西野 吉則：「超短パルスX線レーザーによる溶液中試料構造の可視化と応用」、放射光学会第6回若手研究会、SPring-8 (2014-08)

9）Y. Nishino*：“Controlled environment nano imaging using X-ray free-electron laser”, Workshop on Advanced Bio-structure Imaging, Institute of Physics, Academia Sinica, Taiwan (2014-05)

ⅲ）コロキウム・セミナー等・その他

1）吉田 力矢*：「放射光及び先端光源を用いた機能性材料の物性解析」、電子科学研究所 平成 26 年度 研究交流会、札幌 (2015-01)

2）西野 吉則*：「X線レーザーで観た、生きた細胞」、「国民との科学・技術対話推進事業」北海道立札幌西校等学校出張講義、北海道立札幌西校等学校 (2014-10)

3）西野 吉則*：「X線レーザーで観た、生きた細胞」、「国民との科学・技術対話推進事業」北海道立札幌西校等学校出張講義、北海道立札幌西校等学校 (2014-10)

4）西野 吉則*：「X線レーザーで観た、生きた細胞」、「北海道札幌西高等学校スーパーサイエンスハイスクール事業」出張講義、北海道札幌西高等学校 (2014-07)

5）西野 吉則*：「X線レーザーで観た、生きた細胞」、「SPring-8 施設公開」科学講演会、SPring-8 (2014-04)

b．一般講演

ⅰ）学会

1）于 健*、城地 保昌 、木村 隆志、別所 義隆、西野 吉則：「Simulating XFEL diffraction patterns of biomolecular complexes for pulsed coherent X-ray solution scattering」、第 28 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、立命館大学びわこ・くさつキャンパス (2015-01)

2）佐々木 智也*、木村 隆志、城地 保昌、別所 義隆、西野 吉則：「多様な溶液内生物試料イメージングに向けたパルス状コヒーレントX線溶液散乱法の高度化」、第 28 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、立命館大学びわこ・くさつキャンパス (2015-01)

3）高畠 雄輝*、木村 隆志、山崎 憲慈、前原 洋祐、城地 保昌、別所 義隆、郷原 一寿、西野 吉則：「グラフェン隔膜環境セルを用いたコヒーレントX線イメージング」、第 28 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、立命館大学びわこ・くさつキャンパス (2015-01)

4）クリシュナ プラサード カクレル*、木村 隆志、城地 保昌、松山 智至、山内 和人、西野 吉則：「Development of non-interferometric single-shot quantitative phase imaging」、第 28 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、立命館大学びわこ・くさつキャンパス (2015-01)

5）木村 隆志*、川村 仁志、佐々木 智也、高畠 雄輝、城地 保昌、別所 義隆、西野 吉則：「パルス状コヒーレントX線溶液散乱法による SACLA での溶液試料イメージング実験」、第 28 回日本放射光学会年回放射光科学合同シンポジウム、立命館大学びわこくさつキャンパス (2015-01)

6）吉田 力矢*、山本 貴士、石田 行章、長尾 浩樹、大塚 翼、佐伯 邦成、村岡 祐治、江口 律子、石坂 香子、木須 孝幸、渡部 俊太郎、金井 輝人、板谷 治郎、辛 埴：「Ultrafast Photoinduced Insulator-Metal Transition in VO2 Studied by Time-Resolved Photoemission Spectroscopy」、The 15th RIES-Hokudai International Symposium、札幌 (2014-12)

ⅱ）研究会・シンポジウム・ワークショップ

1）J. Yu, Y. Joti, T. Kimura, Y. Bessho, and Y. Nishino: “Simulating XFEL diffraction patterns of biomolecular complexes for pulsed coherent X-ray solution scattering”, The 15th Ries-Hokudai International Symposium, Châteraisé Gateaux Kingdom Sapporo (2014-12)

2) K. P. Khakurel*, T. Kimura, Y. Joti, S. Matsuyama, K. Yamauchi and Y. Nishino : “Development of non-interferometric single-shot quantitative phase imaging”, The 15th Ries-Hokudai International Symposium, Châteraisé Gateaux Kingdom Sapporo (2014-12)

3) Y. Fujisawa*, R. Yoshida, M. C. Newton, Y. Tanaka, Y. Tanaka, Y. Muraoka, T. Otsuka and Y. Nishino : “Observation of the metal-insulator transition dynamics of vanadium dioxide by using coherent X-rays”, The 15th Ries-Hokudai International Symposium, Châteraisé Gateaux Kingdom Sapporo (2014-12)

4) M. Sao*, T. Kimura, Y. Joti, Y. Bessho and Y. Nishino : “Injection of Live Cells by Superfine Inkjet Printer and its Application to X-ray Laser Diffraction Imaging”, The 15th Ries-Hokudai International Symposium, Châteraisé Gateaux Kingdom Sapporo (2014-12)

5) T. Kimura*, Y. Joti, Y. Bessho and Y. Nishino : “Development of Micro-liqud Enclosure Array for Imaging of Samples in Solution by X-ray Laser Diffraction”, The 15th Ries-Hokudai International Symposium, Châteraisé Gateaux Kingdom Sapporo (2014-12)

6）于 健*、城地 保昌 、木村 隆志、別所 義隆、西野 吉則：「Simulating XFEL diffraction patterns of biomolecular complexes for pulsed coherent X-ray solution scattering」、「附置研究所間アライアンスによるナノとマクロをつなぐ物質・デバイス・システム創製戦略プロジェクト」医療材料・デバイス・システムグループ G3 分科会、九州大学 西新プラザ (2014-11)

7）T. Kimura*, Y. Joti, Y. Bessho and Y. Nishino : “Development of Structure analysis method for non-crystalized sample in solution using Focused X-ray free-electron laser”, Coherence 2014, Northwestern University in Evanston, Illinois, USA (2014-09)

8）西野 吉則*、木村 隆志、吉田 力矢、于 健：「コヒーレントX線イメージング」、「附置研究所間アライアンスによるナノとマクロをつなぐ物質・デバイス・システム創製戦略プロジェクト」平成 25 年度成果報告会、大阪大学 大学会館 (2014-05)

4.6 シンポジウムの開催

1）Y. Nishino: “The 1st Joint Workshop between Institute of Physics (IOP), Academia Sinica and Research Institute for Electronic Science (RIES), Hokkaido University(The 1st IOP-RIES Joint Workshop)” also as “Top-Collaboration Support Project Workshop”, RIES, Hokkaido University (Sapporo)(2015 年 3 月 23 日)

2）T. Nemoto, H. Ohta, Y. Nishino, K. Niikura, Y. Sato, K. Ueno, E. Ginder, T. Hibi, R. Kawakami, T. Kamei, M. Yamanouchi, T. Katase, Y. Yamaguti and Y. Iseya : “The 15th RIES-Hokudai International Symposium on ″響″[hibiki] Joined with The 3rd International Symposium of Nano-Macro Materials, Devices, and System Research Alliance Project ”, 130 人, Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (Sapporo) (2014 年 12 月 16 日～2014 年 12 月 17 日)

4.7 共同研究

ａ．受託研究

1）西野吉則（文部科学省、X線自由電子レーザー重点戦略研究課題）:「パルス状コヒーレントX線溶液散乱による複雑系生体分子の可視化」、2012 年～2016 年度

2）西野吉則（科学技術振興機構、戦略的創造研究推進事業　CREST）:「コヒーレントX線による走査透過X線顕微鏡システムの構築と分析科学への応用」(代表 : 山内和人)、2010～2015年度

3）西野吉則(平成26年度SACLA産学連携プログラム) :「XFELを用いた自動車用ナノマテリアルの形態や状態の把握」、参画機関 : トヨタ自動車株式会社、2014年度

4.8　予算獲得状況

ａ．科学研究費補助金

１）木村 隆志、若手研究 B、生体超分子構造解析を可能にする表面修飾技術応用コヒーレントＸ線回折顕微法の開発、2014～2015 年度

4.9　受賞

１）西野 吉則：北海道大学研究総長賞奨励賞 2015 年 03 月

２）木村 隆志、城地 保昌、別所 義隆、西野 吉則：文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム 平成 25 年度秀でた利用成果「パルス状コヒーレントＸ線溶液散乱法のための溶液試料ホルダの開発」 2015 年 01 月

３）M. Sao, T. Kimura, Y. Joti, Y. Bessho and Y. Nishino : Poster Award “Injection of Live Cells by Superfine Inkjet Printer and its Application to X-ray Laser Diffraction Imaging” （The 15th Ries-Hokudai International Sympo-sium） 2014 年 12 月

4.10　社会教育活動

ａ．公的機関の委員

１）西野 吉則：SACLA ユーザー協同体 評議員 （2013 年 05 月 01 日～現在）

２）西野 吉則：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員 （2013 年 06 月 27 日～現在）

ｂ．併任・兼業

１）西野 吉則：理化学研究所客員研究員 （2010 年 04 月 01 日～現在）

２）木村 隆志：理化学研究所客員研究員 （2010 年 06 月～現在）

３）吉田力矢: 理化学研究所客員研究員 （2014 年 04 月～現在）

ｃ．新聞・テレビ等の報道

１）西野 吉則：放送大学 2015 年 02 月 09 日 「授業科目案内～大学の窓」

２）西野 吉則：北海道新聞 2014 年 09 月 06 日「Academic Fantasista 2014 -エルムの知から、世界を知る-」

４）西野 吉則：JST サイエンスニュース 2014 年 07 月 17 日 「生きた細胞をみる SACLA の挑戦」

５）西野 吉則：nano2biz 2014 年 06 月 13 日 「結晶中の超高速構造変化をＸ線レーザーで捉えることに成功」

６）西野 吉則：日経産業新聞 2014 年 05 月 22 日 「構造変化、原子レベルで 北大が観察手法 X線レーザー使用」

７）西野 吉則：日刊工業新聞 2014 年 05 月 22 日 「ナノ結晶中の構造変化 超高速撮影に成功 北大」

８）西野 吉則：マイナビニュース 2014 年 05 月 20 日「北大など、ナノ結晶中の超高速構造変化をX線レーザで捉えることに成功」

９）西野 吉則：Laser Focus World 2014 年 05 月 20 日 「ナノ結晶中の超高速構造変化をX線レーザで捉えることに成功」

１０） 西野 吉則：NHK「サイエンス zero」 2014 年 04 月 13 日 「研究成果の紹介」

ｄ．北大での担当授業科目（対象、講義名、担当者、期間）

１）工学部、生体工学概論、西野 吉則、2015 年 01 月 21 日

２）工学部、ナノ工学基礎、西野 吉則、2014 年 10 月 01 日～2015 年 03 月 31 日

３）情報科学研究科、ナノイメージング特論、西野 吉則、2014 年 10 月 01 日～2015 年 03 月 31 日

４）全学共通、ナノテク・ナノサイエンス概論Ⅰ（ナノバイオシステム論）、西野 吉則、2014 年 07 月 09 日～2014 年 07 月 11 日

５）全学共通、環境と人間「ナノって何なの？最先端 光・ナノテク概論」、西野 吉則、2014 年 05 月 09 日

６）工学部、科学技術英語演習、西野 吉則、2014 年 04 月 01 日～2015 年 03 月 31 日

７）全学共通、フレッシュマンセミナー、木村 隆志、2014 年 04 月 01 日～2014 年 09 月 30 日

８）工学部、情報エレクトロニクス演習、木村 隆志、2014 年 04 月 01 日～2014 年 09 月 30 日

９）工学部、生体情報工学実験１、木村 隆志、2014 年 04 月 01 日～2014 年 09 月 30 日

ｅ．ポスドク・客員研究員など

・ポスドク

１）于健

ｆ．修士学位及び博士学位の取得状況

・修士論文

１）川村 仁志：X線自由電子レーザーを用いた溶液中反応解析に向けたマイクロ液体並列チャンネルの開発

２）佐尾 真侑：超微細インクジェットを用いた生きた細胞の吐出とＸ線レーザー回折イメージングへの応用

３）藤澤 勇太：コヒーレントX線を用いた VO_2 の絶縁体-金属相転移ダイナミクスの観察

物質科学研究部門

研究目的

本研究部門では、電子科学や生命科学を支える物質創製と物性評価技術をベースとして、光励起ダイナミクスと分子構造および光機能物性との相関解明、生体情報機能を理解するための分子機能材料の創製、トップダウンとボトムアップの両系を繋ぐヘテロ構造を活用したナノーマクロ融合デバイスの創製、低次元電子・イオン輸送現象を解明するための薄膜機能材料・デバイスの創製に取り組んでいます。このような研究は、分子集合体や細胞内のダイナミクスの解明、新規なナノデバイスの創製に貢献します。

分子光機能物性研究分野

特任教授　太田信廣（東北大院、理博、1998.10～）
准教授　中林孝和（東大院、理博、2002.7～2014.4）
特任助教　Awasthi Kamlesh（北大院、理博、2013.4～）
博士研究員　Sabeth Farzana(北大院、理博、2014.5～）
客員研究員　Serajul Islam (北大院、理博、2014.5～）
院　生
修士課程
大越謙児、向井樹

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、光励起に伴う電子構造や準位構造の変化はどうか、また光導電性、電界発光の出現など電気、磁気特性や光電変換特性と光学特性の関係はどうなっているか、等を調べる。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､「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およびそれらの電場効果についても、生体内の「場」に着目しながら主に蛍光寿命顕微分光法(FLIM)により調べる。

２．研究成果

a）電場吸収スペクトルの新奇解析法（積分法）

固体膜中に均一に分散した分子の電場吸収（E-A）スペクトル（電場を印加した状態で測定した吸収スペクトルから電場無しの状態での吸収スペクトルを引いた差スペクトル）は、吸収スペクトルの零次微分、１次微分、２次微分の線形結合として表すことができる。そこで E-A スペクトルの解析は,吸収スペクトルを各吸収帯に分けて､E-A スペクトルを再現するように各々の吸収帯の各微分成分の係数を求める方法で行っている。そして得られる係数より、励起に伴う電気双極子モーメントや分子分極率の変化量を求めることができる。ただし、この解析方法を用いることができるのは、E-A スペクトルに対応する吸収帯を予め認識できる場合である。例えば強い E-A 信号が得られるような場合でも、吸収強度が非常に小さくて、強い他の吸収帯に埋もれているような場合は､この解析方法は使用できない。例えば、今回対象とした PbSe 量子ドットの E-A スペクトルはその一例である。そこで新たな解析方法（積分法とよぶ）を適用することで、PbSe の E-A スペクトルの解析を行った。

図1に示したのは粒子径が 6 nm の PbSe ナノ粒子の近赤外領域における吸収スペクトル、その1次微分と2次微分、および E-A スペクトル（(c)のグレーの部分）である。吸収スペクトルはシャープな吸収帯（g1 と g2）とブロードな吸収帯に分けることができる。ブロードな吸収帯の E-A 信号は非常に小さい。従来の方法（微分法）に従い g1 と g２の二つの吸収帯の微分形を組み合わせて E-A スペクトルの再現を試みた結果が図１(c)に点線で示してある。g1、g2 共に２次微分の寄与が大きく、光吸収に伴って電気双極子モーメントが大きく変化することがわかる。ただし、g2 に関しては２次微分以外に零次微分と１次微分の寄与を考慮したシミュレーションとなっている。得られた E-A スペクトルのシミュレーション結果は一見、観測された E-A スペクト

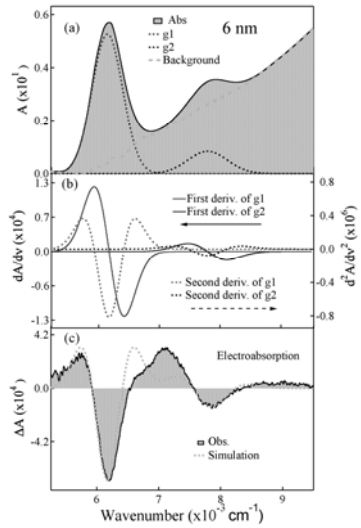


図１．PbSe の E-A スペクトルの微分法による解析.

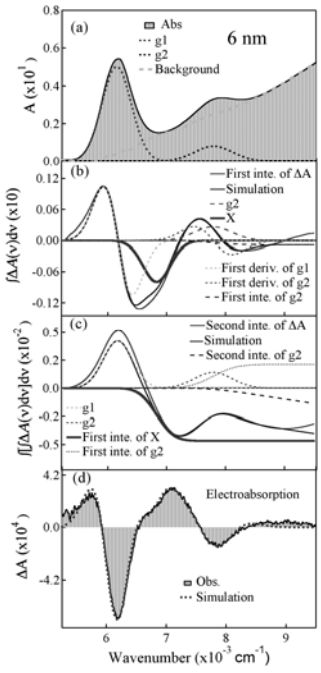


図２．PbSe の E-A スペクトルの積分法による解析.

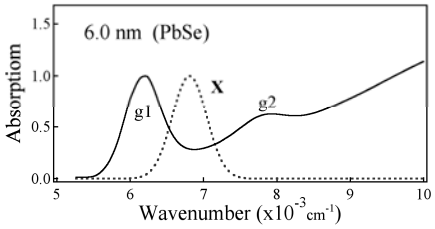


図３．PbSe の吸収スペクトルと新たに確認された吸収帯（X）.

ルを再現しているように見えるが、よく見ると g1 と g2 の中間領域が明らかに異なっている。いろいろパラメーターを変えてもこの領域を再現することはできない。そこで、新たな方法として E-A スペクトルの1回積分および2回積分を求めることで解析を行った。すなわち E-A スペクトルで2次微分形を与えるものは、1回積分スペクトルでは1次微分形、2回積分スペクトルでは零次微分形（吸収帯形状）を与え、E-A スペクトルで１次微分形を与えるものは1回積分スペクトルでは零次微分形を、2回積分スペクトルでは吸収帯の積分形状を与えることになる。確かに2回積分のスペクトルには g1 および g2 に対応するバンドが見られることから（図2(c)参照)、E-A スペクトルには g1 および g2 の2次微分の寄与が大きいことが確かめられる。見積られる2次微分の寄与は、図2(b)に示した E-A スペクトルの1回積分スペクトルにおいては、g1 および g2 吸収帯の1次微分形の寄与を与えることになる。そこで1回積分スペクトルから、それら g1、g2 の１次微分形の寄与を差し引くと、吸収帯形状、X、をしたものが得られる。1回積分スペクトルで吸収帯形状を与えるものは､E-A スペクトルでは、ある吸収帯の１次微分に対応し、光励起に伴い分極率が大きく変化することがわかる。この吸収帯の存在により、２回積分スペクトルでは、7000 cm^{-1} より高波数側の強度が負になっている。かかる解析により、図3に示すような非常に弱い X 吸収帯の存在を確認することができ、電場吸収測定が通常の吸収では測定できない吸収帯の同定に有用であることを示すことができる。

b) 有機物質の電気伝導特性への光照射効果

個々の分子のダイナミクスに変化を与える光と電場は、バルク物質の物性や機能にも大きな影響を与えることが期待されることから、我々は固体の電気伝導特性に着目し、光と電場を用いた新奇の光機能物性の創出、具体的には金属、半導体、超伝導体間の転移を調べている。今回は、４K において金属－超伝導体転移を示し,さらに温度を下げると超伝導体－反強磁性絶縁体遷移が観測される分子性導体のλ-$(BETS)_2Fe_{0.45}Ga_{0.55}Cl_4$ (λ-FeGa)を対象とし、電気伝導度への光照射効果を調べた（BETS =bis(ethylenedithio)tetraselenafulvalene)。

本研究では、λ-FeGaにパルスレーザー光を照射し、電気伝導度変化の時間分解測定を行うことで、電気伝導特性に対する光照射効果を調べた。試料としては電気分解法を用いて合成した単結晶を用いた。光源にはナノ秒パルス Nd:YAGレーザー（Quanta-Ray，LAB-150)の第３高調波で励起したOPOレーザー光（GWU versa-scan、波長470 nm、パルス時間幅10 ns)を用いた。単結晶表面に金ペーストと金線を用いて電極を作成しており、電極間の間隔は0.4-0.5 mmである。定電流パルスを試料に加え、光照射による抵抗値の変化を４端子法により測定している。試料の温度制御には、液体ヘリウムを利用したクライオスタット(Oxford Instruments, Optistat-CF)を用いている。λ-FeGaの抵抗値は図4に示すように、約100 Kからは冷却に伴い抵抗値がやや減少し、約4 Kで超伝導特性を示す。そして、更なる温度の減少と共に再び抵抗が急激な増加を示し、超伝導から絶縁相への相転移が確認される。これらの低温領域において試料に定電流パルスを加え、光照射を行うと、マイクロ秒からミリ秒の寿命をもつ抵抗値の増加が見られ、光照射により電気伝導度が減少することがわかる。特に図5に見られるように、超伝導転移温度近傍では特に緩和時間が長いという超伝導物質特有と思われる現象が観測される。

c) 正常細胞および癌細胞の蛍光寿命イメージング

蛍光の寿命測定は強度測定よりもはるかに定量性に優れた方法であり、細胞内の環境や機能の変化を精度良く調べることが可能である。今回ラット胎児由来線維芽細胞株

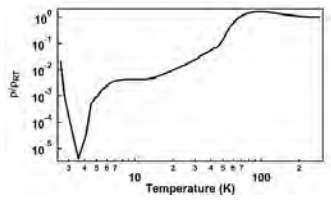


図４．λ-FeGa の抵抗値の温度依存性.

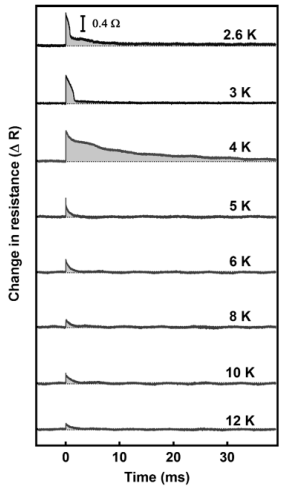


図５．λ-FeGa の抵抗値の光照射による抵抗値変化の時間依存性.

(WFB)とWFBにH-ras癌遺伝子を導入し形質変換させた癌細胞（W31)を対象に,光感受性物質である Na-pheophorbide a(Na-phde a)を細胞内に取り込ませ、蛍光強度のみならず蛍光寿命画像も測定し、Na-phde a の細胞内発光特性の違いを調べた。

定常発光測定は日本分光の FP-777 を使用し、蛍光寿命イメージング測定(FLIM)には、フェムト秒チタンサファイアレーザー、単一光子計数法を用いた蛍光寿命計,および共焦点顕微鏡を組み合わせた装置を使用した。35 mm ガラスベースディッシュに細胞を培養し、蛍光寿命画像および蛍光減衰曲線の測定を行った。

光照射時間を長くすると、WFB、W31共に蛍光強度は減少し、光退色を起こすことを定常光の発光測定より確かめている。光照射効果の経時依存性の結果より、がん細胞のW31が正常細胞のWFBよりはるかに効率的に光退色することがわかる。がん細胞はNa-phde aを選択的に取り込み易いため、正常細胞よりも細胞内の薬剤濃度が濃い状態になっているためと考えられる。溶液中における光退色の実験を同様に行ったが、PBS中ではNa-phde aほとんど光退色を示さなかった。さらに、時間分解発光測定及びFLIM測定も行ったところ、図6に示した蛍光寿命画像を得ることができた。この画像から求めた蛍光寿命のヒストグラムからもわかるように（図7参照）、Na-phde a の蛍光寿命は細胞の部位ごとに異なり、かつW31とWFBにおいて明らかな差異があることがわかり、正常細胞と癌細胞の同定に蛍光寿命測定が有用であることがわかる。

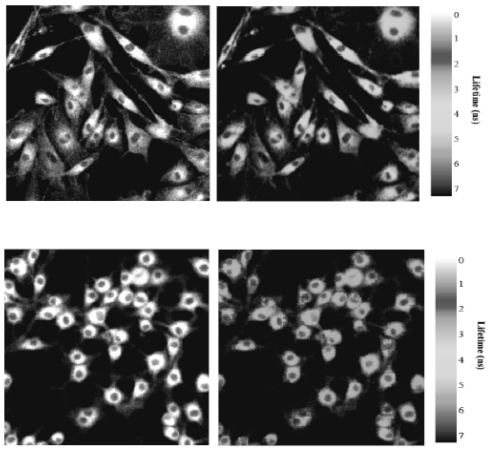


図６．WFB（上)、W31（下）中に取りこまれた Na-phde a の蛍光強度画像（左）と蛍光寿命画像（右）.

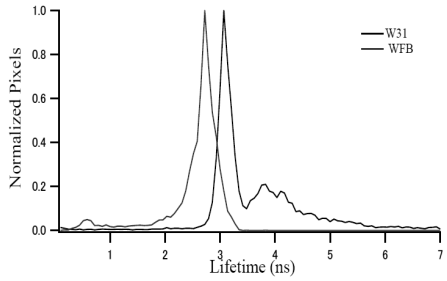


図７．正常細胞（WFB）および癌細胞(W31)に取り込まれた Na-Ph-a の蛍光寿命のヒストグラム

3. 今後の研究の展望

太陽電池等の光電変換機構の解明および新奇の材料開発のために電場吸収、電場発光スペクトルおよび時間分解電場発光減衰測定が重要であることが今後認識されることになると思われる。また分子集合体である有機結晶を対象に光と電場により絶縁体−金属転移を誘起できることは示すことができた。今後の課題は、光誘起超伝導現象があるかどうかを調べることである。イオン伝導特性に関しても、光によって誘起される超イオン伝導特性を見つけることができれば、基礎研究としてだけではなく、応用面でも非常に重要となる。イオン伝導度の大きな物質の合成等に関する研究は多々あるけれども、その特性を光により制御、あるいは促進させるといったことはこれまでほとんど注目されていないことも、イオン伝導度への光照射効果の新規性を確信する。また、生体内の局所電場に着目しながら、蛍光寿命顕微分光法を適用することにより生体系におけるダイナミクスや生体内環境への電場効果を明らかにする研究は、空間分解能の向上と共にその重要性は増していくものと考えている。そして、外部からの時間幅の小さなパルス電場を作用させて、細胞内のダイナミクスや機能を制御する、といった研究は、正常細胞と癌細胞に対する違いを調べること等を通して、医療の診断や治療に応用されるようになると期待している。

４．資料

4.1　学術論文等

1) T. Iimori, N. Ohta: “Tuning of Electrical Conductivity by Photoirradiation and Electric Fields”, J. Phys. Chem. C 118(14), 7251-7260 (2014). (Feature Article)

2) T. Nakabayashi, R. Ohshima, N. Ohta: “Electric Field Effects on Photoluminescence of CdSe Nanoparticles in a PMMA Film”, Crystals, 4, 152-167 (2014). Special Issue “Semiconductor Nanocrystals in Crystals”.

3) K. Awasthi, T. Iimori, N. Ohta: “Integral method analysis of electroabsorption spectra and its application to quantum dots of PbSe”, J. Phys. Chem. C 118, 18170-18176 (2014).

4) K. Sugiura, T. Nagai, M. Nakano, H. Ichinose, T. Nakabayashi, N. Ohta, T. Hisabori: “Redox sensor proteins for highly sensitive direct imaging of intracellular redox state”, Biochemical and Biophysical Research

Communications 457, 242-248 (2015).

5) K. Awasthi, T. Iimori, N. Ohta: "Electroabsorption Spectra of Quantum Dots of PbS and Analysis by the Integral Method", J. Phys. Chem. C 119, 4351-4361 (2015).
6) K. Awasthi, H.-Y. Hsu, E. W.-G. Diau, N. Ohta: "Enhanced Charge Transfer Character of Photoexcited States of Dye Sensitizer on the N719/TiO_2 Interface as Revealed by Electroabsorption Spectra", J. Photochem. Photobiol. A 288、70-75 (2014).
7) K. Awasthi, Kosuke Nakamura, Hirohiko Kono, N. Kobayashi, N. Ohta: "Electroabsorption and Electrophotoluminescence Spectra of Some Subphthalocyanines", Chem. Phys. Lett. 599, 163-168 (2014).
8) T. Nakabayashi, Md. S. Islam, L. Li, M. Yasuda, N. Ohta: "Studies on external electric field effects on absorption and fluorescence spectra of NADH", Chem. Phys. Lett. 595-596, 25-30 (2014).
9) N. Ohta, T. Nakabayashi: "Intracellular Autofluorescent Species: Structure, Spectroscopy and Photophysics", Natural Biomarkers for Cellular Metabolism, ー Biology, Techniques, and Applications ー, edited by V. Ghukasyan and A. A. Heikal, Series in Cellular and Clinical Imaging (A. Periasamy, series editor), Taylor & Francis, Chap. 2, p. 41-64.
10) K. Awasthi, H.-Y. Hsu, H.-C. Chiang, C.-L. Nai, C.-Y. Yeh, Er. W.-G. Diau, N. Ohta: "Electroabsorption spectra of push-pull porphyrins in solution and in solid films", J. Porphyrins Phthalocyanines in press (2015).
11) F. Sabeth, Md S. Islam, T. Endo, N. Ohta: "Time-Resolved Photoexcitation Dynamics of Electrical Conductivity of Magnetic Organic Superconductor λ-$(BETS)_2Fe_{0.45}Ga_{0.55}Cl$", Rapid Communication in Photoscience in press.
12) T. Nakabayashi, N. Ohta: "Sensing of Intracellular Environments by Fluorescence Lifetime Imaging of Exogenous Fluorophore", Special Issue: Molecular Imaging for Bioanalysis, Analytical Science, (Review) in press.
13) 中林孝和、太田信廣: "ラベルフリー細胞内自家蛍光寿命イメージング研究の進展"、Division Topics, 化学と工業 67(3), 262 (2014).
14) 太田信廣: "光の性質"、光化学の事典、光化学協会光化学の事典編集委員会 (伊藤紳三郎、宍戸昌彦、堀江一之、真嶋哲朗) 、朝倉書店、2-3 (2014).
15) 太田信廣: "生命科学を理解するための蛍光の基礎 III - 環境との相互作用による蛍光の変化-"、分光研究、講座、63(3), 111-127 (2014).
16) 太田信廣: "光と電場を絡めた構造、反応、機能に関する研究"、Molecular Science, Vol. 8, A0073-1～24 (2014).
17) 中林孝和、太田信廣: "NADH の自家蛍光寿命イメージングを用いた細胞内環境計測"、光学 44(6), 2015 印刷中.
18) 木下修一、太田信廣、南不二夫、永井健治、編「発光の事典」、朝倉書店、(2015) 印刷中.

4.2 講演

a. 招待講演

i) 学会

1) N. Ohta: "Electroabsorption and Electro-photoluminescence Measurements of Porphyrin and Phthalocyanine", Eighth International Conference on Porphyrin and Phthalocyanine (ICPP8), June 22-27, 2014, Isbanbul.
2) N. Ohta: "Study on photo-molecular science using spectroscopy with electric field and magnetic field", The annual meeting of the spectroscopical society of Japan, Riken, May 26, 2014, Wako. (日本分光学会賞受賞講演)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

1) N. Ohta,"Fluorescence Lifetime Microscopy: Intracellular Environment and Function and Electric Field Effects", Seminar at IMS, National Chiao Tung Univ., Nov. 27, 2014, Hsinchu Taiwan, December 20, 2014 Hsicnu Taiwan.
2) 太田信廣: "電子励起分子の構造とダイナミクスへの電場効果"、東京工業大学資源化学研究所講演会(2014年9月2日、横浜).
3) 太田信廣: "生命科学のための蛍光分光：基礎理論"、日本分光学会 第50回夏期セミナー、幕張メッセ国際会議場(2014年9月3日、千葉)
4) 太田信廣: "生命科学のための蛍光分光：蛍光分光の応用：蛍光寿命イメージング"、日本分光学会 第50回夏期セミナー、幕張メッセ国際会議場(2014年9月3日、千葉).
5) 太田信廣: "光と電場を絡めた構造、反応、機能に関する研究"、平成26年度全国大学化学系教育研究集会、北見工業大学(2014年9月5日、北見)

b. 一般講演

i) 学会

1) N. Ohta: "Electroabsorption and Electrophotolumines-cence Measurements in Solution"、第30回化学反応討論会、姫路 (2014-06)
2) N. Ohta, K. Awasthe: "Electric field assisted non-adiabatic tunneling in methylene linked phenan-threne-$(CH_2)_n$-phthalimide as revealed by electrophoto-luminescence", 第8回分子科学討論会 2014 東広島
3) カムレス アワスティ、太田信廣: "電場吸収スペクトルの積分法による解析とその応用"、2014 年分子科学討論会、広島(2014-09)
4) 飯森俊文、生沼要、太田信廣:"時間分解電気伝導度

測定による磁性有機導体λ-(BETS)2FeCl4 の光励起ダイナミクスの研究”、2014 年分子科学討論会、広島(2014-09)

5) 古川一輝、日野和之、山本典史、中林孝和、太田信廣、関谷博:“アセトニトリルの固相/固相相転移に伴う分子間相互作用変化の蛍光プローブ”、2014 年分子科学討論会、広島 (2014-09)
6) 大越謙児、Hung-Chu Chiang、Kamlesh Awasthi、太田信廣:“光誘起電子移動反応系における偏光電場発光スペクトルの測定”、2014 年 光化学討論会 札幌 (2014-10)
7) 向井樹、Hung-Chu Chiang、Kamlesh Awasthi、アルブレヒト 建、山元 公寿、太田 信廣:“カルバゾールデンドリマーの偏光電場吸収スペクトル”、2014 年 光化学討論会 札幌 (2014-10)
8) 古屋一成、Kamlesh Awasthi、李黎明、太田信廣:”光感受性物質 Na-Pheophorbide a を用いた細胞内発光の時間分解測定”、化学系学協会北海道支部 2015 年冬季研究発表会 (2015-01)
9) 大越謙児、Kamlesh Awasthi、萬関一広、三浦偉俊、井上由紀子、太田信廣:”色素増感太陽電池の光電変換効率と増感色素蛍光特性の電場効果”、日本化学会春季年会、日本大学 船橋 (2015-03)
10) 船本侑希、伊藤隆一、太田信廣、飯森俊文:“高分子薄膜中に分散したイオン液体の電場変調吸収スペクトル測定”、日本化学会春季年会、日本大学 船橋 (2015-03)

4.3 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) 中林孝和、基盤研究(B)、外部電場の印加によるタンパク質の動的変化の解明 (2013-2015 年度)
2) 中林孝和、新学術領域研究、蛍光寿命イメージングを用いた細胞内イオン濃度の動的変化の解明 (2014-2015 年度)

b. 受託事業等

1) 太田信廣、大学連携研究設備ネットワークによる設備相互利用と共同研究の促進共同事業 (2014 年度)

4.4 受賞

1) 太田信廣、日本分光学会賞、電場および磁場を絡めた分光法による光分子科学研究(2014 年 5 月)
2) 太田信廣、分子科学会賞、電場効果および磁場効果に基づく構造、反応、機能に関する光分子科学研究 (2014 年 9 月)

4.5 社会教育活動

a. 公的機関の委員

1) 太田信廣：化学系研究設備有効ネットワーク北海道地域委員会委員

b. 国内外の学会の役職

1) 太田信廣：日本分光学会生細胞分光部会幹事
2) 太田信廣：日本分光学会代議員
3) 太田信廣：光化学協会理事
4) 太田信廣：日本化学会北海道支部監査
5) 太田信廣：分子科学会運営委員会委員
6) 中林孝和：日本分光学会編集委員会常務委員
7) 中林孝和：日本レーザー医学会編集委員会査読委員

c. 北大での講義担当

1) 大学院共通、ナノサイエンス. ナノテクノロジー概論、太田信廣
2) 環境科学院、環境物質科学実習Ⅰ、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、環境物質科学特別研究Ⅰ、太田信廣
5) 環境科学院、光分子化学特論、太田信廣

d. 修士学位及び博士学位の取得状況

・修士課程（1名）
遠藤方
・修士論文：有機超伝導物質-$(BETS)_2Fe_{0.45}Ga_{0.55}Cl_4$の光励起による電気伝導度変化の時間分解測定

スマート分子材料研究分野

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、2008.12～2015.2）
　　Yuna Kim（Yonsei University、工博、2011.8～）
博士研究員　Kanthyappa Rajanna Sunilkumar（2014.7.1～）
事務補助員　大木真理子
学　生
　博士課程
　Rijeesh K、Halley M M、Islam MD. Jahirul、Amrutha A S
　修士課程　伊藤誠一郎、中本良之、吉田一迅
　学部生　　古田龍太、林大希

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変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、光刺激を利用した分子内の回転運動の制御、生体分子機械の運動の光スイッチ、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) 円偏光光反応によるプロキラル化合物からのキラル化合物の立体選択的合成

自然界では、アミノ酸や糖のように鏡に映した形が元の形と重ならない構造を持った（右手型と左手型が区別できる）分子のうち、一方の型が使われている（ホモキラリティー）。しかし、最初にどうやって一方が選ばれたのかは不明である。左右の区別がない化学種のみから、区別のある化合物を右手型と左手型の量比に偏りを持たせて合成する方法は、絶対不斉反応と呼ばれ、これまでに円偏光を用いる光反応による1,2-ジアリールエチレンからのヘリセンの生成で知られているのみだった。また、肝心の左右に偏りが生じる機構はよくわかっていなかった。今回見出された物質と新しい絶対不斉反応は、自然界のホモキラリティー達成の起源を説明する新しい分子機構の提案として興味が持たれる。

今回の研究では、アキラル化合物がキラル化合物になる光反応とその逆反応であるキラル化合物がアキラル化合物

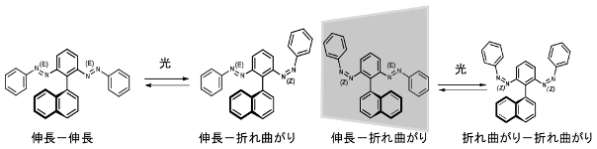


図１　光によって可逆的に「折れ曲がり」と「伸長」を起こすフェニルアゾ基という官能基２つを、不斉の種となる骨格であるナフチルベンゼンに導入して設計・合成した化合物

になる反応が単一波長の光によって繰り返される新しい分子を設計して合成し、機構を明解に説明できる絶対不斉反応が円偏光下で達成されることを初めて明らかにした。

設計した化合物は、光によって可逆的に「折れ曲がり」と「伸長」を起こすフェニルアゾ基という官能基２つを、不斉の種となる骨格であるナフチルベンゼンに導入して設計し、合成した（図1)。この分子では、フェニルアゾ部が両者とも伸長状態であるとき、熱的に最も安定です。溶液状態で光を当てると、フェニルアゾ基は、伸長状態と折れ曲がり状態の間で繰り返しの光反応を起こし、その２つの光反応が釣り合う状態比で平衡となる(光定常状態)。フェニルアゾ基は１分子に２箇所存在することから、光定常状態では、「伸長-伸長」、「伸長-折れ曲がり」、「折れ曲がり-折れ曲がり」の 3 種類の異性体の混合物となる。この内、「伸長-折れ曲がり」の異性体にはさらに鏡像異性体が存在する。通常の光の下では、この鏡像異性体間の比は 1:1 になる。しかし、光反応に用いる光として、円偏光を使うと、キラル化合物からアキラル化合物を生じる光反応の第一段階である光吸収の効率が、鏡像異性体間で異なるために、光反応速度が鏡像異性体間で異なる。その結果、光定常状態における「伸長-折れ曲がり」体の鏡像異性体比が 1:1 からずれることが予想される。

右円偏光を用いて実際に実験をした結果、わずか 0.4%であるが一方の鏡像異性体が多く生成することが明らかになった（図 2)。「伸長-折れ曲がり」体の２つの鏡像異性体の、

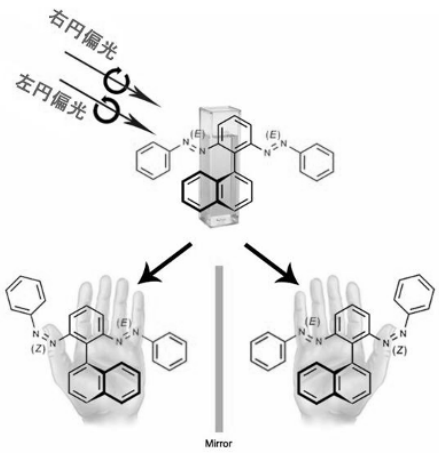


図２　円偏光を利用した絶対不斉反応

右円偏光に対する吸収の度合いの違いから予想される生成物中の鏡像異性体の偏りは 0.43%と算出された。この実験結果と想定される機構に基づいて計算された結果のよい一致は、実際の反応がこの機構で起こっていることを裏付ける。

今回初めて、反応の機構がはっきりした分子系で、絶対不斉反応が示された。宇宙では、中性子星から左右の一方に偏った円偏光が生成していると言われている。また、鏡像異性体の僅かな過剰を増幅するような化学反応はすでに幾つか知られているので、円偏光によって生じた鏡像異性体の僅かな偏りが、そのような化学反応の機構で増幅されたという説明は成り立つ。今回新たに示された円偏光によって誘起される絶対不斉反応は、自然界のホモキラリティーの生成のきっかけがいかなるものであったかを論じるときの一つの説として意義があると考えられる。

(b)高いねじり力を示す光応答性キラル添加剤の合成

ネマティック液晶に光応答性キラル化合物を添加して得られるキラルネマティック液晶は、自発的に生じる分子のらせん配列を光刺激によって調整できることから、光学応用や分子機械への応用の観点から関心を集めてきた。光学応用としては、らせん状の分子配列の結果、一定の波長の一方の円偏光を選択的に反射するが、光刺激によってその反射波長を制御できるため、反射型ディスプレーや動的円偏光フィルターへの応用が可能である。分子機械への応用に関しては、液晶膜表面に載せた10-数百ミクロンサイズの物体を光応答キラル添加剤の分子構造変化をきっかけとする分子メカニズムで一方向に回転させうることがわかっている。しかし、これらを効率よく達成するためには従来よりも高い性能を有する光応答性キラル添加剤が必要であった。

光応答性キラル添加剤に求められる性能の要件は、高い初期のねじり力と光反応後のねじり力の変化の大きさ、および、変化の可逆性である。今回、面性不斉を有する環状アゾベンゼンにホスト液晶との親和性を高めるヘキシル基を導入することにより、面性不斉のキラル添加剤としてはこれまで以上の初期ねじり力と大きなキラリティー変化を示す化合物を得た。

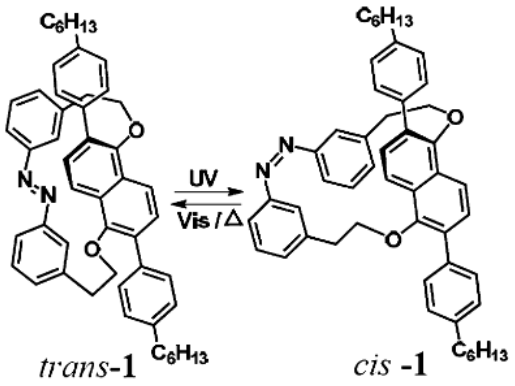


図3　合成した化合物の構造とそのトランスーシス光異性化反応に伴う構造変化

合成した化合物の構造とそのトランスーシス光異性化反応に伴う構造変化を図3に示す。合成によって得られる化合物1はラセミ体として得られるが、キラルカラムを用いるHPLCにより一方の鏡像異性体を単離できる。光応答性キラル添加剤としては、単離した一方の鏡像異性体を用いた。366 nmの紫外線照射により、アゾベンゼン部位がトランス体からシス体へと変化した（光定常状態でトランス：シス＝26:74)。また、436 nmの可視光の照射によりシス体はトランス体へと戻った（光定常状態でトランス：シス＝89:11)。

市販のビフェニル型ネマティック液晶である5CB中での化合物1のねじり力は光照射前で－95 μm^{-1}、紫外線照射後で－47 μm^{-1}、可視光照射後で-80 μm^{-1}となり、初期の高いねじり力および、紫外線照射後の大きなねじり力変化および、高い可逆性を示した。

図4には、化合物1を2.4%重量添加したネマティック液晶フィルムの反射スペクトルと光異性化反応に伴う反射スペクトルの変化を示した。わずかの添加によって、可視域に反射バンドを誘起し、光照射によって反射バンドの位置を可視域全域にわたって制御できることが示された。

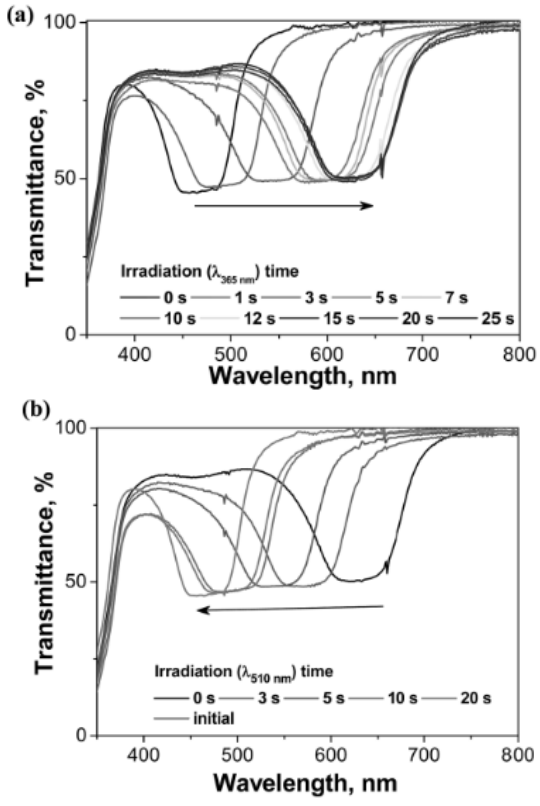


図 4　5CB 中における化合物 1 を 2.4wt%を添加したキラルネマティック液晶薄膜の光照射下における反射スペクトル 照射波長(a)365 nm、(b) 510 nm

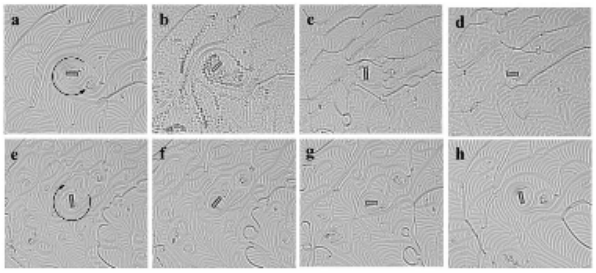


図５　化合物１を 0.35 wt%添加した液晶膜上におけるマイクロメーターサイズのガラスロッドの回転運動。360 度の回転を紫外光（365 nm）及び可視光（510 nm）を照射することで可逆的に繰り返すことが可能。

さらに､化合物1を添加した液晶膜上でマイクロメーターサイズのガラスロッドを回転させる分子機械の特性を評価した。その結果、0.35重量%の低濃度で360度の回転を紫外光及び可視光を照射することで可逆的に繰り返すことが可能であった（図5)。

以上の結果は、新規に合成した化合物１が、光応答性キラル添加剤として従来にない高い性能を示すことがわかった。この結果は、顕著な不斉構造の変化をもたらす、アゾベンゼンとナフタレンからなる面性不斉ユニットにホスト液晶との親和性を高めるヘキシル基を導入したことで、添加剤の持つキラル構造情報が有効に液晶の分子配列へと伝達されたためと説明できる。

３．今後の研究の展望

今回、プロキラル化合物から円偏光の作用によって鏡像異性体比に偏りのあるキラル化合物の生成に成功した。しかし、円偏光誘起で達成できた鏡像異性体過剰率は 0.4%と非常に小さい。本現象を使って現在の自然界の分子のほぼ100%のホモキラリティーを説明するためには、キラリティーの増幅現象と組み合わせる必要がある。これまでに、キラリティーの増幅現象として知られているのは、僅かな鏡像異性体過剰が全体のキラリティーを支配する機構である。キラル添加物によって誘起される高分子のヘリシティー、液晶の分子配列のヘリシティー、キラル増殖触媒、ラセミ化可能な化学種の結晶化などがすでに報告されている。今後は、今回見出した新規プロキラル化合物と、上記のキラリティー増幅系を組み合わせることで、円偏光の偏りによって、最終的に系全体がホモキラリティーとなるような分子システムを提案していく必要がある。

光応答性キラル添加剤に関しては、今回は、大きなねじり力変化をもたらす化合物の合成に成功した。今後は大きさのみならず、ねじりの向き（右ねじりか左ねじりか）を光でスイッチできる化合物を合成することが考えられる。一方で、液晶分子機械から連続的な仕事を取り出すには一方向への回転運動を連続して起こすことが求められる。そのためには、トランス→シス異性化反応とシス→トランス異性化反応で、液晶分子配列によってもたらされるテクスチャーの異なる状態を経て元に戻る必要がある。今回の化合物1は､紫外線照射によるトランス→シス異性化反応と可視光によるシス→トランス異性化反応によってキラルネマティック液晶の同じテクスチャー内の同じ過程を逆向きに変化させるのみであった。将来的には、トランス→シスとシス→トランスの光異性化過程で異なる液晶のテクスチャー状態をもたらす光応答性キラル添加剤を合成する必要がある。

４．資料

4.1　学術論文等

1）Y. Kim, N. Tamaoki: “A photoresponsive planar chiral azobenzene dopant with high helical twisting power”, Journal of Materials Chemistry C, 2: 9258-9264 (2014)

2）Y. Kim, M. Funahashi, N. Tamaoki: “Thieno[3,2-b]thiophene derivatives exhibiting semiconducting liquid-crystalline phases at lower temperatures”, RSC Advances, 4: 60511-60518 (2014)

3）K. Rijeesh, P. K. Hashim, S. Noro, N. Tamaoki: “Dynamic induction of enantiomeric excess from a prochiral azobenzene dimer under circularly polarized light”, Chemical Science, 6: 973-980 (2015)

4.2　総説、解説、評論等

１）深港豪、亀井敬、玉置信之：「生体分子機械のスマートコントロール：アゾベンゼンの光異性化によるモータータンパク質機能の光制御」、光化学、45(2):80-83 (2014)

4.3　講演

a. 招待講演

ⅱ）研究会・シンポジウム・ワークショップ

1）N. Tamaoki: “Perfect on/off photo-switching of biomolecular machine”, International Workshop on Micro- and Nanomachines 2014, Herrenhausen Palace, Hannover, Germany (2014-07)

2）N. Tamaoki：“Making a Bionano Machine Stop and Go with Molecular Photoswitches”, Molecular Switches Beilstein Organic Chemistry Symposium 2014, Yachthotel Chiemsee, Prien(Chiemsee), Germany (2014-09)

b. 一般講演

ⅰ）学会

１）Y. Kim*, N. Tamaoki:“A Photoswitchable Chiral Dopant Having a Large Change in the Helical Twisting Power for Rotational Manipulation of Doped Liquid Crystalline Film”、光化学討論会、北海道大学 札幌キャンパス(2014-10)

ii）研究会・シンポジウム・ワークショップ

1）K. R. Sunil Kumar*, N. Tamaoki: “Perfect ON/OFF photoswiching of the motility of a Nanobiomolecular machine”, 9th Phenics Internationak Network Symposium, University of Bordeaux, France (2014-07)

2）K. Rijeesh*, N. Tamaoki: “Dynamic induction of enantiomeric excess from a Prochiral azobenzene dimer by circularly polarized light”, Chirality 2014(26th International Symposium on Chiral Discrimination, ISCD-26), International Hotel in Prague, Czech Republic (2014-07)

3）Y. Kim*, N. Tamaoki:“A photoresponsive planar chiral azobenzene dopant with high helical twisting power”, The 15th Ries-Hokudai International Symposium, CHÂTERAISÉ Gateaux Kingdom Sapporo, Japan (2014-12)

4) 深港豪:「蛍光性ジアリールエテンナノ粒子における非線形蛍光スイッチング」、高次複合光応答分子システムの開拓と学理の構築　第2回公開シンポジウム、千里ライフサイエンスセンター、大阪(2015-01)

4.4 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、基盤研究(C)、分子のピストン運動から仕事を生み出す分子機能の創成、2012～2014年度

2）深港豪、若手研究(A)、光スイッチング型RESOLFT超解像蛍光顕微鏡のための蛍光スイッチング分子の開発、2012～2014年度

3）亀井敬、若手研究(B)、in situで構造変化を光誘起するモーター蛋白質内組み込み型ヌクレオチドの開発、2013～2014年度

4.5 社会教育活動

a. 国内外の学会の役職

1）玉置信之：日本化学会、代議員 （2013年11月2日～2014年10月31日）

c. 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-ナノって何なの？最先端 光・ナノテク概論、玉置信之、2014年7月18日

2）全学共通、科学・技術の世界（はじめての生命科学）、玉置信之、2014年6月30日

3）理学部、生物系の熱力学、玉置信之、2014年4月4日～2014年6月3日

4）生命科学院、生命物質科学特論（分子組織科学）、玉置信之、2014年6月30日～2014年7月28日

5）生命科学院、生命融合科学概論（生体機能を合成する）、玉置信之、2014年5月15日

6）全学教育科目、国際交流科目「Current Topics in Science and Technology」、キム ユナ、2014年4月15日～2014年7月31日

d. ポスドク・客員研究員など

・ポスドク（ 1 名）

1）Kanthyappa Rajanna Sunilkumar

h. 修士学位及び博士学位の取得状況

・博士課程（1名）

1）Rijeesh Kizhakidathazhath（北海道大学大学院生命科学院）
「Dynamic Induction of Enantiomeric Excess from a Prochiral Azobenzene Dimer under Circularly Polarized Light」

・修士課程（2名）

1）伊藤誠一郎（北海道大学大学院生命科学院）
「アゾベンゼン - コレステロール型単一分子種コレステリック液晶による分子機械の構築」

2）中本良之（北海道大学大学院生命科学院）
「シクロファン構造を含む光応答性キラル液晶の合成」

ナノ構造物性研究分野

教　授　石橋　晃（東大院、理博、2003. 01～）
准教授　近藤憲治（東北大院、工博、2003. 04～）
院　生
修士課程
坂下友規、谷口朝哉

１．研究目標

視点をアトム(Atom)・ビット(Bit)・エネルギー(Energy)/環境(Environment)空間［ABE^{2}空間］において、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を目指している。

次世代デバイスの作作製に向け、極限高清浄環境を実現するクリーンユニットシステムプラットフォーム(CUSP)を利用して、金属薄膜のエッジ同士が対向した量子十字デバイス、特に次世代超高密度メモリーや、高効率の光電変換素子創製を目標としている。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センブル系を含め、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は極めて重要にも係らず、未だ実現されていない。

ムーアの法則に代表されるロードマップに沿った展開を示しつつも遂に限界が指摘され始めた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。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は重要である。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、長所を各々活かして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(接続・統合による和集合の)観点から取組んでいる。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、もしトップダウンーボトムアップの両系を繋ぐことができれば、その意義は極めて大きい。

当研究室では、このような課題を解決しながら、新しい高機能デバイスやシステムを創出することを目指した研究を実験と理論の両面から進めている。

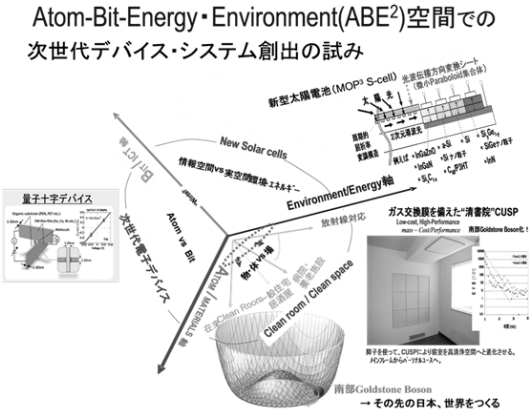


図1. ABE^2 空間における展開

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

(a1) 新型光電変換素子と極限高清浄環境（Clean Unit System Platform: CUSP）の展開

フォトンの進行方向とフォトキャ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であるマルチストライプ半導体フォトンフォトキャリア直交型太陽電池(MOP3SC)を導波路結合型へと進化させた。従来型素子は、光の進行方向と生成したフォトキャリアの進行方向が平行であるために、光吸収とフォトキャリアの捕集の間にトレードオフがあったが、図1右上の構造図に示すように、光電変換素子の側面からpn接合に沿って光を導入することで、光の進行方向と生成したフォトキャリアの進行方向を直交させることができ、光吸収とフォトキャリア捕集の同時最適化が可能となる。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この光電変換素子と、上部に回折格子を有する導波路と結合させることで、空間伝播光から平面導波光と転化したフォトンを以って高効率の集光型太陽光発電システムとなる。導波路の一つの候補となる構造として図2の内挿図に示すような樹脂スラブの下部に有

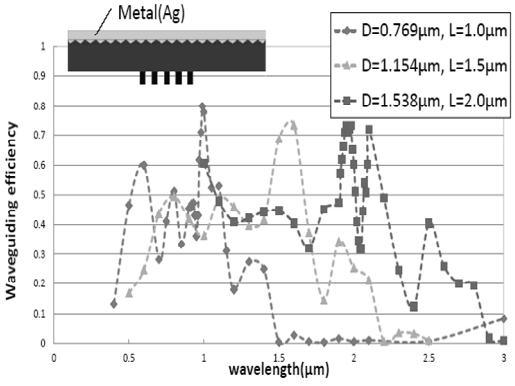


図 2. 構造の異なる有限単一周期屈折率変調構造に対する光の水平方向導波効率).

限個数の下駄の歯状の突起を設けた構造体を検討した。フロント側に構造の異なる有限単一周期屈折率変調構造を有し、バックサイドにジグザグの反射面を持つメタル（Ag）を設けた場合を検討した。垂直下部から入射した光が、面内方向に伝播する。導波効率はまだ十分ではないが、異なる波長帯に対し、垂直入射光を水平方向へと変換することができている。今後、素子の性能向上と共に、導波路構造の最適化を行う。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であるマルチストライプ半導体フォトンフォトキャリア直交型太陽電池（MOP^{3}SC）を導波路結合型へと進化させてゆく。

また、トップダウン系とボトムアップ系を繋ぐための環境、並びに、上記次世代素子作製のプロセス環境として図3に示すような､クリーンユニットシステムプラットフォーム（CUSP）の約1.5 m×1.5 m×2.0 mの空間の外側にFan Filter Unit （FFU)を床の上に直置きした系においてもUS209Dクラス400程度の良好な清浄度を得ることができた。図３に示すように、当初US 209Eクラス40万であった清浄度が、クラス500以下まで向上することが分った。重量のあるＦＦＵにも対応できるので、放射線対応の清浄環境への展開に目処がついた。超高清浄クリーンユニットシステムプラットフォーム（CUSP）を人が内部に入れるタイプへと進化させ、従来型のクリーンルームでは対応できない一般家庭用の超高清浄部屋へも展開できる。除塵はもとより、脱臭・異臭除去能をリーゾナブルナなコストで付加できることに加え、病院、養護施設、オフィス、学習施設、リラクゼーション施設等における居住性能の向上が実現すると期待される。CUSPによる清浄環境がアレルギー体質の方々やお年寄り、新生児などの生活弱者のクオリティオフライフを向上させることもでき、健康の維持・増進に広く市民生活の様々な局面で生活水準の向上に寄与すると思われる。高齢者や乳幼児など、環境弱者といわれる人々の安寧に資すると予測される。CUSPでは、フィルターは外気に接しない故に、従来型クリーンルームに比べて、そのフィルター寿命を飛躍的に伸ばす事ができる。特に、昨今問題として急浮上したPM2.5問題や花粉症対策としても大変有効であると期待される。

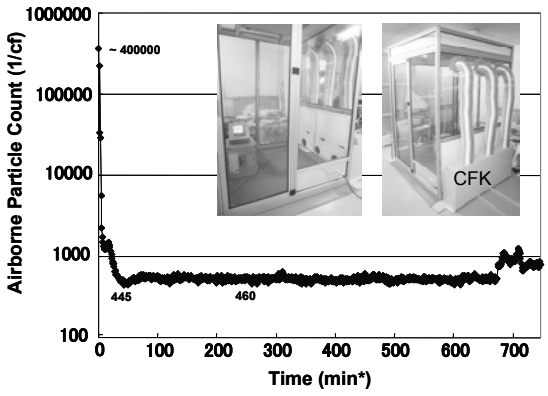


図 3. 床置きＦＦＵを有するＣＵＳＰシステムの清浄度の時間依存性と同システムの写真（内挿図）

(b) 理論：障壁を介した磁性絶縁膜を蒸着したトポロジカル絶縁体から半導体へのスピン注入

図４のような構造において、磁性絶縁体を蒸着したトポロジカル絶縁体(TI)から**半導体**へのスピン注入を考察した。

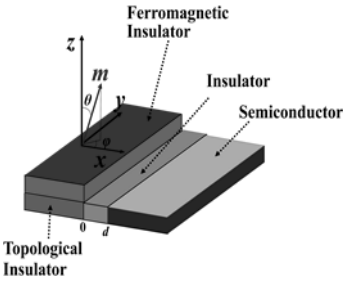


図 4: 磁性絶縁体を蒸着した TI /Insulator/Semiconductor 素子の概念図。

トポロジカル絶縁体には磁化 $\boldsymbol{m}$ を有する磁性絶縁体を蒸着し、その磁化 $\boldsymbol{m}$ の大きさと方向を極角 θ と方位角 φ を変化させることで、トポロジカル絶縁体の時間反転対称性を破ることにより、トポロジカル絶縁体のバンドを変化させて、スピンコンダクタンスを計算した。また、そのスピンコンダクタンスの絶縁バリア幅の依存性を考察した。図 5 には、磁化 $\boldsymbol{m}$ の大きさと方向が変化した場合のトポロジカル絶縁体のバンド構造の変化を示す。図からわかるように、

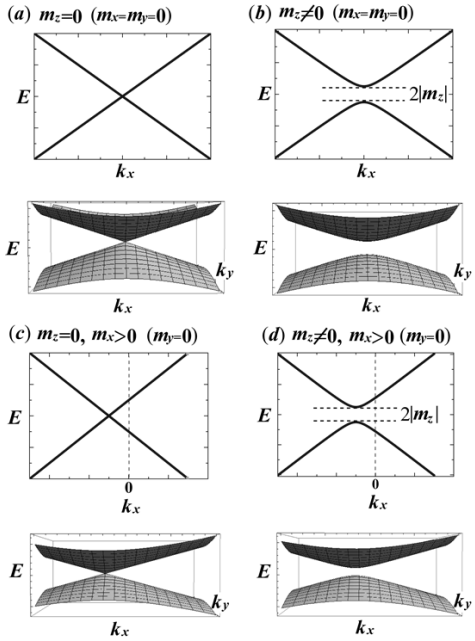


図 5: 磁化 $\boldsymbol{m}$ の大きさと方向が変化した場合のトポロジカル絶縁体のバンド構造の変化

磁化の z 成分 m_z が存在すると時間反転対称性が破れるために、Dirac-Cone のバンドはギャップが開くのがわかる。また､massless な分散を massive な分散へと変化させることがわかる。一方、磁化の x, y 成分は、ギャップを開ける効果

はないが、フェルミ球の中心を x, y 方向に偏心させる効果があることがわかる。従って、磁化の方向や大きさを変化させて、スピンコンダクタンスを計算すると、スピンコンダクタンスは、磁化 $\boldsymbol{m}$ の方向と大きさに敏感であり、それは Dirac-Cone のバンドが開くことならびにシフトすることが原因である。また、バリア幅に対するスピンコンダクタンスの依存性は緩やかであったが、これは、バリア幅がフェルミ波長より十分小さいことによるものである。計算結果の例として、図 6 にスピンコンダクタンスのバリア幅及び磁化 $\boldsymbol{m}$ の大きさ依存性を示す。また、図 7 にスピンコンダクタンスのバリア幅及び極角 θ 依存性を示す。

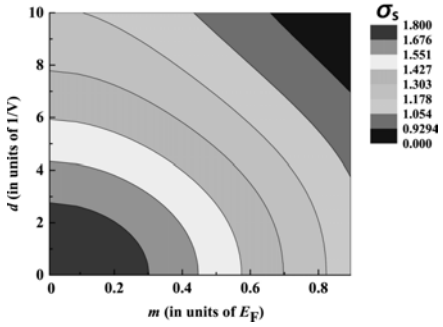


図 6: Spin conductance のバリア幅及び $\boldsymbol{m}$ の大きさ依存性。

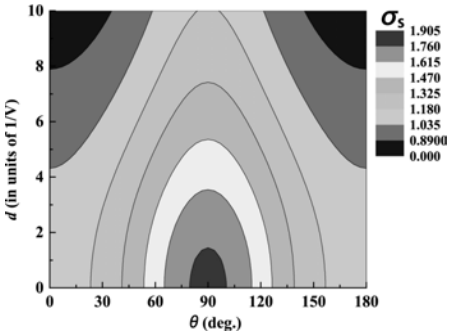


図 7: Spin conductance のバリア幅及び極角 θ 依存性。

3．今後の研究の展望

トップダウン系とボトムアップ系の接続・統合を Generating function として、デバイスベース並びにプラットフォームベースのアプローチを進めていく。フォトンの進行方向とフォトキャリアの移動方向が直交した、マルチストライプ構造を有する新しい光電変換デバイスの実現を念頭に、太陽光（黒体輻射）の吸収とフォトキャリアの収集効率の最適化を両立可能とし、全太陽光スペクトルに亘って光電変換を実行することを目指す。従来の入射モードでは、光吸収量に支配されて変換効率が決まる活性層厚みの小さい領域でも、端面入射配置では高い変換効率が得られる。移動度の高い無機半導体材料を用いることで、電極間隔を広げることが可能となり、より高効率の光電変換素子を実現することができる。これを更に、導波路と結合したフォトン・フォトキャリア直交型マルチストライプ半導体太陽電池と進化させる。即ち、太陽光の伝播方向を変換する仕組みであるリディレクション導波路の端に、エッジ入射型の太陽電池を配置する。空間伝播する太陽光を、周期的屈折率変調構造により平面導波光に変換し、この光を導波路の端に設けた複数のバンドギャップを持つマルチストライプ半導体pn接合面に沿って導くことで、新しい高効率の集光型光電変換システムを構成する。

理論の方からは、電極にトポロジカル絶縁体を用いた場合におけるエッジを介したスピン注入の問題をさらに深く掘り下げ、マヨナラ粒子が関与する場合について取り組む予定である。さらに、ラシュバスピン軌道相互作用ならびに Dresselhaus スピン軌道相互作用は、ゲージ場の観点からみると非可換ゲージ場なので、これらを利用するデバイスにおいて、AB 効果のようなゲージ場固有の特性を見出していくことが今後必要である。また、既存のスピン現象においても、位相不変量が隠れていることも十分考えられるので、それらの探索も行う予定である。また工学部の植村先生の協力のもと伝統的なスピン注入の解釈にも注力する予定である。

今後も図 1 に示すアトム(Atom)・ビット(Bit)・エネルギー(Energy)/環境(Environment)空間［ABE^{2}空間］において、AB平面では、上記量子十字素子を次世代の高機能電子デバイスとして、BE平面では、フォトン・フォトキャリア直交型高効率太陽電池を、そしてAE平面では、プラットフォームベースのアプローチとして、廉価にして高性能である CUSP 技術を展開し、“Clean space for the rest of us”の観点で製造環境としてはもとより、医療や養護・療養環境としてもCUSPの機能性を高め、社会へのフィードバックへとつなげていく予定である。 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。

4．資料

4.1 学術論文等

1） 石橋 晃、大橋 美久、松田 順治、野口 伸守、江藤 月生 ：「空気清浄技術「CUSP」 ～新型太陽電池作製プラットフォームから居住空間応用展開まで」、建築設備と配管工事、日本工業出版、709(53) : 66-73 (2015)

2） K. Kondo: “Validity of the Free Electron Model for Two-Dimensional Electrodes”, Mat. Res. Soc. Symp. Proc., Vol.1753, mrsf14-1753-nn08-03 (2014).

3） K. Kondo: “Spin transport in normal metal/insulator/topological insulator coupled to ferromagnetic insulator structures”, *J. Appl. Phys.* Vol.115, pp. 17C701-1 – 17C701-3 (2014).

4） H. Kaiju, Y. Yoshida, S. Watanabe, K. Kondo, A. Ishibashi and K. Yoshimi: “Magnetic Properties on FeAl Stripes and Dots Induced by Nanosecond Pulsed Laser Irradiation”, J. Magn. Soc. Jpn. Vol. 38, pp. 157-161 (2014).

5）H. Kaiju, Y. Yoshida, S. Watanabe, K. Kondo, A. Ishibashi and K. Yoshimi: “Magnetic Properties on the Surface of FeAl Stripes Induced by Nanosecond Pulsed Laser Irradiation”, *J. Appl. Phys.*, 115: 17B901-1-17B901-3 (2014)

4.2 著書

特になし。

4.3 特許

・国内特許

1）石橋 晃：出願番号 2014-2121722、壁ならびに高清浄部屋システム及びその製造方法並びに建築物、2014年10月17日

2）石橋 晃：特願2014-122001、テントおよびテントシステム、2014年06月13日

3）石橋 晃：特願2014-115365、就寝状況検知システムおよび就寝状況検知方法、2014年06月04日

4）石橋 晃：特願2014-106988、壁ならびに高清浄部屋システム及びその製造方法並びに建築物 、2014年05月23日

5）石橋 晃、小林 光：2014-80088、光電変換装置、建築物および電子機器、2014年04月09日

・国際特許

1）石橋 晃、安武 正弘：PCT／JP2014／78543、就寝状況検知システムおよび就寝状況検知方法、2014 年 10 月 28 日

2）H. Kaiju, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, A. Ono and A. Ishibashi : US Patent 8795856, Nickel Thin Film, Method for Formation of the Nickel Thin Film, Ferromagnetic Nano-Junction Device, Method for Producing the Ferromagnetic Nano-Junction Device, Thin Metallic Wire, and Method for Formation of the Thin Metallic Wire, 2014 年 08 月 05 日

4.4 講演

a．招待講演

1）A. Ishibashi*: “High-efficiency solar cells and versatile clean systems (CUSPs) in ″atom-bit-energy/environment″ space”, Collaborative Conference on 3D and Materials Research, Incheon/Seoul, Korea (2014-06)

2）小林 光*、石橋 晃：「新規手法による結晶シリコン太陽電池の高効率化」、ナノとマクロをつなぐ物質・デバイス・システム創製戦略プロジェクト平成25年度成果報告会 、大阪大学会館 5月30日(2014)

b．一般講演

ⅰ）学会

1） A. Ishibashi*, R. Enomoto, J. Matsuda, Y. Ohashi: “Versatile Clean Unit System Platforms (CUSPs) in ‘atom/bit-energy/environment’ space”, The 15th Ries- Hokudai International Symposium joined with the 3rd International Symposium of Nano-Macro Materials, Devices, and System Research Alliance Project, Sapporo, Japan, December 16-17 (2014)

2） K. Kondo*: “Validity of the Free Electron Model for Two-Dimensional Electrodes”, 2014 MRS Fall Meeting, Boston, USA, November 30- December 5 (2014).

3） K. Kondo*: “Spin Injection to Semiconductor from Topological Insulator Coupled to Ferromagnetic Insulator through the Barrier”, The 15th Ries-Hokudai International Symposium joined with the 3rd International Symposium of Nano-Macro Materials, Devices, and System Research Alliance Project, Sapporo, Japan, December 16-17 (2014).

4） T. Sakashita*, Y. Kamaya, H. Kaiju, K. Kondo and A. Ishibashi: “AC impedance characteristics of Co/Alq3/Ni75Fe25 junctions”, The 15th Ries-Hokudai International Symposium joined with the 3rd International Symposium of Nano-Macro Materials, Devices, and System Research Alliance Project, Sapporo, Japan, December 16-17 (2014).

5） T. Taniguchi*, T. Kasai, K. Kondo and A. Ishibashi : “Redirection Waveguide for High Efficiency Orthogonal Photon-Photocarrier Propagation Solar Cell”, The 15th Ries-Hokudai International Symposium joined with the 3rd International Symposium of Nano-Macro Materials, Devices, and System Research Alliance Project, Sapporo, Japan, December 16-17 (2014).

6） 石橋 晃*、松田 順治、大橋 美久：「CUSPにより高清浄度環境を低コストで実現 ～ ベッド用フォールダブルCUSP(BF－CUSP)清浄環境 」、北海道ヘルスケア産業マッチングセミナー ～ 医・農工商をビジネスのステージに、札幌コンベンションセンター 3月20日(2015)

7） 石橋 晃*、大橋 美久：「汎用性に富むクリーン環境CUSP ～ 太陽電池作製プラットフォームから居住空間応用まで 」、日本応用物理学会 2015年春季大会、東海大学湘南キャンパス 3月11－14日(2015)

8） 石橋 晃*、谷口 朝哉、近藤 憲治、河西 剛: 「導波路結合フォトンフォトキャリア直交型マルチストライプ半導体太陽電池」、PV Japan 2014、Tokyo, 7月30-8月1日(2014)

9） 石橋 晃*、松田 順治、大橋 美久：「フォトンフォトキャリア直交型太陽電池・TD∪BUデバイス プロセス環境としてのClean Unit System Platform(CUSP)の展開」、PV Japan 2014、Tokyo, 7月30-8月1日(2014)

10）石橋 晃*：「量子十字素子、高効率太陽電池プロセス用高清浄環境の展開」、ナノとマクロをつなぐ物

質・デバイス・システム創製戦略プロジェクト平成２５年度成果報告会 、大阪大学会館 (2014-05)

１１）近藤憲治*:「障壁を介したトポロジカル絶縁体から半導体へのスピン注入」, 日本物理学会秋季大会 2014, 中部大学 9月07-9月10日 (2014).

１２）谷口 朝哉*、河西 剛、近藤 憲治、石橋 晃: 「フォトンフォトキャリア直交型高効率太陽電池用導波路の検討」, 第75回応用物理学会秋季学術講演会, 北海道大学 9月17-9月20日 (2014).

１３）坂下 友規*、釜谷 悠介、海住 英生、近藤 憲治、石橋 晃:「Ni75Fe25/Alq3/Co接合における交流インピーダンス特性」, 第75回応用物理学会秋季学術講演会, 北海道大学 9月17-9月20日 (2014).

4.5 共同研究

ｃ．民間等との共同研究

１）石橋 晃 (H26年度物質・デバイス領域共同研究拠点共同研究): 「新型光電変換デバイス並びにその光源デバイスへの応用可能性の検討」 研究代表者 スタンレー電気㈱ 久志本 琢也

２）石橋 晃 (H26年度物質・デバイス領域共同研究拠点共同研究) :「フォトン・フォトキャリア直交型太陽電池のAlGaInN系による展開可能性の検討」 研究代表者 東北大学金属材料研究所 松岡隆志

３）石橋 晃 (H26年度物質・デバイス領域共同研究拠点共同研究) :「フォトン-フォトキャリア直交型太陽電池用リディレクション導波路の検討」 研究代表者 帝人デュポン㈱ 久保耕司

４）石橋 晃 (H26年度物質・デバイス領域共同研究拠点共同研究) :「CUSP高清浄環境と内部エア換気の最適結合の研究」 研究代表者 シーズテック㈱ 大橋美久

５）石橋 晃 (H26年度物質・デバイス領域共同研究拠点共同研究) :「清浄環境（CUSP）の齎すポジティブ効果の客観的評価の検」 研究代表者 ㈱飛栄建設 松田順治

4.6 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）石橋 晃（日本学術振興会科学研究補助金基盤研究(B)) :「導波路結合フォトン・フォトキャリア直交型マルチストライプ半導体太陽電池の研究」H25-H27年度 18,200千円

２）近藤憲治 (日本学術振興会科学研究補助金基盤研究(C)):「位相不変量をもつスピン現象の理論研究及びその応用デバイスの設計」、H24-H26年度 5,460千円

ｃ．大型プロジェクト・受託研究

１）石橋 晃（飛栄建設株式会社）: 「ガス交換膜を備えた個人用清浄空間装置の開発」、2014 年度、480 千円

4.12 社会教育活動

ａ．公的機関の委員

ｂ．国内外の学会の役職

１）石橋 晃: 産総研コンソーシアム ファブシステム研究会委員(2010-03-2016-03)

２）Kenji Kondo: Editorial Board Member for Scientific Reports (published by Nature Publishing Group) (2014-06-present)

ｃ．併任・兼業

１）石橋晃：産業技術総合研究所 客員研究員 (2010-02-2016-03)

２）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）(2007-04-2016-05)

ｄ．その他

１）近藤憲治：Journal of Physics: Condensed Matter (the Institute of Physics)のレフェリー（2014年8月25日～2014年9月25日）

２）近藤憲治：Scientific Reports (Nature Publishing Group)のレフェリー（2014年4月23日～2014年8月15日）

３）近藤憲治：Semiconductor Science and Technology (the Institute of Physics)のレフェリー（2014年4月14日～2014年5月15日）

ｅ．新聞・テレビ等の報道

新聞

１）石橋 晃：産経新聞 2014年10月24日 「最新の空気清浄技術を導入 共用スペースを快適空間に」

２）石橋 晃：高齢者住宅新聞 2014年10月08日 「高効率・フィルター長寿命を実現 内部循環型空気清浄技術」

３）石橋 晃：財経新聞 2014年09月22日 「Clean Unit System Platform(CUSP)清浄環境技術を共同住宅で世界初導入」

４）石橋 晃：朝日新聞デジタル 2014年09月22日 「マンション共用キッズルーム、新技術で空気清浄」

５）石橋 晃：日本経済新聞 2014年09月22日 「クリーンルーム技術活用 共同住宅、空気を浄化」

６）石橋 晃：朝日新聞デジタル 2014年09月22日 「マンション共用キッズルーム、新技術で空気清浄」

７）石橋 晃：日本経済新聞 電子版 2014年09月21日 「共同住宅にクリーンルーム応用の空気清浄設備」

雑誌

1） 石橋 晃：日刊不動産経済通信 2014年09月30日 「共用部に空気清浄技術 郊外マンションで､キッズルームに導入」

２）石橋 晃：SUUMOジャーナル 2014年09月24日 「分譲マンションに空気清浄技術を導入」

その他

1）石橋 晃 ：マンションナビ 2014年09月25日 「世界初の空気清浄技術で空気のきれいなキッズルーム」

2）石橋 晃 ：まちおこし・観光・不動産ニュース 遊都総研.com 2014年09月24日 「サンケイビルなど、清浄環境技術CUSPを共同住宅で世界初導入、空気のきれいなキッズルームを北海道大学電子科学研究所と共同開発」

3）石橋 晃 ：re-port 2014年09月22日 「共用スペースに空気清浄技術を導入」

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、2014年10月1日～2015年3月31日

2）理学院: 現代物理学（分担）、石橋　晃、2014年4月1日～2015年9月30日

3）全学教育:環境と人間「ナノテクノロジー」（分担）、石橋　晃、2014年4月1日～2014年9月30日

4）全学教育: 現代物理学（分担）、石橋　晃、2014年4月1日～2015年9月30日

5）理学部、物理外国語文献講読I、近藤憲治、2014年10月1日～2015年3月31日

6）理学院、物理学特別研究I、近藤憲治、2014年4月1日～2015年3月31日

7）理学院、物理学論文輪講、近藤憲治、2014年4月1日～2015年3月31日

8）理学院、量子デバイス物理学（量子輸送と非平衡グリーン関数）、近藤憲治、2014年10月1日～2015年3月31日

薄膜機能材料研究分野

教　授　太田裕道（東工大院、工博、2012.9～）
准教授　山ノ内路彦（東北大院、工博、2014.5～）
助　教　片瀬貴義（東工大院、工博、2013.4～）
事務補助員　松尾直子（2014.4～2015.3）
技術補助員　関　芳美（2014.1～2014.11）
学部生　遠藤賢司（情報科学研究科生命人間情報科学）
坂上朗康（工学部情報エレクトロニクス学科）
鈴木雄喜（工学部情報エレクトロニクス学科）
廣野未沙子(工学部情報エレクトロニクス学科)
神代直尚（工学部情報エレクトロニクス学科）
蛸島健介（工学部情報エレクトロニクス学科）
横井直樹（工学部情報エレクトロニクス学科）

１．研究目標

従来セラミックスとして扱われてきた機能性酸化物を素材として、原子レベルで平坦な表面を有する高品質薄膜を作製し、機能性酸化物の持つ真のポテンシャルを最大限引き出し、世の中で役に立つデバイスの開発を目指している。物質表面や異種物質の接合界面近傍における厚さ数ナノメートルの領域は、仕事関数や化学ポテンシャルの差を解消し、熱平衡状態になるため、固体内部とは全く異なる電子状態になり、様々な興味深い電子・イオン伝導特性が生じる。薄膜機能材料研究分野では、こうした表面・界面で起こる興味深い現象を、単結晶（エピタキシャル）薄膜を用いて解き明かし、モデル化することによる新しい材料設計指針の提案を目指している。具体的には、(a) 機能材料の薄膜化・デバイス化に関する研究、(b) 酸化物スピントロニクスデバイス実現に向けた研究を行っており、現在以下の３つの研究を展開中である。

●水を含んだゲート絶縁体を用いた全固体薄膜トランジスタ構造の作製（図1）
●機能性酸化物の単結晶薄膜の作製と光・電子・磁気・イオン機能開拓
●酸化物スピントロニクスデバイスの開発

２．研究成果

(a)　機能材料の薄膜化・デバイス化に関する研究

全固体$SrCoO_{3-\delta}$強磁性薄膜トランジスタ

$SrCoO_{3-\delta}$（SCO）は、反強磁性絶縁体であるブラウンミライト$SrCoO_{2.5}$（BM）相と、強磁性金属であるペロブスカイト$SrCoO_3$（P）相を、酸素濃度制御によって変調可能な磁性材料のひとつである。SCOをスピントロニクスに応用するためには室温動作可能な全固体薄膜デバイスが必要不可欠であり、電気化学反応（液体）や酸素中加熱による従来の酸素濃度制御は不適である。本研究では、含水多孔質ガラス（CAN）をゲート絶縁体として用いた全固体SCO強磁性薄膜トランジスタを試作し、室温下で反強磁性絶縁体⇔強磁性金属の可逆スイッチングを実現した。

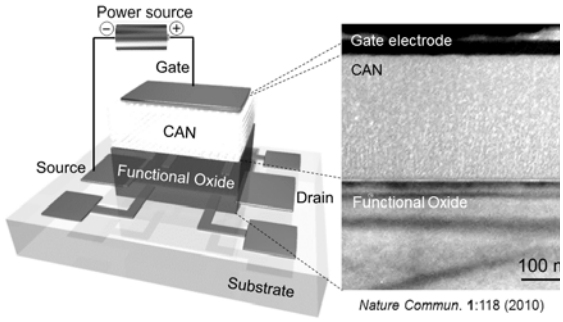


図１　水を含んだゲート絶縁体を利用した全固体機能性酸化物薄膜トランジスタ

PLD法により(001)-$SrTiO_3$単結晶基板上に作製したBM–SCOエピタキシャル薄膜（膜厚～30 nm）上に、CAN（膜厚 200 nm）をゲート絶縁体とする薄膜トランジスタ（L/W≒2 mm/2 mm）を試作した。電極にはTi薄膜（膜厚 20 nm）を用いた。

試作したSCO薄膜トランジスタに、室温大気中でゲート電圧V_gを各10分間印加することでSCO薄膜を酸化（$-V_g$）／還元（$+V_g$）し、シート抵抗R_sと磁化の変化を調べた。まず、V_g = −20 V印加したところ、R_s（室温）は1 MΩから100 Ωに減少し、R_s−Tは金属的であった。次いで+10 V印加したところ5 MΩに可逆的に回復した。X線回折の結果、V_g印加前及びV_g = +10 V印加後はBM相、V_g = −20 V印加後はP相であることが分かった。磁化の温度依存性を計測したところ（図2）、V_g印加前は、磁化のシグナルは見られなかったが、V_g = −20 V印加後には転移温度～275 Kの強磁性体であることが分かった。以上より、室温下で電気的に反強磁性絶縁体⇔強磁性金属の可逆スイッチングを実現した。

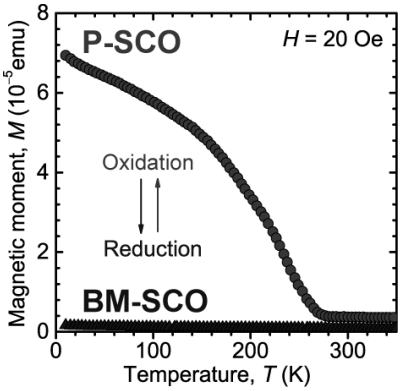


図２　全固体 $SrCoO_{3-\delta}$ 強磁性薄膜トランジスタの磁化の温度依存性

全固体エレクトロクロミックWO_3薄膜トランジスタ

酸化タングステン（WO_3）は、電気化学的プロトン化

(H_xWO_3) に伴う絶縁体→金属変化と同時に、可視光域で無色透明な状態から青色に色調変化するエレクトロクロミック材料として古くから知られている。WO_3の光学物性を利用した調光ガラスは既に実用化されているが、電解液を必要とするため、漏液対策が必要であり、応用範囲は限定的であった。本研究では、電解液の代わりに、漏液の心配がない含水ナノ多孔質ガラス（CAN）を用い、全固体エレクトロクロミックWO_3薄膜トランジスタを実現した。

PLD法により、無アルカリガラス基板（Corning EAGLE XG®）上に作製したWO_3薄膜（膜厚70 nm）上に、CAN（膜厚 200 nm）をゲート絶縁体とする薄膜トランジスタを作製した（L/W≒4 mm/4 mm）。ソース、ドレイン電極にはITO薄膜（100 Ω sq）を、ゲート電極にはNiO / ITO薄膜をそれぞれ用いた。

試作したWO_3薄膜トランジスタに、室温下で正と負のゲート電圧（30 V）を30秒間ずつ交互に印加して、WO_3をプロトン化／脱プロトン化させ、シート抵抗R_sと色の変化を調べた（図3）。ゲート電圧印加時には0.2 mAの大きなゲート電流（水の電気分解とWO_3のプロトン化によるイオン電流）が観測された。R_sは、+30 Vのゲート電圧を印加することで2桁減少し、低抵抗化した試料に−30 V印加することで可逆的に高抵抗化した。この抵抗変化と同時に、無色透明から青色への可逆的な色調変化が見られた（図3挿入図）。

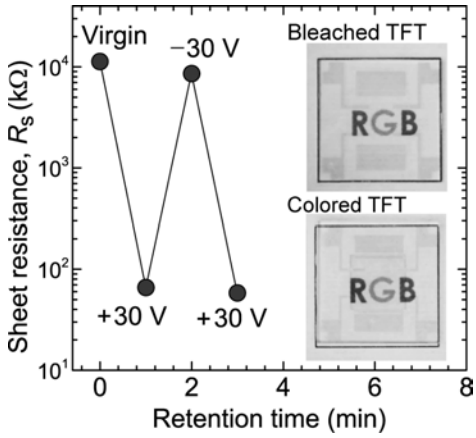


図 3　全固体エレクトロクロミック WO_3 薄膜トランジスタのスイッチング特性。挿入図は色調変化（グレースケールなので分からないが、正電圧印加後は青く呈色）

(b) 酸化物スピントロニクスデバイス実現に向けた研究

<u>強磁性$La_{0.67}Sr_{0.33}MnO_3$エピタキシャル薄膜の作製と局所磁界磁化反転</u>

スピントロニクス素子は、低消費電力なエレクトロニクスの構成素子として注目を集めている。中でも、電流印加による磁壁移動を利用した電流誘起磁壁移動素子（CIDWM）は、高速動作可能なスピントロニクス素子として期待されている。高いスピン偏極率を示す酸化物ハーフメタルは、磁壁移動に必要な電流の低減と高感度な磁化方向検出に適しており、低消費電力CIDWMの実現が期待できる。酸化物ハーフメタルである$La_{0.67}Sr_{0.33}MnO_3$（LSMO）は、強磁性転移温度T_Cが比較的低いものの、低温において高いスピン偏極率と、高効率な磁壁と電流の相互作用が報告されており、CIDWMに好適と考えられる。そこで、LSMOにおけるCIDWMを調べるための準備として、電流の周囲に発生するエルステッド磁界で局所的にLSMOを磁化反転する構造を作製し、磁壁を初期配置することに成功した。

PLD法により(001) $SrTiO_3$基板上にLSMO薄膜をエピタキシャル成長させた（膜厚30−35 nm、基板温度750ºC、酸素圧力25 Pa）。続いて、LSMO薄膜を幅5 μmの細線形状（LSMOチャネル）に加工した後、LSMOチャネル上に2本のAu/Cr電極を形成した。2本の電極間隔は25 μmであり、一方の電極はLSMOチャネルと直交する細線形状とした（図4）。また、チャネル方向は、LSMOの磁化容易軸方向である<110>である。

チャネル方向に外部磁界を印加して（室温）、LSMOの磁化方向を揃えた後、細線形状電極に電流パルスI_Oを印加した。続いて、外部磁界$\mu_0 H_{ex}$を掃引しながら磁壁通過に伴う電極間の抵抗変化を測定することにより、LSMO細線上の2本の電極間を磁壁が通過する外部磁界の大きさを調べた。I_O = 0及びI_O = −30 mAを印加した場合、$\mu_0 H_{ex}$ ～1.4 mTで磁壁は電極間を通過した。一方、I_O = +30 mAを印加した場合には、その$\mu_0 H_{ex}$が～1.1 mTに減少した。正のI_Oの場合、磁化方向と局所エルステッド磁界の方向が逆になるため、これはI_Oの印加により細線形状電極下で局所的に磁化反転が起こり、チャネル内に磁壁が導入されたためと考えられる。

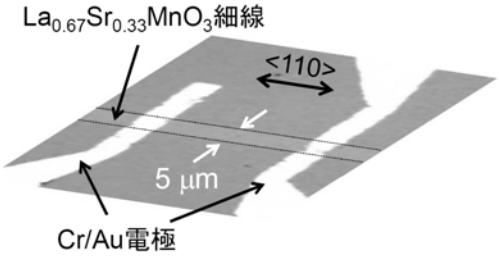


図４　$La_{0.67}Sr_{0.33}MnO_3$ 磁壁初期配置構造。LSMO 細線上の右電極に電流パルス I_0 を印加して局所エルステッド磁界を発生し、局所的に磁化反転。

3．今後の研究の展望

平成26年度中に研究に必要な実験環境整備がほぼ完了し、本格的に研究を進展させるフェーズに入った。含水ゲート絶縁体を用いた機能性酸化物薄膜トランジスタについては、水の電気分解による強力な酸化・還元反応を利用して、電気・磁気・光物性を室温で大きく、かつ可逆的に変調可能な、新しい薄膜固体デバイスの開発を行う。酸化物スピントロニクスデバイスについては、今年度に作製した素子をもとに酸化物ハーフメタルにおける電流誘起磁壁移動の観測を目指す。また、今年度は進捗がなかったAFMリソグラ

フィーによるナノメートルオーダーの極細1DEGの水電解誘起を実現したい。具体的には、$SrCoO_x$薄膜上で電界を印加した導電性AFMチップを走査し、ナノメートルオーダーの極細1DEGを広範囲に誘起する。さらにこの1DEGの電子輸送特性を計測可能なシステムの構築を行う予定である。

なお、機能材料の薄膜化・デバイス化に関する研究については、今後も共同研究を中心として研究を展開し、幅広く材料探索を行う。特に、拠点共同研究で必要とされるITO単結晶薄膜、(Sr,*RE*)CoO_3（*RE*: Y，希土類）薄膜、及びHigh-*k*誘電体薄膜の作製に注力する予定である。

4．資料

4.1 学術論文等

1）W. S. Choi, H. K. Yoo, and H. Ohta, ″Polaron transport and thermoelectric behavior in La-doped $SrTiO_3$ thin films with elemental vacancies″, *Adv. Funct. Mater.* **25**, 799-804 (2015).

2）T. Katase, K. Endo, and H. Ohta, ″Thermopower analysis of the electronic structure around metal-insulator transition in $V_{1-x}W_xO_2$″, *Phys. Rev. B* **90**, 161105(R) (2014).

3）W. S. Choi, H. Ohta, and H. N. Lee, ″Thermopower enhancement by fractional layer control in 2D oxide superlattices″, *Adv. Mater.* **26**, 6701-6705 (2014).

4.2 総説・解説・評論等

1）太田裕道，″ナノ構造熱電材料の開発動向″，*高分子* **63** [11], 785 (2014).

4.3 講演

a．招待講演

i）学会

1）H. Ohta*, ″Thermopower enhancement of two-dimensional electron gas in oxide semiconductors″, The American Ceramic Society's Electronic Materials and Applications 2015 (EMA2015), Orlando, Florida USA, 2015年1月21日-23日.

2）太田裕道*, 片瀬貴義, ″水電気分解を利用した酸化物の熱電能変調″, 第75回 応用物理学会秋季学術講演会（シンポジウム:固液界面を使った新しい酸化物エレクトロニクス:化学とデバイスの融合）, 北海道大学, 札幌, 2014年9月17日-20日.

3）T. Katase*, K. Endo, and H. Ohta, ″Metal-insulator transition and thermopower modulation of VO_2 thin film by electric-field induced hydrogenation ″, Oxide Thin Films for Advanced Energy and Information Applications; Materials Chemistry of Thin Film Oxides, Chicago, USA, 2014年7月13日-16日.

ii）研究会・シンポジウム・ワークショップ

1）H. Ohta*, ″Thermoelectric effect of extremely thin electron doped $SrTiO_3$″, The 1st IOP-RIES Joint Workshop, Hokkaido Univ., 2015年3月23日.

2）太田裕道*, ″酸化物薄膜作製におけるパルスレーザー堆積法とその応用″, 3次元造形＆薄膜実践セミナー, 東京工業大学, 東京, 2014年9月26日.

3）H. Ohta*, ″Epitaxial Film Growth and Application of Functional Oxides″, HOKUDAI-NCTU Joint Symposium on Nano, Photo and Bio Sciences, RIES, Hokkaido University, Japan, 10-11 September 2014.

4）M. Yamanouchi*, ″Current-induced domain wall motion for spintronics devices″, The 1st Korea-Japan Bilateral Workshop on Functional Materials Science -Thermoelectrics, Spintronics, Low-dimensional Materials, and Soft Matter-, Sapporo, Japan, August 1, 2014.

5）太田裕道*, ″酸化物半導体に蓄積された二次元電子ガス-熱電能を中心に-″, 統合物質創製化学推進事業第５回若手研究会, 休暇村支笏湖, 北海道, 2014年6月23日.

b．一般講演

i）学会

1）坂上朗康*, 山ノ内路彦, 片瀬貴義, 太田裕道, ″強磁性$La_{0.67}Sr_{0.33}MnO_3$エピタキシャル薄膜の作製と局所磁界磁化反転″, 日本セラミックス協会 2015年 年会, 岡山大学 津島キャンパス, 岡山, 2015年3月18日-20日.

2）廣野未沙子*, 片瀬貴義, 太田裕道, ″全固体エレクトロクロミックWO_3薄膜トランジスタ″, 第62回 応用物理学会春季学術講演会, 東海大学湘南キャンパス, 神奈川, 2015年3月11日-14日.

3）鈴木雄喜*, 片瀬貴義, 太田裕道, ″全固体$SrCoO_{3-\delta}$強磁性薄膜トランジスタ″, 第62回 応用物理学会春季学術講演会, 東海大学湘南キャンパス, 神奈川, 2015年3月11日-14日.

4）遠藤賢司*, 片瀬貴義, 太田裕道, ″水電気分解を利用したVO_2薄膜のプロトン化と金属-絶縁体可逆制御″, 第50回応用物理学会北海道支部学術講演会, 旭川市・勤労者福祉会館, 北海道, 2015年1月9日-10日.

5） 遠藤賢司*, 片瀬貴義, 太田裕道, ″水電気分解トランジスタによるVO_2薄膜へのプロトン挿入と金属-絶縁体相転移制御”, 平成26年度 日本セラミックス協会東北北海道支部研究発表会, 秋田市にぎわい交流館AU, 秋田, 2014年11月6日-7日.

6） 片瀬貴義*, 遠藤賢司, 太田裕道, ″電解誘起水素化によるVO_2薄膜トランジスタの金属-絶縁体相制御”, 薄膜材料デバイス研究会 第11回研究集会「薄膜材料デバイスの機能と物理」, 龍谷大学 響都ホール校友会館, 京都, 2014年10月31日-11月1日.

7） 片瀬貴義*, 遠藤賢司, 太田裕道, ″VO_2薄膜トランジ

スタの電解誘起水素化と金属-絶縁体相転移制御”, 第34回エレクトロセラミックス研究討論会, 東京工業大学, 東京, 2014年10月24日-25日.

8） T. Katase*, K. Endo, and H. Ohta, ″Field-induced hydrogenation of VO_2 thin film transistor for modulation of metal-insulator transition and thermopower″, 21st International Workshop on Oxide Electronics (WOE21), The Sagamore Resort, NY, USA, 2014年9月28日-10月1日 (Poster).

9） 片瀬貴義*, 鈴木雄喜, 山ノ内路彦, 高橋英史, 岡崎竜二, 寺崎一郎, 太田裕道, ″室温強磁性体 $Sr_{4-x}R_xCo_4O_{10+d}$ (R=Y,Er)のエピタキシャル薄膜成長″, 第75回 応用物理学会秋季学術講演会, 北海道大学, 札幌, 2014年9月17日-20日.

10） T. Katase*, K. Endo, and H. Ohta, ″Electric-field induced hydrogenation of VO_2 thin films; toward the modulation of metal-insulator transition and thermopower″, The 8th International Conference on the Science and Technology for Advanced Ceramics (STAC-8), Kanagawa, Japan, 2014年6月25日-27日.

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

1）片瀬貴義, 「原子層制御による新しい材料機能探索」, 文部科学省 科学研究費補助金 新学術領域研究「ナノ構造情報のフロンティア」第2回公開シンポジウム, 名古屋大学, 2015年3月11日.

2）T. Katase*, Y. Suzuki, M. Yamanouchi, H. Takahashi, R. Okazaki, I. Terasaki, and H. Ohta, ″Epitaxial film growth of ferromagnetic semiconductor $Sr_{4-x}A_xCo_4O_{10+\delta}$ (A = Y, Er) by pulsed laser deposition″ (Poster), The 1st Korea-Japan Bilateral Workshop on Functional Materials Science -Thermoelectrics, Spintronics, Low-dimensional Materials, and Soft Matter-, Sapporo, Japan, 2014年8月1日.

3）K. Endo*, T. Katase, and H. Ohta, ″Electric-field induced hydrogenation of VO_2 thin film transistor for modulation of metal-insulator phase transition″ (Poster), The 1st Korea-Japan Bilateral Workshop on Functional Materials Science -Thermoelectrics, Spintronics, Low-dimensional Materials, and Soft Matter-, Sapporo, Japan, 2014年8月1日.

4）片瀬貴義, 太田裕道*, ″VO_2薄膜の絶縁体－金属転移と熱電能変調″, ナノマクロ物質・デバイス・システム創製アライアンス 平成26年度 新エネルギー材料・デバイスプロジェクトグループ (G2) 研究会, 大阪大学 吹田キャンパス, 大阪, 2014年11月11日-12日.

5）遠藤賢司*, 片瀬貴義, 太田裕道, ″電界誘起水素化によるVO_2薄膜トランジスタの金属-絶縁体相制御″ (ポスター), 新学術領域研究「ナノ構造情報のフロンティア開拓―材料科学の新展開」第2回若手の会, 淡路夢舞台国際会議場, 兵庫, 2014年7月27日-28日.

6） Kenji Endo*, Takayoshi Katase, and Hiromichi Ohta, ″Thermopower Enhancement by one-dimentional electron gas″, THE 15th RIES-HOKUDAI INTERNATIONAL SYMPOSIUM ″響″ [hibiki], Gateaux Kingdom SAPPORO, Sapporo, Japan, 2013年12月16日-17日.

7） M. Yamanouchi*, A. Sakagami, T. Katase, H. Ohta, ″Domain wall motion in ferromagnetic oxide $La_{0.67}Sr_{0.33}MnO_3$″, THE 15th RIES-HOKUDAI INTERNATIONAL SYMPOSIUM ″響″ [hibiki], Gateaux Kingdom SAPPORO, Sapporo, Japan, 2013年12月16日-17日.

8） Takayoshi Katase*, Yuki Suzuki, Michihiko Yamanouchi, Hidefumi Takahashi, Ryuji Okazaki, Ichiro Terasaki, and Hiromichi Ohta, ″ Epitaxial film growth of room temperature ferromagnetic semiconductor $Sr_{4-x}Er_xCo_4O_{10+\delta}$ with A-site ordered structure″, THE 15th RIES-HOKUDAI INTERNATIONAL SYMPOSIUM ″響″ [hibiki], Gateaux Kingdom SAPPORO, Sapporo, Japan, 2013年12月16日-17日.

iii) コロキウム・セミナー等・その他

1）山ノ内路彦*, ″電気的磁化反転とそのデバイス応用″, 北海道大学電子科学研究所 平成２６年度研究交流会, 北海道大学, 札幌, 2015年1月9日

2）片瀬貴義*, 研究室メンバー, ″熱電効果で遊ぼう！″, 北海道大学電子科学研究所一般公開（展示）, 北海道大学, 札幌, 2014年6月7日

4.4 特許

a. 国内特許出願

1）特願2015-002769 「半導体装置」、太田裕道、片瀬貴義、鈴木雄喜（2015年1月9日 出願）

4.5 共同研究

a. 海外機関との共同研究

1）米国オークリッジ国立研究所（Ho-Nyung Lee博士）と密接に共同研究を実施し、成果がAdvanced Materials誌に掲載された。

2）韓国成均館大学校（Woo Seok Choi助教）と密接に共同研究を実施し、成果がAdvanced Functional Materials誌に掲載された。

3）台湾国立交通大学のJuhn-Jong Lin教授に超平坦ITO薄膜を送付し、共同研究を開始した。

b. 所内共同研究

1）グリーンフォトニクス研究分野（三澤弘明教授、上野貢生准教授）と密接に共同研究を実施した。

4.6 予算獲得状況

a. 科学研究費補助金

1）太田裕道（代表）、基盤研究(A)：「酸化物半導体一次元電子ガスの電界誘起と超巨大熱電能変調」、2013～2016年度
2）太田裕道（代表）、新学術領域「ナノ構造情報」計画班：「原子層制御による新しい材料機能探索」、2013～2017年度
3）寺崎一郎（代表）、太田裕道（分担）、基盤研究(B)：「光ドープされた伝導体の電子輸送特性」、2013～2017年度

b．科学研究費補助金以外

1）太田裕道、旭硝子財団 平成26年度研究助成金「超微細熱電材料用汎用熱電能計測装置の開発」 平成26年度～平成27年度
2) 片瀬貴義、村田学術振興財団　平成26年度研究助成金「電界誘起水素化によるVO_2薄膜の金属-絶縁体転移温度変調法の開発」 平成26年度

4.7 受賞

1）片瀬貴義、第 34 回エレクトロセラミックス研究討論会 優秀賞 2014 年 10 月
2）片瀬貴義、第 11 回薄膜材料デバイス研究会　ベストペーパーアワード 2014 年 11 月
3）遠藤賢司、科研費新学術領域「ナノ構造情報のフロンティア開拓-材料科学の新展開」 平成 26 年度 若手の会　金賞（増本賞）2014 年 7 月
4）片瀬貴義、第 44 回 電子科学研究所 松本・羽鳥奨学賞 2015 年 2 月
5）太田裕道、平成 26 年度 北海道大学 研究総長賞 優秀賞 2015 年 3 月

4.8 社会教育活動

a．国内外の学会の役職

1）太田裕道：日本熱電学会　評議員、2014年11月20日～2016年6月30日

b．北大での担当授業科目

1）工学部情報エレクトロニクス学科、応用物性工学、太田裕道、2014年10月1日～2015年3月31日
2）工学部、生体工学概論・生体医工学基礎（分担）、太田裕道、2015年1月14日
3）大学院、ナノマテリアル特論、太田裕道、2014年4月1日～2014年9月30日
4）工学部情報エレクトロニクス学科生体情報コース、コースアワー（分担）、片瀬貴義、2014年4月15日
5）工学部情報エレクトロニクス学科、情報エレクトロニクス演習電気回路（分担）、片瀬貴義、2014年5月8日 6）一般教育演習フレッシュマンセミナー（分担）、片瀬貴義、2014年4月11日～2014年7月25日
7）全学教育科目「環境と人間」ナノって何なの？（分担）、太田裕道、2014年6月20日
8）工学部情報エレクトロニクス学科生体情報コース、科学技術英語演習、太田裕道、山ノ内路彦、片瀬貴義、2014年11月7日～2015年2月27日

生命科学研究部門

研究目的

本研究部門では、非線形光学過程を用いたイメージングや解析、分子配列制御などの基盤技術をベースとして、生きたままの個体、組織深部の“*in vivo*”観察・操作を実現する新しい生命機能の解析法の開発、細胞の情報処理の解析および非線形化学動力学に基づく生命機能発現、ＤＮＡやタンパク質およびナノ粒子などの超分子構造体創製などに取り組んでいます。このような研究は、生命現象の基盤となる生体分子ネットワークや生命機能発現の解明のみならず、「光と細胞や脳科学」などの学際領域やナノテク・バイオ融合領域の発展に貢献すると共に、新しい治療や臨床応用へと繋げます。

光細胞生理研究分野

教　授　根本知己（東工大院、博(理)、2009.9～）
助　教　日比輝正（名古屋市大院、博(薬)、2010.4～）
助　教　川上良介（九大院、博(理)、2010.6～）
特任助教　飯島光一朗（京大院、博(生命科学)、2011.1～）
学術研究員　伊藤絵美子(2013.4～2015.3.31)
技術補佐員　小黒真紀(2012.5～2015.3.31)
事務補佐員　本久洋子(2013.3～)

院生
博士課程　小泉絢花、一本嶋佐理、青柳佑佳、澤田和明、田辺綾乃
修士課程　伊藤里紗、長内尚之、渡邊裕貴、大島太映人、北村瞭次

１．研究目標

本研究分野は、超短光パルスレーザーによる非線形光学過程を用いたイメージングを中心に、遺伝子工学、電気生理学、光機能分子などを活用することで、生きた個体、組織での、「光による観察」と「光による操作」を同時に実現する新しい生命機能のイメージング法を展開させることを目標とする。この方法論を、脳神経系、分泌、骨代謝、がん、糖尿病等の基礎研究に適用し、新たな学際的な研究領域「光・細胞生物学」「光・脳科学」を生み出すことを目指している。

２．研究成果

(a)　2光子顕微鏡は、近赤外域のフェムト秒光パルスにより生じる非線形光学過程である2光子励起過程を利用する顕微鏡法であり、他の顕微鏡法では観察が困難な、生体組織深部の観察が可能である。現在、生物個体中で細胞や生体分子機能の非侵襲的な可視化解析が可能な方法論として、期待されている。我々は、この顕微鏡法の黎明期より、その確立と生命科学への応用を先導し，世界で最も深い深部到達性とサブマイクロメーターの分解能を実現する**生体用 *“in vivo”* 2光子顕微鏡**システムを構築することに成功した（**図**1)。この方法論を用いて、神経回路網の発達や再構成に関する知見を得てきた。一方で、他の臓器、観察対象では、同様の観察に成功したという報告は少なく、脳神経系ほどには盛んに使用されているとは言い難い。我々は一連の*“in vivo”* 2光子顕微鏡システムを用いた研究によって、その原因は標本の種類や観察部位に依存した光学的なパラメーターの非一様性にあることを見出した。また、生組織中での観察しながらの細胞、分子の標識は極めて有用であるが、観察との同時実行は、組織由来の波長依存的な収差のため困難であった。これらの問題点を克服すべく、光学的なパラメーターや収差の評価を行い、レーザー光導入光学系の改良を実施した。特に微小な蛍光ビースの生体内への導入法を検討し、生体脳での点像分布関数を評価するための方法論を確立した。この成果はRIES国際シンポジウムにいて優秀ポスター賞を受賞した。

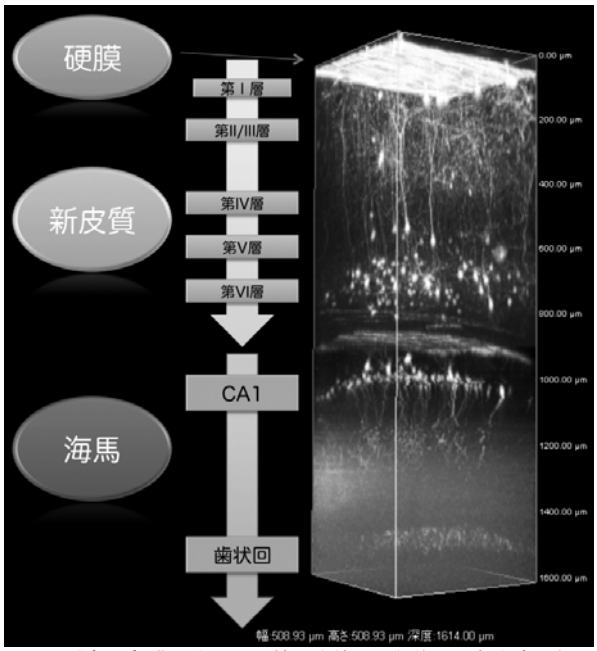


図１　*“in vivo”* 2光子顕微鏡は生体内の組織の深部を高分解能で長期間観察が可能である。麻酔下のマウス大脳新皮質の神経細胞及び海馬ＣＡ１・歯状回ニューロン。

特に、物質・デバイス共同研究拠点事業やJST･CRESTによる共同研究を通じて、東北大学NICHeの横山研究室と開発した半導体ベースの新規パルスレーザー光源を活用することで、世界深度記録というべき、マウス生体脳の脳表から約1.7 mmの蛍光断層観察に成功し、大脳皮質全層及び海馬CA1，歯状回の蛍光イメージングに成功した（図1，*Biomed. Opt. Express*, 2015)。その他、前頭前野、小脳、RMS等での生体脳*in vivo*イメージングに成功している。新規2光子顕微鏡の構築を進め、さらなる深部観察の方途を探索している。一方、得られ3次元画像の画像解析に関して共同研究を実施し、その成果を原著論文として発表した(*Comput. Biol. Med.*, 2014)。

(b)　昨年度に引き続き、科学技術振興機構 (JST) 戦略的創造研究推進事業 (CREST)「最先端レーザー等の新しい光を用いた物質材料科学、生命科学など先端科学のイノベーションへの展開」(「光展開」)　領域の「新規超短パルスレーザーを駆使した*“in vivo”*光イメージング・光操作のがん研究・がん医療への応用」(代表：愛媛大学医学部・今村健志教授）の主たる共同研究者として、受託研究「生物個体用*“in vivo”* 2光子顕微鏡の高度化」を実施し、今までの大脳新皮質の*“in vivo”*2光子イメージングにおける研究成果に基づき、さらなる高度化とがん細胞の潜む骨組織への応用を開始した。

さらに、マウス生体脳の*in vivo*観察の高度化と他の臓器応用を目的とし、レーザー照射条件、特に有効NAと補正環効果の検索を行った。その結果、深部イメージングにおいて最適

な照射条件は浅層とは異なっていることが判明した。また、固定脳における深部イメージングの改善のため、透徹剤として有力な試薬の候補を発見することに成功した。本方法論を用いて、固定脳における樹状突起スパインの形態の詳細な評価を進め、海馬CA1錐体細胞における形態多様性を示す結果を得ることができ、原著論文として発表した（*PLoS ONE,* 2015)。また、長期in vivoイメージングのための方法論の開発を推進し、特に生体脳の透徹化法の開発に着手した。この成果は第120回日本解剖学会総会・全国学術集会・第92回日本生理学会大会合同大会において優秀演題賞を受賞した。

また、本事業の課題の一つとして、研究支援部ニコンイメージングセンターの大友康平特任助教と共に、白色レーザー光源（**スーパーコンティニウム光**）を励起光源とした**ニポウディクス式高速共焦点顕微鏡**システムを開発した。その結果、マルチカラー高速3Dライブイメージングを実施することが可能となった。さらに蛍光分子の励起スペクトルの違いを用いて、多種の蛍光シグナルを分離する方法論を確立し、励起光アンミキシング法を用いたマルチカラーライブイメージングを実現した。本成果は日本バイオイメージング学会第23回学術講演会において「ベストイメージング賞晝間賞」を受賞した。

一方、立案時から参画してきた、新学術新学術領域研究「細胞機能と分子活性の多次元蛍光生体イメージング」（代表：京都大学医学部・松田道行教授）において、研究課題「生体深部の可視化と操作が同時に可能な個体用*“in vivo”* 2光子顕微鏡の開発と応用」を推進した。2光子顕微鏡のもう一つの強力な特徴である「超局所的な生体光刺激、操作」を、上述の*in vivo*イメージングと同時に、*“in vivo”*で実行することを可能とするための基礎的な研究を継続した。特に、マウス生体脳中の皮質深層での神経線維破断をターゲットとし、照射時間や浸液の屈折率、レーザー照査条件の検討を行った。その結果、同一のマウス個体の生体脳中において、近赤外超短光パルスレーザー光を神経細胞の局所に集中させることにより、知る限り世界で初めて、脳表から500μm以上の深部で神経線維の*in vivo*光操作・光破断に成功した（図2)。

これらの固定脳および生体脳でのイメージングの方法論を活用し、名古屋市立大・医、澤本和延教授との共同研究において、新生ニューロンの生体イメージングにも着手した。その結果、RMSから嗅球への移動する新生ニューロンの観察に固定脳、生体脳の両方において成功した。特に前者においては新生ニューロンの分布や移動方向について新たな知見を得た。

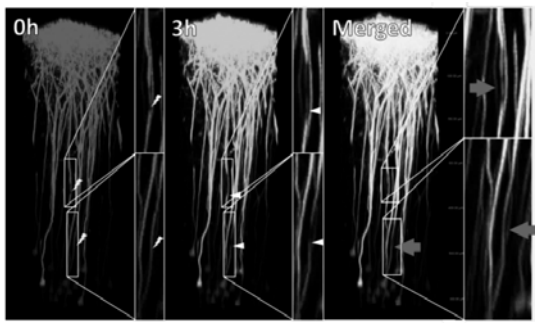


図２　マウス生体脳における頂上樹状突起の光操作と経時時間

(c)　昨年度に引き続きJST・CREST「光展開」領域の「ベクトルビームの光科学とナノイメージング」(代表：東北大学・佐藤俊一教授）の主たる共同研究者として、受託研究「生命科学のナノイメージング」において、超解像イメージングに関する研究を実施した。光は波動としての性質のために回折限界が存在するため、レンズを用いた場合、波長程度の有限な大きさまでしか絞ることができない。これが光学顕微鏡の空間分解能の限界の1つの大きな原因となっており、300 nm程度である。従って、シナプス小胞を始め、生理機能を担っている細胞内器官や構造を捉えることは原理的に極めて困難である。そこで、回折限界を越える蛍光イメージングを可能とする方法論を、**「ベクトルビーム」**を用いて開発した。特に、液晶デバイスを用いて光渦を発生させることで、誘導放出抑制現象（STED）を利用し、2光子顕微鏡の空間分解能を上げ、2光子顕微鏡の**超解像イメージング**化の開発に成功し、原著論文として報告した(*Opt. Express*, 2014)（図3)。また深部イメージングの際の空間分解能のさらなる向上のために、球面収差を補正するための液晶デバイスの開発に着手し、査読付国際会議（*proc. SPIE, BIOS,* 2015）で成果発表を行った。

さらに、研究支援部ニコンイメージングセンターの大友康平特任助教、(株)横河電機と共に、**ニポウディスク式高速2光子顕微鏡**システムによる時間分解能の向上にも着手した。高ピークパワーの近赤外超短光パルスレーザーシステムの導入や光学パラメーターの最適化を実施することで、視野を10倍に拡大しつつも、10 msという高速のフレームレートを実現することに成功した。本法により、基礎生物学研究所・村田隆准教授との共同研究において、植物細胞の紡錘体形成における微小管のダイナミクスの3Dライブイメージングに成功した（*Anal. Sci.*, 2015)。また麻酔下のマウスの血管・血流を、第2次高調波発生や2光子励起蛍光を用いて、高速イメージングすることにも成功した。これらの成果は日本バイオイメージング学会第23回学術講演会において「ベストイメージング賞OLYMPUS賞」を受賞した。

(d)　2光子顕微鏡や新規蛍光タンパク質技術を用いて、分泌、開口放出の分子機構に関する研究を推進した。特に、大阪大学大学院医学系研究科原田彰宏教授との共同研究により、SNARE分子を条件的ノックアウトしたトランスジェニックマウスを用い、膵臓外分泌腺におけるCa^{2+}依存性開口放出におけるSNARE分子の生理機能の検討を行った。また広島大学、兼松隆教授との共同研究ではPRIP1,2分子のダブルノックアウトマウスを用いたインシュリン開口放出の分子的な制御機構に関する研究について、原著論文として発表した（*Biol. Open*, 2014)。

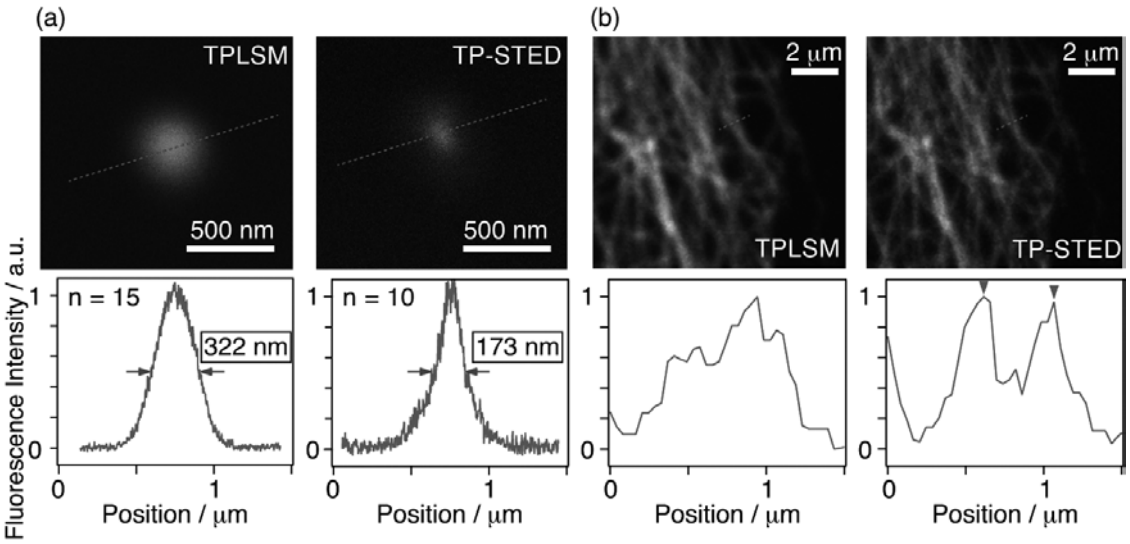


図３：２光子 STED 顕微鏡による超解像イメージングの比較。(a)微小蛍光ビーズ像、(b) 固定した COS7 細胞の微小管の抗体蛍光染色サンプル。TPLSM は通常の２光子顕微鏡、TP-STED は２光子 STED 顕微鏡による。

(e)　物質・デバイス領域共同研究拠点、一般課題および特定課題B-1「生体ナノシステムの動作原理に基づいた新規バイオナノデバイスの創成と医学研究への展開」においては、阪大産研・永井健治教授の開発したCa^{2+}センサータンパク質を発現するトランスジェニックマウスを、基礎生物学研究所・野中茂紀准教授のグループが作成したので、そのマウスのCa^{2+}依存性の生理機能の解析を推進した。本年度は、膵臓外分泌腺腺房細胞におけるCa^{2+}依存性開口放出の可視化解析に応用し、開口放出をトリガーするCa^{2+}波動の動態に関する新たな知見を得ることに成功した(***Int. J. Mol. Sci.,*** 2014)。小脳プルキンエ細胞層におけるCa^{2+}動態の ″*in vivo*″ イメージングを実施し、同時に発火するプルキンエ細胞体の空間的分布を観察する事で、体性感覚刺激時と自発的発火時とでの神経細胞集団の活動様式について、比較する事ができた。本年度は特定課題B-1「生体ナノシステムの動作原理に基づいた新規バイオナノデバイスの創成と医学研究への展開」の公開シンポジウムを実施した。

尚、これらの研究成果を発展させ、新たな神経科学を開拓するために、文部科学省「革新的技術による脳機能ネットワークの全容解明プロジェクト」の個別技術開発課題を受託し、新規レーザー光源による超深部*in vivo*顕微鏡法、超解像顕微鏡法の開発に着手した。

３．今後の研究の展望

今後の我々の研究目標は、生体脳・中枢神経系モデルにおいて、SNARE分子やその結合因子など、開口放出を引き起こす分子機械の機能解明とその生理機能、破綻として病理の理解にある。そのためには、この分子機械の有力な候補分子の動態、複合体形成などを同時多重可視化し、生合成分子の放出に伴う分子過程を定量化する方法論を開発することが重要である。また、これらの方法論を拡張し、がん組織、骨組織など多様な生組織の深部解像能を向上させ、可視化と光操作の同時実行による生体分子動態の高精度解析を可能としたい。その為に、このような実験を広く可能とするプラットホームの確立や研究コア・グループの形成が必要であろう。さらに、先述のように深部断層イメージングに成功しているマウス大脳新皮質と、その他の生体臓器との間の光学的な差異についても検討し、その結果を反映してレーザー顕微鏡の光学系の改良に努めることが肝要であろう。またマウス生体脳の*in vivo*イメージングは、神経回路網の機能がどのように実現されているのかを理解するためにも有用である。このように、イメージング技術を展開させることと、真の生体内部で生じている現象の定量的、統合的に理解することを縦糸・横糸とすることで、我々の身体における生理機能や病理の理解を推進し、広く国民の福祉へと還元していきたいと考える。

４．資料

4.1　学術論文等

１）S. Asano, T. Nemoto, T. Kitayama, K. Harada, J. Zhang, K. Harada, I. Tanida, M. Hirata, and T. Kanematsu：“Phospholipase C-related catalytically inactive protein (PRIP) controls KIF5B-mediated insulin secretion”, Biological Open 3(6)：463-474 (2014)

２）M. Nakao, K. Kurebayasshi, T. Sugiura, T. Sato, K. Sawada, R. Kawakami, T. Nemoto, K. Minato and T. Matsuda：“Visualizing in vivo Brain Neural Structures Using Volume Rendered Feature Spaces”, Computers in Biology and Medicine, 53：85-93 (2014)

３）T. Nemoto：“Development of novel two-photon microscopy for living brain and neuron”, Microscopy, 63(suppl 1)：i7-i8 (2014)

4）Y. Oshima, T. Imamura, A. Shintani, H. K. Kobayashi, T. Hibi, T. Nagai, S. Nonaka and T. Nemoto : “Ultrasensitive imaging of Ca^{2+} dynamics in pancreatic acinar cells of Yellow Cameleon-Nano transgenic mice”, Int. J. Mol. Sci., 15(11) : 19971-19986 (2014)

5）K. Otomo, T. Hibi, Y. Kozawa, M. Kurihara, N. Hashimoto, H. Yokoyama, S. Sato and T. Nemoto : “Two-Photon Excitation STED Microscopy by Utilizing Transmissive Liquid Crystal Devices” , Optics Express, 22(23) : 28215-28221 (2014)

6）M. Nakao, T. Sugiura, K. Sawada, R. Kawakami, T. Nemoto and T. Matsuda : “Interactive Visual Exploration of Overlapping Similar Structures for Three-dimensional Microscope Images”, BMC Bioinformatics, 15 : 415- (2014)

7）Y. Aoyagi, R. Kawakami, H. Osanai, T. Hibi and T. Nemoto : “A Rapid Optical Clearing Protocol using 2,2-Thiodiethanol for Microscopic Observation of Fixed Mouse Brain”, PLoS ONE, 10(1) : e0116280 (2015)

8）A. Tanabe, T. Hibi, K. Matsumoto, M. Yokoyama, M. Kurihara, S. Ipponjima, N. Hashimoto and T. Nemoto : “Transmissive liquid crystal devices correcting the spherical aberrations in laser scanning microscopy”, p. 9335-1, Proc SPIE: 9335-1 (2015)

9）R. Kawakami, K. Sawada, Y. Kusama, Y. Fang, S. Kanazawa, Y. Kozawa, S. Sato, H. Yokoyama and T. Nemoto : “In vivo two-photon imaging of mouse hippocampal neurons in dentate gyrus using a light source based on a high-peak power gain-switched laser diode”, Biomed. Opt. Express, 6(3) : 891-901 (2015)

１０） K. Otomo, T. Hibi, T. Murata, H. Watanabe, R. Kawakami, H. Nakayama, M. Hasebe and T. Nemoto : “Multi-point scanning two-photon excitation microscopy utilising a high-peak-power 1042-nm laser”, Anal.Sci. (*in press*)

4.2 総説・解説・評論等

1）T. Nemoto, R. Kawakami, T. Hibi, K. Iijima and K. Otomo : “Deep imaging of living mouse brain utilizing novel laser photonics technologies”, Plant Morphol, 24(1) : 31-35 (2014)

2）根本 知己、日比 輝正、川上 良介 : 「生体光イメージングや光学顕微鏡で用いられる原理・装置―最新の光学顕微鏡法を中心に―」、『生体イメージング研究update』、南山堂 : 9-19 (2014)

3）T. Nemoto, R. Kawakami, T. Hibi, K. Iijima and K. Otomo : “Two-photon excitation fluorescence microscopy and its application for functional connectomics”, Microscopy, 64(1) : 39-45 (2014))

4）根本 知己、日比 輝正、川上 良介 : 「2光子蛍光イメージング」、「発光の事典」（木下、太田、永井、南（共編））、朝倉書店 : 第７．３．２節 (印刷中)

5）K. Otomo, T. Hibi, Y. Kozawa, S. Ipponjima, S. Sato and T. Nemoto : “Super-resolution two-photon excitation microscopy utilizing transmissive liquid crystal devices”, “Super-resolution imaging in medicine and biology”, Taylor & Francic Books, inc. : Chapter 12 (印刷中)

4.3 特許、知的財産等

1）岸本 拓哉、大西 通博、根本 知己、鍋倉 淳一 : 2009286695(願書番号)、特許第５５９９１８４号、生体内特定代謝物の迅速測定法と装置、登録日 2014年08月22日

4.4 受賞

1）渡邊 裕貴、大友 康平、日比 輝正、村田 隆、川上 良介、中山 博史、根本 知己 : ベストイメージング賞 OLYMPUS賞 「励起レーザー光学系の最適化による多点走査方式2光子顕微鏡法の改良」 （第23回日本バイオイメージング学会学術集会） 2014年09月

2）伊藤 里紗、日比 輝正、大友 康平、一本嶋 佐理、大嶋 佑介、今村 健志、根本 知己 : ベストイメージング賞晝馬賞 「スーパーコンティニュウム光を用いた多色励起高速共焦点顕微鏡法」 （第23回日本バイオイメージング学会学術集会） 2014年09月

3）R. Kitamura, K. Sawada, R. Kawakami and T. Nemoto : 優秀ポスター賞“Evaluation of in vivo two-photon microscopy by imaging of fluorescent beads in mouse brain”（The 15th RIES-Hokudai international symposium 2014） 2014年12月

4）伊藤 里紗、三上賞「スーパーコンティニュウム光を用いた多波長励起高速共焦点顕微鏡法」(北海道大学情報科学研究科生命人間科学情報専攻)、2015年2月

5）根本 知己 : 北海道大学研究総長賞奨励賞 （北海道大学） 2015年03月

6）大島 太矩人、飯島 光一朗、川上 良介、根本 知己 : 優秀演題賞 「Advances in open-skull surgery for in vivo imaging by biocompatible materials」 （「第120回日本解剖学会総会・全国学術集会・第92回日本生理学会大会合同大会」） 2015年03月

4.5 講演

a. 招待講演

i）学会

1）根本 知己* : ″Improvement of two-photon laser scanning microscopy for live imaging utilizing laser technology″、日本生物物理学会第52回年会、札幌コンベンションセンター(札幌市) (2014-09)

ii）研究会・シンポジウム・ワークショップ

1）根本 知己* : 「新規レーザー・光技術の導入による光

学顕微鏡の高度化」、附置研究所間アライアンスによるナノとマクロをつなぐ物質・デバイス・システム創製戦略プロジェクト（ナノマクロ物質・デバイス・システム創製アライアンス）平成２５年度成果報告会 、大阪大学豊中キャンパス（豊中市）（2014-05）

2） T. Nemoto* : “Improvement of penetration depth and resolutions in laser-scanning microscopy”, WORKSHOP ON ADVANCED OPTICAL IMAGING, Academia Sinica, Taipei, Taiwan (2014-07)

3） 根本 知己* : 「新規レーザーや光技術を用いた多子イメージングの高度化」、第６回光操作研究会、東北大学片平キャンパス（仙台市）（2014-08）

4） K. Otomo*, T. Hibi and T. Nemoto : “Improvement of spatial and temporal resolution of two-photon excitation microscopy for biological specimens”, Hokkaido University – Narional Chiao Tung University, Taiwan Joint Symposium on Nano, Photo and Bio Sciences, 北海道大学電子科学研究所(札幌市) (2014-09)

5） 根本 知己*:「多光子顕微鏡を用いたマウス生体脳のin vivo深部観察」、日本顕微鏡学会第58回シンポジウム、九州大学医学部百年講堂 (2014-11)

6） 根本 知己* : 「多光子励起過程を用いた生体深部のイメージング技術」、物性研研究会、東京大学柏の葉キャンパス（柏市）（2014-12）

ⅲ）コロキウム・セミナー等・その他

1） T. Nemoto* : “Activity of NIC at Hokkaido university”, NIC directors’ meeting, Northwestern university, Chicago, USA (2014-05)

2） 根本 知己* : 「生きた臓器深部のインビボ観察や操作を実現するレーザー光技術」、未来医療イノベーションセミナー、北海道大学医学部(札幌市) （2014-11）

3） 大友 康平*、日比 輝正、根本 知己 : 「Improvement of the spatial, temporal resolution of two-photon excitation microscopy」、第三回NINS Colloquium、箱根 (2014-12)

ｂ．一般講演

ｉ）学会

1） K. Otomo*, T. Hibi, Y. Kozawa, H. Yokoyama, S. Sato and T. Nemoto : “Development of the stimulated emission depletion microscope using transmission-type liquid crystal devices”, Focus on Microscopy, 2014, University of Sydney, Sydney,, Australia (2014-04)

2） H. Nakayama*, K. Otomo, T. Murata, T. Hibi, R. Kawakami and T. Nemoto : “Multipoint multiphoton microscope”, Focus on Microscopy, 2014, University of Sydney, Sydney, Australia (2014-04)

3） 國井 政孝*、吉村 信一郎、高橋 倫子、小林 雅樹、佐藤 隆史、川上 良介、根本 知己、河西 春郎、北村 忠弘、佐藤 健、原田 彰宏 : 「「膵外分泌・内分泌における膜融合関連分子SNAP23の機能の解明」」、第66回日本細胞生物学会大会、奈良県新公会堂東大寺総合文化センター（奈良市）（2014-06）

4） 伊藤 里紗*、日比 輝正、大友 康平、一本嶋 佐理、大嶋 佑介、今村 健志、根本 知己 : 「スーパーコンティニュウム光を用いた多色励起高速共焦点顕微鏡法」、日本バイオイメージング学会第２３回学術講演会、大阪大学吹田キャンパス（吹田市）（2014-09）

5） 渡邊 裕貴*、大友 康平、日比 輝正、村田 隆、川上 良介、中山 博史、根本 知己 : 「励起レーザー光学系の最適化による多点走査方式２光子顕微鏡法の改良」、日本バイオイメージング学会第２３回学術講演会、大阪大学吹田キャンパス（吹田市）（2014-09）

6） 村田 隆*、大友 康平、日比 輝正、川上 良介、中山 博史、野中 茂紀、根本 知己、長谷部 光泰 : 「2光子スピニングディスク顕微鏡による紡錘体形成過程の3Dタイムラプス解析」」、日本植物形態学会第26回総会・大会、明治大学生田キャンパス（神奈川県川崎市）(2014-09)

7） 川上 良介*、澤田 和明、草間 裕太、房 宜澂、小澤 祐市、佐藤 俊一、横山 弘之、根本 知己 : 「高出力利得スイッチングＬＤベース高機能光源による生体マウス海馬のin vivo 2光子イメージング」、第75回応用物理学会秋季学術講演会、北海道大学札幌キャンパス（札幌市）（2014-09）

8） 大友 康平*、日比 輝正、根本 知己 : 「新規レーザー走査型顕微鏡を用いた生体内微細構造の可視化」、IIRS創立十周年記念学術講演会、東京大学伊藤国際学術研究センター（東京都）（2014-11）

9） 大友 康平*、日比 輝正、小澤 祐市、一本嶋 佐理、横山 弘之、佐藤 俊一、根本 知己 : 「IMPROVEMENT OF THE SPATIAL RESOLUTION OF TWO-PHOTON MICROSCOPY BY UTILIZING TRANSMISSIVE LIQUID CRYSTAL DEVICES」、第３７回日本分子生物学会年会、パシフィコ横浜（横浜市）（2014-11）

１０）草間 裕太*、房 宜澂、根本 知己、横山 弘之 : 「利得スイッチング半導体レーザに基づく同期制御２波長パルス光源」、第62回応用物理学会春季学術講演会、東海大学湘南キャンパス（平塚市）（2015-03）

１１）北村 瞭次*、澤田 和明、川上 良介、根本 知己 : 「Evaluation of in vivo two-photon microscopy by imaging of embedded fluorescent beads in mouse brain」、第120回日本解剖学会総会・全国学術集会・第92回日本生理学会大会合同大会、神戸国際会議場（神戸市）（2015-03）

１２）大島 太矩人*、飯島 光一朗、川上 良介、根本 知己 : 「Advances in open-skull surgery for in vivo imaging by biocompatible materials」、第120回日本解剖学会総会・全国学術集会・第92回日本生理学会大会合同大会、神戸国際会議場（神戸市）（2015-03）

１３）國井 政孝*、高橋 倫子、小林 雅樹、川上 良介、佐藤

隆史、吉村 信一郎、佐藤 健、根本 知己、河西 春郎、北村 忠弘、原田 彰宏 :「Function of a t-SNARE protein SNAP23 in exocrine and endocrine pancreas」、第120回日本解剖学会総会・全国学術集会・第92回日本生理学会大会合同大会、神戸国際会議場（神戸市） (2015-03)

ii）研究会・シンポジウム・ワークショップ

1） 大友 康平*、日比 輝正、小澤 祐市、横山 弘之、佐藤 俊一、根本 知己 :「透過型液晶デバイスを用いて作成した光渦による多光子励起STED顕微鏡の開発」、附置研究所間アライアンスによるナノとマクロをつなぐ物質・デバイス・システム創製戦略プロジェクトー平成25年度成果報告会ー、大阪大学会館（豊中市) (2014-05)

2） K. Otomo*, T. Hibi and T. Nemoto : “Improvement of Spatial and Temporal Resolutions of Multi-Photon Excitation Microscopy for Live Specimens”, The 37th Naito Conference Bioimaging―a paradigm shift for the life sciences, Hilton Niseko Village, Hokkaido (2014-07)

3） 飯島 光一朗*、大島 太矩人、北村 瞭次、川上 良介、根本 知己 :「生体適合材料を活用した,Open Skull 法の改良」、第３回ニューロフォトニクス研究会（レーザー学会第467回研究会)、北海道大学北キャンパス(札幌市） (2014-11)

4） K. Otomo*, T. Hibi and T. Nemoto : “Improvement of spatial and temporal resolution in two-photon excitation Microscopy”, G3 Meeting Japanese Nano-Macro Materials,Devices and System Research Alliance, 九州大学日新プラザ（福岡市） (2014-11)

5） K. Otomo*, T. Hibi and T. Nemoto : “Excitation spectral imaging by utilizing supercontinuum laser light source”, G3 Meeting Japanese Nano-Macro Materials, Devices and System Research Alliance, 九州大学日新プラザ (福岡市) (2014-11)

6） T. Oshima*, K. Iijima, R. Kawakami and T. Nemoto : “New Method for open-skull surgery for in vivo imaging using biocompatible materials”, the 15th RIES-Hokudai international symposiumu 2014, Hotel Châteraisé Gateauex Kingdom Sapporo (2014-12)

7） R. Kitamura*, K. Sawada, R. Kawakami and T. Nemoto : “Evaluation of in vivo two-photon microscopy by imaging of fluorescent beads in mouse brain”, the 15th RIES-Hokudai international symposium 2014, Hotel Châteraisé Gateauex Kingdom Sapporo (2014-12)

8） 村田 隆*、大友 康平、日比 輝正、川上 良介、中山 博史、根本 知己、長谷部 光泰 :「2光子スピニングディスク顕微鏡の広視野化と植物紡錘体の4Dイメージングへの応用」、定量生物学の会 第七回年会、九州大学筑紫キャンパス（福岡) (2015-01)

9） 米丸 泰央*、山中 真仁、小澤 祐市、日比 輝正、川上 良介、佐藤 俊一、根本 知己、藤田 克昌 :「飽和励起 Higher-order Radially Polarized (HRP) ビーム照明による超解像蛍光イメージング」、物質・デバイス領域共同研究拠点 特定課題B-1「生体ナノシステムの動作原理に基づいた新規バイオナノデバイスの創成と医学研究への展開」公開シンポジウム、北海道大学電子科学研究所(札幌市) (2015-01)

１０）村田 隆*、大友 康平、日比 輝正、川上 良介、中山 博史、根本 知己 :「２光子スピニングディスク共焦点顕微鏡による紡錘体形成の3Dライブイメージング」、物質・デバイス領域共同研究拠点 特定課題B-1「生体ナノシステムの動作原理に基づいた新規バイオナノデバイスの創成と医学研究への展開」公開シンポジウム、北海道大学電子科学研究所(札幌市) (2015-01)

１１）亀井 保博*、野中 茂紀、永井 健治、中野 雅裕、北野 健、奥山 輝大、竹内 秀明、横山 仁、林 真一、川住 愛子、林 利憲、服部 雅之、玉田 洋介、村田 隆、早野 裕、大屋 真、根本 知己 :「生体内の単一細胞温度制御計測システムの開発」、物質・デバイス領域共同研究拠点特定課題B-1「生体ナノシステムの動作原理に基づいた新規バイオナノデバイスの創成と医学研究への展開」公開シンポジウム、北海道大学電子科学研究所(札幌市) (2015-01)

１２）T. Nemoto*, T. Hibi, R. Kawakami, K. Iijima and K. Otomo : “Improvement of multi-photon microscopy by utilizing new laser technologies”, International Symposium on Multi-dimensional fluorescence live imaging of cellular function and molecular activities, Kyoto International Conference Center (2015-01)

１３）A. Tanabe*, T. Hibi, K. Matsumoto, M. Yokoyama, M. Kurihara, S. Ipponjima, N. Hashimoto and T. Nemoto : “Transmissive liquid crystal devices correcting the spherical aberrations in laser scanning microscopy”, Bios, SPIE, The Moscone Center, San Francisco, California, USA (2015-02)

iii）コロキウム・セミナー等・その他

1） 大友 康平*、日比 輝正、伊藤 里紗、一本嶋 佐理、根本 知己 :「スーパーコンティニュウム光を用いた多波長励起分光イメージング」、光展開成果発表会、JST東京本部別館（東京都） (2014-10)

4.6 シンポジウムの開催

1） 根本 知己、大友 康平 :「電子科学研究所ニコンイメージングセンターセミナー「第３回蛍光バイオイメージング・ミニシンポジウム」」、北海道大学電子科学研究所(札幌市） (札幌市) (2014年09月24日)

2） 根本 知己 :「第５２回日本生物物理学会年会」、札幌コンベンションセンター(札幌市） (札幌市) (2014年09月25日～2014年09月27日)

3） 根本 知己 :「第３回ニューロフォトニクス研究会（レ

ーザー学会第467回研究会）」、北海道大学北キャンパス(札幌市)（札幌市)(2014年11月07日)

4） T. Nemoto, H. Ohta, Y. Nishino, K. Niikura, Y. Sato, K. Ueno, E. Ginder, T. Hibi, R. Kawakami, T. Kamei, M. Yamanouchi, T. Katase, Y. Yamaguti and Y. Iseya：“The 15th RIES-Hokudai International Symposium on ″響″[hibiki] Joined with The 3rd International Symposium of Nano-Macro Materials, Devices, and System Research Alliance Project”, 130人, Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (Sapporo) (2014年12月16日～2014年12月17日)

5） 根本 知己：「物質・デバイス領域共同研究拠点、特定課題B-1「生体ナノシステムの動作原理に基づいた新規バイオナノデバイスの創成と医学研究への展開」公開シンポジウム」、北海道大学（札幌市)(2015年01月23日)

6） 根本 知己、大友 康平：「ニコンイメージングセンター超解像顕微鏡セミナー」、北海道大学電子科学研究所(札幌市)(2015年01月29日)

4.7 共同研究

a. 民間等との共同研究

1） 根本 知己（株）ニコンインステック：共同研究、2014年度

2） 根本 知己（株）ニコン：共同研究、2014年度

3） 根本 知己、物質・デバイス領域共同研究拠点、特定課題B-1「生体ナノシステムの動作原理に基づいた新規バイオナノデバイスの創成と医学研究への展開」、オーガナイザー、2013～2015年度

b. 受託研究

1） 根本 知己(科学技術振興機構)：戦略的創造推進事業、2010～2015年度、「新規超短パルスレーザーを駆使したin vivo光イメージング・光操作のがん研究・がん医療への応用」(愛媛大・今村健志教授・代表）における「生物個体用in vivo 2光子顕微鏡の高度化」

2） 根本 知己(文部科学省委託事業、技術開発個別課題）：「新規半導体レーザー光源を用いた超解像多光子励起顕微鏡法の開発」、2014～2016年度、「革新的技術による脳機能ネットワークの全容解明プロジェクト」

4.8 予算獲得状況（研究代表者、分類、研究課題、期間）

a. 科学研究費補助金

1） 根本 知己、新学術領域研究 研究領域提案型、 生体深部の可視化と操作が同時に可能な個体用 in vivo ２光子顕微鏡の開発と応用、2010～2014年度

2） 根本 知己、基盤研究（A)、新規半導体レーザー光源を用いた超解像多光子励起顕微鏡法の開発、2014～2016年度

3） 日比 輝正、挑戦的萌芽研究、組織内環境の多光子励起イメージングによる新奇検査・診断法の開発、2013～2015年度

4） 川上 良介、挑戦的萌芽研究、励起レーザーのベクトルビーム化による高精細３次元蛍光イメージング法の開発、2014～2016年度

5） 一本嶋 佐理、特別研究員奨励費、皮膚ターンオーバーの破綻を惹き起こす微小構造変化のイメージング、2013-2015年度

6） 青柳 佑佳、特別研究員奨励費、ニューロン再生による治療に向けたin vivoイメージング評価系の確立、2014-2016年度

7） 澤田 和明、特別研究員奨励費、うつ発症機序の解明を目指したマウス前頭前野の長期in vivo2光子イメージング、2014-2016年度

b. 奨学寄付金

1） 川上 良介、内藤記念科学奨励金、長期in vivo2光子顕微鏡法によるマウス前頭前野における精神疾患発症機序の経時イメージング」、2013～2014年度

4.9 社会教育活動

a. 公的機関の委員

1） 根本 知己：(独）科学技術振興機構、専門委員（2010年～現在)

2） 根本 知己：(独）日本学術振興会、専門委員(2014年～現在)

3） 根本 知己：（独）科学技術振興機構、国際科学技術協力推進委員 （2014年01月15日～2015年03月31日）

b. 国内外の学会の役職

1） 根本 知己：日本分光学会・生細胞分光部会、幹事（2006年1月1日～現在）

2） 根本 知己：日本ナノメデイシン交流協会・理事、運営委員（2006年4月1日～現在）

3） 根本 知己：国際複合医工学会 評議員（2013年04月01日～現在)

c. 併任・兼業

1） 根本 知己：(独）理化学研究所、非常勤研究員(2015.1～現在)

d. 外国人研究者の招聘

1） Peilin Chen、Taiwan、(2015年02月02日）

2） Bi-Chang Chen、Taiwan、(2015年02月02日）

e. 北大での担当授業科目

1） 情報科学研究科、脳神経科学特論、根本 知己、2014年04月01日～2014年09月30日

2） 工学部、量子力学、根本 知己、2014年04月01日～2014年09月30日

3） 工学部、コースアワー、根本 知己、2014年05月20日

4） 工学部、生体医工学基礎、根本 知己、2014年10月01日

～2015年03月31日

５） 工学部、医用工学概論、根本 知己、2014年10月01日～2015年03月31日

６） 全学共通、環境と人間、根本 知己、2014年07月04日

７） 全学共通、2030年エレクトロニクスの旅、根本 知己、2014年11月18日

g. ポスドク・客員研究員など

・ポスドク：飯島光一朗（特任助教）

・日本学術振興会特別研究員：一本嶋佐理（DC1）、青柳佑佳（DC1）、澤田和明（DC1）

h. 修士学位及び博士学位の取得状況

・修士課程（2名）

１）伊藤 里紗（北海道大学大学院情報科学研究科）
「スーパーコンティニュウム光を用いた多波長励起高速共焦点顕微鏡法」

２）長内 尚之（北海道大学大学院情報科学研究科）
「新規高解像度共焦点イメージング法による単一固定海馬錐体細胞における樹状突起スパインの網羅的形態解析」

３）渡邊 裕貴（北海道大学大学院情報科学研究科）
「励起レーザー光学系の最適化によるマルチポイントスキャン方式２光子顕微鏡法の改良」

生体分子デバイス研究分野

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、博（工）、2005.1～）
助　教　三友秀之（東工大院、博（工）、2011.4～）
院　生
博士課程　魏 金建、杉村尚俊、南原克之
修士課程　飯田良、堀江健太、田崎太悠、中村聡
学部生　　鈴木重明

１．研究目標

生体分子とはタンパク質、核酸、脂質、糖などのすべての生き物に共通する分子のことであり、生物は生体分子をパーツとして、それらの高度な分子認識と自己組織化によって分子集合体システムを構築し、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体分子ひいては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、あるいはその特徴を利用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。核酸＝DNAは細胞内で遺伝情報を保持する物質であり、種々の分子と結合する分子認識能、ならびに相補的な塩基対の形成による自己会合性を持つ機能性高分子である。基板に末端を固定したDNAブラシの光による二次元パターニングと塩基配列特異的な金属メッキを組み合わせることで三次元金属ナノパターン化技術の開発をめざしている。また、生体分子のバイオミメティクスによってナノ粒子の自己組織化を制御するために、1つの粒子に異なる2つの性質をドメイン状もしくは半面ずつに有するヤヌス型の粒子の作製を行い、機能性ナノ粒子の集合体形成制御と高機能化をめざしている。さらには、機能性ナノ粒子を新たに合成し、核酸医薬RNAを細胞内へ高効率で導入することを可能にする人工ウイルスの開発に取り組んでいる。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めざしている。

２．研究成果

(a) ＤＮＡブラシを鋳型とした金属パターンの作製

微細加工技術はトップダウン型とボトムアップ型の2つに分類される。トップダウン型は主に金属のパターニングに広く用いられてきた。しかしながら、現在求められている次世代微細加工技術は3次元パターン化であり、トップダウン型の技術のみでは達成が難しいと考えられる。そのため、従来のトップダウン型技術に分子の自己組織化を基本としたボトムアップ型技術を組み合わせる研究が注目されている。ボトムアップ型微細加工技術のひとつとして、高い分子認識能や剛直な二重らせん構造を持つ機能性生体高分子であるDNAを用いたナノデバイス作製技術がある。我々はこれまで、DNAをテンプレートにした無電解メッキ法によるナノワイヤーの作製に取り組んできた。しかしながら、従来の方法では利用可能なデバイスとして組み上げる過程に問題があった。そこで、本研究ではDNAを基板上に固定化し、酵素反応によって伸長することで、ブラシ状の構造をもつDNA基板の作製を行った。従来のリソグラフィー技術を利用してDNAブラシの2次元パターン化を行い(図1)、さらに我々がこれまで取り組んできたプラチナ錯体を利用した塩基配列選択的な無電解メッキ法と組み合わせることで、DNAブラシをテンプレートとした新しい三次元金属パターニング法の確立を目指した。

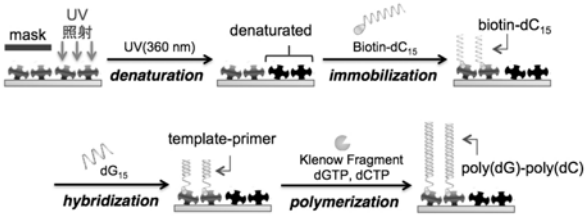


図１．２次元パターン化した DNA ブラシ作製のスキーム

作製したDNAブラシ基板の蛍光顕微鏡像より、２次元パターンを持つDNAブラシの形成が確認できた（図2a)。シスプラチン溶液を用いて無電解メッキしたDNAブラシを光学顕微鏡によって観察した結果、dGTPおよびdCTPを基質として作製したDNAブラシ（poly(dG)/poly(dC)）においてはDNAのパターンに一致した像が得られた。一方、dGTPの代わりにシスプラチンが結合しにくい7-deaza-dGTPを用いた場合ではパターンは観察されなかった。これらの基板について、さらに金の無電解メッキを行った結果、プラチナでパターン状にメッキされた基板はコントラストが強調されより鮮明に観察されるようになったが、プラチナメッキによるパターンが観察されなかった基板では大きな変化は見られなかった（図2b, c)。以上より、DNAブラシを塩基配列（グアニン）選択的にプラチナメッキを行うことができ、さらにプラチナを核として無電解メッキを行うことで金属パターンを成長させられることが確認された。

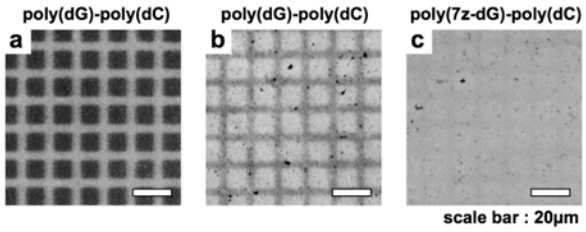


図２．作製した２次元パターン化ＤＮＡブラシの蛍光顕微鏡像（a）と無電解メッキ後の基板の光学顕微鏡像(b)(c)
(b) ＤＮＡブラシ（poly(dG)/poly(dC)），(c) ＤＮＡブラシ（poly(7-deaza-dG)/poly(dC)）

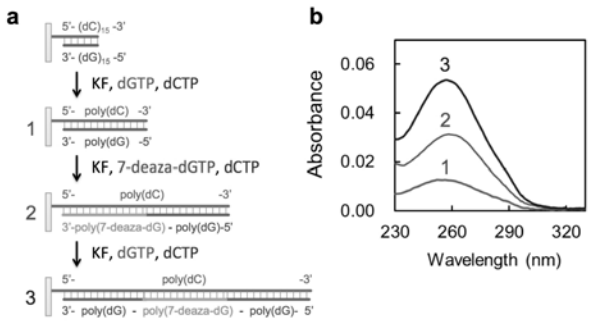


図３．ブロックコポリマー型ＤＮＡブラシの作製スキーム(a)とＤＮＡブラシ基板の吸収スペクトル(b)

また、基板上でのDNAの伸長反応はリビング重合と類似しており、順次基質を交換し段階的に重合を行うことで、poly(dG)/poly(dC)およびpoly(7-deaza-dG)/poly(dC)のドメインを有するブロックコポリマー型DNAブラシの作製を行い、それに応じた吸光度の増大を確認した（図3)。このブロックコポリマー型のDNAブラシを用いて塩基配列選択的な無電解メッキを行うことで3次元金属パターニングが可能になると期待され、現在検討を進めている。

(b) 親疎水面をもつヤヌスナノ粒子の合成と自己集合

ナノ粒子の集合構造を外部からエネルギーを注入することなく、自己組織化によってなし得ることはナノ粒子集合体を使ったデバイスの高速・低コスト化の実現には欠かせない手法と考えられる。中でも、溶液中でのナノ粒子自己組織化は、薬剤輸送・光触媒反応場・センシングデバイスなど新しい応用につながる手法として期待されている。我々は光と相互作用する金ナノ粒子に注目し、金ナノ粒子の自己集合を誘起するための表面修飾分子の開発を行ってきた。オリゴエチレングリコールのフッ素誘導体を表面リガンドに用いると、その疎溶媒性から溶液中でナノ粒子がカプセル状に集合することを見いだしてきた。しかしこれらの手法では、合理的な設計とはまだ言えず、できあがる集合体構造が予想できるには至っていない。

そこで親水面と疎水面をもつヤヌス粒子を作製し、両親媒性分子がミセルを形成するように、ヤヌス粒子を集合させることが出来ないかと考えた。我々は親水性と疎水性のチオール分子で金ナノ粒子を修飾する際に、2段階修飾を行うことでヤヌス粒子を合成できることを見いだした(図4)。ナノ粒子上のリガンド分子の相分離状態はMALDI-TOF-MS分析から明らかにした。2段階法では2番目に添加した疎水性リガンド分子がドメインを形成し、添加する濃度を調整することで親疎水型ヤヌス粒子になることがわかった。これは２番目に加える分子のアルキル鎖長が、最初に覆った分子よりも長いため、リガンド交換した部位からのドメイン成長が促進されていることを示している。

親疎水のヤヌス粒子とランダム粒子では水中での凝集挙動に大きな違いが見られた。ヤヌス粒子は溶液中で比較的長時間安定に分散しているが、ランダム粒子は水中に一時的に分散するものヤヌス粒子に比べて明らかに沈殿・凝集しやすいことがわかった。そこで電子研の西野研究室との共同研究で、ヤヌス粒子の水中での集合体構造を、自由電子レーザーを用いたX線回折顕微法により解析した。その結果、集合体は直径150 nm程度の球状の集合体構造であることが観察され、中空など特殊な構造は観察できなかった。これは粒子の場合、両親媒性分子とは異なる粒子間の相互作用の寄与を考慮すべきであることを表している。上記の共同研究の成果はアメリカ化学会の専門誌*Langmuir*に発表した。

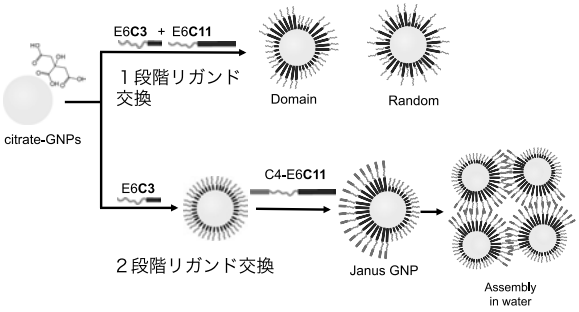


図４．5-nm 金ナノ粒子へのリガンド交換反応を利用したヤヌス金ナノ粒子の作製模式図（２段階でリガンド交換するとヤヌス状になる）

(c) RNA薬剤を輸送するための両親媒性金ナノ粒子の作製

生体分子を使った医薬品としてsiRNA(short interfering RNA)などの核酸医薬の研究が盛んに行われている。siRNAは塩基配列特異的に遺伝子発現を抑制するため、個々の患者の遺伝情報をベースとしたより効果の高い治療薬になるものとして期待されている。しかし、RNAそのものの分解のしやすさに加え、低い細胞膜透過性のため、細胞内導入が最大の課題である。そこで必要となる技術がドラッグデリバリーシステム(DDS)である。金ナノ粒子(AuNPs)は比較的細胞毒性が低く、生体適合性が高いためDDS材料として使用しやすい。また、AuNPsは様々なリガンド（主にアルカンチオール分子）を用いた表面修飾が容易である。これまでにAuNPsを用いたsiRNAの細胞内輸送は報告されてきたが、高濃度のAuNPsとsiRNAを投与する必要があり、まだ十分に研究されているとは言いがたい。我々は細胞膜透過を期待して両親媒性の表面リガンドを設計した (図5)。このリガンドは疎水的なアルキル鎖と親水的なポリエチレングリコール(PEG)鎖を分子内に有する。このリガンドを提示することで得られる両親媒性金ナノ粒子は疎水性である細胞膜への親和性と、水への分散性を両立できる点で優れている。

CTAB (Cetyl trimethylammonium bromide)で保護された、粒径約40 nmのAuNPsを合成し、そこにカチオン性のチオールリガンドであるMTAB ((16-mercaptohexadecyl) trimethyl ammonium bromide)を加え、リガンド交換・遠心分離し、MTAB-AuNPsを得た。続いて我々が新たに合成した両親媒

性リガンドを加え、部分的にリガンド交換しLigand-MTAB-AuNPsとした。この粒子とsiRNAを混合し、siRNA-Ligand-MTAB-AuNPs複合体を得た。

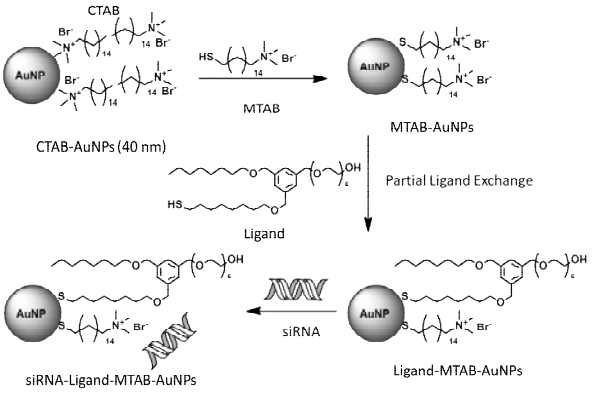


図 5. 40-nm 金ナノ粒子への両親媒性リガンド分子(Ligand)とカチオン性の MTAB 分子の共提示の方法。Ligand-MTAB-AuNPs と siRNA(21mer の RNA)を混合することでsiRNA が固定化された siRNA-Ligand-MTAB-AuNPs を調製した。

siRNA-Ligand-MTAB-AuNPsとsiRNA-MTAB-AuNPsを比較してsiRNAの効果を詳細に調べた。両親媒性リガンドがあることで120 pMの金ナノ粒子濃度で目的タンパク質（ルシフェラーゼ）の発現量が44%にまで低下した。一方、コントロールであるsiRNA-MTAB-AuNPsではほとんど遺伝子発現を抑制することは出来なかった。両親媒性リガンドを提示することによる細胞質への粒子の移行が細胞断面のTEM像から確認でき、細胞膜透過能を賦与できることを明らかにした。すなわち両親媒性粒子の膜透過機能によって、ただsiRNAを固定化した粒子に比べて効率よくsiRNAの細胞内送達が可能であることを実証できた。これらの研究は理研との共同研究であり、成果はアメリカ化学会の専門誌*ACS Applied Materials & Interfaces*に発表した。

3．今後の研究の展望

機能性分子の自己組織化能を駆使することにより、ナノスケールオーダーの複雑な構造体を、より簡便に作り出す技術が低エネルギーという観点で注目されている。我々は生物あるいは生体分子に着目し、生体分子を鋳型とするアプローチに加え、それらの生体分子の持つ集積化原理そのものを模倣することで新しい電子デバイス・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シミュレーションも含めさらに検証し、生体分子ならではの階層性構造の構築と応用を追求していく。

4．資料

4.1 学術論文等

1) A. Kuzuya, M. Kaino, M. Hashizume, K. Matsumoto, T. Uehara, Y. Matsuo, H. Mitomo, K. Niikura, K. Ijiro and Y. Ohya: “Encapsulation of a Gold Nanoparticle in a DNA Origami Container”, *Polymer Journal*, **47**: 177-182 (2015)

2) H. Mitomo, Y. Watanabe, Y. Matsuo, K. Niikura, K. Ijiro: “Enzymatic Synthesis of a DNA Triblock Copolymer that is Composed of Natural and Unnatural Nucleotides”, *Chem. Asian. J*, **10**: 455-460 (2015)

3) N. Nakayama, K. Hagiwara, Y. Ito, K. Ijiro, Y. Osada, and K. Sano: “Superior Cell Penetration by a Rigid and Anisotropic Synthetic Protein”, *Langmuir*, **31**(9): 2826-2832 (2015)

4) R. Iida, H. Kawamura, K. Niikura, T. Kimura, S. Sekiguchi, Y. Joti, Y. Bessho, H. Mitomo, Y. Nishino, and K. Ijiro: “Synthesis of Janus-Like Gold Nanoparticles with Hydrophilic/Hydrophobic Faces by Surface Ligand Exchange and Their Self-Assemblies in Water”, *Langmuir*, **31**(14): 4054-4062 (2015)

5) R. Kawamura, K. Sano, K. Ijiro and Y. Osada: “Chemically cross-linked microtubule assembly shows enhanced dynamic motions on kinesins”, *RSC Adv.*, **4**: 32953-32959 (2014)

6) K. Niikura, K. Kobayashi, C. Takeuchi, N. Fujitani, S. Takahara, T. Ninomiya, K. Hagiwara, H. Mitomo, Y. Ito, Y. Osada, K. Ijiro: “Amphiphilic Gold Nanoparticles Displaying Flexible Bifurcated Ligands as a Carrier for siRNA Delivery into the Cell Cytosol”, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **6**(24): 22146-22154 (2014)

7) 木村-須田廣美、金沢恭祐、伊藤哲平、日高公介、植野秀俊、居城邦治、小林幸雄、坎本尚義：「慢性腎臓病に伴う骨・ミネラル代謝異常(CKD-MBD)の骨質の解析」、*北海道骨粗鬆症研究会雑誌*、**3**(2)：12-14 (2014)

4.2 総説・解説・評論等

1) 三友秀之：「2015年の化学-注目の論文-『可視光を利用したアンモニアの合成』」、*月刊化学*、**70**(2)：61-62 (2015)

2) 新倉謙一：「マルトオリゴ糖で被覆したナノ粒子の核膜孔透過」、*生化学*、**87**：64-67 (2015)

3) 三友秀之、居城邦治：「DNAミメティクス」、*日本画像学会誌*、**53**(3)：199-206 (2014)

4) K. Kobayashi, J. Wei, R. Iida, K. Ijiro, and K. Niikura: “Surface engineering of nanoparticles for therapeutic applications”, *Polymer Journal*, **46**: 460-468 (2014)

4.3 著書

1) 三友秀之、居城邦治：「生物の持つ発色メカニズムとその応用展開」、生物模倣技術と新材料・新製品開発への応用、第7章第1節、405-412、技術情報協会 (2014)

4.4 講演

a. 招待講演

i) 学会

1) H. Mitomo*, K. Horie, N. Shimamoto, Y. Matsuo, K. Niikura, and K. Ijiro: "Metal array structures on the stimuli-responsive gel", SPIE Optics + Photonics 2014, San Diego, USA (2014-8)
2) K. Ijiro*: "The synthesis and bio/nano applications of DNA brushes", SPIE Optics + Photonics 2014, San Diego, USA (2014-8)
3) K. Niikura*, K. Ijiro: "Template-free Self-Assembly of Gold Nanoparticles in Solution", The 10th IUPAC International Conference on Novel Materials and their Synthesis, Zhengzhou, China (2014-10)
4) K. Niikura*, R. Iida, J. Wei, H. Mitomo, K. Ijiro: "Surface Engineering of Gold Nanoparticles for their Controlled Self-Assembly", Asia NANO 2014, Ramada Plaza Jeju Hotel, Jeju, Korea (2014-10)
5) 居城邦治*：「生物の動的構造色をヒントにした表面増強ラマン散乱基板の作製」、日本化学会第95春季年会、日本大学理工学部船橋キャンパス(2015-3)
6) 新倉謙一*：「金ナノ粒子のウイルスタンパク様自己集合」、日本化学会第95春季年会、日本大学理工学部船橋キャンパス(2015-3)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

1) 新倉謙一*：「溶液中における金ナノ粒子自己集合のための表面リガンド分子の開発」、PCXSS ワークショップ、北海道大学(2014-8)
2) K. Ijiro*: "Fabrication of Nanoparticle Vesicles beyond Molecular Self-assembly", 17th SNU-HU Joint Symposium Satellite ″Frontiers in Chemical Sciences 2014 @ SNU & HU″, Hokkaido University (2014-11)
3) 居城邦治*：「分子からナノ粒子へと展開する自己組織化」、第14回東北大学多元物質科学研究所研究発表会、東北大学片平さくらホール (2014-12)
4) K. Ijiro*: "Gold nanoparticle vesicles and those unique photonic properties", 7th french-japanese joint workshop On FRONTIER MATERIALS, Université de Nantes, France (2014-12)

iii) コロキウム・セミナー等・その他

1) 居城邦治*：「ゲル表面への金属ナノ構造の固定化と動的構造色への応用」、表面技術協会2014年北海道夏期セミナー″自然に学ぶ表面処理″、千歳アルカディア・プラザ (2014-8)
2) 新倉謙一*：「ウイルスタンパク様の金ナノ粒子自己集合」、東京大学工学部化学生命工学科2014年第2回談話会、東京大学本郷キャンパス (2014-12)
3) 三友秀之*：「高分子を用いた金属ナノ構造体の制御」、平成26年度東北地区先端高分子セミナー、仙台秋保温泉岩沼屋 (2015-3)

b. 一般講演

i) 学会

1) R. Iida*, K. Niikura, S. Sekiguchi, H. Mitomo, K. Ijiro: "Self-assembly of Janus Gold Nanoparticles Fabricated by Phase Separation of Ligand Molecules", 第63回高分子学会年次大会, 名古屋国際会議場 (2014-5)
2) 田崎太悠*、新倉謙一、小林謙也、三友秀之、長田義仁、伊藤嘉浩、居城邦治：「金-酸化鉄ハイブリッドナノ粒子を用いた核酸輸送キャリアの開発」、第63回高分子学会年次大会、名古屋国際会議場 (2014-5)
3) 中村聡*、三友秀之、鈴木康修、松尾保孝、新倉謙一、居城邦治：「分子性接着界面としての高密度DNAグラフト基板の作製」、第63回高分子学会年次大会、名古屋国際会議場 (2014-5)
4) 杉村尚俊*、新倉謙一、萩原恭二、三友秀之、伊藤嘉浩、澤洋文、長田義仁、居城邦治：「RNase内包ウイルスカプセルの作製と内部でのRNA分解反応」、第63回高分子学会年次大会、名古屋国際会議場 (2014-5)
5) 杉村尚俊*、新倉謙一、萩原恭二、三友秀之、澤洋文、居城邦治：「ウイルスカプセルの内部空間での配列特異的RNA分解反応」、第63回高分子討論会、長崎大学文教キャンパス (2014-9)
6) 新倉謙一*、小林謙也、竹内智恵、二宮孝文、高原周子、藤谷直樹、長田義仁、伊藤嘉浩、居城邦治：「両親媒性表面をもつ金ナノ粒子によるsiRNAの効率的細胞導入」、第63回高分子討論会、長崎大学文教キャンパス (2014-9)
7) 魏金建*、新倉謙一、三友秀之、二宮孝文、居城邦治：「フッ素化表面リガンド分子によって誘起される金ナノ粒子の自己組織構造」、第63回高分子討論会、長崎大学文教キャンパス (2014-9)
8) 三友秀之*、鈴木康修、中村聡、松尾保孝、新倉謙一、居城邦治：「DNAブラシを鋳型とした金属パターニング」、第63回高分子討論会、長崎大学文教キャンパス (2014-9)
9) H. Mitomo*, K. Horie, Y. Matsuo, K. Niikura, T. Tani, M. Naya, K. Ijiro: "Preparation of tunable plasmonic device using hydrogels", Asia NANO 2014, Ramada Plaza Jeju Hotel, Jeju, Korea (2014-10)
10) R. Iida*, K. Niikura, H. Mitomo, K. Ijiro: "Self-Asembly of Janus Gold Nanoparticles in Water", Asia NANO 2014, Ramada Plaza Jeju Hotel, Jeju, Korea (2014-10)

11) K. Ijiro*, H. Mitomo, S. Nakamura, Y. Suzuki, A. Eguchi, Y. Matsuo, K. Niikura: “Novel lift-off method using enzymatic hydrolysis of DNA brushes for bio/nano applications”, Asia NANO 2014, Ramada Plaza Jeju Hotel, Jeju, Korea (2014-10)
12) J. Wei*, K. Niikura, N. Sugimura, H. Mitomo, K. Ijiro: “Virus Capsid-like Symmetric Assembly of Gold Nanoparticles”, 第49回高分子学会北海道支部研究発表会, 北海道大学学術交流会館 (2015-1)
13) 田崎太悠*、新倉謙一、鈴木忠樹、大原有樹、小林進太郎、大場靖子、三友秀之、澤洋文、居城邦治：「RNA被覆金ナノ粒子のアジュバント効果におけるサイズ・形状依存性」、第49回高分子学会北海道支部研究発表会、北海道大学学術交流会館 (2015-1)
14) 中村聡*、三友秀之、鈴木重明、松尾保考、新倉謙一、居城邦治：「DNAブラシの作製とSTORM解析」、第49回高分子学会北海道支部研究発表会、北海道大学学術交流会館 (2015-1)
15) 飯田良*、新倉謙一、三友秀之、居城邦治：「オリゴエチレングリコール誘導体を用いた温度応答性金ナノ粒子の作製」、第49回高分子学会北海道支部研究発表会、北海道大学学術交流会館 (2015-1)
16) 堀江健太*、三友秀之、松尾保孝、新倉謙一、居城邦治：「金ナノ粒子間距離の動的制御を利用した表面増強ラマン散乱の高感度化」、化学系学協会北海道支部2015年冬季研究発表会、北海道大学 (2015-1)
17) 田崎太悠*、新倉謙一、鈴木忠樹、大原有樹、小林進太郎、大場靖子、三友秀之、澤洋文、居城邦治：「金ナノ粒子への被覆による核酸アジュバントの活性増強」、日本化学会第95春季年会、日本大学理工学部船橋キャンパス (2015-3)
18) 中村聡*、三友秀之、鈴木重明、松尾保孝、新倉謙一、居城邦治：「ポリメラーゼによるDNAブラシの作製と外部環境に応じた構造変化」、日本化学会第95春季年会、日本大学理工学部船橋キャンパス (2015-3)
19) 飯田良*、新倉謙一、三友秀之、居城邦治：「オリゴエチレングリコール誘導体で被覆された金ナノ粒子が示す温度応答性凝集挙動」、日本化学会第95春季年会、日本大学理工学部船橋キャンパス (2015-3)
20) 杉村尚俊*、新倉謙一、三友秀之、澤洋文、居城邦治：「ウイルス内部ナノ空間を利用したRNA分解反応場の構築とその評価」、日本化学会第95春季年会、日本大学理工学部船橋キャンパス (2015-3)

ⅱ）研究会・シンポジウム・ワークショップ

1) J. Wei*, K. Niikura, H. Mitomo and K. Ijiro: “Fabrication of Size-Controllable 3D Gold Nanoparticles sphere assemblies Using Carbohydrate Derived Fluorinated Surface Ligands”, The 3rd Frontier Chemistry Center International Symposium “Challenges at the Frontier of Chemical Sciences”, Hokkaido University, Sapporo (2014-6)
2) N. Sugimura*, K. Niikura, K. Hagiwara, H. Mitomo, H. Sawa and K. Ijiro: “RNase H-encapsulated Virus-like Particles for Sequence-specific RNA Degradation”, The 3rd Frontier Chemistry Center International Symposium “Challenges at the Frontier of Chemical Sciences”, Hokkaido University, Sapporo (2014-6)
3) R. Iida*, K. Niikura, H. Mitomo and K. Ijiro: “Synthesis of Janus Gold Nanoparticles with Hydrophobic/Hydrophilic faces and their Self-assembly”, The 3rd Frontier Chemistry Center International Symposium “Challenges at the Frontier of Chemical Sciences”, Hokkaido University, Sapporo (2014-6)
4) 三友秀之*、鈴木康修、中村聡、松尾保孝、新倉謙一、居城邦治：「３次元金属パターニングに向けたDNAブラシの作製」、第24回バイオ・高分子シンポジウム、東京工業大学大岡山キャンパス (2014-7)
5) 新倉謙一*、魏金建、三友秀之、居城邦治：「糖鎖修飾金ナノ粒子の溶液中での自己集合」、第24回バイオ・高分子シンポジウム、東京工業大学大岡山キャンパス (2014-7)
6) J. Wei*, K. Niikura, N. Sugimura, H. Mitomo, K. Ijiro: “Virus-Capsid-like Assembly of Gold Nanoparticles”, 2014年度北海道高分子若手研究会、定山渓ビューホテル (2014-8)
7) 田崎太悠*、新倉謙一、三友秀之、居城邦治：「金 - 酸化鉄ハイブリッドナノ粒子を用いた核酸輸送デバイスの構築」、2014年度北海道高分子若手研究会、定山渓ビューホテル (2014-8)
8) 新倉謙一*、魏金建、三友秀之、居城邦治：「フッ素化オリゴエチレングリコールの表面修飾が誘起するナノ粒子のカプセル状自己集合」、フルオラス科学研究会第７回シンポジウム、北海道大学百年記念会館 (2014-9)
9) J. Wei*, K. Niikura, N. Sugimura, H. Mitomo, K. Ijiro: “Fabrication of Multilayered Gold Nanoparticle Vesicles Using Sugar Terminated Fluorinated Surface Ligand”, フルオラス科学研究会第７回シンポジウム, 北海道大学 百年記念会館 (2014-9)
10) T. Tazaki*, K. Niikura, T. Suzuki, S. Kobayashi, Y. Orba, H. Mitomo , T. Nakano, H. Sawa, K. Ijiro: “Nano-adjuvant: The Effects of the Shape and Size of RNA-coated Gold Nanoparticles on Adjuvant Activity”, The 15th Ries-Hokudai International Symposium 響, CHÂTERAISÉ Gateaux Kingdom SAPPORO, Japan (2014-12)
11) K. Kobayashi, H. Mitomo*, C. Takeuchi, N. Fujitani, S. Takahara, T. Ninomiya, Y. Ito, Y. Osada, K. Niikura, K. Ijiro: “Amphiphilic Gold Nanoparticles: Design of Bifur-

cated Surface Ligands for siRNA Delivery into the Cell Cytosol", The 15th Ries-Hokudai International Symposium 響, CHÂTERAISÉ Gateaux Kingdom SAPPORO, Japan (2014-12)

12) S. Nakamura*, H. Mitomo, Y. Suzuki, Y. Matsuo, K. Niikura, K. Ijiro: "Preparation of DNA Brush with Tunable Surface Morphology by Conformation Change of DNA", The 15th Ries-Hokudai International Symposium 響, CHÂTERAISÉ Gateaux Kingdom SAPPORO, Japan (2014-12)

13) 新倉謙一*、三友秀之、居城邦治、竹内智恵、藤谷直樹、高原周子、小林謙也、伊藤嘉浩、長田義仁、二宮孝文：「両親媒性表面を有する金ナノ粒子を用いた細胞へのsiRNAデリバリー」、2015年電子科学研究所・研究交流会、北海道大学電子科学研究所 (2015-1)

14) 居城邦治*:「オープンファシリティ利用研究者による成果報告」、第2回北海道大学オープンファシリティシンポジウム、北海道大学フロンティア応用科学研究棟 (2015-1)

15) 居城邦治*:「もつれ光子源としての生体超分子系発光素子の開発」、平成26年度物質・デバイス領域 共同研究拠点[A-1] 公開ワークショップ、大阪大学 (2015-2)

4.5 特許

1) 新倉謙一、居城邦治、澤洋文、大場靖子、小林進太郎、田崎太悠、鈴木忠樹、大原有樹、中野哲郎：「ロッド型ナノ粒子及び核酸からなる組生物」、特願2014-252111 (2014)

4.6 共同研究

a．海外機関との共同研究

1) 居城邦治、Newcastle University, UK：「Development of Conducting DNA」(2007年-)

2) 居城邦治、National Chiao Tung University, Taiwan, ROC：「Development of Nanoparticle Devices」(2012年-)

3) 居城邦治、University of California, Riverside, USA：「Study on Self-assembling of Nanoparticles」(2013年-)

b．国内機関との共同研究

1) 居城邦治：北九州市立大学「DNAブラシ上でのiPS細胞やES細胞の培養と無傷剥離技術の開発」(2011年-)

2) 居城邦治、木村-須田廣美（千歳科学技術大学）：「甘草（生薬）のトレーサビリティーに関する研究」(2011年-)

3) 居城邦治、木村-須田廣美（千歳科学技術大学）：「in vitro骨石灰化モデルにおける骨形成の可視化法の開発」(2012年-)

4) 居城邦治、佐野健一（日本工業大学）：「バイオミネラリゼーションを利用したDDS担体の開発」(2012年-)

5) 居城邦治、葛谷明紀（関西大学）：「生命科学へ応用可能な量子もつれ光を発生するDNAナノデバイスの創成」(2013年-)

6) 居城邦治、渡邉眞次（北見工業大学）：「ナイロン塩型モノマーを用いた全芳香族ポリイミド微粒子の合成と評価」(2014年)

7) 新倉謙一、二宮孝文（札幌医科大学）：「神経組織への薬剤輸送を目的としたナノ粒子表面設計」(2014年)

c．民間等との共同研究

1) 居城邦治:「金属ナノ粒子間隙の動的ストレッチによるプラズモン共鳴制御」(2014年)

2) 新倉謙一：協和発酵バイオ株式会社「金ナノ粒子ー核酸複合体のアジュバント活性効果」(2014年)

d．所内共同研究

1) コヒーレント光研究分野(西野吉則教授)と共同研究を実施した（2014年-）

4.7 予算獲得状況（研究代表者、分類、研究課題、期間）

1) 居城邦治：富士フイルム株式会社「金属微細構造による光制御に関する基礎検討」、2014年度

2) 新倉謙一：基盤研究(B)「ラジオ波照射による薬剤放出可能な磁性粒子集合化カプセルの創製」、2013～2015年度

3) 新倉謙一：キャノン財団「高活性ワクチンアジュバントのためのハイブリッドナノ粒子開発」、2014～2015年度

4) 三友秀之：若手研究(B)「多孔性無機粒子の縫い込み型導入による高強度機能性ゲルの創製」、2012～2014年度

4.8 受賞

1) 魏金建：優秀ポスター賞「Virus-Capsid-like Assembly of Gold Nanoparticles」、2014年度 北海道高分子若手研究発表会 (2014.08.29-30)

2) 飯田良：Best Poster Award "Self-Asembly of Janus Gold Nanoparticles in Water", Asia NANO 2014 (2014.10.26-29)

3) 三友秀之：Best Poster Award "Preparation of tunable plasmonic device using hydrogels", Asia NANO 2014 (2014.10.26-29)

4) 飯田良：優秀ポスター賞「オリゴエチレングリコール誘導体を用いた温度応答性金ナノ粒子の作製」、第49回 高分子学会北海道支部研究発表会 (2015.01.26)

5) 田崎太悠：優秀ポスター賞「RNA被覆金ナノ粒子のアジュバント効果におけるサイズ・形状依存性」、第49回 高分子学会北海道支部研究発表会 (2015.01.26)

6) 三友秀之：TANAKAホールディングス株式会社 2014

年度「貴金属に関わる研究助成金制度」MMS賞(2015.03.31)

7) 杉村尚俊：学生講演賞「ウイルス内部ナノ空間を利用したRNA分解反応場の構築とその評価」、日本化学会第95春季年会 (2015.03.26-29)

4.9 社会教育活動

a. 国内外の学会の役職

1) 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 （2014年04月01日～2016年03月31日）
2) 居城邦治 ： 社団法人高分子学会北海道支部長（2012年06月01日～2014年05月31日）
3) 居城邦治 ：Asian Conference on Nanoscience & Nanotechnology (AsiaNANO), Steering Committee （2004年04月01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04月01日～現在）
5) 三友秀之 ： 高分子学会北海道支部 事務・会計 (2012年06月01日～2014年05月31日）
6) 三友秀之 ： 高分子学会 北海道支部 若手会幹事 (2012年06月01日～現在)
7) 三友秀之 ： 日本化学会 生体機能関連化学部会 若手会幹事 （2012年04月01日～現在）

b. 北大での担当授業科目（対象、講義名、担当者、期間）

1) 理学部、ナノ物性化学、居城邦治、2014年04月01日～2014年09月30日
2) 理学部、超分子化学、居城邦治、2014年04月01日～2014年09月30日
3) 総合化学院、先端総合化学特論Ⅰ、居城邦治、2014年04月01日～2014年09月30日
4) 全学共通、環境と人間（ナノって何なの？最先端光・ナノテク概論)、居城邦治、2014年04月01日～2014年09月30日
5) 全学共通、化学Ⅰ、居城邦治、2014年04月01日～2014年09月30日
6) 全学共通、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論Ⅰ、居城邦治、2014年04月01日～2014年09月30日
7) 全学教育、一般教育演習（フレッシュマンセミナー）「未来へ繋がる材料 -固体デバイスから生体物質に至る最先端材料開発-」、三友秀之（分担)、2014年04月01～2014年09月30日
8) 総合化学院、Materials Chemistry (Chemistry of Molecular Assembly)、居城邦治、2014年10月01日～2015年03月31日
9) 総合化学院、先端総合化学特論Ⅱ、居城邦治、2014年10月01日～2015年03月31日
10) 総合化学院、Materials Chemistry (Chemistry of Molecular Assembly)、居城邦治、2014年10月01日～2015年03月31日
11) 総合化学院、物質化学（分子組織化学)、新倉謙一・居城邦治、2014年12月01日～2015年02月01日
12) 全学共通、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論II、新倉謙一、2014年11月20日
13) 総合化学院、総合化学実験指導法、居城邦治、2014年04月01日～2015年03月31日
14) 総合化学院、総合化学実験研究法、居城邦治、2014年04月01日～2015年03月31日
15) 総合化学院、総合化学特別研究第一、居城邦治、2014年04月01日～2015年03月31日
16) 総合化学院、総合化学研究・指導法、居城邦治、2014年04月01日～2015年03月31日
17) 総合化学院、総合化学特別研究第二、居城邦治、2014年04月01日～2015年03月31日

c. ポスドク・客員研究員など

ポスドク（1名）

1) 藤谷直樹

d. 修士学位及び博士学位の取得状況

修士学位（2名）

1) 飯田良:「表面リガンド分子による金ナノ粒子の自己集合化制御」
2) 堀江健太:「増強電場への効率的な分子導入が可能なセンシングデバイスの開発」

生命動態研究分野

教　授　中垣俊之（名大院、学博、2013.10～）
准教授　佐藤勝彦（京大院、理博、2014.12～）
助　教　黒田茂　（北大院、理博、2013.10～）
博士研究員　國田樹（はこだて未来大院、システム情報科学博士、2013.10～）

１．研究目標

生き物の賢さは一体どのようにして生み出されるのか？生命システム特有の情報処理のしくみは、古代ギリシャ時代から今日に至るまで、その時代の学問を総動員して連綿と問い直されてきた手強い課題である。これに取り組むことは、基礎学問として、人間そのものの理解を深める。生物らしい情報処理の方法を捉えることができれば、人の感性になじみの良いインターフェースをもった機械をつくるというイノベーションにもつながると期待できる。

我々は、単細胞生物を主な対象として、生物の情報処理能力の高さを実験により評価し、さらにそのしくみをダイナミクスの観点から解明することを目指す。単純な体制を活かして、モノの運動法則から生物行動を理解するという、いわば生命情報処理の原点を目指す。そのために、理論や実験ならびにフィールド観察を、また生物学や数学や物理学および情報科学を活用する。

具体的には6つの研究テーマを掲げている。(1)アメーバからヒトにいたる生命知の基本アルゴリズムの探求、(2)ヒトにやさしい機械インターフェースの設計指針の探索、(3)単細胞生物の行動と情報処理過程の可視化技術の開発、(4)生物行動の多様性と柔軟性を担うダイナミクスの解明、(5)生体システムの用不用適応則から読み解く形状と機能の最適化、(6)バイオレオロジーによる生体運動の力学機構の解明。

２．研究成果

(a) 流れによって誘起されるFアクチン溶液の粘性相分離現象（シアバンディング）

アメーバ生物の細胞運動の力学機構を明らかにするために、細胞運動を担う主要なタンパク質アクチン繊維の溶液のレオロジー特性を調べた。これまでにアクチン溶液がシアバンド現象（流れによって自発的に粘性が高い領域と低い領域とに分かれる現象）を示すことを発見しているが、今回その分子機構に迫るべく、アクチン繊維を蛍光試料で可視化し、シアバンディング形成時でのアクチン繊維のネットワークを直接観測した。この観測によりシアバンディングの起源は溶液中の繊維ネットワークの構造変化であることが確認された。また剛体棒の応力表式を世界で始めて実際の溶液（アクチン溶液）に適用し、その表式の妥当性を確認した。

(b) 繊毛虫テトラヒメナの空間記憶能

生物の記憶や学習の物理機構を明らかにするために、繊毛虫テトラヒメナの空間適応能を調べてきた。生物実験からテトラヒメナが空間の形状や大きさに対する記憶能を持つことを示しえた。テトラヒメナ遊泳速度や方向は、それを司る膜電気現象の動態によっているので、ホジキンハクスレー方程式の考え方にならって、単純化した数理モデルを構成した。膜電位をもたらすカルシウムイオンチャネルの運動に関わる遅い緩和モードのはたらきによって、空間記憶能がもたらされうることをつきとめた。

(c) 真正粘菌変形体の逡巡行動

真正粘菌変形体は毒物に遭遇すると迷い行動を示した後で、複数の行動の選択肢の中から一つを選んで行動する。その粘菌の行動選択の仕組みを明らかにするために、粘菌の行動を再現する数理モデルの構築と解析を行った。その結果、粘菌の生体リズムと環境の揺らぎの同調が粘菌の行動選択に影響を与えることがわかってきた。

(d) 這行運動におけるモード間遷移現象の研究

筋肉の収縮波を用いた這行(しゃこう；這って移動すること)は、ミミズをはじめ多くの生物種にわたり広く見られる移動方法である。収縮と弛緩の波が体の前後軸に沿って伝搬すると、波の特定の位相に相当する部位が地面を後方に蹴り体自身はその反作用で前進する。これまでの我々の力学解析から、ムカデやヤスデのような脚式這行動物における足の疎密波は、非脚式這行の筋肉波と同じ役割を担っており、脚式と非脚式の這行運動はある意味で共通の機構をもつことが明らかになってきた。このような運動波の向きは、前向き(順向波)と後ろ向き(逆向波)のどちらもあり、どの動物がどちらの運動波を採用しているかついて100 年前から注目され観察されてきた。また、これらの運動波の向きは生物種によって決まっていると考えられてきた。我々は、様々な接地面や状況における這行における運

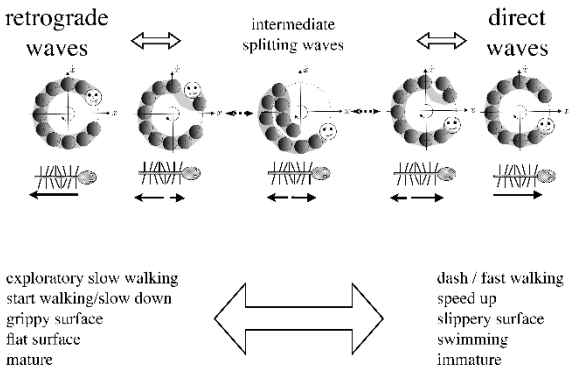


図　運動波の各モード間遷移関係と観測された外的・内的条件

動波を計測・解析することにより、ムカデが接地面の状況により逆向波と順向波を使い分けていることを発見しました。更に逆向波から順向波へまたはその逆方向への連続的な歩容遷移等が存在することも明らかにした。

３．今後の研究の展望

【 用不用則による交通輸送ネットワークの構築 】

粘菌が形成する管ネットワークの発達の仕組みは、「多く流れる部位は発達し、そうでない部位は衰退する」という用不用則に依っている。この生物式適応ネットワーク形成の基本設計則に基づいて、現実社会の様々なネットワーク（北海道の交通網や国際的光ケーブル網など）の設計を、複数要因間の最適トレードオフの観点から検討する。また更に進んで、町と道の共発展モデルを考察する。

【 流れやすさの指標による粘菌ネットワークの解析 】

粘菌を出口が一か所だけある容器に閉じ込めると、粘菌は容器の形に適応した管の輸送ネットワークを作って身体を効率的に外部に排出させていた。我々はその適応的につくられるネットワークの機能性について、管の内部に流れる原形質の流れやすさを指標にして定量評価することを試みている。

【 分子レベルのキラリティーが体軸の左右軸を作りえるメカニズムの解明 】

すべての多細胞生物は頭・尻尾、背・腹、左・右の軸を持っているが、この左右軸の決定には分子レベルのキラリティーが関与していることが近年の研究によって明らかにされている。その有力な説の一つに、アクチン繊維のキラリティーがミオシン分子などとの共同運動によって拡大されて多細胞生物の左右軸を作るというものがある。我々はこの仮説を、粘菌のシャトルストリーミング時での管のねじれの運動に注目し、実験と理論の両方から検証することを試みる。具体的な実験としては粘菌の管の懸垂実験を行い、左ねじれ右ねじれが決定論的であるかを調べる。理論の面ではアクチンミオシンネットワークの動力学を表す数理モデルを構築して、ミクロなキラリティーがマクロに現れる可能性を議論する。

【適応的這行運動の数学モデルの構築】

ムカデによって発見された運動波の遷移・逆転を再現する這行モデルを構築する。モデル構築は (1)ムカデの解剖学的・神経生理学的知見を取り入れたモデルと(2)体の構造の詳細によらない一般性のある力学ー数理的モデルの２側面から行う。これにより、広く這行運動の適応性に関するメカニズムの解明を目指す。

４．資料

4.1　学術論文等

１）Itsuki Kunita, Shigeru Kuroda, Kaito Ooki, Toshiyuki Nakagaki: ″Attempts to retreat from a dead-ended long capillary by backward swimming in {¥it Paramecium}″, Frontiers in Microbiology, Vol. 5, Article 270, 1/8 (2014). doi: 10.3389/fmicb.2014.00270

２）J. Riu, H. Delano-Ayari, S. Takagi, Y. Tanaka and T. Nakagaki : “Periodic traction in migrating large amoeba of Physarum Polycephalum”, J. Royal Soc. Interface, 12 : 20150099- (2015)

4.2　総説、解説、評論等

１）中垣 俊之 ：「単細胞生物の物理エソロジー ー輸送現象論から読み解く賢さのしくみー」、化学と工業、68(4) : 342-344 (2015)

２）黒田 茂、田中 良巳、中垣 俊之 ：「脚式と非脚式の這行ロコモーションにおける運動モードスイッチングの共通力学」、計測と制御、54(4) (2015)

３）中垣 俊之 ：「粘菌の情報伝達メカニズム」、医事新報、医事新報社 (2014)

４）中垣 俊之 ：「粘菌　偉大なる単細胞が人類を救う」、文春新書 : 1-198 (2014)

4.3　講演

a. 招待講演

i）学会

１）　中垣 俊之* ：「Rich types of repulsive behavior to quinine in Physarum Plasmodium 」、47th Ann. Meeting of the Jap. Soc. Of Dev. Biologists. 、名古屋市 (2014-05)

ii）研究会・シンポジウム・ワークショップ

１）　中垣 俊之* ：「細胞リズムと収縮波動から運動へ」、生物リズム若手研究者の集い2014 、京都大学 (2014-12)

２）　中垣 俊之* ：「数物科学で読み解く生物行動学」、2014年度首都大学東京数電機シンポジウム、首都大学東京 (2015-03)

３）　中垣 俊之* ：「イグノーベル賞を二度受賞して」、UHB大学（札幌のテレビ局UHBが運営する市民大学講座)、道新ホール（札幌市）(2015-02)

４）　中垣 俊之* :「粘菌 偉大なる単細胞が人類を救うーイグノーベル賞を受賞してー」、札幌病院協会講演会、札幌医師会館 (2015-02)

５）　中垣 俊之* ：「Mechanics of smart behaviors -from amoeba to robot-」、RIKEN retreat（理研リトリート)、ヤマハリゾートつま恋（静岡県）(2015-01)

６）　中垣 俊之* ：「細胞の物理エソロジーにむかって」、新学術研究「動く細胞と秩序」班会議、あいち健康プラザ (2015-01)

７）　中垣 俊之* ：「アメーバ運動のレオロジーと計測」、新学術領域研究「ゆらぎと構造の協奏」 細胞運動研究会、九州大学 (2014-12)

８） T. Nakagaki*：“Variety and Choice of Behavioral Options in Fronting on Weakly Toxic Zone in an Amoeboid Cell”, 4th Symposium on Artificial Life and Biomimetic Functional Materials, University of Tokyo (2014-11).

９） 中垣 俊之*：「イグノーベル賞顛末記ー単細胞の情報通信をめぐってー」、電子情報通信学会アンテナ伝播研究会 IEEE AP-S JC 特別講演会、北海道大学 (2014-10)

１０）T. Nakagaki*：“Rules for biologically inspired network design”, Hokudai-NCTU Joint Symposium on Nano, Photo and Bio Sciences, Hokkaido University (2014-09)

１１）中垣 俊之*:「Transport network in bio-systems -From vein-network in Physarum- 」、京都国際高等研究所 研究プロジェクト「ネットワーク科学」研究会 、国際高等研究所（京都府） (2014-08)

１２）T. Nakagaki*：“Biomechanics of peristaltic crawling in limbless and legged organisms”, RIMS Conference Sapporo Summer Conference on Dynamics of patterns in material Science, Hokkaido University (2014-07)

１３）中垣 俊之*：「化学反応系のパターン形成」、日本化学会生体機能関連化学部会若手の会第26回サマースクール、ラフォーレ蔵王 (2014-07)

１４）佐藤 勝彦*:「Collective migration of cohesive cells induced by left-right asymmetric junction remodeling」、ワークショップ ″Development and future of artificial cells: Computation, fluctuation, and evolution″、京都大学 益川ホール(2014-06)

１５）黒田茂 ″Scaling in the Physarum amoebae during locomotion: size, shape and speed″, MIMS研究集会:反応拡散現象にみられる境界層とその周辺の数理, Nakano-ku Tokyo, Japan.(2014-11)

１６）Kuroda,S. and Nakagaki,T. ″General mechanics for environment-coupled crawling locomotion: from amoeba to snail, earthworm, centipede and beyond.″, The joint annual meeting of the JSMB and SMB, Osaka, Japan.(2014-7)

１７）Kuroda,S. and Nakagaki,T. (2014) ″Transition among possible modes in crawling locomotion″, Gordon Research Conference (Oscillations& Dynamic Instabilities in Chemical Systems), Girona, Spain.(2014-7)

iii）コロキウム・セミナー等・その他

１）中垣 俊之*：「単細胞生物の物理エソロジー」、大阪大学理学部生物学科セミナー、大阪大学 (2015-02).

２）中垣 俊之*:「人の知 粘菌の知」、北海道大学平成遠友夜学校、北海道大学 (2015-01).

３）中垣 俊之*:「生き物の賢さを捉え直す」、SSH旭川西高校講演会、旭川市 (2014-12)

４）中垣 俊之*：「粘菌・情報疎通・社会」、国立民俗学博物館学術潮流サロン、国立民俗学博物館（大阪市） (2014-10)

５）中垣 俊之*：「いま生物教育に求められるもの」、北海道高校生物教師の研修会、北海道立理科教育センター (2014-09)

６）中垣 俊之*：「アメーバの知恵ヒトの知恵」、函館市亀田老人大学、函館市亀田福祉センター (2014-09)

７）中垣 俊之*：「リズムと同調 ー科学がもたらすものの見方ー」、隠岐高校１年理数系クラス講義、島根県立隠岐高校 (2014-08)

８）中垣 俊之*:「細胞の賢さを探る」、隠岐高校3年理数系クラス講義、島根県立隠岐高校 (2014-08)

９）中垣 俊之*:「生物の移動運動」、島根大学 隠岐臨海実験所 公開臨海セミナー、隠岐の島 (2014-08)

１０）中垣 俊之*：「アメーバの知恵ヒトの知恵」、電子科学研究所一般公開サイエンストーク、北海道大学 (2014-06)

１１）中垣 俊之*：「科学者を夢見て」、市立函館高校総合学習の時間講演会、函館市 (2014-05)

１２）黒田茂(2015) ″這行におけるモードスイッチング″、NLPMコロキウム、広島大学理学部 (2015-01)

１３）黒田茂(2015) ″自由移動中の真正粘菌におけるアロメトリー:形、速さ、リズム″、広島大学理学部 (2015-01)

4.4 シンポジウムの開催

１）国際数理生物学会にてシンポジウム「A current rise of physical ethology」を主催した。

4.5 共同研究

a. 海外機関との共同研究

１）仏国リール科学工科大学マルクルフラン教授を招聘し、共同研究のための議論をすすめた。

２）仏国、リヨン第一大学ジャンポールリュー教授らと粘菌変形体アメーバ運動における張力測定について共同研究をし論文発表した。

３）スエーデン国、ルンド大学ハイナー･リンケ教授等と欧州共同体科学研究プロジェクトEU-FP7”A Biological Agent Computing System”に、招待専門家として参画した。

４）独国バイロイト大学ヘルムットブラント教授の訪問を受け、共同研究のための意見交換をおこなった。

4.6 予算獲得状況

a. 科学研究費補助金

１）中垣俊之：科学研究費補助金 新学術領域研究「動く細胞と場のクロストークによる秩序の生成」公募研究, 課題番号25111726, 平成25-26年度, テーマ：細胞運動における細胞レオロジーと応力場のクロストーク, 代表者.

２）中垣俊之：科学研究費補助金 新学術領域研究「ゆらぎの構造と協奏：非平衡系における普遍法則の確立」計

画研究分担者, 平成25-29年度, テーマ：非平衡定常状態におけるソフトマターのゆらぎとレオロジー, 代表者：折原宏(北海道大学).

3）中垣 俊之、基盤研究 B 一般、数理科学と生体生命情報科学との連携による生命知の基本アルゴリズムの探求、2014～2016年度.

4）國田樹：科学研究費補助金 平成25-26年度, 若手(B) 課題NO. 25730178, テーマ：ソフトマター物理による生体情報処理の新しいインターフェイスの提案, 代表者.

5）佐藤 勝彦:学術研究助成基金助成金（基盤研究(C)）「筋肉の自励振動: 心筋拍動のメカニズムに関する新しい視点」、研究代表者、2014年度～2016年度.

4.7 社会教育活動

c. 併任･兼業

1）中垣俊之：大阪大学理学研究科非常勤講師

2）中垣俊之：大阪大学生命機能研究科客員教授

3）中垣俊之：明治大学先端数理科学インスティテュート客員研究員

4）中垣俊之：北海道大学トポロジー理工学教育研究センター兼務

5）中垣俊之：道立啓成高等学校スーパーサイエンスハイスクール運営指導委員会運営指導委員長

d. 新聞･テレビ等の報道

1）中垣 俊之 ： 北海道新聞 2015年03月29日 「日曜版の連載「知究人」にて2ページ弱の記事にて生命動態研究分野が「単細胞の知性に迫る」として紹介された。」.

2）中垣 俊之 ： 中日新聞 2015年02月03日 「特集 戦後70年の処方箋「前のめりな世の中に」にて「示唆に富む単細胞の粘菌」として1/3ページほどの記事が掲載された。」

3）中垣 俊之 ： 聖教新聞 2015年01月14日 「文化欄にて1/3ページ程の記事「粘菌に見る単純で賢い思考法」が掲載された。」

4）中垣 俊之 ： 毎日新聞 2014年10月13日 「連載「学校と私」にて研究にまつわる人物像などが紹介された。」

5）中垣 俊之 ： 朝日新聞 2014年07月29日 「連載「知の達人たち」で記事「イグノーベル２回粘菌が導く」として紹介された。」

6）中垣 俊之 ：DRESS 2015年03月01日 「40歳前後の女性向け雑誌「DRESS」の連載コーナー「大人の学校：今宵サイエンスバーで ー科学を知ればもっと自由に豊かになれるー」の第10回として「中垣俊之博士の原始的知性に学ぶこと」（pp. 272-283）という記事が掲載された。」

7）中垣 俊之 ： 新潮45 2014年04月01日 「″ビートたけしの達人対談 単細胞だってナメるなよ″, Vol. 33, No.4, pp. 272-283 (April, 2014)」

8）中垣 俊之 ：NHK番組「凄ワザ」 2015年03月20日 「当番組の放送時間変更を記念した特別番組にて、当番組でこれまで放映されてきた科学技術に関する一連のコメントを行った。」

9）中垣 俊之 ： テレビ朝日「ビートたけしのTVタックル」 2014年06月02日 「特集「知っているようで知らない科学者の世界」にて当研究室が3分程紹介された。」

１０）中垣 俊之 ： COMZINE 2014年12月15日 「NTTコムウエアが制作する企業向けウエブマガジンである「COMZINE」の連載「かしこい生き方を考える」にて「単細胞の粘菌が作る交通網が人間の暮らしを豊かにするかもしれません」という記事が掲載された。」

１１）中垣 俊之 ： 札幌国際芸術祭 2014年09月22日 「北大CoStep主催「学者と役者 知の競演 ーサイエンスとアートが世界を変えるー」に俳優斉藤歩氏とともに参加して札幌チカホ空間にて対談イベントを実施した。」

１２）中垣 俊之 ： 株式会社ケニス 2014年04月01日 「当研究室が監修した「粘菌の飼育実験キット」がケニス社より定価28000円にて上市された。」

e. 外国人研究者の招聘

1）仏国リヨン第一大学大学ジャンポール･リュー教授 (2014-6-22/2-14-6-24）.

2）独国バイロイト大学ヘルムート･ブラント教授 (2014-9-10/2014-9-17).

3）仏国リール科学工科大学マルク･ルフラン教授 (2014-7-23/2014-8-1).

f. ポスドク・客員研究員など

1） 博士研究員: 國田樹(2013.10～).

数理科学研究部門

研究目的

本研究部門では、複雑系科学、力学系理論、化学動力学理論などの数理科学をベースとして、複雑系としての脳神経系などの生命システムの機構解明、高次分子複合体の機能などの状態変化における偶然と必然の原理の解明、および表皮細胞が集団組織として作り出すバリア機能の解明などの研究に取り組んでいます。このような研究は、従来のアプローチでは十分解明できなかった分子複合体、細胞、組織、脳といった階層を越えて繋がっている複雑な生命システム現象などの解明に貢献します。

複雑系数理研究分野

教　授　津田一郎（京都大学、理博、2005.10～）
准教授　青沼仁志（北海道大学、博士(理学)、2001.1～）
准教授　佐藤　譲（東京大学、博士(学術)、2006.4.～）
助　教　西野浩史（岡山大学、博士(理学)、2000.10～）
助　教　山口　裕（北海道大学、博士(理学)、2008.4～2015.3.31）
学術振興会 特別研究員　渡邊 崇之（東京大学、博士(理学)、2010.4.1～）
学術研究員　田所　智（北海道大学、理博、2003.9～）
岩﨑正純（岡山大学、博士(理学)、2010.4～2015.3.31）
渡部大志（北海道大学、修士、2012.4～）
前田真秀（大阪府立大学、修士、2011.5～2014.7.31）
玉井信也（東京大学、修士(学術)、2006.4～2015.3.31）
塚田啓道（北海道大学、理博、2013.6～）
院　生　工藤　信宏(M2)、品田憲人(M2)、平塚倖太(M2)
事務補助員　三浦由貴（2011.3～2015.3.31）
黒田展子（2014.4～）

１．研究目標

複雑系数理研究分野は旧計算論的生命科学と旧神経情報研究分野が統一された研究分野である。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、認知機構、昆虫の神経情報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。

２．研究成果

１．第二種自己組織化の提案

従来の自己組織化理論(第一種自己組織化理論と呼ぶ)を見直し、従来の理論の枠組みに収まらない第二種自己組織化理論の枠組みを提唱した。第一種自己組織化理論 はミクロな要素の相互作用によってマクロに秩序が創発する原理に関するものであったが、第二種自己組織化理論では、脳の機能分化や胚の発生過程に見られるように、システムに拘束条件を付けることで、システムの要素が分化することを言う。大野の言うシステムの基礎条件を自己組織的に生成する仕組みとして何らかの変分原理が基本になっていると考えられる。（津田）

人や動物の行動に対する意思決定において、学習の初期

２．レビー小体型認知症の視覚性幻覚に関する神経回路モデルの構築

レビー小体型認知症にみられる特異な複合型視覚性幻覚に関わる長距離の神経連絡に沿ったダイナミクスを解明するために、視覚野、下側頭葉、腹側前頭前野を含む広範囲の神経パスの数理モデルを構築し、計算機シミュレーションを行った。視覚野から前頭前野へのパスに部分的欠損があると、視野の一部にシーンとは無関係な視覚像が現れることをシミュレーションで示し、その拘束条件について調べた。（塚田、津田、山口）

３．ランダム力学系の研究

非線形力学系にノイズを付加したときに起こる現象として、付加ノイズ強度に応じて多重転移を示す現象(多重雑音誘起転移)、ノイズ強度に依存して軌道分布が振動を起こす現象(統計的周期性)、ベイシンの部分的スムース化(雑音誘起ベイシン)といった、これまでに知られていなかった雑音誘起現象が、広いクラスの非線形力学系に偏在していることを発見し、これらを系統的に分析した。また基礎理論を、流体や生体リズム、脳波の実験データ解析に応用して成果を上げた。これらはランダム力学系アプローチとして総括できる、新たな非線形動力学解析である。今後「雑音誘起現象論」の体系化を進めるとともに、ランダム力学系における確率的振動(stochastic oscillation)や確率的カオス(stochastic chaos)といった複雑現象とその発生メカニズムを、ランダムストレンジアトラクター、ランダム不変測度、確率分岐といったランダム力学系理論の諸概念に基づいて分析していく。（佐藤）

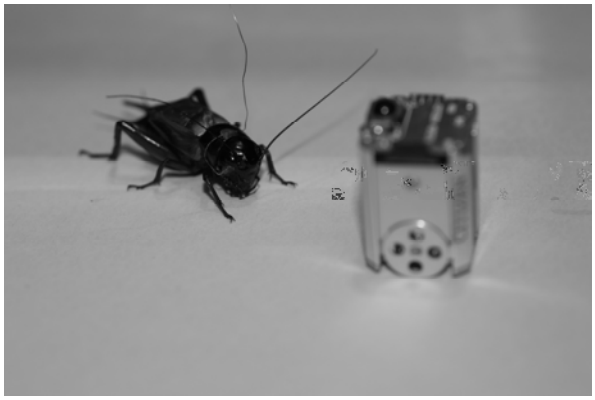
４．適応行動の実時間制御の研究

刻一刻と変化する環境のなかで動物はフレーム問題に捉われることなく、適応的に運動や行動を発現することができる。この適応的な運動や行動を実時間で実現する脳の設計原理を理解するため、動物に普遍的にみられる攻撃行動やロコモーションに着目し、状況に応じて行動や運動が変容するメカニズムについて研究した(下図参照)。特に攻撃行動では、動機付けにかかわる脳内の神経修飾機構の時間発展について行動生理学実験位より調べ、その知見をもとに個体が状況に応じて行動や運動を変容させる神経生理機構のシステムモデルを構築し、シミュレーション実験やロボット実装実験を行った。その結果、場と個体間相互作用と脳神経系に内在する多重フィードバック構造が状況に応じた行動発現に重要であることを明らかにした。（青沼）

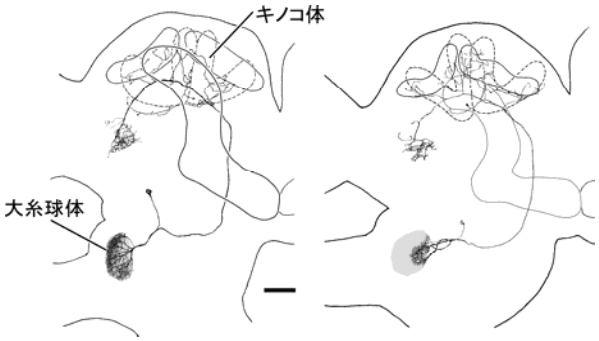
５．匂いの方向検出の神経基盤

地上性昆虫は遮蔽物に富む環境に適応し、無風条件下においてもすぐれた匂い源定位能力をもつことが知られている。しかしながら匂いセンサーである触角表面には空気流応答性の感覚子は分布しておらず、長い触角を直交するようによぎる匂いの方向を検出する手段を持たない。我々は

ワモンゴキブリの触角内部を走行する2本の触角神経の各々をさらに2～4分割し、異なる蛍光色素を注入することで、触角前側、背側、腹側、後側表面に由来する嗅感覚細胞の求心繊維がそれぞれ大糸球体の最前端、前側中央、後方中央、最後端に偏向する投射を示すことを明らかにした。つまり、触角周囲の嗅感覚細胞の軸索終末は糸球体中の異なる領域にマッピングされることを発見した。現在はこの感覚細胞の投射マップが介在ニューロンによってどう利用されるのかどうかについて細胞内記録・染色法を用いた検証を進めている（西野）。



図：本文参照



図：触角の基部での匂い刺激を検出する投射ニューロン（左図）と先端での匂い刺激を検出する投射ニューロン（右図）。大糸球体の中の樹状突起の位置が異なることに注意。スケールバーは 100 μm。

３．今後の研究の展望

第二種自己組織化原理の数学的定式化を目指す。海馬における空間細胞と時間細胞の発見を基礎にして時空間コーディング理論を展開したい。

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、理論の予測の一部がラット海馬のスライス実験や小鳥の歌学習において実証された。これを受けて、動物の行動実験に伴うin vivo計測やヒトの行動実験における脳活動計測によって、理論の予測するエピソード記憶に対するカントルコーディング仮説の実証研究を発展させる。また、ランダム力学系を含む大自由度カオス力学系の数学的研究もカオス的遍歴の定式化と共にさらに発展させていく。

さらに、昆虫の神経情報に関するミクロ分子過程からマクロ行動までの階層構造を明らかにしていく。無限定環境下で如何に微小脳をもつ昆虫が行動決定していくかといった動物行動の本質的問題に挑戦していく。昆虫の情報処理のほとんどは匂い情報であることからそれを扱うキノコ体を中心とした嗅覚系の研究をさらに発展させていく。

４．資料

4.1　学術論文等

１）Ichiro Tsuda: Chaotic itinerancy and its roles in cognitive neurodynamics, Current Opinion in Neurobiology, Vol.31, pp.67-71 (2015), DOI: 10.1016/j.conb.2014.08.011

２）Yutaka Yamaguti, Ichiro Tsuda: Mathematical Modeling for Evolution of Heterogeneous Modules in the Brain, Neural Networks, 62, 3-10 (2015) , DOI:10.1016/j.neunet.2014.07.013

３）I.Tsuda, Y.Yamaguchi, T.Hashimoto, J.Okuda, M.Kawasaki, Y.Nagasaka: Study of the neural dynamics for understanding communication in terms of complex hetero systems, Neuroscience Research, 90, pp.51-55 (2015), doi:10.1016/j.neures.2014.10.007

４）Xiaochuan Pan, Hongwei Fan, Kosuke Sawa, Ichiro Tsuda, Minoru Tsukada, Masamichi Sakagami: Reward inference by primate prefrontal and striatal neurons, The Journal of Neuroscience, Vol. 34(4), pp.1380-1396 (2014), DOI: 10.1523/JNEUROSCI.2263-13.2014

５）Yutaka Yamaguti, Ichiro Tsuda, Yoichiro Takahashi: Information flow in heterogeneously interacting systems, Cognitive Neurodynamics, 8(1), pp 17-26 (2014), DOI: 10.1007/s11571-013-9259-8

６）Kota Hiratsuka, Yuzuru Sato, and Zin Arai, ″Computability and Complexity of Julia, Sets: a review,″ NOLTA journal, vol 5:4, p410-423, (2014). DOI: http://dx.doi.org/10.1587/nolta.5.410

７）Yuzuru Sato and Nobuo Matsunaga, “Random basin in Dice Roll,” RIMS Technical Report, No. 1942, p1-10, Kyoto University, (2015), in Japanese

８） A. M. Alessi, V. O’Connor, H. Aonuma and P. L. Newland: “Dopaminergic modulation of phase reversal in desert locusts”, Behav. Neurosci., 8 : 371- (2014)

９）K. Kawabata, H. Aonuma, S. Takahashi, K. Hosoda and J. Xue : “Image-based pose estimation for analyzing cricket-robot interaction behavior”, Journal of Signal Processing, 118(3) : 135-141 (2014)

10）T. Ichikawa, Y. Toh, K. Ohkubo and H. Nishino: Microscopic analysis of mechanosensory system monitoring the dynamic claw actions in the tenebrionid beetle *Zophobas*

atratus, Zoomorphology 113: 273-284 (2014) DOI 10.1007/s00435-014-0225-8

11) H. Nishino, H. Watanabe, I. Kamimura, F. Yokohari and M. Mizunami: Coarse topographic organization of pheromone-sensitive afferents from different antennal surfaces in the American cockroach, Neurosci. Lett. 595: 35-41 (2015) DOI 10.1016/j.neulet.2015.04.006

12) M. Mizunami, Y. Hamanaka and H. Nishino : Toward elucidating diversity of neural mechanisms underlying insect learning, Zoological Lett., 1 : 8 (2015) DOI 10.1186/s40851-014-0008-6

4.2 総説・解説・評論等

1) Ichiro Tsuda, Yoko Yamaguchi, Takashi Hashimoto, Jiro Okuda, Masahiro Kawasaki, Yasuo Nagasaka
Study of the neural dynamics for understanding communication in terms of complex hetero systems
Neuroscience Research, in press

2) 青沼 仁志 : 「モデル構築とロボット実装による昆虫の適応行動を創り出すからくりの理解 (Understanding adaptive mechanisms of insects by modeling and by constructing a robot)」、日本画像学会誌、53(3) : 207-215 (2014)

3) 高梨 琢磨、西野 浩史 : 「第２章 生物の五感に学ぶ機能とその製品開発への応用 第９節 昆虫の振動情報と受容器に学ぶ-振動情報を受容する仕組み、その応用の可能性 」、生物模倣技術と新材料・新製品開発への応用、技術情報協会 : 208-213 (2014)

4.3 国際会議議事録等に掲載された論文

1) R. Sakai, M. Shimizu, H. Aonuma and K. Hosoda : "Swimming Locomotion of *Xenopus Laevis Robot*. *in* Biomimetic and Biohybrid Systems", Lecture Notes in Computer Science, Springer International Publishing : 420-422 (2014)

4.4 講演

a. 招待講演

i) 学会

1) 津田一郎： 数理モデリングから見た神経振動現象の多様性と普遍性、招待講演、神経オシレーションカンファレンス2014、自然科学研究機構岡崎コンファレンスセンター（愛知県）、2014年7月17日-18日

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

1) Yutaka Yamaguti, Hiroshi Nishida, Muneyoshi Takahashi, Johan Lauwereyns, Ichiro Tsuda: Mathematical modeling of rat's internal activity: iterated function system with dynamic selection probability, The 15th RIES-Hokudai International Symposium [Hibiki], CHÂTERAISÉ Gateaux Kingdom SAPPORO, Japan, 16-17 Dec. (2014)

2) 山口裕、西田洋司、高橋宗良、ローレンス・ヨハン、津田一郎: 動的な選択確率を持つIterated Function System による課題遂行中のラット海馬神経活動の数理モデル、poster,、2014年度包括脳ネットワーク冬のシンポジウム、東京医科歯科大学湯島キャンパス、2014年12月11日-12月13日

3) Yutaka Yamaguti, Ichiro Tsuda: Evolution of Heterogeneous Modules via Maximization of Bi-directional Information Transmission, 4th Symposium on Artificial Life and Biomimetic Functional Materials, Advanced Research Laboratory, Komaba Campus, The University of Tokyo, Nov. 28, 2014.

4) Ichiro Tsuda: The Second Kind of Self-Organization, Waseda AICS Symposium and the 14th Slovenia-Japan Seminar "New Challenges in Complex Systems Science", Waseda University, Tokyo, Japan, October 24 (2014)

5) 津田一郎: 脳の数理モデルについて、招待講演、物質・デバイス領域共同研究拠点事業『ABE^2 空間における次世代デバイス・システムの展望 ～高効率太陽電池の展開、並びに清浄環境の未来』研究会、北海道大学電子科学研究所（北海道）、2014年9月5日

6) H. Aonuma*: "Systematic understanding adaptive behavior —modeling of group size dependent aggression—", ICN2014 satellite programs/Hokkaido Neuroethology Workshops 2014, 北海道大学 (2014-07)

iii) コロキウム・セミナー等・その他

1) Yuzuru Sato, "Random dynamical systems approaches to noise-induced phenomena," invited seminar, Loughborough University, Leicestershire, UK, (22 May 2014)

2) 佐藤 英毅、小野 達也、加納 剛史、青沼 仁志、松坂 義哉、石黒 章夫 : 「クモヒトデのレジリアントな振る舞いに内在する「コト」の究明」、第27回自律分散システムシンポジウム資料、15SY0001 : 1C2-3- (2015)

b. 一般講演

i) 学会

1) Yuzuru Sato, "Asymmetric game dynamics and its applications," SAET, Waseda University, Tokyo, Japan (19 Aug. 2014)

2) Yuzuru Sato, "Random dynamical systems approaches to noise-induced phenomena," Mini Conference on Glassy and Complex Systems, King's College London, London, UK, (20 May 2014)

3) 加納 剛史*、大須賀 公一、小林 亮、青沼 仁志、石川 将人、杉本 靖博、大脇 大、石黒 章夫 : 「「個性」を持つ粒子集団が創り出す動的秩序 ～人間社会における交友関係を採り上げた事例研究～」、第27回自律分散システムシンポジウム、東京理科大学

(2015-01)

４） R. Sakai*, M. Shimizu, H. Aonuma and K. Hosoda: “DPIV Approach for Swimming Frog Robot Driven by Living Muscle”, The 6th International Symposium on Aero-aqua Bio-Mechanisms (ISABMEC2014) , Honolulu, Hawaii, USA (2014-11)

５） 北村 美一郎*、青沼 仁志、小川 宏人、岡 浩太郎：「ミミズ非連合学習におけるNO-cGMPシグナル経路の役割」、第52回日本生物物理学会年会、札幌コンベンションセンター (2014-09)

６） 佐藤 英毅*、小野 達也、加納 剛史、青沼 仁志、松坂 義哉、石黒 章夫：「身体構造に応じた振る舞いを発現するクモヒトデ型ロボットの実機開発」、第32回ロボット学会、九州産業大学 (2014-09)

７） R. Sakai*, M. Shimizu, H. Aonuma and K. Hosoda: “Swimming Locomotion of *Xenopus Laevis* Robot. in Biomimetic and Biohybrid Systems”, The 3rd International Conference on Living Machine 2014, Milan, Italy, Itary (2014-07 ～ 2014-08)

８） T. Kano*, E. Sato, H. Aonuma, Y. Matsuzaka and A. Ishiguro: “Mathematical Model of Inter-arm Coordination Mechanism of Ophiuroids”, The Joint Annual Meeting of the Japanese Society for Mathematical Biology and the Society for Mathematical Biology, Osaka International Convention Center (2014-07 ～ 2014-08)

９） T. Watanabe* and H. Aonuma: “Development of tools for neurogenetics in the field cricket Gryllus bimaculatus”, 11th International Congress of Neuroethology and The 36th Annual Meeting of The Japanese Society for Comparative Physiology and Biochemistry, Sapporo Convention Center, Sapporo (2014-07 ～ 2014-08)

１０） H. Shimoji*, H. Aonuma, M. Abe, K. Tuji, T. Miura and Y. Okada: “Gamergate controls dopamine levels of workers in *Diacamma sp.* ”, International Union for the Study of Social Insects (IUSSI14), Cairns Convention Centre, Queensland, Australia (2014-07)

１１） 佐藤 英毅*、加納 剛史、青沼 仁志、松坂 義哉、石黒 章夫：「クモヒトデから学ぶレジリアントなロボットの設計原理」、ロボティクス・メカトロニクス講演会2014、富山国際会議場 (2014-05)

１２） 松坂 義哉*、佐藤 英毅、加納 剛史、坂本 義哉、青沼 仁志、石黒 章夫：「局所麻酔実験から探るクモヒトデの歩行制御の神経機構」、日本生理学会 第45回東北生理談話会、東北大学片平キャンパス (2013-10)

１３） 向井 裕美、西野 浩史、高梨 琢磨：「求愛シグナルの振動を脚で感知する：キンカメムシ類における振動受容機構の解明」、応用動物昆虫学会第59回大会、山形大学小白川キャンパス (2015-03)

１４） H. Nishino, M. Iwasaki, A. Yoritsune, I. Kamimura and M. Mizunami : Sensing the structural architecture of odor plumes with a single antenna, 11th International Congress of Neuroethology, Convention Center, Sapporo (2014-07 ～ 2014-08)

１５） H. Watanabe, H. Nishino and F. Yokohari : Temporal activity patterns of two different types of projection neurons revealed by simultaneous intracellular recordings in the cockroach, 11th International Congress of Neuroethology, Convention Center, Sapporo (2014-07～2014-08)

１６） T. Takanashi, M. Fukaya and H. Nishino : Substrate vibrations mediate startle behavior via femoral chordotonal organ in a cerambycid beetle, 11th International Congress of Neuroethology, Convention Center, sapporo (2014-07～2014-08)

１７） H. Mukai, H. Nishino and T. Takanashi : Sensing vibration in land bugs: the unusual morphologies of leg chordotonal organs, The 19th Auditory Research Forum, Doshisha Biwako Retreat Center, Doshisha University (2014-12)

ii）研究会・シンポジウム・ワークショップ

１） Yuzuru Sato, “Random basin in dice roll,” Workshop on Theory and Applications of Random/Non-autonomous Dynamical Systems, Imperial College London, London, UK, (11 Sept. 2014)

２） Yuzuru Sato, “Random dynamical systems approaches to noise-induced phenomena,” Workshop on Computation and Computability in Dynamics, Trieste, Italy (23 July 2014)

３） Yuzuru Sato, “Random dynamics from time seiries of rotating fluids,” workshop on physical origins of correlated extreme events, Max Planck Institute for the Physics of Complex Systems, Dresden, Germany, (13 June 2014)

４） Yuzuru Sato, “Random Strange Attractor and Stochastic Chaos”, Dynamical Systems and Computation, Hokkaido University, Sapporo, (3 Mar. 2015)

５） 山口裕、津田一郎、情報伝達最大化原理に基づくネットワークの分化、第2回アライアンス若手研究交流会～モノを創る、観る、識る～, 大阪大学産業科学研究所, 2014年11月26日～27日

６） 山口裕、渡部大志、津田一郎、情報伝達最大化原理に基づくネットワークの進化、附置研究所間アライアンスによるナノとマクロをつなぐ物質・デバイス・システム創製戦略プロジェクト 平成25年度成果報告会 大阪大学会館　2014年5月30日

７） T. Watanabe*, A. Ugajin and H. Aonuma: “Identification of neuronal immediate early gene expressed in the cricket

nervous system", 15th RIES-Hokudai International Symposium, CHÂTERAISÉ Gateaux Kingdom SAPPORO (2014-12)

８） T. Watanabe* and H. Aonuma: "Establishing cricket neurogenetics: recent advances and further perspectives", International Workshop - Neuronal principles of learning and memory and its perspectives for designing autonomic distributed systems, Hawaii Tokai International College, Honolulu, Hawaii, USA (2014-10)

９） T. Watanabe* and H. Aonuma: "Development of tools for neurogenetics in the field cricket *Gryllus bimaculatus*", Hokkaido Neuroethology Workshop 2014, Hokkaido Univ., Sapporo (2014-07)

4.5 予算獲得状況（研究代表者、分類、研究課題、期間）

１） 津田 一郎、新学術領域研究 研究領域提案型、ヘテロ複雑システムによるコミュニケーション理解のための神経機構の解明、2014年度

２） 津田 一郎、基盤研究Ｂ、レビー小体型認知症の幻視に関する情報機構の解明とその数理モデル化、2014～2016年度

３） 津田 一郎、基盤研究Ｃ、学習・記憶における部分と全体の情報表現、2012～2014年度

４） 津田 一郎、挑戦的萌芽研究、脳神経ネットワークの機能分化に関する情報数理モデル、2014～2015年度

５） Yuzuru Sato, Platform grant, Imperial College London, London, UK "Random Dynamical Systems Approaches to Noise-induced Phenonema," 2013～2014年度

６） 佐藤 譲、基盤研究C、雑音誘起現象へのランダム力学系アプローチ、2012～2014年度

７） 佐藤譲、基盤C(特設)、マウス全半球膜電位伝播波の甘利神経場モデルによる解析、2014～2018年度

８） 山口 裕、基盤研究C、学習・記憶における部分と全体の情報表現、2012～2014年度

９） 山口 裕、挑戦的萌芽研究、脳神経ネットワークの機能分化に関する情報数理モデル、2014～2015年度

１０） 青沼 仁志、萌芽研究、雌コオロギの配偶者選択行動を司る脳機能の解明、2014～2015年度

１１） 青沼 仁志、萌芽研究、コオロギと移動ロボットのマルチモーダル相互作用による配偶行動メカニズムの理解、2013～2015年度

１２） 青沼 仁志、基盤研究 A、特異な対称構造を持つムモヒトデから探る振る舞いの多様性の発現機序、2012～2015年度

１３） 青沼 仁志、(CREST, JST, 研究領域「現代の数理科学と連携するモデリング手法の構築」）：「環境を友とする制御法の創生」、2014～2019年度

１４） 西野 浩史、基盤研究C、単一嗅覚器による匂い方向検出の神経基盤の解明、2014～2016年度

１５） 西野 浩史、新学術領域研究 研究領域提案型、昆虫の聴覚器規範設計の解明、2013～2014年度

4.6 社会教育活動

ａ．公的機関の委員

１） 津田 一郎、独立行政法人科学技術振興機構、「数学と諸分野の協働によるブレークスルーの探索」領域アドバイザー（2013年4月1日～2015年3月31日）

２） 津田 一郎、京都大学数理解析研究所、専門委員会委員（2013年9月1日～2015年8月31日）

３） 津田 一郎、独立行政法人日本学術振興会、科学研究費委員会専門委員（2013年10月1日～2014年9月30日）

４） 津田 一郎、情報システム研究機構統計数理研究所、数学協働プログラム運営委員会委員（2014年4月1日～2015年3月31日）

５） 津田 一郎、独立行政法人科学技術振興機構研究開発戦略センター、研究開発の俯瞰報告書分科会委員（2014年7月1日～2015年3月31日）

６） 津田 一郎、日本学術会議、連携会員（2014年10月1日～2017年3月31日）

７） 津田 一郎、独立行政法人科学技術振興機構、「脳神経回路の形成・動作原理の解明と制御技術の創出」領域アドバイザー（2014年8月15日～2015年3月31日）

８） 津田 一郎、文部科学省研究振興局、科学研究費補助金における評価に関する委員会の評価者（2014年12月8日～2015年12月7日）

９） 津田 一郎、北海道大学数学連携研究センター運営委員、兼務教員（2014年4月1日～2015年3月31日）

１０） 佐藤 譲、北海道大学数学連携研究センター兼務教員 （2014年4月1日～2015年3月31日）

１１） 佐藤 譲、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（2014年4月1日～2015年3月31日）

１２） 佐藤 譲、JSIAM Letters編集委員、日本応用数理学会（2014年4月1日～2015年3月31日）

１３） 山口 裕、北海道大学数学連携研究センター兼務教員 （2014年4月1日～2015年3月31日）

１４） 西野浩史、(独) 日本学術振興会、特別研究員等審査会専門委員および国際事業委員会書面審査員、2014年度

１５） 西野浩史、東日本高速道路㈱北海道支社、識者意見交換会有識者アドバイザー、2014年度

ｂ．国内外の学会の役職

１） 青沼 仁志 : SWARM2015 プログラム委員会委員（2014年10月01日～2015年10月30日）

２） 青沼 仁志 : 日本動物学会北海道支部 会計幹事（2014年09月01日～2015年08月31日）

３） 青沼 仁志 : 日本動物学会北海道支部 役員 （2014年09月01日～2016年08月31日）
４） 青沼 仁志 : 日本動物学会国交流委員会委員（2013年02月01日～2016年12月31日）
５） 青沼 仁志 : 国際神経行動学会(ICN2014)実行委員（2013年01月01日～2014年08月10日）
６） 青沼 仁志 : The Neuroinformatics Japan Center・Invertebrate Brain Platform委員 （2006年04月01日～2015年03月31日）
７） 佐藤 譲、日本応用数理学会、代表会員（2014年4月1日～2015年3月31日）
８） 西野 浩史、日本比較生理生化学会 評議委員（2014年4月1日～2015年3月31日）
９） 西野 浩史、日本比較生理生化学会 編集幹事（2014年4月1日～2015年3月31日）
１０） 西野 浩史、日本動物学会北海道支部 支部役員（2014年4月1日～2015年3月31日）

d. 北大での担当授業科目（対象、講義名、担当者、期間）

１） 理学部、学部4年、数理解析学続論、津田 一郎、平成26年度2学期
２） 理学院、数理解析学講義、津田 一郎、平成26年度2学期
３） 大学院共通授業科目、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論Ⅰ、津田 一郎他、平成26年度1学期集中講義
４） 大学院共通授業科目、脳科学入門Ⅴ：神経回路の情報数理、津田 一郎他、平成26年度1学期
５） 全学教育科目、学部1年～、一般教育演習（フレッシュマンセミナー)、青沼 仁志他、平成26年度1学期
６） 生命科学院、生命システム科学基礎論、青沼 仁志他、平成26年度1学期
７） 生命科学院、行動システム制御科学特論、青沼 仁志他、平成26年度1学期
８） 大学院共通授業科目、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論Ⅰ、青沼 仁志他、平成26年度1学期集中講義
９） 大学院理工系専門基礎科目、生命システム科学基礎論、青沼 仁志他、平成26年度1学期
１０） 生命科学院、行動システム制御科学特論、西野 浩史他、平成26年度1学期
１１） フレッシュマンセミナー、学部1年、最先端の生命科学研究にふれよう、西野 浩史、平成26年度前期
１２） 理学部、学部2～4年、コンピュータ、山口 裕、平成26年度2学期

e. ポスドク・客員研究員など

・学術研究員
田所 智（電子科学研究所）
渡部 大志（電子科学研究所）
岩﨑 正純（電子科学研究所）
前田 真秀（電子科学研究所）
玉井 信也（電子科学研究所）
渡邊 崇之（学術振興会 特別研究員）
塚田 啓道（電子科学研究所）

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、博(学術)、2008.6～）
助　教　西村吾朗（阪大院、理博、2007.10～）
特任助教　James N. Taylor（ライス大、PhD、2014.10～）
博士研究員　津川暁（2014.4～）
　　古川大介（2012.4～）
学　生
博士課程後期
永幡　裕（生命科学院 生命融合科学コース）
宮川尚紀（理学院数学専攻）
Preetom Nag　（生命科学院 生命融合科学コース）
Genming Wang（生命科学院 生命融合科学コース）
田宮裕治（理学院数学専攻）
博士課程前期
新沼　奏（理学院数学専攻）
津田吏紗（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、複雑な中に特異性、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、一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、一分子レベルの大規模構造変形や細胞の分化の経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、700～1400 nm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定量的生体計測技術を確立する。それにより、単一分子レベルから個体レベルまでの階層をまたいだ総合的理解を目指している。

２．研究成果

(1) 回転モーターF1 - ATPaseの一分子時系列データから構成する反応機構の解明

生体系内のメカニズムを理解する上で最も重要な鍵の一つとして、酵素がどのように（化学－力学エネルギー変換の高効率といった）反応促進性や基質特異性を獲得しているのかが注目されている。回転分子モーターであるアデノシン三リン酸合成酵素（FoF1-ATP合成酵素）（図 1a）もその 1 つで、その回転を利用し、多くの生体分子機械を駆動するために効率的にATP合成を触媒している。F1-ATPase（図 1b）は、好熱性細菌に存在する分子モーターであり、ATP加水分解の際に回転するFoF1-ATP合成酵素の水溶性成分である。本研究では、時系列解析や反応拡散モデリングの観点から、F1-ATPaseにおける化学 - 力学カップリングの作用メカニズムを一分子レベルの回転時系列から直接解明することを目指している。

我々はこれまでの研究で、階段状の回転時系列データの中にある触媒反応時の回転休止過程を客観的に特定するために、時系列のトレンドを検出する変化点解析やサンプリング誤差を考慮したソフトクラスタリング法（図 1c）を開発してきた。これらの手法によってF1 の触媒状態を記述する様々な統計量を構成することができ、触媒サイクルの異なる成分の動力学（たとえば、ATP結合、ADP放出、ATP加水分解、リン酸放出）を特定することができる。本研究では、加水分解とリン酸放出が起こる時の回転休止過程に着目した。

回転休止過程中の動力学スキームを特定した結果は（図 1e）、結合したATPが加水分解前後で約 20° という僅かな角度増分(d2+d1)を誘発し、その次に他の触媒部位でのリン酸放出（図 1d）が起こるという新たなメカニズムを示唆している。化学 - 力学カップリングの効果は、電子移動速度論のSumi-Marcusモデル(Sumi et al., J. Chem. Phys., 84, 4894, 1986)に類似の 2 次元反応拡散モデル（図 1d）で説明することができる。この枠組みによって、ATP結合とリン酸放出反応の自由エネルギーよりも著しく小さい自由エネルギーを持つ結合ATPの加水分解反応には2つの重要な役割があることを指摘できる。1つ目は、リン酸の放出を加速させるきっかけを作る働きと、2つ目は触媒サイクルの正しい反応順序を促す働きである。

一方、この 2 次元反応拡散モデルの重要な特徴は触媒反

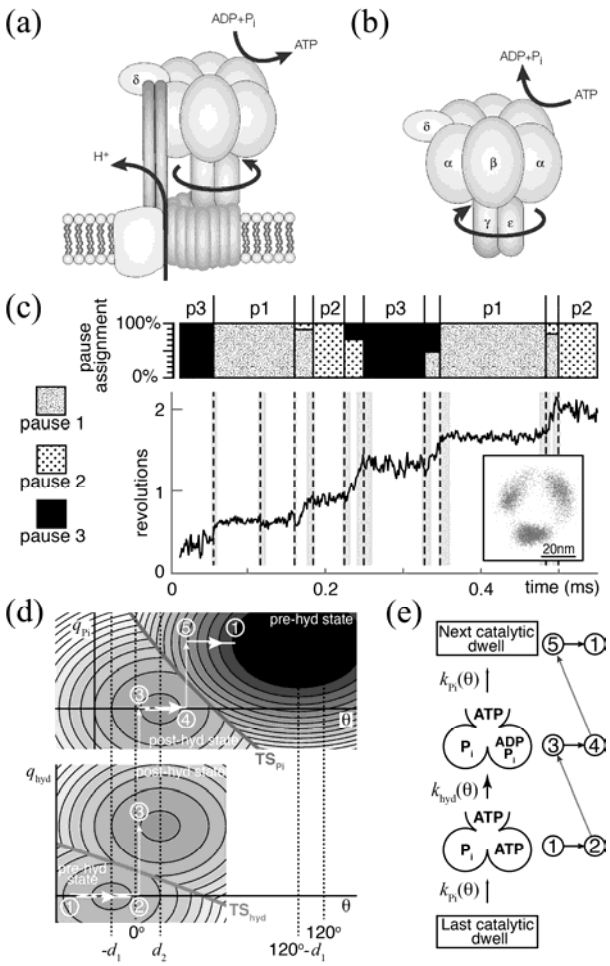


図 1：(a) F_oF_1 - ATP合成酵素と(b) ATPを加水分解する水溶性成分の F_1-ATPase(Yoshida *et al.*, Nat. Rev., 2, 669, 2001)。(c) 下図：トレンドにおける変化を検出するために γ-サブユニットの単一モータ回転トラジェクトリを応用した変化点解析。破線：検出された変化点、灰色部分：変化点の位置の誤差範囲、挿入画像：XY平面上の回転跡。上図：「休止」と「回転」を特定する変化点の間隔のソフトクラスタリング。クラスタが 95%以上の確率で休止状態に属する場合に、変化点の間隔を「休止」に割り当てた。(d) 時系列分析によって示された触媒反応時の回転休止における化学 - 力学カップリングを描写する 2 次元自由エネルギープロファイル。q_{hyd}とq_{Pi}は加水分解とリン酸放出の反応座標で、θは γ-サブユニット角度である。下図：前加水分解反応。上図：リン酸放出反応。2 次元反応図の重要な特徴には、角度依存の反応速度定数$k_{hyd}(\theta)$と$k_{Pi}(\theta)$がある。白線は自由エネルギー表面上の反応（縦線）と拡散（横線）経路を示している。(e) 触媒反応時の回転休止に対応する分子モーターのヌクレオチド状態。

応速度定数がγ-サブユニットの角度に依存することである。結果として、観測された触媒反応速度定数はγ-サブユニット角度の熱ゆらぎの緩和時間スケールによって調節されうる可能性があり、この驚くべき特徴はナノスケールで動作する分子機械でしか起こりえないものと期待される。

(2) 反応座標スイッチング機構の実験的検証可能性

反応座標スイッチングとは電場磁場中の水素原子からの飛び出すイオン化電子の動力学において新規に見出された現象である（寺本ら、Phys. Rev. Lett. 106, 054101(2011)）。電子のエネルギーがイオン化するのに必要なエネルギーと同じぐらいであれば、電子はポテンシャル面上、イオン化障壁ができるだけ低い領域を超えてイオン化しようとする傾向にある。標準的な化学反応理論における極限反応座標の近傍がそのような領域に対応しており、この極限反応座標は化学反応がどの方向に進むのかを大雑把につかむためによく利用されるのである。しかしながら、電子のエネルギーをイオン化障壁よりも上げていくと、あるところで、電子の飛び出す方向が、極限反応座標とは直交する方向へとスイッチする。この現象は、この系に特有な現象ではなく、背後にある法双曲的不変多様体の崩壊のパターンの一つとして理解されるもので、その崩壊を伴う分子に通有的に起こる現象であり、新規な化学反応制御への応用が期待されている。しかしながら、これまでは理論的な予測にとどまっており、その実験的な実証に関しては議論されてこなかった。そのため、量子化学の専門家である東北大学河野裕彦教授、電子運動量分光の実験の専門家である東北大学高橋正彦教授、反応座標スイッチングの提唱者の一人で非線形物理学の専門である奈良女子大学戸田幹人准教授らとともに、その実験的検証可能性に関して議論をした。この反応座標スイッチングにおいてイオン化電子の運動量分布がスイッチング前と後で顕著に変化することが理論計算により解明され、イオン化電子の運動量分布を角度分解で測定することができれば、この反応座標スイッチングの存在を原理的には実証できることを提唱した。こ

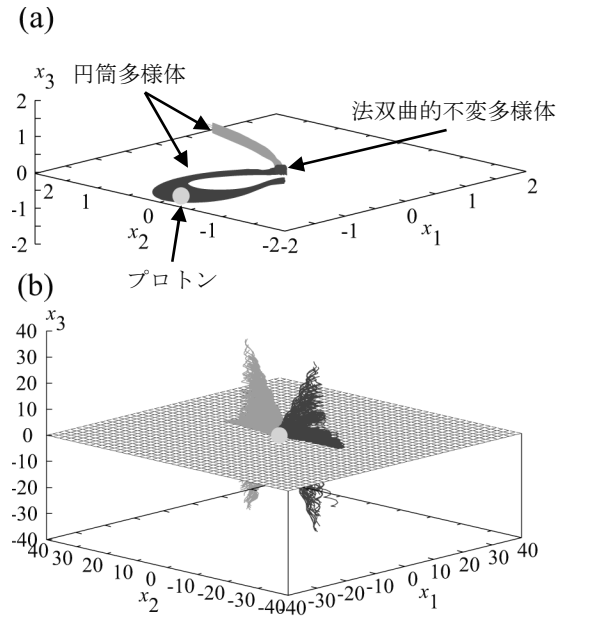


図 2(a)　電子のエネルギーがイオン化障壁と同程度のときのイオン化障壁近傍に存在する法双曲的不変多様体を電子の 3 次元座標 x_1, x_2, x_3に射影したもの、電子がそのイオン化障壁を越える際に通過する円筒上の多様体、および、プロトンを示す。イオン化するすべての電子はプロトン側の円筒を通り障壁を超え、もう一方の円筒を通りプロトンからイオン化する。(b)電子のエネルギーがイオン化障壁より 91.35cm^{-1}だけ高い場合の法双曲的不変多様体、円筒多様体を同じ色でプロットしたもの。多様体が伸びる方向が x_1, x_2平面内ではなく、それと直交する x_3へと切り替わっていることが分かる。

の内容は、現在、Phys. Rev. Lett.に投稿準備中である。

(3) 1細胞ラマンスペクトルの情報理論的解析手法の開発

同じ条件下であっても、ある細胞は生き残り、他の細胞は死んでしまうのはなぜか？細胞死の直前にミトコンドリアの動きが影響を与えるのだろうか？生細胞イメージングの分野は生体を動作させる生物学的過程を解き明かすために飛躍的な進展を続けている。例えば、Raman 顕微鏡は細胞内構成物への侵入的な標識を使わずに生細胞をイメージングすることができる。しかし、Raman イメージングは豊富な情報を持っている一方で、従来の分析手法では測定された全情報の一部しか捉えることができない。我々の研究目標は、Raman 顕微鏡によって得られるデータをより深く探求し、生物学的過程で起こる細胞動態の重要な因果関係（例えば､細胞死や細胞分裂)を明らかにすることである。しかしながら、画像とスペクトルの定量的分析を試みる前に雑音の混入（宇宙線スパイク、背景雑音、検出雑音等）は､定量化し除去または縮小させなければならない｡Raman スペクトルの背景推定において主観性を最小限に抑える努力はあるものの、現在のアプローチでは非再現的であり使用者によって偏りが出てしまう。そのため、使用者に依存しない再現性のある背景推定の方法が開発されており、統計的学習および機械学習を使うことで背景のみの画像のピクセルを特定することができる。さらに、Raman 顕微鏡で検出できる信号が本質的に弱いために、重要なスペクトルの特徴を決定するには大きな雑音ゆらぎを減らすことが不可欠である。ウェーブレット解析は効果的な雑音除去手法で、雑音混入についての仮定が少なく、ユーザーの入力も少ないかまたは全く必要としない。我々はユーザー入力がいらないウェーブレット解析の新手法を開発することにより、Raman スペクトルの雑音を効果的に縮小し、イメージングの中の細胞特性を浮き彫りにすることに成功した。

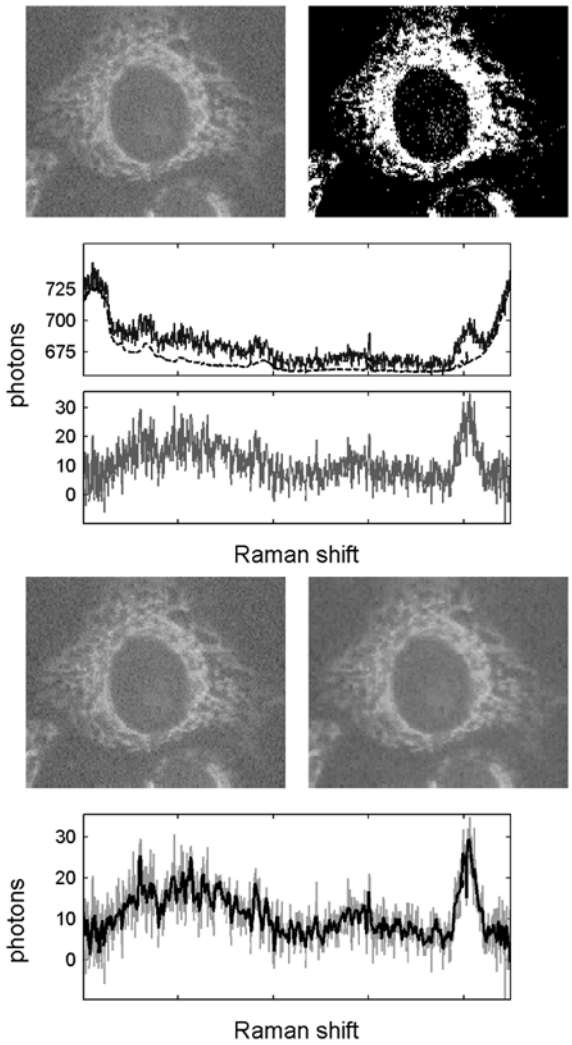


図 3 HeLa 細胞の Raman 顕微鏡画像の解析結果。図 3a は 750 cm^{-1} の Raman シフトにおいて取得された生画像のフレームである。背景検出手法の適用後に背景として特定されたピクセルが図 3b に黒で示されており、シグナルを含むピクセルが白で示されている。図 3c の上段はその画像から得られた代表的な Raman スペクトル（点線）と推定される背景スペクトル（黒線）である。図 3c の下段は、背景補正スペクトルである。図 3d は図 a のフレームの背景を補正したもので、図 3e は検出雑音の寄与が減少するウェーブレット雑音除去後のフレームを示している。図 3f は、図 3c の下段に示された背景を補正したスペクトルの上に雑音を除去したスペクトルをかぶせている。

図 3 は背景汚染や検出雑音の縮小のための効果的な背景および雑音除去手法、HeLa 細胞の Raman 顕微鏡画像の解析結果例を示している。今後、情報理論的手法を用い細胞成分の特定に焦点を当てていく予定である。

(4) 蛍光画像からの局所的な微小管配向構造の抽出

細胞レベルではサイズの多様性や成長の不均一性がありながら植物はどのように大域的で再生的な器官（葉や花びら）を形成しうるのか、という問題が近年の植物発生学で注目されている中で、ライブイメージング技術や細胞の3次元可視化ソフトウェアの開発により細胞レベルの表面幾何の観測と同時に分子レベルの微小管や細胞膜の蛍光データを観測できるようになってきている。本研究では、分子レベルのダイナミクスが細胞レベルの特性（サイズ、成長率）にどのように影響を与えているのかを明らかにするために、微小管蛍光画像から従来定量することができなかった細胞内レベルでの局所的微小管配向の抽出方法を検討した。

画像から配向構造を抽出する先行研究の中で、画像の蛍光強度自身ではなくその勾配を定量するという利点を持つネマティックテンソル解析に着目し､その一般化を試みた。解析のあらましは勾配ベクトルを画像のピクセル毎に計算し、その平均的な配向を平均化した勾配ベクトルテンソルの固有値、固有ベクトルから得るものであるが、従来手法では平均化の範囲が細胞単位であるため細胞内レベルでの抽出は困難であった。この困難を乗り越えるために、細胞内の局所的な円領域を考え、その中での勾配ベクトルの平均配向を計算するアルゴリズムを構築した。

局所的な平均配向は抽出の正確性を求める場合には考慮する円の半径（スケール）を固定し、抽出の局所性を失いたくない場合は円内の勾配ベクトルのサンプリング誤差

（エラー）を固定することで計算され、人工的に用意した配向画像で抽出の正確性を確認した。また、非正規化した勾配ベクトルを用いることで従来定量されていなかった異なる微小管配向の強さを区別することにも成功している。一方でこの手法をランダムに線分が配向した画像で検証した結果、この手法は配向の特異点（交差点、端点）や画像のぼかし具合に限界があることも指摘している。この手法はシロイヌナズナの複数の細胞種に適用可能であり、従来定量されてこなかった局所性（または正確性）を考慮に入れた微小管配向を抽出することができる（図 4)。

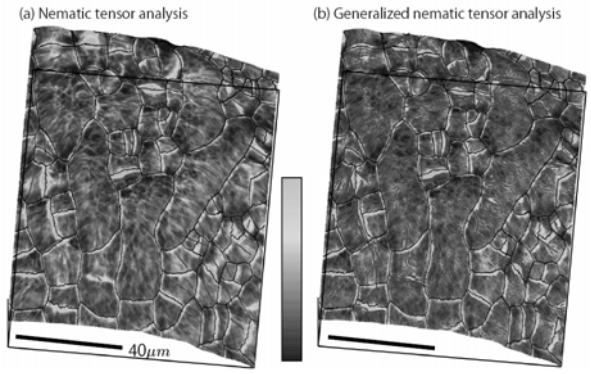


図 4. a）萼片細胞に対する従来のネマティックテンソル解析結果。b)同じ萼片細胞に対して今回開発した一般化されたネマティックテンソル解析結果。細胞内の詳細な微小管配向のメカニズムが浮き彫りになっていることが分かる。

(5) F1 分子モーターの温度依存性における非平衡効果

F1-ATPase とは、軸を回転させながら ATP の加水分解を司るモーター型タンパク質酵素である。力学-化学エネルギー間の変換効率が 100%近いと評価されていることで知られるこのタンパク質について、近年その反応機構が明らかにされてきている。

本年度、我々は、中間反応の反応速度定数の温度依存性に着目し、熱揺らぎの大きさが反応ダイナミクスにどう影響を及ぼすかについて調べた。また、研究にあたって、研究者の主観を極力排除したデータ駆動型アプローチを採用した。

F1 の回転運動は、回転軸 γ サブユニットに取り付けたビーズを通して光学顕微鏡により一分子レベルで観察することができ、その回転角度の時系列はステップ状であることが知られている。これは、特定の回転角度ごとに起きる中間反応の待ち時間によるもので、この待ち時間分布から各々の反応の反応速度定数を見積もることが出来る。

我々は、昨年度の報告で述べた変化点解析と情報理論に基づくクラスタリングを駆使し、客観性を重視しながらリン酸解離と加水分解の反応速度定数を計算した。更に、温度の異なるデータから得た速度定数の変化を説明するために、γ の回転運動をポテンシャル遷移モデルで記述しシミュレーションを行った。

Sumi-Marcus による二次元ポテンシャル面上の反応理論を基に考えると、2 つの時間スケールが重要になる。一つ目は酵素-基質結合部位が反応活性障壁を上回るエネルギーを獲得して反応を起こすまでの時間スケール、もう一つは γ サブユニットの回転がポテンシャル内で局所平衡に達するまでの時間スケールである。両時間スケールとも、別々に温度変化の影響を受ける。

先行研究(Watanabe et al., 2013)において、γ の回転角度が局所平衡分布に達する前に中間反応が進行することが明らかになっていた。本研究では、反応時間スケールが γ 回転角度の緩和時間スケールを上回る早さで短くなっていくことにより、この非平衡効果が温度上昇に伴い増大していくことがわかった。これにより、反応速度定数の温度依存性が Arrhenius 則から外れる可能性も示唆されている。

(6) リーダー・フォロアー細胞の細胞間コミュニケーション・細胞個性の動態解析

細胞の集団運動は創傷治癒、胚形成、癌転移に至るまで種々の現象において重要な役割を果たしている。先行研究のそれらを模したガラス器内の実験で、細胞集団の中でリーダー細胞と呼ばれる細胞が細胞塊の境界上に出現し、それに追随するフォロワー細胞と呼ばれる細胞を引き連れ、その細胞塊の突起の伸張を指揮している（ような）現象が観測されている。また、細胞分裂を阻害することで細胞の多核化を引き起こすと、その多核化舌細胞のうち6割がリーダー細胞とみられる挙動を示した、という報告があり、多核化がリーダー細胞生起に関わっていることが示唆されているが、他のリーダー細胞が生起する機構はあるのか、あるいは、リーダー細胞がどのように細胞の集団運動を指揮しているのか、ということは明らかになっていない。また、細胞塊が培養されている培地の硬さによっても、細胞の集団挙動が変化することが先行研究により明らかにされているが、その機構も明らかにされていない。

その集団運動のモデルとして、生命科学院生命融合科学コースの芳賀永教授らの研究室で観察されているイヌ肝臓尿細管上皮細胞由来の細胞上皮層の集団運動の回折顕微画像、位相差顕微画像、および、細胞核を蛍光染色した画像観測データを用い、これらの細胞個性の機構解明に向けた定量化に着手した。

その結果、蛍光染色された核は画像処理により比較的容易にその動きを追跡することが可能であるが、すべての核が蛍光蛋白を発現するわけではなく、また、長時間の観測に際して蛍光が退色してしまうため、その系統的な解析が難しいことが判明した。さらに、特に柔らかい培地に対してはCCDカメラの焦点深度を調節することが難しい、ということも以上のような画像解析の問題点であった。現在、観測が容易であり、退色、焦点深度等の問題がない位相差顕微画像からPIV (Particle Image Velocimetry)法を用いて、細胞動態の速度場を抽出する方法を開発している。

(7) 為替時系列のためのマルチスケールトレンド解析

経済システムの時系列解析は金融市場のダイナミクスを理解するうえで必要不可欠である。しかしながら、例えば株式市場、国債、為替レート等といった経済システムの時間発展が、その極めて複雑な特性のために確率的で、目まぐるしく変化し、理解が困難になっている。経済システムのダイナミクスを説明するために数々の説が打ち出されてきたが、その多くは事前に仮定したモデルを必要とするモデル駆動型アプローチである。この研究では、データ駆動型のアプローチを用いることによって、金融時系列から直接動的パターンを抽出する。具体的には、異なる時間スケールでの線形傾向の集合を導き出すことのできるマルチスケールトレンド解析(MTA)を開発した。より微視的なスケールでは、時系列における微細なゆらぎを捕えるためにより多くの変化点が生じるべきである。この手法の有効性を確かめるために、フラクタルBrown運動におけるMTAをテストし、正確な自己相似性やマルチスケール特性を捕える能力を確認した。それから、MTAを米ドル対日本円の実際の為替時系列に応用した。この応用により、これまでのモデル駆動型アプローチでは見落とされてきた為替相場変動における僅かな非対称、特定の時間スケールで起こる強相関、為替レートの進展挙動全体を変え得る異常値の存在といった、変動統計における小さな例外やまれなケースを検出できる。

(8) 生体計測のための光子検出システムの開発とそれによるゆらぎ測定の研究

本年度は、昨年度試作した多点光子計測システムを用いて、組織の蛍光イメージングに用いる近赤外蛍光プローブの評価および、組織レベルでの単一分子計測を目指して、血液中に含まれる近赤外蛍光プローブの分析を行った。

光強度のゆらぎを用いた計測の中で、蛍光揺らぎ計測は、蛍光相関分光法などとして近年細胞レベルの研究に用いられ、単一分子レベルでの分子間相互作用などの解析に有用である。多くの研究は、可視波長域でのものが多いが、今回はより生体組織の透過性が高くかつバックグラウンドが少ない、近赤外波長域、に注目した。それにより組織レベルで、単一分子レベル分析技術の確立を目指した。

最初に、in vivo蛍光イメージングのファントムなどに良く用いる脂質粒子(イントラリピッド)と蛍光色素であるインドシアニングリーン(ICG)複合体をこのシステムで評価した。図5にICGとイントラリピッドの濃度比を変えながら蛍光強度の自己相関関数と蛍光寿命計測の同時測定の結果を示した。蛍光相関関数からは、イントラリピッド濃度を変えることによりイントラリピッドICG複合体の数が増加することが示された。またこの時、挿入図のように相関関数の振幅を規格化し減衰時間を調べたところ、ほぼ変化がないことがわかった。すなわち複合体の大きさは一定であることが示された。一方、蛍光寿命測定から、イントラリピッド濃度によらず、同じ蛍光減衰特性を示すことがわかった。このことから、複合体の中でのICGの状態はイントラリピッド濃度に依存していないことがわかる。蛍光プローブの評価に本実験系は有用であると結論された。

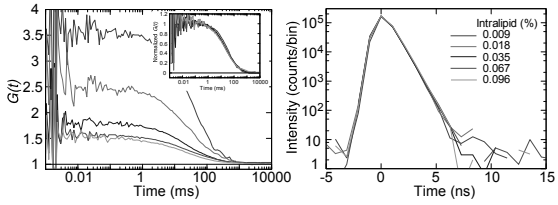


図5　ICGイントラリピッド複合体の蛍光自己相関関数と蛍光

さらに、血液中に存在するICGなどの蛍光分子をそのままあるいは、できるだけ簡便な前処理で高感度に計測する手法となるかを調べた。ラット尾静脈にICGを注射し、その血液を本装置で分析した。全血を前処理なく計測した場合、ICG由来の信号が得られなかった。これは、赤血球からの強い散乱が問題であると結論された。一方、全血を100倍程度希釈することにより、ICGと血中成分との複合体の動きを計測することができた。この結果、血中の蛍光分子を分析する手法としても有用であることがわかった。

これらの結果をもとに、生きたままの組織に含まれる蛍光分子分析へと応用する予定である。またin vivo蛍光イメージングプローブのスクリーニングへも応用する。

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、シグナル伝達、エネルギー伝達、DNA複製などの細胞機能において重要な役割を果たす分子機械は、熱揺らぎに晒されながら、入力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から成り、平均熱エネルギー(～kBT)よりもさほど大きくない入力に対し、その機能を効率的かつ選択的に発現する。しかしながら、その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、引き続き、一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ッ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き、一分子基礎学の創出を目指していく予定である。

一方、近赤外波長域を用いた生体組織レベルでの定量的計測法の確立を目指し、それを用いた生物システムの階層をまたいだ計測とその医学生物学応用を進めていく予定である。またそれにとどまらず幅広い応用も進めて行く。

4．資料

4.1 学術論文等

1） N. J. Taylor, C.B.-Li, D. Cooper, L. F. C and T. Komatsuzaki : “Error-based Extraction of States and Energy Landscapes from Experimental Single-Molecule Time-Series”, Scientific Reports, 5 : 9174-1-9174-9 (2015)

2） 小松崎 民樹 : 「トップダウンとボトムアップの橋渡し」、生体の科学、65(5) : 444-445 (2014)

3） H. Yaginuma, S. Kawai, K. V. Tabata, K. Tomiyama, A. Kakizuka, T. Komatsuzaki, H. Noji and H. Imamura : “Diversity in ATP concentrations in a single bacterial cell population revealed by quantitative single-cell imaging”, Scientific Reports, 4(6522) : 1-7 (2014)

4） H. Teramoto, M. Toda and T. Komatsuzaki : “A New Method to Improve Validity Range of Lie Canonical Perturbation Theory: With a Central Focus on a Concept of Non Blow-Up Region”, Theoretical Chemistry Accounts, 133 : 1571- (2014)

5） P. Nag, H. Teramoto, C.-B. Li, T. Z. Joseph, S. F. Norbert and T. Komatsuzaki : “Local-heterogeneous responses and transient dynamics of cage breaking and formation in colloidal fluids”, The Journal of Chemical Physics, 141 : 104907-1-104907-12 (2014)

6） B. Shuang, D. Cooper, J. N. Taylor, L. Kisley, J. Chen, W. Wang, C.-B. Li, T. Komatsuzaki, and C. F. Landes : “Fast Step Transition and State Identification (STaSI) for Discrete Single-Molecule Data Analysis”, The Journal of Physical Chemistry Letters, 5 : 3157-3161 (2014)

7） Y.Tsukazaki, M.Morimatsu, G.Nishimura, T.Sakata, H.Yasuda, A.Komatsuzaki, T.M.Watanabe, T.Jin:” Synthesis and optical properties of emission-tunable PbS/CdS core-shell quantum dots for in vivo fluorescence imaging in the second near-infrared window”, RSC Advances, 4: 41164-41171 (2014).

4.2 総説・解説・評論等

1） C. Li and T. Komatsuzaki : “Handling Noisy Data from Single Molecule Experiments”, SEIBUTSU BUTSURI, 54(5) : 257-258 (2014)

4. 3 国際会議議事録等に掲載された論文

1） H. Teramoto, M. Toda and T. Komatsuzaki : “A coarse graining method to extract cooperative modes of water molecules”, Special issue of Advances in Science, Technology and Environmentology (Waseda) (2015)

2） C.-B. Li: “Challenges in Constructing State-Space Network Models for Complex Systems at the Single Molecule Level”, Special issue of Advances in Science, Tech-nology and Environmentology (Waseda) (2015)

3） Y. Tamiya, S. Shinkai, and Y. Aizawa: “Log-Weibull Law in Fermi-Pasta-Ulam Oscillator Chain : Induction Time as Nekhoroshev Stability Time”, Special issue of Advances in Science, Tech-nology and Environmentology (Waseda) (2015)

4.4 講演

a．招待講演

ⅰ）学会

1） T. Komatsuzaki* : “Hierarchical structure of no-return transition states”, Spectroscopy and Dynamics of Molecules and Clusters 2015, The Naini Retreat, India (2015-02)

2） 小松崎 民樹* : 「少数性の生物学において顕在化する分子個性」、日本物理学会2014年秋季大会、中部大学春日井キャンパス (2014-09)

3） 小松崎 民樹* : 「分子個性と少数性」、第52回日本生物物理学会年会、札幌コンベンションセンター (2014-09)

4） H. Teramoto* : “Reaction Coordinate Switching Mechanism, on the Possibility of Its Experimental Verification and Its Quantum Manifestation”, The 10th AIMS Conference on Dynamical Systems, Differential Equations and Applications, Universidad Autónoma de Madrid, Spain (2014-07)

5） T. Komatsuzaki* : “Chance and Necessity in Reactions Under Chaos and Stochastic Fluctuation”, The 10th AIMS Conference on Dynamical Systems, Differential Equations and Applications, Universidad Autónoma de Madrid, Spain (2014-07)

6） T. Komatsuzaki* : “Energy Landscapes Constructed From Single-molecule Time Series And Reaction Networks”, Macromolecular dynamics: structure, function and diseases, Kavli Institute for Theoretical Physics China, China (2014-06 ～ 2014-07)

7） 西村 吾朗:「ヒト組織深部のイメージングを可能とする定量的蛍光分子イメージング基盤技術の確立」生体医工学会シンポジウム、仙台国際センター、仙台市、宮城県 (2014.06)

ⅱ）研究会・シンポジウム・ワークショップ

1） T. Komatsuzaki* : “Energy landscapes derived from single molecule spectroscopy and complex networks”, Architecture, dynamics, and functionality of molecular

biosystems, The Institute for Molecular Science (2015-03)

２） H. Teramoto*, M. Toda and T. Komatsuzaki : “Understandings of Chemical Reaction Dynamics in terms of Dynamical System Theory”, Computational Chemistry (CC) Symposium in ICCMSE, Metropolitan Hotel, Greece (2015-03)

３） T. Komatsuzaki* : “A kinetic disconnectivity graph to decode timescale hierarchy buried in reaction networks”, XIXth International Workshop on Quantum Systems in Chemistry, Physics and Biology, Fullon Hotel Tamsui Fishermen’s Wharf, Taiwan (2014-11)

４） T. Komatsuzaki* : “Chemical Reaction Dynamics and Chaos”, New Challenges in Complex Systems Science, Nishiwaseda Campus, Waseda University (2014-10)

５） C. Li* : “Challenges in Understanding Complex Systems at the Single Molecule Level”, New Challenges in Complex Systems Science, Nishiwaseda Campus, Waseda University (2014-10)

６） 小松崎 民樹* : 「熱揺らぎに埋もれた力学的な反応経路」、研究会「理論と実験」2014、広島大学理学部 (2014-10)

７） T. Komatsuzaki* : “A Dynamical Switching of Reactive Mode ⇔ Nonreactive Mode at High Energies for a Hydrogen Atom in Crossed Electric and Magnetic Fields”, 11th Asian International Seminar on Atomic and Molecular Physics, Katahira Campus, Tohoku University (2014-10)

８） H. Teramoto* : “Extracting coherent molecular vibrational modes by nonlinear time series analysis”, Workshop on Theory and Applications of Random/Non-autonomous Dynamical Systems, Dynamical Systems Group, Department of Mathematics, Imperial College London, UK (2014-09)

９） T. Komatsuzaki* : “Energy landscapes learned from time series and networks”, Energy Landscapes : From Single Molecules to Soft Matter, Durham University, UK (2014-08)

１０） 寺本 央* : 「リー正準変換摂動理論のnon blow-up領域と有効領域の解析」、RIMS 研究集会 力学系：理論と応用の相互作用、京都大学数理解析研究所 (2014-06)

１１） H. Teramoto*, M. Toda and T. Komatsuzaki : “Extracting Cooperative modes between a biological molecule and water molecules”, International Workshop ″Over the Barriers of Transition Paths: Dynamical Processes in Proteins and Complex Molecular Systems″, Tokyo Institute of Technology (2014-06)

１２） 西村 吾朗* :「光のゆらぎ計測とその応用」第９回レーザー学会「レーザーバイオ医療」技術専門委員会、北海道大学学術交流会館、札幌市、北海道 (2014-06)

１３） T. Komatsuzaki* : “Energy Landscapes Constructed From Single-Molecule Time Series and Reaction Networks”, The 2014 Les Houches – TSRC Protein Dynamics Workshop , Ecole de Physique des Houches, France (2014-05)

ⅲ）コロキウム・セミナー等・その他

１） 西村　吾朗:”Light diffusion in biological tissue and its inverse problem – diffuse optical tomography (DOT)”, Workshop on Dynamical Systems and Computation, Hokkaido University, Sapporo, (2015.03)

２） C. Li* : “Single Molecule Time Series Analysis of F1-ATPase to Unravel the Role of ATP Hydrolysis and Thermal Fluctuations”, Seminar at Max Planck Institute of Colloids and Interfaces, Max Planck Institute of Colloids and Interfaces, Germany (2015-01)

３） 永幡 裕*、寺本 央、堀山 貴史、李 振風、小松崎 民樹 :「Markov連鎖の持つ時間階層構造について:複雑分子系の異性化反応ネットワークを例に」、非平衡ダイナミクスセミナー、奈良女子大学 (2015-01)

４） 西村 吾朗: 「生体組織での蛍光イメージングの現状と諸問題」、日本光学会冬期講習会、東京大学山上会館、文京区、東京都 (2015-01)

５） T. Komatsuzaki* : “Theories Should Meet Experiments: What Can We Extract From Time Series Data?”, CSRC Seminar, Beijing Computational Science Research Center (CSRC), China (2014-06)

６） 永幡 裕*、小松崎 民樹 :「Markov連鎖が持つ時間階層構造抽出に向けて- 階層間をつなぐ理論の構築と、複雑な反応系の解析に向けて -」、JST ERATO湊離散構造処理系プロジェクトセミナー、北海道大学工学部 (2014-04)

ｂ．一般講演

ⅰ）学会

１） B. Shuang*, D. Cooper, N. J. Taylor, L. Kisley, J. Chen, W. Wang, C. Li, T. Komatsuzaki and F. C. Landes : “Fast Step Transition and State Identification (STaSI) for Discrete Single-Molecule Data Analysis”, 2015 Oil & Gas High Performance Computing Workshop, BioScience Research Collaborative (BRC) Building, Rice University, USA (2015-03)

２） B. Shuang*, D. Cooper, N. J. Taylor, L. Kisley, J. Chen, W. Wang, C. Li, T. Komatsuzaki and C. Landes : “Fast Step Transition and State Identification (STaSI) for Discrete Single-Molecule Data Analysis”, The 2015 Quantitative BioImaging Conference, Institut Pasteur, France (2015-01)

３） 古川　大介、西村　吾朗(北海道大学)、「反射型時間

分解計測による3次元拡散光トモグラフィーの逆解析法の検討」日本機械学会第27回バイオエンジニアリング講演会、朱鷺メッセ、新潟市、新潟県(2015.1.9-10)

4） T. Komatsuzaki*：“Error-based Extraction of Effective Free Energy Landscapes from Experimental Single-Molecule Time-Series”, The 8th biennial workshop on Single Molecule Biophysics (SMB), The Aspen Center for Physics, USA (2015-01)

5） 古川　大介、西村　吾朗:「時間分解計測による３次元拡散トモグラフィーの反射型への検討」日本光学会年次学術講演会(OPJ2014)、筑波大学東京文京校舎、文京区、東京都(2014.11)

6） 西村　吾朗:「FPGAを用いた光子計数システムによる光子相関測定」日本光学会年次学術講演会(OPJ2014)、筑波大学東京文京校舎、文京区、東京都(2014.11)

7） Akira Makino, Ayaka Tomoike, Hiroyuki Kimura, Masahiro Ono, Goro Nishimura Yasushi Kiyono, Hideo Saji: “Polymeric micelle type dual imaging probe for PET and optical imaging techniques”, 7-th annual meeting of the World Molecular Imaging Congress (WMIC2014), COEX Convention & Exhibition Center, Seoul, South Korea (2014.09).

8） 西村　吾朗：「A photon-timing recorder in a nano-second resolution and its application for near-infrared fluorescence fluctuation measurements」第52回日本生物物理学会年会、札幌コンベンションセンター、札幌市、北海道(2014.09)

9） 永幡 裕*、前田 理、寺本 央、李 振風、堀山 貴史、武次 徹也、小松崎 民樹：「複雑分子系の異性化反応ネットワークに埋め込まれた時間階層構造の抽出」、第52回日本生物物理学会年会、札幌コンベンションセンター (2014-09)

１０） P. Nag*, H. Teramoto, C. Li and T. Komatsuzaki：“Dynamical heterogeneity and dynamics of cage breaking and formation in colloidal fluids”, 第52回日本生物物理学会年会, 札幌コンベンションセンター (2014-09)

１１） 永幡 裕*、前田 理、寺本 央、李 振風、堀山 貴史、武次 徹也、小松崎 民樹：「複雑分子系の異性化反応ネットワークに埋め込まれた時間階層構造の抽出」、第8回分子科学討論会、広島大学東広島キャンパス (2014-09)

１２） 寺本 央*、戸田 幹人、小松崎 民樹：「正準変換摂動理論の有効領域の拡張法とそれによる振動子間の非線系共鳴によるエネルギー移動の解明」、日本物理学会2014年秋季大会、中部大学春日井キャンパス (2014-09)

１３） Daisuke Furukawa, Kamlesh Awasthi, Goro Nishimura: “The effect of data at a detection limit on 3D time domain diffuse optical tomography”, Biomedical Imaging and Sensing Conference 2014 (BISC’14), Pacifico Yokohama, 横浜、神奈川県(2014.04)

１４） Goro Nishimura, Kamlesh Awasthi, Daisuke Furukawa: “Fluorescence Decay Measurements in Tissue-like Scattering Medium”, OSA Biomedical Optics Topical Meeting, Miami Hilton Downtown, Miami, Florida, USA (2014.04)

ii）研究会・シンポジウム・ワークショップ

1） H. Teramoto*：“Understandings of Chemical Reaction Dynamics in terms of Dynamical System Theory”, Workshop on dynamical systems and computation 2015, Hokkaido University (2015-03)

2） 柳沼 秀幸*、河合 信之輔、田端 和仁、冨山 佳祐、垣塚 彰、小松崎 民樹、岡田 康志、野地 博行、今村 博臣：「単一バクテリア細胞内ATP濃度の多様性」、生命動態の分子メカニズムと数理 生命動態システム科学四拠点・CREST・PRESTO合同シンポジウム、京都大学 芝蘭会館 (2015-03)

3） Y. Nagahata*, H. Teramoto, T. Horiyama, C. Li and T. Komatsuzaki：“Timescale hierarchies of complex reaction network”, Workshop on dynamical systems and computation 2015, Hokkaido University (2015-03)

4） S. Tsugawa* and T. Komatsuzaki：“An Extraction Method of Alignment Structure from Raw Microscopy data”, Workshop on dynamical systems and computation 2015, Hokkaido University (2015-03)

5） C. Li*：“Single Molecule Time Series Analysis of F1-ATPase to Unravel the Role of ATP Hydrolysis and Thermal Fluctuations”, 新学術領域研究「少数性生物学」第8回領域会議, ルスツリゾート (2015-01)

6） H. Teramoto* and T. Komatsuzaki：“Survey and study on effects of discreteness and fewness in chemical reaction dynamics”, 新学術領域研究「少数性生物学」第8回領域会議, ルスツリゾート (2015-01)

7） N. J. Taylor*, C. Li and T. Komatsuzaki：“Data Scientific Approaches to the Quantification and Interpretation of Raman Microscopic Images of Living Cells”, 新学術領域研究「少数性生物学」第8回領域会議, ルスツリゾート (2015-01)

8） Y. Nagahata*, H. Teramoto, C. Li and T. Komatsuzaki：“Developing “hierarchical” spectral clustering decoded by the mathematical nature of a Markov chain: -timescale hierarchical nature of isomerization reaction network of C5H8O -”, 河原林/湊プロジェクト合同WS予餞会Winter2015, 日本科学未来館 (2015-01)

9） 寺本 央*、戸田 幹人、小松崎 民樹：「力学系理論による化学反応動力学の解明」、電子科学研究所・研究交流会、北海道大学電子科学研究 (2015-01)

１０） 小松崎 民樹*：「ボトムアップとトップダウンの橋渡し:少数性生物学における分子個性」、第3回少数性生物学討論会、大阪大学 産業科学研究所 (2014-12)

１１） P. Nag*, H. Teramoto, C. Li, J. Z. Terdik, N. F. Scherer and T. Komatsuzaki : “Local-heterogeneous responses and transient dynamics in colloidal fluids”, The 15th Ries-Hokudai International Symposium 響 [hibiki], CHATERAISE Gateaux Kingdom SAPPORO (2014-12)

１２） Y. Nagahata*, S. Maeda, H. Teramoto, C. Li, T. Horiyama, T. Taketsugu and T. Komatsuzaki : “An extraction of embedded timescale hierarchies buried in complex reaction network”, The 15th Ries-Hokudai International Symposium 響 [hibiki], CHATERAISE Gateaux Kingdom SAPPORO (2014-12)

１３） Y. Tamiya*, C. Li, R. Watanabe, H. Noji and T. Komatsuzaki : “Temperature Dependence of Molecular Motor”, The 15th Ries-Hokudai International Symposium 響 [hibiki], CHATERAISE Gateaux Kingdom SAPPORO (2014-12)

１４） N. J. Taylor*, C. Li, D. R. Cooper, C. F. Landes and T. Komatsuzaki : “Error-based Extraction of Effective Free Energy Landscapes from Experimental Single-Molecule Time-Series”, The 15th Ries-Hokudai International Symposium 響 [hibiki], CHATERAISE Gateaux Kingdom SAPPORO (2014-12)

１５） T. Satoru*, C. Li and T. Komatsuzaki : “An extraction method of local microtubule alignments in Arabidopsis sepal ”, The 15th Ries-Hokudai International Symposium 響 [hibiki], CHATERAISE Gateaux Kingdom SAPPORO (2014-12)

１６） T. Komatsuzaki* : “Dynamic Disorder in Single Enzyme Experiments: Facts and Artifacts”, 附置研究所間アライアンスによるナノとマクロをつなぐ物質・デバイス・システム創製戦略プロジェクト（ナノマクロ物質・デバイス・システム創製アライアンス），医療材料・デバイス・システムグループ G3 分科会, G3 Meeting, 九州大学西新プラザ (2014-11)

１７） Y. Tamiya*, C. Li, R. Watanabe, H. Noji and T. Komatsuzaki : “Data Driven Approach to Dynamics of Protein Motor”, New Challenges in Complex Systems Science, Nishiwaseda Campus, Waseda University (2014-10)

１８） S. Tsugawa* and T. Komatsuzaki : “Toward extraction of global coordination despite local variability in plant development”, New Challenges in Complex Systems Science, Nishiwaseda Campus, Waseda University (2014-10)

１９） 小松崎 民樹*：「ボトムアップとトップダウンの橋渡し：少数性生物学における分子個性」、第2回少数性生物学討論会、積丹なごみの宿「いい田」(2014-10)

２０） 永幡 裕*、前田 理、寺本 央、李 振風、堀山 貴史、武次 徹也、小松崎 民樹：「複雑分子系の構造異性化反応ネットワークに埋め込まれた時間階層構造の抽出」、研究会「理論と実験」2014、広島大学理学部 (2014-10)

２１） 永幡 裕*、前田 理、寺本 央、李 振風、堀山 貴史、武次 徹也、小松崎 民樹：「複雑分子系に埋め込まれた時間階層構造が映す化学分野の“非常識”」、ERATO湊離散構造処理系プロジェクト 「2014年度秋のワークショップ」、ピスカ21(北海道礼文島) (2014-09)

２２） 田宮 裕治*、李 振風、渡邉 力也、野地 博行、小松崎 民樹：「F1 分子モーターにおける温度依存性の高い反応段階について」、北大理論化学合同Workshop、北海道大学創成科学研究棟 (2014-09)

２３） 寺本 央*、戸田 幹人、小松崎 民樹：「非線形時系列解析による分子の振動エネル ギー移動の解析」、北大理論化学合同Workshop、北海道大学創成科学研究棟 (2014-09)

２４） H. Teramoto* : “Extracting molecular coherent vibrational modes by nonlinear time series analysis”, Workshop ″What kinds of dynamical feature can we extract from data?″, Niseko town center (2014-08)

２５） N. J. Taylor* and T. Komatsuzaki : “Extracting Free Energy Landscapes from Noisy Single-Molecule”, Workshop ″What kinds of dynamical feature can we extract from data?″, Niseko town center (2014-08)

２６） S. Tsugawa* and T. Komatsuzaki : “Toward extraction of mechanical properties in plant cell growth”, Workshop ″What kinds of dynamical feature can we extract from data?″, Niseko town center (2014-08)

２７） 永幡 裕*、小松崎 民樹：「複雑分子系における構造異性化反応ネットワークの理解に向けて」、第54回 分子科学若手の会 夏の学校、いこいの村能登半島 (2014-08)

２８） 田宮 裕治*、李 振風、渡邉 力也、野地 博行、小松崎 民樹：「数学の力で読み解く一分子時系列～F1分子モーターを題材として～」、第54回 生物物理若手の会 夏の学校、ホテルたつき(愛知県蒲郡市) (2014-08)

２９） N. J. Taylor* and T. Komatsuzaki : “Error-based Extraction of Effective Free Energy Landscapes from Experimental Single-Molecule Time-Series”, Macromolecular dynamics: structure, function and diseases, Kavli Institute for Theoretical Physics China, China (2014-07)

３０） N. J. Taylor* and T. Komatsuzaki : “Error-based Ex-

traction of Effective Free Energy Landscapes from Experimental Single-Molecule Time-Series", ICBP 8th IUPAP international conference on biological physics, Kavli Institute for Theoretical Physics China, China (2014-06)

３１） C. Li* : "Error-based Extraction of Effective Free Energy Landscapes from Single Molecule Time-Series", 新学術領域「少数性生物学」第7回領域会議, 琵琶湖クラブ (2014-06)

３２） 寺本 央*、戸田 幹人、小松崎 民樹 :「生体分子と水の過渡的な集団運動の抽出」、第17回理論化学討論会、名古屋大学（東山キャンパス）ES総合館 (2014-05)

３３） 永幡 裕*、前田 理、寺本 央、李 振風、堀山 貴史、武次 徹也、小松崎 民樹 :「複雑分子系における構造異性化反応ネットワークの理解に向けて」、第17回理論化学討論会、名古屋大学（東山キャンパス）ES総合館 (2014-05)

３４） 永幡 裕*、寺本 央、李 振風、小松崎 民樹 :「タンパク質の時系列から得られたMarkov連鎖の解析に向けて : 具体的な反応ネットワークの解析結果とその数値的な振る舞い」、ERATO湊離散構造処理系プロジェクト 「2014年度 春のワークショップ」、北海道大学工学部 (2014-04)

３５） 永幡 裕*、小松崎 民樹 :「タンパク質の時系列から得られたMarkov連鎖の解析に向けて : グラフの分割とクラスタリングで定義する複雑な化学反応における状態とその時間階層構造」、理研シンポジウム : 細胞システムの動態と論理VI、理化学研究所和光本所 (2014-04)

３６） 永幡 裕*、小松崎 民樹 :「タンパク質の時系列から得られたMarkov連鎖の解析に向けて : グラフの分割とクラスタリングで定義する複雑な化学反応における状態とその時間階層構造」、理研シンポジウム : 細胞システムの動態と論理VI、理化学研究所和光本所 (2014-04)

３７） 小松崎 民樹* :「ノイジーなFRETデータから多重経路を考慮に入れた自由エネルギー地形を抽出する」、理研シンポジウム : 細胞システムの動態と論理VI、理化学研究所和光本所 (2014-04)

4.5 シンポジウムの開催

１） H. Teramoto : "Workshop on dynamical systems and computation 2015", the 3rd building of Faculty of Science, Hokkaido University (Sapporo) (2015 年 03 月 03 日)

２） K. Ishimori, Y. Hasegawa, T. Satoh, T. Masuda, M. Kato, H. Oikawa, S. Taguchi, T. Komatsuzaki and I. Ogino : "The 2nd International Symposium on Ambitious Leader's Program for Fostering Future Leaders to Open New Frontiers in Materials Science ″Ambition Across the Disciplines″", Akira Suzuki Hall, Frontier Research in Applied Sciences Building, Hokkaido University (Sapporo) (2014 年 12 月 10 日)

３） H. Teramoto : "Workshop ″What kinds of dynamical feature can we extract from data?″", Niseko town center (Niseko) (2014 年 08 月 27 日)

4.6 共同研究

ａ. 海外機関との共同研究

１） 小松崎 民樹、ミュンスター大、プリンストン大との国際共同研究 :「Dynamical coordination in a multi-domain, peptide antibiotic mega-synthetase」、2010～2014年度、国際ヒューマン・フロンティア・サイエンス・プログラム、H. Mootz(ミュンスター大)、H. Yang(プリンストン大)とマルチドメインをもつペプチド抗生巨大合成酵素における動的協調現象に関する共同研究

２） 李 振風、小松崎 民樹(北海道大学)、Arezki Boudaoud（リヨン高等師範学校)、Adrienne Roeder（コーネル大)、Richard S. Smith（コンスタンツ大）との国際共同研究「From stochastic cell behavior to reproducible shapes: the coordination behind morphogenesis」、2013-2016年度　国際ヒューマン・フロンティア・サイエンス・プログラム

３） 小松崎 民樹、寺本 央(北海道大学)、チューリッヒ工科大学（George Haller）とのラグランジュ協同構造に関する数理研究

４） 小松崎 民樹、寺本 央、Preetom Nag(北海道大学)、シカゴ大学（Norbert Scherer)とのコロイド粒子の協同現象に関する理論と実験の国際共同研究

b. 受託研究

１） 西村 吾朗（独立行政法人科学技術振興機構) : 産学共創基礎基盤研究「ヒト組織深部のイメージングを可能とする定量的蛍光分子イメージング基盤技術の確立(代表)」、2011～2017年度、組織中蛍光物質について位置濃度の定量化手法の確立

4.6 予算獲得状況

ａ. 科学研究費補助金

１） 小松崎 民樹、新学術領域「少数性生物学」計画班分担,少数分子反応ネットワーク理論の構築－少数性と階層性の観点からのモデリング－2011～2015年度

２） 西村 吾朗、基盤研究(C)、生体組織病態検出のための散乱光ゆらぎイメージング技術の確立、2012～2014年度

３） 小松崎 民樹、基盤研究 B、階層性と頑健性をもつ生命動態システムの解析基盤構築、2013～2015年度

４） 小松崎 民樹、萌芽研究、分子個性を彫り出すシステム生物学の探求、2013～2015年度

b. 奨学寄附金

1） T. Komatsuzaki（国際ヒューマン・フロンティア・サイエンス・プログラム推進機構）:“Dynamical coordination in a multi-domain, peptide antibiotic mega-synthetase”, 2010～2014年度, 日本語題目:マルチドメインをもつペプチド抗生巨大合成酵素における動的協調現象。H. Mootz（ミュンスター大)、H. Yang (プリンストン大)との共同研究

2） C.B. Li（国際ヒューマン・フロンティア・サイエンス・プログラム推進機構）:“From stochastic cell behavior to reproducible shapes: the coordination behind morphogenesis”, 2013～2016年度, A. Boudaoud（リヨン高等師範学校), A. Roeber（コーネル大）, R. Smith（コンスタンツ大）との共同研究

4.7 社会教育活動

a. 国内外の学会の役職

1） 小松崎 民樹：生物物理学会刊行「BIOPHYSICS」編集委員（H25年1月～現在）

2） 小松崎 民樹:生物物理学会平成26･27年度代議員(H26年1月～現在)

3） 小松崎 民樹：日本化学会北海道支部支部役員（幹事）(H26年3月～現在)

4） 小松崎 民樹：(財）新世代研究所「バイオ単分子研究会（佐々木裕次<東京大学大学院新領域物質系教授>委員長)」研究会委員（H21年4月～H25年3月）

5） 寺本 央：生物物理学会 北海道地区委員（2012年4月1日～現在）

6） 西村 吾朗：日本応用物理学会分科会日本光学会北海道地区幹事(2013.4.1～2014.12.31)

b. 併任・兼業

1） 西村　吾朗：理化学研究所 客員研究員（2014年5月1日～現在）

2） 小松崎　民樹：北海道大学数学連携センター 兼任教授　(2009年11月1日～2015年3月31日）

3） 李 振風：北海道大学数学連携センター 兼任准教授（2009年11月1日～2015年3月31日）

c. 受賞

1） 永幡 裕: 第15回電子研国際シンポジウム「ポスター賞」 2014年12月

d. 外国人研究者の招聘（氏名、国名、期間）

1） Peilin Chen、Taiwan、(2015年02月2日～2015年02月3日）

2） Bi-Chang Chen、Taiwan、(2015年02月2日～2015年02月3日）

3） Arezki Boudaud、France、(2015年01月26日）

4） Laurent Wiesenfeld、France、(2014年10月12日～2014年10月17日）

e. 北大での担当授業科目

1） 全学共通、フレッシュマンセミナー(分担)、西村　吾朗、2014年4月1日～2014年7月31日

2） 生命科学院、生命情報分子科学特論［Bioinformation and Molecular Sciences](１分子システム生物学［Single Molecule Systems Biology］)、小松崎 民樹、2014年04月01日～2014年09月30日

3） 全学共通、生命融合科学概論［Transdisciplinary Life Sciences]、小松崎 民樹、2014年04月01日～2014年09月30日

4） 理学部、数理解析学続論［Advanced Mathematical Analysis]実際の複雑系のマルチスケール解析入門、李 振風、2014年04月01日～2014年09月30日

5） 理学院、数理解析学講義［Analytic Studies]（実際の複雑系のマルチスケール解析入門)、李 振風、2014年04月01日～2014年09月30日

6） 全学共通、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論Ⅰ[Introduction of Nanoscience and Nanotechnology Ⅰ]、李 振風、2014年04月01日～2014年09月30日

f. 北大以外での担当授業科目

1） 大阪大学産業科学研究所　少数性生物学トレーニングコース(2014)「1分子時系列データ解析（講義＋実習)」、小松崎 民樹、2014 年 07 月 29 日

g. ポスドク・客員研究員など

1） 博士研究員　James N. Taylor(2012.8～2014.9)
津川暁（2014.4～）
古川大介(2012.4～)

h. 修士学位及び博士学位の取得状況

修士学位：

1） 新沼　奏「マルチスケールトレンド解析を用いた為替変動時系列解析」

2） 津田吏紗「ノイズの多い離散レベル時系列における状態識別」

博士学位：

1） Preetom Nag「Local-heterogeneous responses and transient dynamics in colloidal fluids」

動的数理モデリング研究分野

教 授 長山雅晴(東大院、博士(数理科学)、2012.4～)
助 教 秋山正和(広大院、博士(理学)、2012.7～)
助 教 Elliott GINDER (金沢大院、博士(理学)、2012.10～)
技術補佐員 出羽真樹子 (2013.4～)
院生
博士課程 澤武裕輔、松下和樹、太田智史
修士課程 久保実沙貴、安芸勇人、南佳晃、平芳悠人
石橋宏朗、金子美奈、岡本守

１．研究目標

（１）生命現象の数理解析

氷などの結晶成長、液滴運動、生物の形作り、細胞運動、アメーバ細胞などのロコモーション様式、人間の脳の働きなど我々の身の回りには様々な現象が満ち溢れている。そして、どの現象にもそれらを引き起こすメカニズムが必ず存在している。我々はこのメカニズムの探究を目標としている。例えば、細胞内では非常に多くの物質が相互に複雑に絡み合い、自由度の大きい系(高次元系)を構成しており、発生現象等の複雑な生命現象を、高い自由度のまま理解することは不可能に近い。そこで、まずは自由度の小さいモデル系(toy モデル)を構成し、モデル系が現象を説明しているのかを考察するのである。トップダウン的なこの考え方は、うまく toy モデルを構成出来れば一見複雑に見える現象も見通しよく簡単に説明することができる。しかし、現象の細部には目をつぶらねばならない場合もある。そこで、toy モデルを構成し実際の現象を深く観察・実験し toy モデルに不足分を付け加えることで現象を説明する最小限のモデルを作ることを目指す。即ち、現象を再現するための数理モデル化ではなく、数理モデルを作りながら現象の本質となっている部分を抜き出すのである。このようなアプローチを通して我々は、生命現象に潜むメカニズムを解明していく。

（２）動く界面の数理解析

本年度の研究は数理科学の研究分野である「Threshold Dynamics」(TD)についての双曲型(慣性を含む)アルゴリズムを目指した。TDは偏微分方程式の性質により、指定された界面運動の近似解法として計算上で実現可にする手法であり、Multiphaseや位相的変化を取り扱えことにも有益であることがある。Bence、Merriman、Osherは最初のTDアルゴリズム(BMOと言い)を作成し、この研究により工学から医学まで諸分野で使われている「Level Set Method」を生み出した。しかしLevel Set 法は、与えられた速度で界面を発展させる方法であるため、界面の加速度は直接に指定することができない。従って、我々はBMOのベースに戻り、TDの 偏微分方程式を変えることにより界面の加速度を発展させるHBMO (hyperbolic BMO)を作成した。

２．研究成果

（１）表皮構造の数理解析

今年度は、真皮形状と表皮バリア機能の関係を調べるために健常者皮膚の断面から真皮形状を与えて、表皮バリア機能の恒常性維持を角層の安定性と角層にある細胞間脂質量の安定性から評価した。角層の安定性は角層の厚さの時間的な分散が小さいことから定義し、細胞間脂質の安定性は角層に含まれる細胞間脂質量の時間的変化の分散が小さいことから定義した。この定義に基づいて真皮形状とバリア機能の恒常性維持の関係を調べた。平坦な真皮形状の場合といくつかのパラメータ変更を行った結果。真皮形状に関係なく表皮バリア機能が維持されることがわかった(図1)

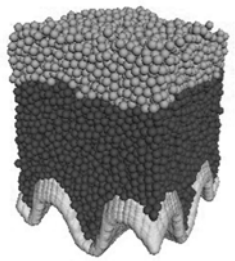


図１：表皮構造数理モデルの数値計算結果。角層の厚さがほぼ一定にたもたれている。

また、真皮形状に凹凸がある場合、凸凹がない場合ではバリア機能の恒常性維持が保てないほど細胞分裂の割合が少ないときでも、バリア機能恒常性が維持できることがわかった。この結果は、バリア機能の老化と真皮形状に何らかの関係があることを示唆しており、老化現象の理論的解明の可能性が出てきた。

（２）細胞極性の数理解析

秋田大学の山崎正和氏と共に、平面内細胞極性に関する数理解析を行っている。上皮組織内の細胞の多くは、細胞の頂部−基部軸と直交する組織平面の特定の軸に沿った極性を獲得する。これは平面内細胞極性(planar cell polarity、PCP)と呼ばれ、ほとんどの多細胞生物において見られる一般的な現象である。例えば、人の内耳にある有毛細胞はその細胞一つ一つに多数の毛があり、それらが平面上に規則正しく並ぶことで「音を聞く」という機能を生み出していることが知られている。他にも、魚類の鱗、哺乳動物の体毛、鳥類の羽などの細胞でも、細胞極性を持つことにより全体としてのマクロな形態形成がなされている。近年、PCP は分子生物学的な研究が進み、詳細な分子機構がわかりつつある一方、そのようなミクロな情報をいかに統合しマクロな現象である PCP を理解するかという大きな問題が残されている。

この問題に対して、本年度までに数理モデルの構築及びその数理解析を行ってきた。数理モデルは4変数及びそれを縮約した1変数モデルから成る。1変数モデルはモデル方程式が非

常に簡単であるため、数理的な解析の対象となり得る。解析の結果、1次元1変数モデルに関しては解を構成し、そしてその解の安定性を調べることができた（日本数学会にて発表）。2次元1変数モデルは本研究対象であるショウジョウバエ系と同一の次元であり、方程式系と実際の系との間に対応がつく。特に興味深いのは、2次元1変数モデルにおける渦巻き状の解が、実際の系でも観察され、そして安定に存在する点である。次年度は、2次元1変数モデルに対する解の構成とその数理的な解析を重点的に行う。

（３）液滴運動モデルの数理解析

化学反応を伴う液滴運動を記述する数理モデルを構築するための基盤として、体積保存性を持つフェーズフィールド方程式と線形反応拡散方程式の結合した2変数反応拡散系を構築し、数値計算によってこの系に現れるパターンダイナミクスについて計算機援用解析を行った。この系では、あるパラメータを変化させることで安定な定常スポット解から Drift 分岐によって不安定化し、この分岐点から並進運動する進行スポット解が分岐することが示唆された。同様の結果は 1994 年にある反応拡散系に現れることが知られていた。しかし我々の系においては、進行スポット解はパラメータをさらに変化させると、Hopf 分岐を起こすことがわかり、その Hopf 分岐点から振動進行スポットが出現することもわかった。また、この系では自励往復運動するスポット解も出現することが明らかになった。詳しく調べた結果、自励往復運動スポットは、振動進行スポットの振動がパラメータ変化によって次第に大きくなり、進行方向が反転する結果から出現することが明らかになった。また、非対称性が高い自励往復スポットも発見され、このほかにも公転運動も見られることから、この系には多彩なスポット運動解を持っていることが明らかになった。これらの解の出現機構を分岐現象として捕らえる第一歩として定常解の構造を調べた結果、安定な楕円形状定常解やピーナッツ形状定常解が存在することが明らかになった。

（４）動く界面の数理解析

昨年度の我々の研究では、従来の拡散方程式を使用するBMOに加え、波動方程式への変更より曲率に依存する法線加速度の界面運動を近似できた事が大きな一歩だった。しかし、この結果では時間が短い場合を限定した上での証明のみ可能だったため、今年度は更にこの結果の延長に取り組んだ。中でも時間を飛ばしてもHBMOは収束する上、アルゴリズムの収束orderは時間のステップサイズであることを証明する事に力を注ぎ、それを証明する事ができた。この証明のポイントとしては、アルゴリズムの時間が離散化されているため、時間ステップごとの界面法線ベクトルにおける角度の評価における必要性が上げれる。ここで初期速度が界面の法線方向のみに働くと、時間ごとの法線ベクトルにおける角度が小さいことが分かったため、各界面の符号付き距離関数のTaylor Expansionを書く事ができた。よって、昨年度の結果を用いて今年度はその証明が可能となった。

３．今後の研究の展望

（１）表皮構造の数理モデル

表皮バリア機能の恒常性維持の評価を行うための基盤としてCa^{2+}局在化の安定性評価の指標を提案した。今後は、バリア機能の恒常性維持を数理科学として定式化していく。これによってバリア機能の恒常性維持を評価し、皮膚疾患に見られるバリア機能低下を数量化することを目指す。この数量化によって、Ca^{2+}局在化の安定性がバリア機能の恒常性維持に本質的に重要な要因であることを示していきたい。また、皮膚の老化現象を定量化することによって、老化現象を数理科学的に取り扱い、老人表皮に見られる Ca^{2+}局在化の消失が起こる要因を明らかにしたい。さらに、表皮内の末梢神経伸密度がヒスタミン由来でない「かゆみ」の発生要因となるのではないかと考えられている。この仮説に対して数理モデルを構築し、数値計算によって検証していきたい。

（２）細胞極性の数理

予備的な研究により、細胞数が3、12、15における、解を列挙し、その安定性を調べることができた。その結果、渦巻き状の解はどの細胞数でも不安定となることがわかった。一方数値計算では、細胞数が非常に大きい場合、極は安定に存在し続けることが分かっている。そこで、今後は細胞数の大小によって、極の安定性がどのように切り替わるかを数理的に研究する予定である。また、このような切り替わりが実際の系でも観察されるかを共同研究者の山崎正和氏とともに検証する計画である。

（３）液滴運動モデルの数理解析

来年度は計算機援用解析によって定常解の大域的な構造とその安定性を議論する。最初に円形スポット定常解の存在と安定性解析を行い、円形スポット解からの分岐として楕円形状スポット定常解が分岐するのか調べる。次に、定常解からの分岐を数値計算から捕らえる。これによって、定常解からプライマリーに分岐する解が進行スポット解、振動スポット解、回転解のいずれかであることを示す。また、進行スポット解からHopf分岐によって現れる振動進行スポット解、振動進行スポット解の不安定化によって現れるのではないかと考えられる自励往復スポット解についても大域的解構造からの解明に挑戦する。

（４）動く界面の数理解析

我々は作成したアルゴリズムの数値解析（図3を参照）と「Minimizing movements」により体積保存条件の Multiphase 用アルゴリズム（VPHMCF)と接触角度を制御するアルゴリズム（CADBMO）の作成にも取り組んでいる。これらは、数値実験により VPHMCF の運動は図2のようなものである(CADBMO に対する数値計算結果は図4を参照)。以上これらの研究成果を踏まえた上で、次は我々が作成したアルゴリズムの更なる応用について考えて行きたいと思う。

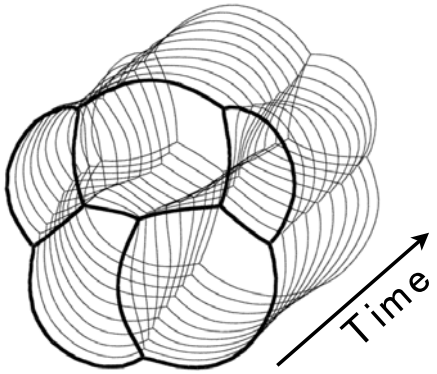


図２. Volume preserving multiphase hyperbolic MCF

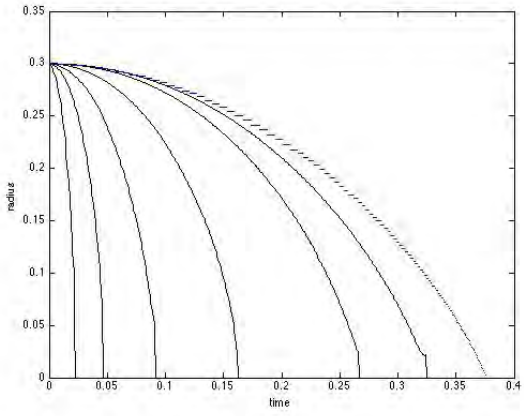


図３. Numerical analysis of a test problem.

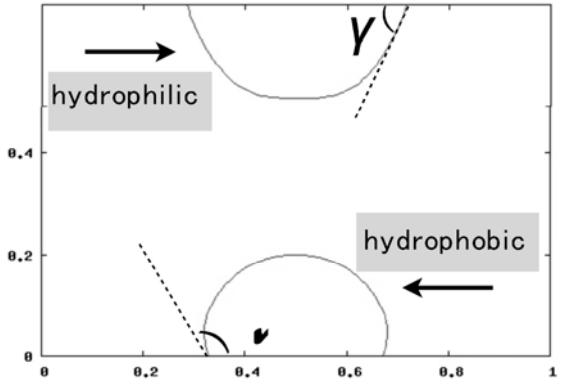


図４. Contact angle dynamics

４．資料

4.1　学術論文等

１） S. Nakata, M. Nagayama, H. Kitahata, N. J. Suematsu and T. Hasegawa, ″Physicochemical design and analysis of self-propelled objects that are characteristically sensitive to interfacial environments, Physical Chemistry Chemical Physics, 7(2015), 10326-10338. DOI : 10.1039/C5CP00541H.

２） S.-I. Ei, K. Ikeda, M. Nagayama and A. Tomoeda, ″Application of a center maifold theory to a reaction-diffusion system of collective motion of camphor disks and boats″, Mathematica Bohemica 139(2), 2014, 363-371.

３） Y. Kobayashi, Y. Sanno, A. Sakai, Y. Sawabu, M. Tsutsumi, M. Goto, H. Kitahata, S. Nakata, J. Kumamoto, M. Denda, M. Nagayama, ″Mathematical modeling of calcium waves induced by mechanical stimulation in keratinocytes″ PLoS ONE 9(3)(2014): e92650. DOI: 10.1371/journal.pone.0092650.

４） T. Ayukawa, M. Akiyama, J.L. Mummery-Widmer, T. Stoeger, J. Sasaki, J.A. Knoblich, H. Senoo, T. Sasaki, and M. Yamazaki, Dachsous-Dependent Asymmetric Localization of Spiny-Legs Determines Planar Cell Polarity Orientation in Drosophila. Cell Reports, 8(2): p. 610 – 621, 2014

５） E. Ginder, K. Svadlenka. ″Wave-type threshold dynamics and the hyperbolic mean curvature flow.″ Preprint, (2015).

６） E. Ginder, K. Svadlenka. ″変分法による界面運動のシミュレーション″ 計算工学特集記事, (2015).

７） E. Ginder, K. Svadlenka. ″On an algorithm for curvature-dependent interfacial acceleration.″ JSCES, **19** (2014).

4.2　総説・解説・評論等

１） 長山雅晴, 樟脳船の数理モデル, 数学セミナー, 8-12, 2015年2月号

２） 秋山正和, “ハエの毛の生え方の数理モデル”,数学セミナー（日本評論社）

３） 秋山正和, 山崎正和, “平面内細胞極性の分子機構 ~実験と数理モデルの真の融合を目指して~ ”, 日本数理生物学会ニュースレター第73号pp. 14-15.(総説)

4.3　国際会議議事録等に掲載された論文

１） 長山雅晴, 小林康明, 熊本淳一, 澤武裕輔, 傳田光洋, 中田聡, 北畑裕之, ”表皮構造の数理モデリング”, マス・フォア・インダストリー研究, 3(2015)17-25.

２） Yasuaki Kobayashi, Yusuke Sawabu, Satoshi Ota and Masaharu Nagayama, ″Mathematical model for epidermal homeostasis″, Mathematical Progress in Expressive Image Synthesis II: Proceedings of the Symposium 2014, H. Ochiai, K. Anjyo (Eds.), in press

３） Yasuaki Kobayashi and Masaharu Nagayama, ″Mathematical model of epidermal structure″, Applications + Practical Conceptualization + Mathematics = fruitful Innovation: Proceedings of the Forum of Mathematics for Industry 2014, R.S. Anderssen et al. (Eds.), in press

４） 長山雅晴, 若井健, 小林康明, 西慧, 井倉 S. 弓彦, 中田聡, ”樟脳円盤の集団運動に対する計算機援用解析”, 計算工学講演会論文集, 19(2014)

4.4　講演

a．招待講演

i）学会

1）Masaharu Nagayama, The collective motion of camphor papers in a cylindrical channel, The 10th AIMS Conference on Dynamical systems, Differential Equations and Applications, Mardid, Spain, July 7th-11th, 2014.

2）Masakazu Akiyama, “A Mathematical Model of Planar Cell Polality”，スロバキア，The 2nd Slovak-Japan Conference on Applied Mathematics in the South-Central Slovakia region Gemer. (2014.9.14-18).

3）Elliott Ginder: The 10th AIMS conference on dynamical systems, differential equations, and applications. 「Threshold dynamics generating curvature dependent interfacial acceleration」2014年7月8日

4）Elliott Ginder: 日本数学会2015年度年会「Methods for approximation of constrained interfacial dynamics」2015年3月23日

5）Elliott Ginder: 日本応用数理学会2014年度年会，「Threshold dynamics generating curvature dependent interfacial acceleration」2014年9月3日

ii）研究会・シンポジウム・ワークショップ

1）M. Nagayama, The collective motion of camphor papers in a cylindrical channel, One-day Workshop on Applied Mathematics, Tamkang University, Taipei, March 5th, 2015

2）長山雅晴，表皮バリア機能の恒常性について，皮膚の会，関西セミナーハウス，2015年3月7日～8日

3）長山雅晴，自走粒子系に現れる集団運動の数理解析，研究集会，加太国民休暇村，2014年12月26日～28日

4）長山雅晴，燃焼合成反応と焼結問題に対する数理モデリングについて，サステナブル理工学研究センターシンポジウム，東北大学，2014年11月5日

5）長山雅晴，表皮構造の数理モデリング，　「数理医学体験ワークショップ～日仏数学者による秋の学校」，大阪大学，2014年10月31日～11月2日

6）長山雅晴，表皮構造の数理モデリング，RIMS研究集会「新時代の科学技術を牽引する数値解析学」，京都大学数理解析研究所，2014年10月8日～10月10日

7）長山雅晴，表皮構造の数理モデル，研究集会「非線形数理モデルの諸相:連続,離散,超離散,その先」，九州大学，2014年8月6日～8日

8）秋山正和,“平面内細胞極性の数理モデル”，九州大学，IPAワークショップ (2014.5.16).

9) 秋山正和，“テトラヒメナの空間適応についての数理モデル”，九州大学, IPAワークショップ (2014.5.16).

iii）コロキウム・セミナー等・その他

1）長山雅晴, 数値分岐計算について, 応用数学勉強会2014, 神戸大学，2014年12月11日～13日

2）長山雅晴，自走粒子の集団運動に対する数理解析，非線形数理セミナー，明治大学，2014年9月9日

3）長山雅晴，表皮構造の数理モデル，応用数学連携フォーラム，東北大学，2014年6月16日

b．一般講演

i）学会

1）長山雅晴，数理モデリングによる表皮バリア機能の恒常性評価について，日本応用数理学会，政策研究大学院大学，2014年9月3日～9月5日

2）秋山正和，“平面内細胞極性の数理モデル”，日本数学会年会，明治大学, (2015.3.21-3.24).

3）Masakazu Akiyama,“A Mathematical Model of Planar Cell Polality”，国際研究集会(JSMB/SMB 2014, Osaka.) (2014.7.28-8.1).

4）Masakazu Akiyama,“Adaptive capacity of spatial expansion in the ciliate protozoan Tetrahymena”,国際研究集会(JSMB/SMB 2014 Osaka.) (2014.7.28-8.1).(Coauthor)

5）Elliott Ginder: 第19回計算工学講演会，「On an algorithm for curvature dependent interfacial acceleration 」2014年6月13日

ii）研究会・シンポジウム・ワークショップ

1）長山雅晴，真皮形状を考慮した表皮構造の数理モデリング, 非線形現象の数値シミュレーションと解析2015, 北海道大学，2015年3月10日～11日

2）長山雅晴，Proneural Wave の数理モデリング，研究集会「クロスボーダーシンポジウム」，北海道大学，2015年1月17日～18日，

3）秋山正和，CREST「生命現象における時空間パターンを支配する普遍的数理モデル導出に向けた数学理論の構築」の研究紹介. (2014.11.29-30).（ポスター発表）

4）秋山正和, JST数学領域横断若手合宿(2015.3.9-11).「脳の試作モデル」.（ポスター発表）

5）Masakazu Akiyama,“A Mathematical Model of Planar Cell Polality”，H26年度電子科学研究所国際シンポジウム，北海道・ガトーキングダム,(2014.12.16-17).（ポスター発表）

6）Masakazu Akiyama,“Dachsous-dependent asymmetric localization of Spiny-legs determines planar cell polarity orientation in Drosophila”，ミクロからマクロへ階層を超える秩序形成のロジック「2014年度班会議」(2014.6.18-20).(ポスター発表，著者)

7）秋山正和,“平面内細胞極性の数理モデル”，大阪大学，附置研究所間アライアンスプロジェクト(2014.5.30).(ポスター発表)

8）Elliott Ginder: 2015 A3 joint Workshop on Fluid Dynamics and Material Science.“Threshold dynamical algorithms for curvature dependent interfacial motions”2015年2月12日

９） Elliott Ginder: 反応拡散現象にみられる境界層とその周辺の数理. “A Thresholding algorithm for hyperbolic mean curvature flow.” 2014 年 11 月 28 日

１０）Elliott Ginder: The 15th Ries-Hokudai International Symposium, 「 The hyperbolic BMO algorithm: wave-type threshold dynamics and multiphase motions」2014年12月17日

１１）Elliott Ginder: 第3回岐阜数理科学研究会, 「A thresholding procedure generating curvature-driven interfacial acceleration」2014年9月9日

１２）Elliott Ginder: The 10th AIMS conference on dynamical systems, differential equations, and applications.「Threshold dynamics generating curvature dependent interfacial acceleration」2014年7月8日

１３）Elliott Ginder: The 40th applied mathematics forum,「A variational method for acceleration dependent interfacial motions」2014年5月21日

iii）コロキウム・セミナー等・その他

なし

4.5 特許

なし

4.6 共同研究

１） 長山雅晴、新日鐵住金株式会社、液相焼結現象の数学モデル開発、2013年度～2014年度

２） 長山雅晴､株式会社資生堂､表皮構造モデルの構築、2014年度

３） 長山雅晴、中田聡（広島大), 北畑裕之（千葉大)、自走粒子運動の数理解析、2012年度～2014年度。

４） 長山雅晴、佐藤純（金沢大)、三浦岳（九大)、発生初期分化波の数理モデリング,2013年度～2014年度。

５） 秋山正和、山崎正和（秋田大）等、平面内細胞極性に関する数理的研究を行い、国内外の学会・集会にて発表

６） 秋山正和、山口達也（九州大学数理学府)、手老篤史(九州大学マスフォアインダストリ研究所)、國田樹(北海道大学電子科学研究所)､中垣俊之（北海道大学電子科学研究所)、“テトラヒメナの容器記憶現象に対しての数理モデル”をIPAワークショップにて発表

７） 秋山正和、山口陽子（理研）、西浦廉政（東北大）、川崎真弘（筑波大学）、手老篤史（九州大）、脳の関する数理的研究

８） 秋山正和、船山典子（京都大学）、カイメン動物の変形様式に関する数理的研究

９） 秋山正和、松野健治（大阪大学）、ショウジョウバエ後腸の捻転に関する数理的研究

１０）秋山正和、栄伸一郎（北海道大学), 佐藤純（金沢大学）、「生命現象における時空間パターンを支配する普遍的数理モデル導出に向けた数学理論の構築」に関する数理的研究

１１）秋山正和、近藤滋（大阪大学）、ゼブラフィッシュ細胞の自己回転運動に関する数理的研究

１２）秋山正和、武田洋幸（東京大学）、ゼブラフィッシュ体節の自己組織化現象に関する数理的研究

１３）Elliott Ginder, Karel Svadlenka (京都大学):「Threshold dynamics」の数理解析

１４）Elliott Ginder, Seiro Omata (金沢大学):「Analysis of a hyperbolic free boundary problem with volume constraint」

4.7 予算獲得状況（研究代表者、分類、研究課題、期間）

a. 科学研究費補助金

１）長山雅晴、科学研究費補助金 挑戦的萌芽研究、化学反応を伴う粒子および液滴運動に対する数理解析、2013年度～2014年度

２） Elliott Ginder, JST Grant-in-Aid for Young Scientists (B), 変分法を用いた液滴や泡の運動モデルに対する数理解析, 2013年度～2015年度

３） 秋山正和（分担)、科学研究費補助金, 挑戦的萌芽研究、細胞数によって細胞集団の振る舞いが異なる現象を数理モデルと実験から理解する. 2014.4.1-2015.3.31

b. その他

１）長山雅晴、JST CREST、生理学と協働した数理科学による皮膚疾患機構の解明、2010年度～2015年度

２）長山雅晴、共同研究費、液相焼結現象の数学モデル開発、2013年度～2015年度

３）秋山正和、戦略的想像研究推進事業(CREST),「生命現象における時空間パターンを支配する普遍的数理モデル導出に向けた数学理論の構築」CRESTメンバー

4.8 社会教育活動

a．公的機関の委員

なし

b．国内外の学会の役職

１） 長山雅晴､日本数学会 応用数学分科会委員

２） 長山雅晴､日本数学会応用数学分科会主催の応用数学合同研究集会運営委員(幹事)

３） 長山雅晴､日本応用数理学会 2015年度年会実行委員

４） 秋山正和、日本数学会応用数学分化会主催の応用数学合同研究集会運営委員

５） 秋山正和、日本数理生物学会、数理生物学会ニュースレター編集委員

６） 秋山正和、一般社団法人日本数学会 2015年度 全国区代議員(評議員)

7） 秋山正和、一般社団法人日本数学会 2015年度 「数学通信」 常任編集委員
8） 秋山正和、文部科学省 科学技術・学術政策研究所 科学技術動向研究センター専門調査員
9） 秋山正和、応用物理学会リフレッシュ理科教室にて公開実験「スライムを科学しよう！！」を行った。
１０）秋山正和、2014.10.24日(金)に学部一年生向けに，サイエンスグローブにて「生物現象を数学的にみる！？」の講義を行った
１１）Elliott Ginder、日本数学会応用数学分科会主催の応用数学合同研究集会運営委員
１２）Elliott Ginder、電子科学研究所一般公開にて公開実験「歯磨き粉の秘密」を行った.
１３）Elliott Ginder、日本数学会、「数学」 編集委員
１４）Elliott Ginder、The 15th RIES-Hokudai International Symposium) Organizing Committee.

c．新聞・テレビ等の報道

なし

d．北大での担当授業科目（対象、講義名、担当者、期間）

1）長山雅晴（理学部3、4年、数理科学A、長山雅晴、2014年後期）
2）Elliott Ginder（理学部3，4年生、数理科学演習、秋山正和・Elliott Ginder、2014年後期）
3）秋山正和（学部3、4年、数理科学演習、秋山正和・Elliott Ginder、2014年後期）
4）Elliott Ginder（全学、数理系における基礎英語、2014年前期）

e．ポスドク・客員研究員など

・ポスドク：小林康明

附属グリーンナノテクノロジー研究センター

研究目的

本研究センターでは、ナノテク技術を基盤としたグリーンイノベーションを目的としており、高効率・広帯域太陽光エネルギー変換システム、フォトンの有効利用を目指したサブ波長デバイス、高効率量子状態変換素子などの極限省エネルギーフォトニックネットワークインターフェース、さらには、室温での二酸化炭素完全分離材料などの研究に取り組んでいます。これらの研究成果は、「低炭素研究ネットワーク拠点事業」などの大型プロジェクトの発足や有機的な産学連携研究に繋がっています。

グリーンフォトニクス研究分野

教　授　三澤弘明（筑波大院、理博、2003.5～）
准教授　上野貢生（北大院、博(理)、2010.1～）
助　教　押切友也（阪大院、博(理)、2012.12～）
院　生
博士課程
钟 玉磬、于 瀚、郭 景春、Ahmed Esmail Kamal Shalan
修士課程
常盤塁也、野澤翔、中村圭佑

１．研究目標

近年、二酸化炭素の排出量の増加や石油価格の高騰など地球規模の環境・エネルギー問題が顕在化しつつあり、光をエネルギー源・駆動源とする光化学研究の重要性が増している。したがって、環境負荷を低減し、真の低炭素社会を実現するためには、「光子の有効利用」という概念が極めて重要であり、反応系に投入された光エネルギーを余すところなく利用できる「光反応場」の構築が強く求められている。グリーンフォトニクス研究分野の三澤教授は、光子の有効利用の概念を世界でさきがけて提唱し、金属ナノ構造が示す光アンテナ効果により光エネルギーを高効率に利用する「光−分子強結合反応場の創成」を目的として、文部科学省の科学研究費補助金特定領域研究（領域代表：平成19～22年度）を推進し、本分野を世界的に牽引してきた。また、平成23年度からは、日本におけるプラズモニック化学および関連する学際的研究分野の振興をめざし、その活動の国際的な発信、国際的な規模での本分野の振興に寄与することを目的として、「プラズモニック化学研究会」（会長：平成23年～27年度）を発足し、プラズモニック化学研究領域の発展に努めてきた。

グリーンフォトニクス研究分野では、「光子の有効利用」という概念のもと、プラズモン増強場における光化学反応の高効率化に関する研究を展開してきた。近年では、プラズモンが示す光アンテナ効果を利用して太陽電池や人工光合成などの光ーエネルギー変換に関する研究を推進している。平成25年度までの研究において、酸化チタンなどの半導体基板上に局在プラズモン共鳴を示す金属ナノ構造を配置することにより、可視・近赤外光を効率良く光電変換できることを示し、そしてそれを可視光照射による人工光合成の研究に展開してきた。その結果、金ナノ粒子を担持したチタン酸ストロンチウム単結晶基板の背面に水素発生の助触媒として白金板を貼付した光電極を用いて全可視光により水分解を行い、発生した水素・酸素の分離を同時に可能にする人工光合成システムの構築に成功した。また、これらの系について、通常の光触媒による水分解では進行が困難な水及び水酸基の4電子酸化による酸素発生が効率的に起こることが明らかとなった。

これまでの研究成果に基づき、平成26年度は、人工光合成の研究をさらに発展させ、水の可視光分解による水素発生の還元助触媒効果に関する研究を進めた。また、同様のシステムを用いて、エネルギーキャリアとして注目されるアンモニアの合成を窒素の光固定により試みた。

２．研究成果

（ｉ）プラズモン誘起水分解システムの助触媒効果による反応効率の増大

0.05wt%のニオブをドープしたチタン酸ストロンチウム単結晶基板上に、金薄膜を加熱することにより可視波長域（λ_{max}: 600 nm）に局在プラズモン共鳴を示す金ナノ微粒子を作製した。また、基板の裏面にはオーミック接触を得るためにIn-Ga合金をペーストし、白金板を接合した。白金板の上に助触媒としてルテニウム、ロジウム及びその酸化物をスパッタリングにより2 nm成膜した。ここで、半導体微粒子を用いた光触媒の系では、半導体／助触媒界面の接合を制御できず、助触媒の効果と界面接合の効果が複合的に現れるが、本系では白金板と半導体はIn-Gaを介しているため、助触媒そのものの効果を評価することができる。

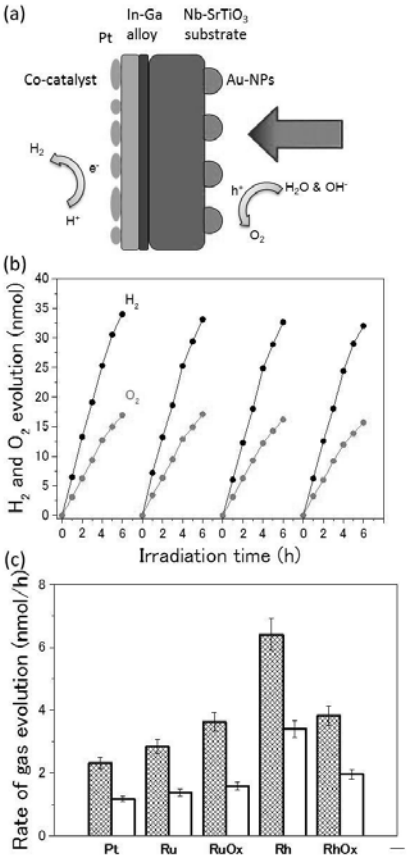


図1：（a）金ナノ微粒子／チタン酸ストロンチウム／白金板／助触媒を用いた水の光分解システム、（b）金ナノ微粒子／チタン酸ストロンチウム／白金板／ロジウムを用いた水素・酸素発生量の光照射時間依存性、（c）種々の助触媒を白金板上に担持した際の水素（網掛）・酸素発生（空白）速度。

作製した金ナノ微粒子／チタン酸ストロンチウム／白金板／助触媒を用いて、図1(a)に示す水の光分解システムを構築した。なお、照射波長は550 nm～650 nmで、照射強度は0.32 W/cm^{2}である。

図1(b)にロジウム 2 nmを助触媒として用いた際の水素・酸素発生の時間依存性を示す。水素および酸素の発生量の比率は2:1となったことから、化学量論的に水の光分解が誘起されることが明らかになった。さらに、6時間の光分解反応を4サイクル繰り返しても反応活性はほとんど減少せず、作製した光電極が極めて安定であることが示された。

また、種々の助触媒金属とその酸化物を用いた際の水素・酸素発生速度を図1(c)に示す。白金板のみの場合と比較し、全ての系で水素発生効率が増大し、特に、ロジウムを用いた場合には3倍程度の効率増大が見られた。ロジウムがルテニウムよりも顕著な効率増大を示した要因としては、水素の吸着エネルギーと、ロジウムの原子価状態に由来すると考えられる。

（ii）プラズモン誘起アンモニア合成システムの構築

前述のプラズモン誘起水分解に用いたものと同様の単結晶チタン酸ストロンチウム基板を用い、同様の方法論により基板上に金ナノ粒子構造を作製した。次いで、金ナノ粒子成膜面の背面に電子ビーム蒸着法を用いて助触媒としてルテニウム 3 nmを成膜し、金ナノ粒子／チタン酸ストロンチウム／ルテニウム電極を作製した。ここで、ルテニウムは熱化学反応による窒素と水素からのアンモニア合成に有用な触媒であることが知られており、窒素を吸着して安定な反応中間体を形成するものと考えられる。

作製した電極を図2(a)に示すように反応セル中に設置した。金ナノ粒子が接する側が酸化側、ルテニウムが接する側が還元側である。酸化槽には0.1 mol/dm^{3}水酸化ナトリウム水/エタノール溶液（EtOH:10vol%）を充填し、還元槽には水蒸気飽和窒素（25℃, 0.1 MPa）を充填後、0.01 mol/dm^{3}塩酸水溶液15 μLを注入し、酸化槽側から光を照射して光電気化学反応を行った。アンモニアの生成はサリチル酸ナトリウムを用いた比色定量法により波長650 nmの吸光度を測定することにより定量した。反応メカニズムは水分解反応と類似しているが、還元槽では窒素が還元されてアンモニアが生じ、酸化槽では反応促進のためエタノールが犠牲電子供与体として作用している。

作製した金ナノ粒子／チタン酸ストロンチウム／ルテニウム電極を用い、可視光（550-800 nm）を透過する光学フィルターを用いて窒素雰囲気下で光照射し、アンモニア生成能について検討した。その結果、図2(b)に示すように、長時間に及ぶ光照射にともない、アンモニア生成量は直線的に増大し、その生成速度は0.231 nmol h^{-1}であった。一方で金ナノ粒子を有さないチタン酸ストロンチウムに光照射を行った場合、アンモニア生成の時間依存性は観測されなかった。同様に、暗下での反応もアンモニア生成量の時間依存性は観測されなかった。

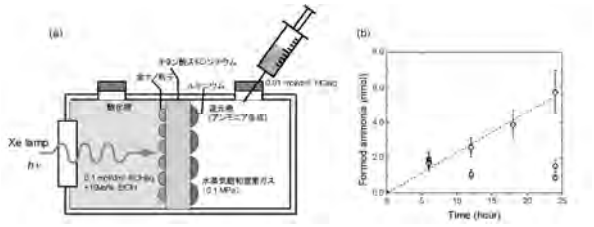


図 2: （a） アンモニア合成システムの概念図。（b） アンモニア生成量の時間依存性（◇：金ナノ粒子／チタン酸ストロンチウム／ルテニウム（光照射有り），□：チタン酸ストロンチウム（光照射有り），○：金ナノ粒子／チタン酸ストロンチウム／ルテニウム（光照射無し））

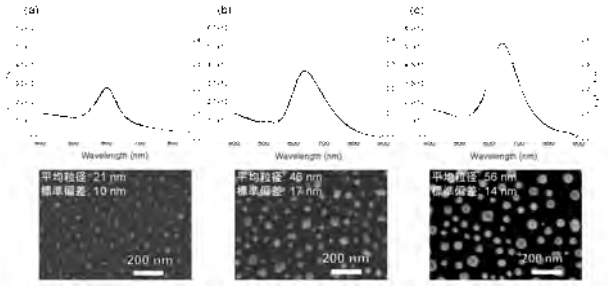


図 3: プラズモン共鳴スペクトルとアンモニア生成の見かけの量子収率の作用スペクトル（上），及び金ナノ粒子の粒径依存性（下）。膜厚 2 nm （a），3 nm （b），4 nm （c）の金薄膜を加熱することで作製

また、図3(b)に示すように、アンモニア生成反応に関する見かけの量子収率$\eta_{app,NH3}$の各照射波長における作用スペクトルは、金ナノ粒子構造由来のプラズモン共鳴スペクトルと良い一致を示した。これらのことから、プラズモン誘起による電荷分離が可視光領域における窒素の還元によるアンモニアの合成に主体的な役割を果たしていることが明らかとなった。さらに、図3(a, c)に示すように、スパッタリングによる金の膜厚を2 nm、4 nmと変化させて加熱することにより金ナノ粒子の粒径を変化させてプラズモン共鳴波長を変化させた場合では、金ナノ粒子径が大きいほどプラズモン共鳴波長スペクトルは長波長側へシフトし、見かけの量子収率の作用スペクトルはプラズモン共鳴スペクトルに伴ってシフトした。従って、光アンテナである金ナノ構造の大きさを制御することにより、プラズモン共鳴波長だけでなく窒素固定化反応の応答波長も制御可能であることが確認された。

3．今後の研究の展望

平成26年度は、局在表面プラズモン共鳴機構を有する金ナノ構造／チタン酸ストロンチウム電極を陽極とし、陰極（還元側）の種々の助触媒について検討し、水の光分解効率増大およびアンモニア光合成システムの構築に成功した。

今後は、半導体のバンド構造を設計・制御して電子移動を制御し、受光・反応表面積を増大させて実用的な太陽光-化学エネルギー変換効率を目指す。また、酸化・還元反応

を促進する助触媒について、密度汎関数計算による助けも用い、単一元素のみならず、元素融合により高い触媒能を示す多元素を用いた助触媒を金属、および半導体表面に担持し、その性能を確認する。

また、太陽光-電気エネルギー変換系として、金ナノ構造／酸化チタン薄膜電極上にホール移動層として酸化ニッケルを成膜することにより全固体プラズモン太陽電池を作製し、その光電変換特性について検討する予定である。半導体薄膜の膜厚やキャリア密度を精緻に制御し、素子特性の最適化を図る。

4．資料

4.1 学術論文

1) K. Imura, K. Ueno, H. Misawa, H. Okamoto, D. McArthur, B. Hourahine, and F. Papoff: “Plasmon Modes in Single Gold Nanodiscs”, Opt. Express, 22, 10, 12189-12199 (2014).

2) O. Lecarme, Q. Sun, K. Ueno, and H. Misawa:“Robust and Versatile Light Absorption at Near Infrared Wavelengths by Plasmonic Aluminum Nanorods”, ACS Photonics, 1, 538-546 (2014).

3) Y. Zhong, K. Ueno, Y. Mori, X. Shi, T. Oshikiri, K. Murakoshi, H. Inoue, and H. Misawa: “Plasmon-assisted Water Splitting Using Two Sides of the Same $SrTiO_3$ Single-crystal Substrate: Conversion of Visible Light to Chemical Energy”, Angew. Chem. Int. Ed., 53, 39, 10350-10354 (2014)

4) T. Oshikiri, K. Ueno, and H. Misawa: “Plasmon-induced Ammonia Synthesis through Nitrogen Photofixation with Visible Light Irradiation”, Angew. Chem. Int. Ed., 53, 37, 9802-9805 (2014).

5) B.-B. Xu, L. Wang, Z.-C. Ma, R. Zhang, Q. Chen, C. Lv, B. Han, X.-Z. Xiao, X.-L. Zhang, Y.-L. Zhang, K. Ueno, H. Misawa, and H.-B. Sun: “Surface-Plasmon-Mediated Programmable Optical Nanofabrication of an Oriented Silver Nanoplate”, ACS Nano, 8, 7, 6682-6692 (2014).

6) G. Bi, L. Wang, C. Cai, K. Ueno, H. Misawa, and J. Qiu: “Surface-enhanced Raman scattering of crystal violets from periodic array of gold nanocylinders”, J. Modern Opt., 61, 15, 1231-1235 (2014).

7) Y. Zhong, K. Ueno, Y. Mori, T. Oshikiri, and H. Misawa: “Plasmon-enhanced Water Splitting Utilizing the Heterojunction Synergistic Effect Between $SrTiO_3$ and Rutile-TiO_2”, Chem. Lett., 44, 5, 618-620 (2015).

8) K. Ueno, T. Oshikiri, Y. Zhong, X. Shi, and H. Misawa: “Plasmon-induced Artificial Photosynthesis”, Interface Focus, 5, 3, 20140082 (2015).

9) Y. Zhong, K. Ueno, Y. Mori, T. Oshikiri, and H. Misawa: “Co-catalyst Effects on Hydrogen Evolution in a Plasmon-induced Water-splitting System”, J. Phys. Chem. C, 119, 16, 8889-8897 (2015).

4.2 総説・解説・評論等

1) 上野貢生、三澤弘明 :「局在表面プラズモンによる水の可視光分解」、光学、43 巻、6 号、275-277 (2014).

2) 上野貢生、孫泉、三澤弘明 :「プラズモン誘起人工光合成の構築と PEEM による緩和過程の追跡」、表面科学、35 巻、12 号、668-673 (2014).

3) 上野 貢生:収差補正透過電子顕微鏡による化学反応の in-situ 計測技術, ぶんせき（トピックス), 6 月号, 303 (2014).

4.5 著書

1) 三澤弘明： “光でつくるマイクロマシン-３次元微細造形”、「光化学の事典」、分担執筆(朝倉書店 光化学協会 光化学の事典編集委員会編)、198-199 (2014).

4.7 講演

ｉ）学会

1) K. Ueno*, H. Itoh, W. Nakano, S. Nozawa, and H. Misawa: “Plasmon-induced radiation force with far-infrared light and its application to imaging camera”, Optical Manipulation Conference’14 (OMC’14), Yokohama (2014-04).

2) H. Misawa*: “Visible Plasmon-Enhanced Water Splitting” (Invited), 225th ECS Meeting, Orlando, USA (2014-05).

3) H. Misawa*: “Towards nanostructure-enhanced photoenergy conversion in the plasmonic chemical reaction field” (Invited), Collaborative Conference on Materials Research, Incheon, South Korea (2014-06).

4) H. Misawa*: “Plasmon-induced Water Splitting System” (Plenary Talk), Light Conference-International Conference on Micro/Nano Optical Engineering (ICOME2014), Changchun, China (2014-07).

5) H. Misawa*: “Plasmon-induced solar energy conversion systems”(Invited), The 6th IEEE international Nanoelectronics Conference 2014, Sapporo (2014-07).

6) 市川 陽一*、上野 貢生、三澤 弘明、岡本 裕巳、井村考平:「網目状金ナノ構造体におけるプラズモン特性の究明」、第8回分子科学討論会、広島 (2014-09).

7) H. Misawa*: “Plasmon-induced Water Splitting System” (Invited), The 2014 ECS and SMEQ Joint International Meeting, Cancun, Mexico (2014-10).

8) 中村 圭佑*、押切 友也、上野 貢生、三澤 弘明:「酸化ニッケル薄膜をホール移動層とした全固体プラズモン太陽電池の作製」、2014年光化学討論会、札幌 (2014-10).

9) 野澤 翔*、上野 貢生、三澤 弘明:「表面増強テラヘルツ分光計測系の構築」、2014年光化学討論会、札幌 (2014-10).

１０）H. Yu*, Q. Sun, A. Kubo, Y. Matsuo, K. Ueno, and H. Misawa: “Near Field and Dynamics of Surface Plasmon Dark States in Gold Nanoblocks Revealed by PEEM”, 2014年光化学討論会、札幌(2014-10).

１１）押切 友也*、上野 貢生、三澤 弘明:「可視光に応答する局在表面プラズモン誘起アンモニア合成デバイスの作製」、2014年光化学討論会、札幌(2014-10).

１２）上原 日和*、押切 友也、上野 貢生、三澤 弘明:「金ナノ構造―J会合体分子ハイブリッドシステムにおけるプラズモン―励起子強結合状態とその光電場増強効果」、2014年光化学討論会、札幌(2014-10).

１３）X. Shi*, K. Ueno, T. Oshikiri, and H. Misawa: “Plasmon-enhanced Photocurrent Generation on Nano-patterned TiO_2 Single Crystal Electrode”, 2014年光化学討論会、札幌(2014-10).

１４）常盤 塁也*、孫 泉、上野 貢生、三澤 弘明:「レーザー直接描画と加熱による可視波長域にストップバンドを持つ3次元フォトニック結晶の作製」、2014年光化学討論会、札幌(2014-10).

１５）H. Misawa*: “Plasmon-induced Artificial Photosynthesis Systems”(Plenary), 8th Asian Photochemistry Conference, Thiruvananthapuram, India (2014-11).

１６）K. Ueno*, S. Nozawa, H. Itoh, W. Nakano, and H. Misawa: “Far-infrared and THz sensor using the principle of plasmon-induced radiation force”, 8th Asian Photochemistry Conference 2014 - APC-2014, Thiruvananthapuram, India (2014-11).

１７）K. Nakamura*, T. Oshikiri, K. Ueno, and H. Misawa: “Thin film plasmonic solar cell constituted by gold nanostructured titanium dioxide and nickel oxide as a hole transport layer”, 8th Asian Photochemistry Conference 2014 - APC-2014, Thiruvananthapuram, India (2014-11).

１８）T. Oshikiri*, K. Ueno, and H. Misawa: “Plasmon-induced nitrogen fixation using gold nanoparticle loaded strontium titanate under visible light irradiation”, 8th Asian Photochemistry Conference 2014 - APC-2014, Thiruvananthapuram, India (2014-11).

１９）H. Misawa*: “Plasmon-induced Artificial Photosynthesis Systems” (Invited), 2014 International Conference on Artificial Photosynthesis, Awaji (2014-11).

２０）H. Misawa*, X. Shi, Y. Zhong, T. Oshikiri, and K. Ueno: “Plasmon-induced light energy conversion on gold nanoparticles/semiconductor system”, 2014 International Conference on Artificial Photosynthesis (ICARP2014), Awaji (2014-11).

２１）押切 友也*、上野 貢生、三澤 弘明:「プラズモン誘起アンモニア光合成:可視光の水素キャリアへの変換」、第24回日本MRS年次大会、横浜(2014-12).

２２）H. Misawa*: “Plasmon-induced Artificial Photosynthesis” (Keynote Lecture), 18th Osaka City University International Conference, Osaka (2015-03).

２３）上野 貢生*、野澤 翔、三澤 弘明:「テラヘルツ帯域に共鳴を有する光アンテナ構造の分光特性と分子計測への応用」、第62回応用物理学会春季学術講演会、平塚(2015-03).

２４）H. Yu*, Q. Sun, K. Ueno, Y. Matsuo, A. Kubo, and H. Misawa: “Exploring the Fano resonance of dolmen structures in near field by PEEM”, 第62回応用物理学会春季学術講演会、平塚(2015-03).

２５）三澤弘明*:「空中窒素の光固定」（招待講演）、日本化学会第95春季年会（中長期企画「水素社会と人工光合成」）、船橋（2015-03）.

２６）三澤弘明*:「全可視光の利用を可能にするプラズモン人工光合成の構築」（招待講演）、日本化学会第95春季年会（ATP企画「資源・次世代エネルギーと環境->太陽エネルギー変換の新技術と展望」）、船橋（2015-03）.

２７）上野 貢生*、野澤 翔、三澤弘明:「光アンテナ効果による表面増強テラヘルツ分光計測系の構築」、日本化学会第95春季大会、船橋(2015-03).

２８）上原 日和*、押切 友也、上野 貢生、三澤 弘明:「金属ナノ構造-色素J 会合体ハイブリッドシステムにおける励起子ポラリトンの緩和ダイナミクス」、日本化学会第95春季大会、船橋(2015-03).

２９）中村 圭佑*、片瀬 貴義、押切 友也、上野 貢生、太田 裕道、三澤 弘明:「パルスレーザー堆積法による薄膜プラズモン太陽電池の光電変換特性」、日本化学会第95春季大会、船橋(2015-03).

３０）増永 梨合花*、押切 友也、上野 貢生、三澤 弘明:「窒化ガリウムを用いたプラズモン誘起光電変換システムの構築」、日本化学会第95春季大会、船橋(2015-03).

３１）X. Shi*, T. Oshikiri, K. Ueno, and H. Misawa: “UV irradiation effects on the plasmon-induced charge separation at Au nanoparticles loaded TiO_2 photoelectrode”, 日本化学会第95春季大会、船橋 (2015-03).

３２）押切 友也*、上野 貢生、三澤 弘明:「プラズモン誘起アンモニア合成に対する遷移金属の助触媒効果」、日本化学会第95春季大会、船橋(2015-03).

ii）研究会・シンポジウム・ワークショップ

１）H. Misawa*: “Towards nanostructure-enhanced photo-energy conversion in the plasmonic chemical reaction field” (Short Course), IEEE The 3rd International Symposium on Next-Generation Electronics, Taoyuan, Taiwan (2014-05).

２）上野貢生*:ナノプラズモニクスの化学的応用（招待講演）、2014年度第2回シングルナノパターニング研究グループ講演会、早稲田大学 (2014-5).

３）上野貢生*:プラズモニックナノ構造を利用した化学反応制御（招待講演）、大阪市立大学理学部化学科談話会、大阪市立大学(2014-5).

４）H. Misawa*: “Plasmon-induced Water Splitting System” (Invited), 2nd International Workshop on Ultrafast Laser Optoeletronics, Changchun, China (2014-07).

５）H. Misawa*: “Plasmon-Induced Water Splitting” (Invited), Do we need a global project on artificial photosynthesis (solar fuels and chemicals)? (Theo Murphy Scientific Discussion Meeting), Newport Pagnell, UK (2014-07).

６）H. Misawa*: “Plasmon-induced Water Splitting System” (Invited), The XXVth IUPAC Symposium on Photochemistry, Bordeaux, France (2014-07).

７）K. Ueno*, S. Nozawa, and H. Misawa: “Plasmon-enhanced Terahertz sensor using gold nanostructured optical antenna”, XXVth IUPAC Symposium on Photochemistry, Bordeaux, France, (2014-07).

８）T. Oshikiri*, K. Ueno, and H. Misawa: “Plasmon-induced ammonia synthesis with visible light irradiation”, XXVth IUPAC Symposium on Photochemistry, Bordeaux, France (2014-07).

９）X. Shi*, K. Ueno, Y. Zhong, T. Oshikiri, and H. Misawa: “Plasmon-induced light energy conversion on gold nanoparticles/semiconductor system”, The 1st Korea-Japan Bilateral Workshop on Functional Materials Science -Thermoelectrics, Spintronics, Low-dimensional Materials, and Soft Matter-, Sapporo (2014-08).

１０）H. Yu*, Q. Sun, A. Kubo, Y. Matsuo, K. Ueno, and H. Misawa: “Near field and dynamics in gold nanoparticles probed by photoemission electron microscopy”, The 1st Korea-Japan Bilateral Workshop on Functional Materials Science -Thermoelectrics, Spintronics, Low-dimensional Materials, and Soft Matter-, Sapporo (2014-08).

１１）K. Ueno*, H. Itoh, W. Nakano, S. Nozawa, and H. Misawa: “THz sensor based on the principle of plasmon-indued radiation force”, PIERS 2014, Guangzhou, China (2014-08).

１２）Y. Zhong*, Y. Mori, K. Ueno, T. Oshikiri, and H. Misawa: “Photoelectrochemical water splitting enhanced by plasmon resonance under visible light illumination”, PIERS 2014, Guangzhou, China (2014-08).

１３）上野貢生*、プラズモンを用いた最先端ナノ光リソグラフィー、北海道地域3大学2公設試 新技術説明会、JST東京本部別館ホール (2014-9).

１４）上野貢生*、話題提供： プラズモニック化学日本光学会 ナノオプティクス研究グループ トピカルミーティング 「ナノオプティクスの本質と普遍性について考える」、函館市国際水産・海洋総合研究センター (2014-9).

１５）K. Ueno*, “.Plasmon-assisted artificial photosynthesis (Invited)”, UK-Japan Solar Driven Fuel Synthesis Workshop: Materials, Understanding and Reactor Design, British Embassy Tokyo, September (2014-9).

１６）H. Misawa*: “Plasmon-induced artificial photosynthesis systems” (Invited), 15th Chitose International Forum on Photonics Science & Technology, Chitose (2014-10).

１７）H. Misawa*, “Plasmon-induced artificial photosynthesis systems (Invited)”, Belgium and Japan Joint Symposium on Nanoplasmonics and Nanoimaging Chemistry, Hokkaido University, Sapppror (2014-10).

１８）K. Ueno*, “Plasmonics in terahertz and far-infrared regions (Invited)”, Belgium and Japan Joint Symposium on Nanoplasmonics and Nanoimaging Chemistry, Hokkaido University, Sapppror (2014-10).

１９）K. Ueno,*.”Plasmonic chemistry using precisely controlled metallic nanostructures (Invited)”, The 7th International Workshop on Advanced Materials Science and Nanotechnology (IWAMSN2014), Halong Grand Hotel, Halong City, Vietnam (2014-11).

２０）H. Misawa*: “Plasmon-induced Artificial Photosynthesis Systems” (Invited), RCAS and Research Institute for Electronic Science (RIES), Hokkaido University Workshop”, Taipei, Taiwan (2014-12).

２１）H. Misawa*: “Plasmon-induced Artificial Photosynthesis Systems” (Invited), 5th Symposium on “Application of Light and Materials for the Innovation of Technology and Life”, Takamatsu (2015-03).

２２）三澤弘明*:「プラズモニック化学を利用する光エネルギー変換システム」（招待講演）、第２１回バイオテンプレート研究懇談会、東京（2015-03）.

iii）コロキウム・セミナー等・その他

１）H. Misawa*: “Frontier in Plasmonic Chemistry” (Invited), 國立交通大學應用化學系103學年度第一學期專題演講, Hsinchu, Taiwan (2014-12).

２）三澤弘明*:「局在プラズモンを用いた太陽光エネルギー変換システムの開拓」、平成26年度日本表面科学会東北・北海道支部講演会、札幌（2015-03）.

4.8 シンポジウムの開催

１）三澤弘明：「第6回プラズモニック化学シンポジウム」、早稲田大学、東京（2014年6月20日）

２）三澤弘明(現地実行委員会副委員長)、上野貢生（同委員）、押切友也（同委員）：「2014年光化学討論会」、北海道大学、札幌（2014年10月11日-13日）

３）三澤弘明：「第7回プラズモニック化学シンポジウム」、首都大学東京秋葉原サテライトキャンパス、東京(2014年11月14日)

４）三澤弘明：日本化学会 第95春季年会 Asian International Symposium - Photochemistry -、日本大学、船橋 (2015年3月27日)

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（株式会社イムラ・ジャパン）:「高効率太陽光発電に関する研究」(2014年度) サスティナブルエネルギー社会実現の為の技術探求を目的として、プラズモン共鳴を利用した太陽光発電技術について研究をおこなう。

2）三澤弘明（旭硝子株式会社）:「ガラス等の表面上における金属ナノ粒子の自己組織化制御」(2013～2014年度) ガラスおよび酸化チタン表面上の金ナノ微粒子の自己組織化によるパターニングと光学特性評価を実施し、ソーラーアプリケーション等への展開を目的とする。

3）三澤弘明、上野貢生（株式会社アイシン・コスモス研究所）:「波長変換技術の予備検討調査」(2014年度) 可視光の近赤外光への変換の可能性検証を目的とし、波長変換発光体と表面プラズモン共鳴を用いた波長変換の技術検討調査を実施する。

4）三澤弘明、上野貢生（パイオニア株式会社）:「光電子顕微鏡を用いた量子ドットデバイスの観測」(2014年度) 量子ドットを含む半導体基板(GaAsなど)上に金(Au)粒子を有するデバイスに光を照射した際の、金粒子近傍に発生する近接場光の状態を超高速時間分解光電子顕微鏡システム（TR-PEEM）を利用した観測、及び、得られた結果の解析を行うことを目的とする。

ｄ．受託研究

1）三澤弘明、日本学術振興会 学術システム研究センター「光化学分野に関する学術研究動向調査研究」(2012年度～2014年度):光化学研究において局在プラズモン共鳴がどのように活用されていくのかを基礎化学のみならず応用技術の視点からも展望する。

4.10　予算獲得状況

ａ．科学研究費補助金

1）三澤弘明、電子科学研究所、科学研究費補助金（基盤研究(S)）、「高効率な光捕集・局在化を可能にする光アンテナの開発とその太陽電池への応用」（2011～2015年度）

2）押切友也、電子科学研究所、科学研究費補助金（若手スタートアップ）、「プラズモニック光電気化学触媒を用いた窒素の固定化」、(2013～2014 年度)

3）三澤弘明、電子科学研究所、科学研究費補助金（新学術領域研究（公募））、「可視・近赤外局在プラズモンによる水の完全分解システムの構築」(2013～2014 年度)

4）孫泉、創成研究機構、科学研究費補助金（若手研究 B)、「Revealing the near-field properties of coupled plasmonic systems by photoemission electron microscopy」(2014～2015 年度)

4.11　受賞

1）上野貢生 : 北海道大学研究総長賞（奨励賞）、北海道大学 (2015年3月)

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 科学技術動向センター 専門調査員（2006年4月4日～2017年3月31日）

2）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～2015年3月31日）

3）三澤弘明：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～2016年3月31日）

4）三澤弘明：日本学術会議 連携会員（2011年10月3日～2017年9月30日）

5）三澤弘明:日本学術振興会 学術システム研究センター研究員（2012年4月1日～2015年3月31日）

6）三澤弘明：石狩市　石狩超電導直流送電プロジェクト推進協議会　構成員(2013年2月15日～2015年3月31日)

7）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「元素戦略を基軸とする物質・材料の革新的機能の創出」 領域アドバイザー (2011年5月1日～2017年3月31日)

8）文部科学省　新学術領域研究専門委員会（高次複合光応答）　委員(2014 年 12 月 8 日-2015 年 12 月 7 日)

9）独立行政法人理化学研究所　客員主幹研究員(2012年1月26日～)

ｂ．国内外の学会の役職

1）三澤弘明 : Nanotechnology Innovation Center for Environment & Ecosystem, Academic Committee（2012年7月31日～2017年12月31日）

2）上野貢生 : 日本分析化学会 北海道支部 幹事(2013年3月1日～2016年2月28日)

3）上野貢生 : 日本分析化学会「ぶんせき」編集委員 (2013年3月1日～2014年2月28日)

4）上野貢生 : 応用物理学会第26回マイクロプロセス・ナノテクノロジー国際会議実行委員会委員(2013年1月25日～2014年12月31日)

5）上野貢生 : The 10th Memorial of Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics (APNFO10), Local Committee Member (2013年3月～)

6）三澤弘明 : Asian Nanoscience and Nanotechnology Association, President (2013 年 5 月～)

7）三澤弘明 : 光化学協会　会長（2014年1月1日～2015年12月31日）

8）三澤弘明 : ACS Photonics, Editorial Advisory Board (2014年1月1日～2015年12月31日)

9）三澤弘明:日本化学会 プログラム小委員会　部門幹事

(08F-有機化学-反応と合成 有機光化学)(2014年5月26日～2015年3月31日)

１０） 三澤弘明：日本化学会 ディビジョン運営委員会 ディビジョン主査（光化学）(2014年5月8日～2016年2月29日)

１１） 三澤弘明:FWO (Research Foundation Flanders) Expert Panel W&T3: Condensed Matter and Physical Chemistry（2015年1月1日～2017年12月31日）

１２） 上野貢生：The 14th International Conference on Near-Field Optics, Nanophotonics, and Related Techniques (NFO-14), Local Committee Member (2015年2月～)

c．併任・兼業

１）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～）

２）国立交通大学（台湾） 客員教授（2015年1月1日～2015年12月31日）

３）上野貢生：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員（2007年10月1日～2014年3月31日）

e．新聞・テレビ等の報道

・新聞

１）三澤弘明：2014.6.10、日刊工業新聞、「アルミで赤外光捕捉　北大　安価なナノアンテナ作製」

２）三澤弘明：2014.6.19、日経産業新聞、「近赤外光を効率吸収　北大　素子、太陽電池に応用も」

３）三澤弘明：2014.7.11、日経産業新聞、「水素だけ効率作製　北大など　人工光合成システム」

・テレビ

１） 三澤弘明：2014.12.28、TVh けいざいナビ「水素社会は実現するか？北海道でも進む研究」

f．外国人研究者の招聘（氏名、国名、期間）

１）Chao-Sung Lai、中国（2014年7月29日）

２）Jiunn-Woei Liaw、中国（2013年7月29日）

３）Kuang-Li Lee、台湾（2014年9月16日）

４）Pei-Kuen Wei、台湾（2014年9月16日）

５）Weiwei Liu、中国（2015年1月27日～2月5日）

６）Christine Charles、オーストラリア（2015年2月4日）

７）Xing Yi Ling、シンガポール （2015年3月5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、電気回路、三澤弘明（2014年4月1日～2014年9月30日）

２）全学教育科目、化学I、三澤　弘明(2014年4月1日～2014年9月30日)

３）情報科学研究科、ナノフォトニクス特論、三澤弘明、上野貢生、押切友也(2014年10月1日～2015年3月31日)

４）全学共通、一般教育演習：未来へ繋がる材料：固体デバイスから生体物質に至る最先端材料開発（分担）、押切友也（2014年4月1日～2014年9月30日）

５）全学教育科目「環境と人間」、ナノって何なの？最先端光・ナノテク概論、上野貢生（2014年5月23日）

６）全学教育科目「環境と人間」、２０３０年エレクトロニクスの旅、三澤弘明（2014年10月14日）

７）大学院共通授業科目、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論Ⅱ、三澤弘明（2014年11月19日）

８）工学部、生体工学概論・生体医工学基礎、上野貢生(2014年12月24日)

h. 北大以外での非常勤講師

１）上野貢生、大阪市立大学理学部化学科、探索分子化学特別講義（集中講義）、2014年5月27日～2014年5月28日

２）三澤弘明、鹿児島大学理工学研究科、生命化学科特別講義（集中講義）、2014年7月30日～8月1日

ｉ．ポスドク・客員研究員など

１）孫 泉（特別経費「北海道企業群によるナノ加工技術集積拠点の形成－ナノインプリントによる生産技術の開発－」・特任助教、2011.4.1～）（所属は2009.1.1～）

２）上原日和（文部科学省 科学研究費補助金基盤研究(S)「高効率な光捕集・局在化を可能にする光アンテナの開発とその太陽電池への応用」・学術研究員、アライアンス・非常勤研究員、2012.4.1～）

３）陳岐岱（中国・国家留学基金管理委員会)「表面プラズモンのハイブリッド状態に関する超高速分光」・電子研外国人客員研究員、2014.10.25～2015.2.24）

４）Worawut Khunsin（日本学術振興会　外国人特別研究員、2013.9.1～2014.8.31）

５）石旭（文部科学省 科学研究費補助金基盤研究(S)「高効率な光捕集・局在化を可能にする光アンテナの開発とその太陽電池への応用」・博士研究員、共同研究（旭硝子）・博士研究員、2014.4.1～）

６）李洁（特別経費「北海道企業群によるナノ加工技術集積拠点の形成－ナノインプリントによる生産技術の開発－」・博士研究員、2011.9.1～）

７）Zuoqiang Hao（日本学術振興会　中華人民共和国教育部との覚書による来日研究者・電子研客員研究員、2015.2.15～2015.3.6）

ｊ．修士学位及び博士学位の取得状況

・修士課程（２名）

１）常盤 塁也: 可視・近赤外波長域にストップバンドを有する3次元フォトニック結晶の作製及び光学特性に関する研究 (Fabrication and optical properties of three-dimensional photonics crystals with stop band from visible to near-infrared wavelength region)（2015年3月）

２）野澤 翔:テラヘルツ帯域におけるプラズモン増強効果に関する研究 (Plasmonic enhancement effects in terahertz frequency region)（2015年3月）

光電子ナノ材料研究分野

教　授　西井準治（都立院、工博、2009.7～）
准教授　海住英生（慶大院、工博、2013.10～）
大学院生　生田目直季（総合化学院M2）
　　川口慶雅（総合化学院M2）
　　森澄人（総合化学院M1）
　　宮崎篤（総合化学院M1）
学部生　　木下拓也（理学部化学科）

1. 研究目標

当該研究分野では、無機材料や金属材料中のイオンや電子スピンの状態を制御して新奇な機能や特性を引き出すことを目的として以下の基盤研究に取り組んでいる。

(1) 電子スピンの制御

固体中の電子が持つ「電荷」に新たな自由度である「スピン」を加えたスピントロニクスに、ナノ構造や光を取り入れた新たなデバイスの創製

(2)イオンの制御

固体材料への電圧印加によって、内部に含まれるイオンの置換やその濃度分布を変化させ、新たな電気的、光学的な特性を有する機能材料を創製

(3)光波制御機能の発現

光学異方性、電磁場増強、光波の閉じ込めなど、自然界に存在しない光学特性を発現する光の波長レベル以下の微細な周期構造デバイスの創製

2. 研究成果

(1) 漏洩磁場を用いた新たなスピン量子十字素子の提案とその構造・磁気特性

電子の電荷とスピンの2つの自由度を利用するスピントロニクスは現代のエレクトロニクスを凌駕する次世代技術として期待され、近年大きな注目を集めている。中でも、スピンフィルター効果(=上向き、あるいは、下向きスピンのみの電子が流れる現象)は、巨大磁気抵抗効果素子やスピンロジック回路への応用が期待されていることから国内外で盛んに研究が進められている。最近、我々は新たなスピンフィルター効果素子として、漏洩磁場を用いたスピン量子十字素子を提案した。本素子は図1に示すように、強磁性薄膜のエッジとエッジの間に金属錯体分子、または、量子ドットが挟まれた構造となっている。この構造では、両強磁性薄膜エッジからの漏洩磁場の寄与により、エッジ間に挟まれた金属錯体分子、または、量子ドットには巨大な局所磁場が印加される。この巨大な磁場は金属錯体分子、または、量子ドットにおいてゼーマン分裂を引き起こし、これによりスピンフィルター効果が生じると期待できる。本研究ではこのような新規スピンフィルター効果素子の創製

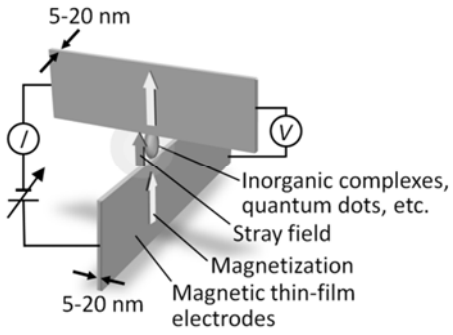


図１　漏洩磁場を用いた新たなスピン量子十字素子

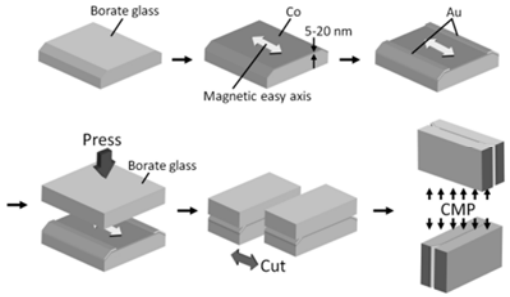


図２　スピン量子十字素子に用いるCo薄膜電極の作製方法

を目指し、スピン量子十字素子に用いる低融点ガラス上のCo薄膜電極、同ガラスに挟まれたCo薄膜電極の構造・磁気特性を調べた。さらに、マイクロマグネティクスシミュレーションにより、スピン量子十字素子のエッジ間に生じる漏洩磁場を計算し、スピンフィルター効果素子への応用可能性についても言及した。

図2にスピン量子十字素子に用いるCo薄膜電極の作製方法を示す。初めに電子ビーム蒸着法により低融点ガラス上にCo薄膜を磁場中で成膜する。次に、スパッタ法によりCo薄膜の両側にAu薄膜を成膜する。その後、圧着装置により上記同種のガラスを圧着し、半分に切断する。最後に、化学機械研磨(CMP)法によりガラス/Co/ガラスの断面を研磨し、Co薄膜電極を作製する。試料の構造解析には、原子間力顕微鏡(AFM)、走査型電子顕微鏡(SEM)を用いた。磁気特性評価には磁気力顕微鏡(MFM)、面内集光型磁気光学カー効果(MOKE)法を用いた。

図3に低融点ガラス上のCo薄膜の磁化曲線を示す。Co薄膜の膜厚は16 nmである。磁場は磁化容易軸と困難軸にそれぞれ印加した。丸プロットは実験結果、実線は計算結果を示す。計算にはStoner-Wohlfarth (SW)モデルを用いた。

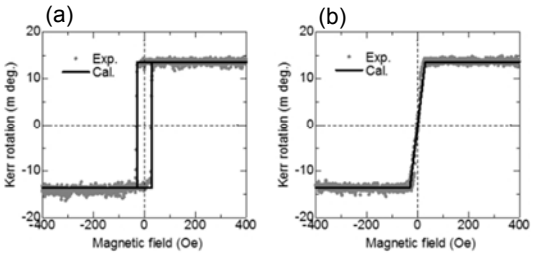


図３　低融点ガラス上のCo薄膜の磁化曲線: (a) 磁化容易軸方向、(b) 磁化困難軸方向

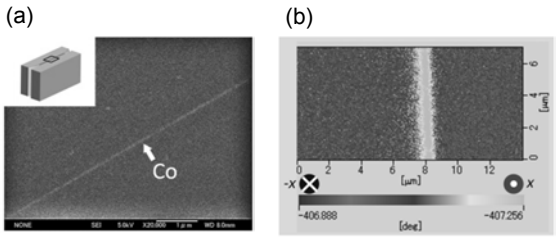


図４　CMP法による研磨後のガラス/Co/ガラスの(a)SEM像、(b)MFM像

図3より実験結果と計算結果が良い一致を示すことがわかる。これは低融点ガラス上のCo薄膜はコヒーレントモードで磁化反転することを意味する。保磁力は30 Oeであり、よく知られているCo薄膜の保磁力と良い一致を示す。角型比は0.97程度と大きな値を示す。以上より、磁気特性の観点から低融点ガラス上のCo薄膜はスピン量子十字素子に用いる磁性薄膜材料として適していることがわかった。

図4(a)にCMP法による研磨後のガラス/Co/ガラスのSEM像を示す。Co薄膜の膜厚は14 nmである。図4(a)より、明瞭なCo薄膜エッジが確認できる。このとき、Co薄膜エッジとガラスとの間にコントラスト差が見られるが、これはCoの高い電気伝導性に起因している。Co薄膜エッジ付近に構造上の段差は見られなかった。これはAFM観察によって確認した。表面粗さは0.3–1.0 nmであり、極めて低い値を示した。図4(b)にガラス/Co/ガラスのMFM像を示す。Co薄膜の膜厚は18 nmである。図4(b)よりCo薄膜エッジから強い漏洩磁場が一様に生じていることがわかる。これは図3より得られた高角型比の結果と矛盾しない。以上より、構造・磁気特性の観点から、低融点ガラス間に挟まれたCo薄膜はスピン量子十字素子の磁性電極材料として極めて有効であることが明らかになった。

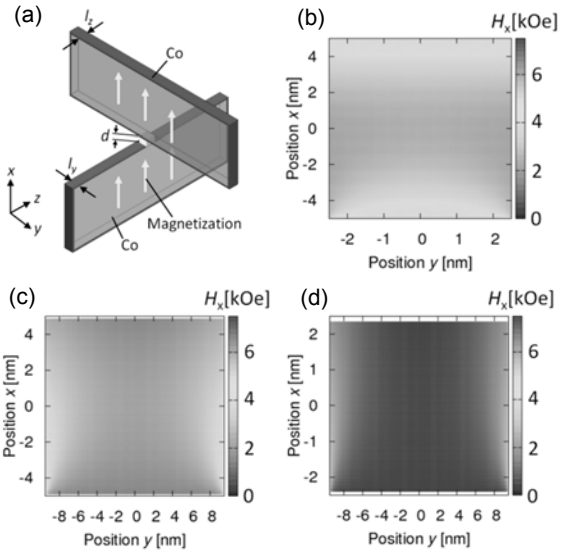


図５　スピン量子十字素子のエッジ間に生じる漏洩磁場の(a)計算シミュレーションモデルと計算結果：(b) $l_{y(z)}$ = 5 nm、d = 10 nm、(c) $l_{y(z)}$ = 19 nm、d = 10 nm、(d) $l_{y(z)}$ = 19 nm、d = 5 nm

図5(a)にスピン量子十字素子のエッジ間に生じる漏洩磁場の計算シミュレーションモデルを示す。磁性電極にはCoを仮定した。磁性薄膜の膜厚$l_{y(z)}$は5、19 nm、磁性薄膜エッジ間距離dは5、10 nmとした。図5(b)–(d)に漏洩磁場の計算結果を示す。図5(b)は$l_{y(z)}$ = 5 nm、d = 10 nmとしたときの結果である。漏洩磁場は4000 Oe程度の大きな値を示したが、一様な磁場分布は得られなかった。図5(c)は$l_{y(z)}$ = 19 nm、d = 10 nmとしたときの結果である。漏洩磁場は5000 Oeを超える大きな値を示したが、一様な磁場分布は得られなかった。図5(d)は$l_{y(z)}$ = 19 nm、d = 5 nmとしたときの結果である。漏洩磁場は7000 Oeを超える大きな値を示し、一様な磁場分布が得られた。この巨大な漏洩磁場は磁性薄膜エッジ間に挟まれた材料において大きなゼーマン分裂を引き起こし、これによりスピンフィルター効果が生じるものと期待できる。

(2) ナノ秒パルスレーザー照射によるナノドットFeAl合金の形成と磁気特性

磁気ナノ構造はその興味深い基礎物性と応用可能性の高さから国内外で大きな注目を集めている。例えば、ナノドット、ナノワイヤー、ナノチューブでは保磁力、飽和磁場、スイッチング磁場の増大現象が観測されており、それらの挙動はバルクのそれと比較して大きく異なる。また、応用面では、磁気ナノ構造を用いた新たなデバイスとして、ビットパターンドメディア(BPM)、磁壁ロジックデバイス、レーストラックメモリ、磁気ランダムアクセスメモリ(MRAM)等が提案されている。このような現状において、我々は本学エネルギー・マテリアル融合領域研究センター渡辺教授の研究グループとの共同研究により、$Fe_{52}Al_{48}$合金表面にナノ秒パルスレーザーを照射すると、その表面形態がストライプ構造、網目構造、ドットパターンに変化することを見出した。また、この表面構造変化に伴い、磁気特性が常磁性から強磁性に転移することも明らかにした。今回、我々は本手法で得られたナノドットFeAl合金に注目し、その表面状態、及び磁気特性の詳細について調べることを目的とした。

$Fe_{52}Al_{48}$合金表面へのナノ秒パルスレーザー照射にはNd:YAGパルスレーザーを用いた。パルス幅は6 ns、繰り返しパルス周波数は2 Hz、パルス数は500–2000 pulses、平均レーザーエネルギー密度は1.24 kJ/m^2、波長は532 nmとした。表面ナノ構造解析にはAFM、SEMを用いた。磁気特性評価には面内・極集光型MOKE法を用いた。面内MOKE法での最大印加磁場は1 kOe、印加磁場回転角は0–180°とした。極MOKE法での最大印加磁場は10 kOeとした。各手法での観測スポットサイズ径は3 μm、測定温度は室温とした。

図6にナノ秒パルスレーザー照射前と後のFeAl合金のSEM像を示す。レーザー照射前では表面が平坦であることに対し、レーザー照射後では(111)面の[110]方向に沿って、ドット構造が形成されることがわかる。図7にレーザー照射

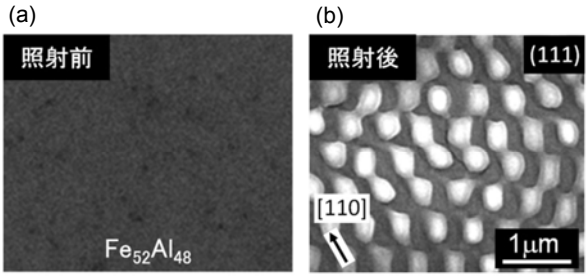


図６　レーザー照射(a)前と(b)後のFeAl合金の表面SEM像

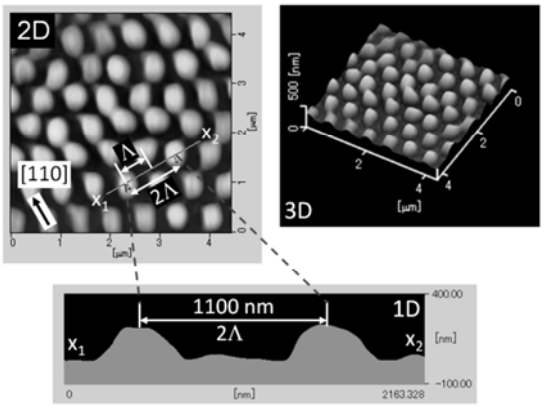


図７　レーザー照射後のFeAl合金の表面AFM像

後のFeAl合金の表面AFM像を示す。ドット周期は550 nm程度となり、入射レーザー波長とほぼ等しいことがわかった。また、ストライプ高さは170 nm程度で、ドット径は上底220 nm、下底470 nm程度であった。

図8にナノ秒パルスレーザー照射前と後のFeAl合金の表面磁化曲線を示す。レーザー照射前では、カー回転角がほぼ0°となり、保磁力は0 Oeを示す。これは常磁性であることを示す。それに対し、レーザー照射後では磁化曲線にヒステリシスが観測された。これは強磁性であることを示す。角型比は0.82、保磁力は1 kOe程度の大きな値を示す。このとき、磁場の印加方向は(111)面に対して垂直方向、すなわち、[111]方向に対して平行としたため、ナノドットFeAl合金の磁化容易軸は面直方向に沿って存在すると考えられる。そこで、面内MOKE法によりナノドットFeAl合金の磁気特性を調べた。図9に磁化曲線の回転磁場依存性を示す。ここで磁場回転角θは図中のx方向から角度と定義する。図9より、いずれの角度でも磁化曲線は原点付近で線形となり、

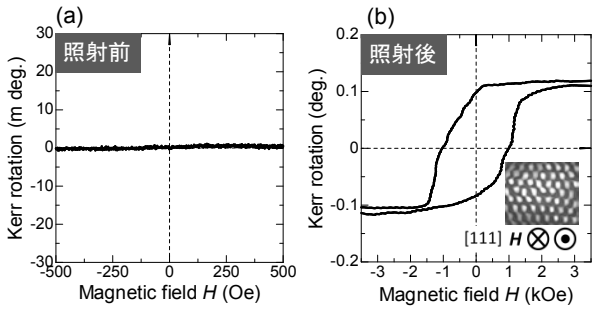


図８　レーザー照射(a)前と(b)後のFeAl合金の表面磁化曲線

保磁力は0 Oeを示す。これは、ナノドットFeAl合金の磁化困難軸は面内方向に沿って存在することを示す。以上の面内・極MOKE法による結果から、ナノドットFeAl合金は[111]方向に強い垂直磁気異方性を示すことが明らかになった。

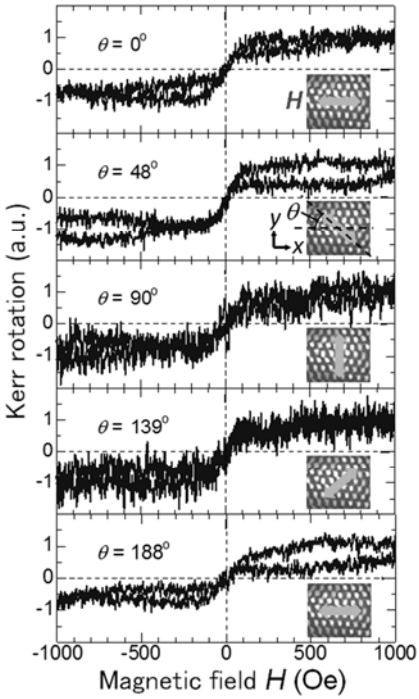


図９　レーザー照射後のナノドットFeAl合金の表面磁化曲線の回転磁場依存性

３．今後の研究の展望

今回、新たなスピンフィルター効果素子として、漏洩磁場を用いたスピン量子十字素子を提案した。その結果、本素子の磁性電極作製手法として低融点ガラス圧着法が有効であることを示した。また、計算シミュレーションにより、本素子のエッジ間ナノ接合部には巨大な局所磁場が生じることが明らかになった。今後は、磁性薄膜電極間に金属錯体分子等を挟むことでスピン量子十字素子を作製し、スピンフィルター効果素子を含む新たなナノ構造スピントロニクス素子の創製を目指す。一方、FeAl 合金にナノ秒パルスレーザーを照射すると、その表面がナノドット構造となると同時に、磁気特性が垂直磁気異方性を示すことも明らかになった。今後は、本手法により、レーザー波長・パルス数依存性、及び材料依存性等を調べ、新規な磁性材料探索研究を推進する。これにより応用上は新たな高保磁力磁性材料の創製を目指す。また、電圧勾配を利用した固体材料中のイオンの存在状態の制御については、光学及び固体イオニクスの分野で新たな機能を発現する上で有望な手段であると位置づけている。現在、当該研究室では、中温域燃料電池のための固体電解質への応用を目指して固体中のアルカリカチオンのプロトンへの完全置換に挑戦している。一方で、表面プラズモン共鳴を用いた水素の光センシングのニーズは今後ますます高まると考えられる。今後は、下

地として誘電体フォトニック結晶構造を利用するなど、さらなるデバイス構造の最適化を試みる。

4．資料

4.1　学術論文等

1）K. Kawaguchi, H. Ikeda, D. Sakai, S. Funatsu, K. Uraji, K. Yamamoto, T. Suzuki, K. Harada and J. Nishii : “Accelerated formation of sodium depletion layer on soda lime glasssurface by corona discharge treatment in hydrogen atmosphere”, *Applied Surface Science*, Elsevier, 300 : 149-153 (2014)

2）T. Ishiyama, J. Nishii, T. Yamashita, H. Kawazoe and T. Omata : “Electrochemical substitution of sodium ions with protons in phosphate glass to fabricate pure proton conducting glass at intermediate temperatures”, *Journal of Materials Chemistry A*, 2(11) : 3940-3947 (2014)

3）H. Kaiju, Y. Yoshida, S. Watanabe, K. Kondo, A. Ishibashi and K. Yoshimi : “Magnetic properties on the surface of FeAl stripes induced by nanosecond pulsed laser irradiation”, *Journal of Applied Physics*, 115 : 17B901-1-17B901-3 (2014)

4）H. Kaiju, H. Kasa, T. Komine, T. Abe, T. Misawa and J. Nishii : “Magnetic Properties of Spin Quantum Cross Devices Utilizing Stray Magnetic Fields”, *Material Research Society Symposium Proceeding*, 1708 : vv09101-vv09106 (2014)

5）H. Kaiju, Y. Yoshida, S. Watanabe, K. Kondo, A. Ishibashi and K. Yoshimi : “Magnetic Properties on FeAl Stripes and Dots Induced by Nanosecond Pulsed Laser Irradiation”, *Journal of Magnetics Society of Japan*, 38 : 157-161 (2014)

6）T. Ishihara, I. Yamada, J. Yanagisawa, J. Nishii and M. Saito : “Deformable silicone grating with submicrometer period”, *Japanese Journal of Applied Physics*, 53(6) (2014)

7）T. Ishiyama, S. Suzuki, J. Nishii, T. Yamashita, H. Kawazoe and T. Omata : “Proton conducting tungsten phosphate glass and its application in intermediate temperature fuel cells”, *SOLID STATE IONICS*, ELSEVIR, 262 : 856-859 (2014)

8）K. Kawaguchi, T. Suzuki, H. Ikeda, D. Sakai, S. Funatsu, K. Uraji, K. Yamamoto, K. Harada and J. Nishii : “Alkali ion migration between stacked glass plates by corona discharge treatment”, *Applied Surface Science*, (338) : 120-125 (2015)

9）E. Hirose, D. Sakai, T. Shibata, J. Nishii, H. Mayama, A. Miyauchi and J. Nishikawa : “Does the tunic nipple array serve to camouflage diurnal salps?”, *Journal of the Marine Biological Association of the United Kingdom*: 1-7 (2015)

10）Y. Yoshida, S. Watanabe, H. Kaiju, J. Nishii and K. Yoshimi : “Wavelength-dependent magnetic transitions of self-organized iron-aluminum stripes induced by pulsed laser irradiation”, *Journal of Applied Physics*, (117) : 045305-1-045305-5 (2015)

11）H. Kaiju, H. Kasa, T. Komine, S. Mori, T. Misawa, T. Abe and J. Nishii : “Co Thickness Dependence of Structural and Magnetic Properties in Spin Quantum Cross Devices Utilizing Stray Magnetic Fields”, *Journal of Applied Physics*, 117 : 17C738-1-17C738-4 (2015)

4.2　講演

a．招請講演

1）J. Nishii* : “Fabrication of Subwavelength Optics using Glass Imprint Process”, CLEO:2014, San Jose, USA (2014-06)

2）H. Kaiju*, Y. Yoshida, S. Watanabe, J. Nishii and K. Yoshimi : “Structural and magnetic transitions of an FeAl alloy induced by nanosecond pulsed laser irradiation”, Collaborative Conference on Materials Research 2014, Incheon, Korea (2014-06)

3）西井 準治* ：「電圧勾配下でのアルカリ挙動を巧みに利用した酸化物ガラスの改質と機能発現」、紛体粉末冶金協会平成26年度春季大会、早稲田大学国際会議場 (2014-06)

4）J. Nishii* : “Periodic structure optical components fabricated by nanoimprint process”, 2nd International Workshop on Ultrafast Laser Optoelectronics(2014), 吉林大学, 中国 長春市 (2014-07)

5）H. Kaiju*, Y. Yoshida, S. Watanabe, J. Nishii and K. Yoshimi : “Magnetic Properties of FeAl Nanopatterns Induced by Nanosecond Pulsed Laser Irradiation”, HOKUDAI-NCTU Joint Symposium on Nano, Photo and Bio Sciences, Hokkaido University (2014-09)

6）J. Nishii* : “Electrical imprint for micro-and nanostructure fabrications on glass”, Advanced Architectures in Photonics 2014, Prague, Czech Republic (2014-09)

7）西井 準治*、田和 圭子、三ツ石 方也 ：「周期構造素子の作製と蛍光増強への応用」、2015年電子情報通信学会総合大会、立命館大学びわこ・くさつキャンパス (2015-03)

b．一般講演

ⅰ）学会

1）H. Kaiju*, H. Kasa, T. Komine, T. Abe, T. Misawa and J. Nishii : “Magnetic properties of spin quantum cross devices utilizing stray magnetic fields”, 2014 Material Research Society Spring Meeting, San Francisco, USA (2014-04)

2）飯原 潤*、庄司 浩一朗、二瓶 卓也、的場 正憲、海住 英生、西井 準治、神原 陽一 ：「鉄系超伝導体 $SmFeAsO_{1-x}F_x$の臨界電流密度と磁場侵入長」、2014年春季低温工学・超電導学会、タワーホール船堀 (2014-05)

3) T. Misawa*, N. Ikutame, D. Sakai, T. Abe, H. Kaiju and J. Nishii : “Fine structure formation on glass surface using electrical imprint method”, The 3rd Frontier Chemistry Center International Symposium, 北海道大学 (2014-06)
4) S. Mori*, T. Misawa, H. Kasa, T. Komine, T. Abe, H. Kaiju and J. Nishii : “Spin quantum cross devices utilizing stray magnetic field”, The 1st Korea-Japan Bilateral Workshop on Functional Materials Science, Hokkaido University (2014-08)
5) S. Mori*, H. Kaiju and J. Nishii : “Magnetic properties of nanostructured FeAl alloy ”, ISNOG2014, 済州島, Korea (2014-08)
6) T. Misawa*, N. Ikutame, D. Sakai, T. Abe, H. Kaiju and J. Nishii : “Formation mechanism of fine structures using electrical imprint method”, ISNOG2014, 済州島, Korea (2014-08)
7) 吉田 裕、渡辺 精一、海住 英生*、西井 準治、吉見 享祐 :「FeAl合金における磁気特性の照射レーザー波長依存性」、第38回日本磁気学会学術講演会、慶應義塾大学 (2014-09)
8) 印藤 健也*、森田 晋平、山本 俊介、田和 圭子、西井 準治、宮下 徳治、三ツ石 方也 :「一次元金属回折格子上での高分子ナノ集積体中の光の伝搬特性」、第75回応用物理学会秋季学術講演会、北海道大学 (2014-09)
9) 森 澄人*、三澤 貴浩、笠 晴也、小峰 啓史、阿部 太郎、海住 英生、西井 準治 :「漏洩磁場を用いたスピン量子十字デバイスの磁気特性」、第75回応用物理学会秋季学術講演会、北海道大学 (2014-09)
10) 吉田 裕*、渡辺 精一、海住 英生、西井 準治、吉見 享祐 :「FeAl表面上のレーザー誘起磁気転移の波長依存性」、第75回応用物理学会秋季学術講演会、北海道大学 (2014-09)
11) 川口 慶雅*、海住 英生、西井 準治 :「コロナ放電処理を用いた間隙を有する異種ガラス間のアルカリイオン移動」、第75回応用物理学会秋季学術講演会、北海道大学 (2014-09)
12) 吉田 黎*、山田 逸成、山下 直人、栄西 俊彦、斉藤 光徳、福味 幸平、西井 準治 :「両面インプリントにより反射防止機能を付加した赤外ワイヤグリッド偏光子の作製」、第75回応用物理学会秋季学術講演会、北海道大学 (2014-09)
13) 三澤 貴浩*、森 澄人、笠 晴也、海住 英生、西井 準治 :「高効率スピン注入デバイスの創製に向けた低融点ガラス上のCo薄膜の磁気特性」、第75回応用物理学会秋季学術講演会、北海道大学 (2014-09)
14) 坂下 友規*、釜谷 悠介、海住 英生、近藤 憲治、石橋 晃 :「$Ni_{75}Fe_{25}$/Alq_3/Co接合における交流インピーダンス特性」、第75回応用物理学会秋季学術講演会、北海道大学 (2014-09)
15) T. Misawa*, N. Ikutame, T. Abe, H. Kaiju, J. Nishii, D. Sakai and K. Harada : “Pressure Dependence of Fine Structure formation on Glass Surface by Electrical Nanoimprint”, The 13th International Conference on Nanoimprint and Nanoprint Technology, ANAクラウンプラザ京都 (2014-10)
16) H. Kaiju*, H. Kasa, T. Komine, S. Mori, T. Misawa, T. Abe and J. Nishii : “Structural and Magnetic Properties of Co-based Spin Quantum Cross Devices Utilizing Stray Magnetic Fields”, The 59th Annual Magnetism and Magnetic Materials Conference, Hawaii, USA (2014-11)
17) 川口 慶雅*、海住 英生、西井 準治 :「コロナ放電処理による重ね合わせガラス間のアルカリイオン移動 」、平成26年度日本セラミックス協会東北北海道支部研究発表会、秋田市にぎわい交流館AU (2014-11)
18) 阿部 太郎*、三澤 貴浩、生田目 直季、海住 英生、西井 準治 :「電圧印加インプリント法によるガラス表面への微細構造形成」、平成26年度日本セラミックス協会東北北海道支部研究発表会、秋田市にぎわい交流館AU (2014-11)
19) 宮崎 篤*、川口 慶雅、山口 拓哉、小俣 孝久、西井 準治 :「Na_2O-CaO-La_2O_3-P_2O_5 系ガラスのアルカリ-プロトン置換とプロトン伝導性の評価」、第55回ガラスおよびフォトニクス材料討論会、東京工業大学 (2014-11)
20) 鈴木 俊夫*、関根 朋美、小林 大介、山本 清、西井 準治 :「コロナ放電および電圧印加処理したガラス表層の分析」、第55回ガラスおよびフォトニクス材料討論会、東京工業大学 (2014-11)
21) 石原 吉朗*、山田 逸成、秋山 毅、西井 準治 :「ゾル-ゲル法とインプリント加工による酸化チタンのサブ波長周期構造の形成と光学評価」、第55回ガラスおよびフォトニクス材料討論会、東京工業大学 (2014-11)
22) 川口 慶雅*、海住 英生、西井 準治 :「コロナ放電によるアルミノシリケートガラスへのプロトン導入」、第55回ガラスおよびフォトニクス材料討論会、東京工業大学 (2014-11)
23) K. Kawaguchi*, H. Kaiju and J. Nishii : “Potassium ion migration between non-contacted glass plates using corona discharge treatment in H_2 atmosphere”, The 31st International Korea-Japan Seminar on Ceramics, 昌原, Korea (2014-11)
24) A. Miyazaki*, K. Kawaguchi, T. Yamaguchi, T. Omata, H. Kaiju and J. Nishii : “Evaluation of proton conductivity of alkali-proton substituted $NaO_{1/2}$-CaO-$LaO_{2/3}$-$PO_{2/5}$ glasses”, The 15th Ries-Hokudai International Symposium joined with the 3rd International Symposium of Nano-Macro Materials, Devices, and System Research Alliance Project, Sapporo (2014-12)
25) S. Mori*, T. Misawa, H. Kasa, T. Abe, H. Kaiju and J.

Nishii：“Magnetic properties of Co and $Ni_{75}Fe_{25}$ thin films on low-melting-point glasses in spin quantum cross devices”, The 15th Ries-Hokudai International Symposium joined with the 3rd International Symposium of Nano-Macro Materials, Devices, and System Research Alliance Project, Sapporo (2014-12)

26) T. Sakashita*, Y. Kamaya, H. Kaiju, K. Kondo and A. Ishibashi : “AC impedance characteristics of $Co/Alq_3/Ni_{75}Fe_{25}$ junctions”, The 15th Ries-Hokudai International Symposium joined with the 3rd International Symposium of Nano-Macro Materials, Devices, and System Research Alliance Project, Sapporo (2014-12)

27) 森 澄人*、三澤 貴浩、笠 晴也、阿部 太郎、海住 英生、西井 準治：「スピン量子十字デバイスにおける低融点ガラス上のCoと$Ni_{75}Fe_{25}$薄膜の磁気特性 」、第50回応用物理学会北海道支部/第11回日本光学会北海道地区合同学術講演会、旭川勤労者福祉会館 (2015-01)

28) 三澤 貴浩*、森 澄人、阿部 太郎、笠 晴也、海住 英生、西井 準治：「Co薄膜エッジを利用したスピン注入デバイスの創製および特性評価 」、第50回応用物理学会北海道支部/第11回日本光学会北海道地区合同学術講演会、旭川勤労者福祉会館 (2015-01)

29) 酒井 大輔*、神成 邦弘、氏家 健太郎、原田 建治、原 悠一郎、池田 弘、西井 準治：「コロナ放電選択堆積によるガラスホログラム」、第62回応用物理学会春季学術講演会、東海大学湘南キャンパス (2015-03)

30) 橋本 拓也、斉藤 光徳*、山田 逸成、西井 準治：「液体金属を用いたフレキシブルな反射型回折格子」、第62回応用物理学会春季学術講演会、東海大学湘南キャンパス (2015-03)

31) 森 澄人*、三澤 貴浩、笠 晴也、阿部 太郎、海住 英生、西井 準治：「スピン量子十字デバイス創製に向けたCoと$Ni_{78}Fe_{22}$薄膜の磁気特性」、第62回応用物理学会春季学術講演会、東海大学湘南キャンパス (2015-03)

32) 三澤 貴浩*、森 澄人、阿部 太郎、笠 晴也、海住 英生、西井 準治：「低融点ガラスに挟まれたCo薄膜の磁気特性評価とスピン注入デバイスへの応用」、第62回応用物理学会春季学術講演会、東海大学湘南キャンパス (2015-03)

33) 木下 拓也*、川口 慶雅、宮崎 篤、海住 英生、西井 準治、山口 拓哉、小俣 孝久：「Na_2O-La_2O_3-P_2O_5-GeO_2 系ガラスの Na＋-H＋置換とプロトン伝導性評価」、日本セラミックス協会2015年年会、岡山大学津島キャンパス (2015-03)

34) 池田 定達*、裏地 啓一郎、鈴木 俊夫、山本 清、西井 準治：「Cryo-TEM-EDS によるガラス局所の組成パターンの分析」、日本セラミックス協会2015年年会、岡山大学津島キャンパス (2015-03)

35) 宮崎 篤*、川口 慶雅、海住 英生、西井 準治、山口 拓哉、小俣 孝久：「$NaO_{1/2}$-CaO-$LaO_{3/2}$-GeO_2-$PO_{5/2}$ 系ガラスのアルカリ-プロトン置換とイオン伝導度」、日本セラミックス協会2015年年会、岡山大学津島キャンパス (2015-03)

4.3 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) 西井準治、挑戦的萌芽研究、大気圧コロナ放電による中温域プロトン伝導体の創製、2013～2014年度

2) 海住英生、若手研究(B)、分子スピントロニクスデバイスにおける交流インピーダンス特性、2012～2014年度

b. その他（研究代表者、分類名、研究課題、期間）

1) 西井準治、JST・ALCA、アルカリ-プロトン(AP)置換の機構解明と高度化および触媒/電極材料の探索、2012～2014年度

c. 民間との共同研究

1) 西井準治、旭硝子(株)、ガラス表面改質の高速・大面積処理に関する研究、2013～2014年度

2) 西井準治、丸善石油化学、UVナノインプリントを用いた次世代光学素子の開発、2013～2014年度

4.4 受賞

1) H. Kaiju, H. Kasa, T. Komine, T. Abe, T. Misawa and J. Nishii：Best Poster Presentation Award “Magnetic properties of spin quantum cross devices utilizing stray magnetic fields”（2014 Material Research Society Spring Meeting） 2014年4月

2) 海住 英生 ：平成26年度学術奨励賞（内山賞）「Magnetic Properties on FeAl Stripes and Dots Induced by Nanosecond Pulsed Laser Irradiation」（日本磁気学会） 2014年9月

3) 川口 慶雅、海住 英生、西井 準治：学生優秀発表賞「コロナ放電処理による重ね合わせガラス間のアルカリイオン移動」（日本セラミックス協会東北北海道支部） 2014年11月

4.5 社会教育活動

a. 公的機関の委員

1) 海住英生: 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員（2014年2月23日～2015年3月31日）

b. 国内外の学会の役職

1) 海住英生：第75回応用物理学会学術講演会実行委員（2013年5月1日～2014年9月30日）

2) 海住英生：日本セラミックス協会東北北海道支部第22回北海道地区セミナー実行委員（2014年6月1日～2014年12月1日）

3) 海住英生：第50回応用物理学会北海道支部／第11回日本光学会北海道地区合同学術講演会 A-III 座長（2015

年1月9日～2015年1月10日）

4）H. Kaiju: The 16th RIES-Hokudai International Symposium, Organizing Committee （2015年1月～2015年12月）

g．北大での担当授業科目（対象、講義名、担当者、期間）

1） 総合化学院、物質化学III、西井準治、2014年6月1日～2014年9月30日

2）全学共通、環境と人間：ナノって何なの？（分担）、海住英生、2014年4月1日～2014年9月30日

3）全学共通、物理学Ⅱ、海住英生、2014年10月1日～2015年3月31日

4）全学共通、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論Ⅱ（分担）、海住英生、2014年10月1日～2015年3月31日

h．北大以外での担当授業科目（担当者、教育機関、講義名、期間）

1）西井準治、京都大学工学研究科、マイクロ・ナノフォトニクス材料工学、2014年4月1日～2014年9月30日

j．修士学位及び博士学位の取得状況

・修士課程（2名）

1） 生田目直季：「電圧印加インプリントを利用したガラス表面への微細構造形成」

2） 川口慶雅：「アルカリープロトン置換によるプロトン伝導材料の作製と評価」

ナノ光機能材料研究分野

教　授　末宗幾夫（東工大院、工博、1993.4～）
准教授　熊野英和（北大院、工博、1997.4～）
博士研究員
　黒澤裕之、中島秀朗
院　生
　Sinthia S. Mou, 原田拓弥

１．研究目標

本研究分野では、(Ⅰ)単一の量子ドットを計測するためのナノ構造の作製とその評価、(Ⅱ)量子ドットなど量子ナノ構造を内部に含むナノフォトニック構造の作製による電子状態と光子状態の制御、(Ⅲ)電子のペアリングによる新たな光子生成過程制御、(Ⅳ)ナノフォトニック構造に埋め込んだ量子ドットによる高い光子取り出し効率と高性能光子源の実現と、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)　量子ドットから発生した単一光子間の識別不可能性の検証

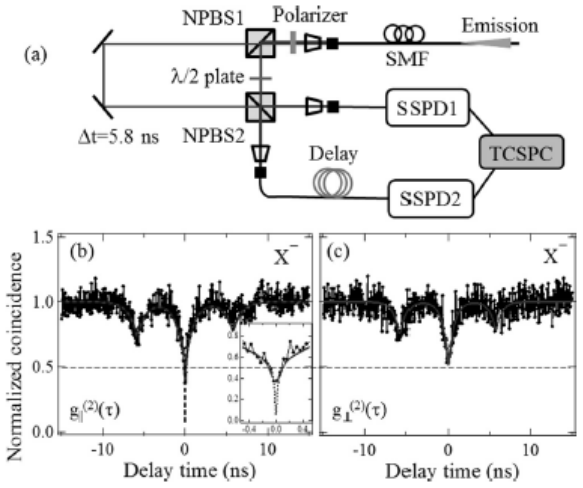


図１　(a)量子ドットから発生した光子間の識別不可能性を調査する光学系。先行する光子が NPBS(Nonpolarized Beam Splitter)1 と NPBS2 間の長い経路を通り、後行する光子が短い経路を通り両者が NPBS2 に同時に入射する。偏光も含めて２つの光子が識別不可能な場合には、２つそろって１方の経路に進むので、検出器 SSPD (Superconducting Single-photon Detector)1 と SSPD2 が光子を同時計測する確率は零となる。一方、２つの光子の偏光が異なり識別可能な場合には NPBS2 から光子が出てくる経路は確率的で 50%の確率で同時計測される。(b)は２つの光子が同じ偏光を持ち識別不可能な場合で零遅延での同時計数確率は 50%を切る。(c)は２つの光子が異なる場合で、零遅延での同時計数確率は 50%となる。この両者の結果から、光子の識別不可能性に関する光子可干渉性として 0.89 の高い値が得られた。なお(b)の測定では零遅延の部分が測定系の応答速度で制限されており、理論関数でフィッティングして値を求めている。

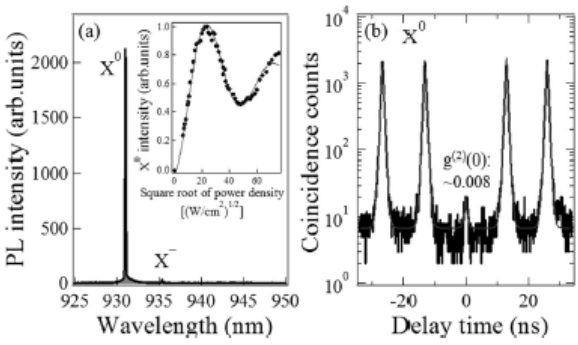


図２ (a)InAs 単一量子ドットの第一励起準位を共鳴励起したときの発光スペクトルと励起強度を変えた場合の基底準位間の中性励起子発光強度のラビ振動。(b)発光強度が最大となるπ-パルス励起条件下で計測した光子相関測定結果。

今後量子情報処理・通信をより高度なシステムに展開していくためには、量子もつれ光子対を用いた量子テレポーテーションにより通信距離を拡張すること、量子もつれ光子対源を複数用いて量子もつれ交換を行い、量子通信を続けていく量子リピーター機能を開発することが重要である。こうした機能を実現するためには「ベル測定」を行うことが基本となる。「ベル測定」は光子のボゾン性を利用しており、Beam Splitter (BS)に入射する2光子が互いに識別不可能な場合には２光子そろって同じ経路から出てくる。そのため、２経路での光子同時計数確率が零となる。識別可能な場合には50%の確率で同時計数される。図１(a)はその特性を測定する光学系であり、図1(b)と1(c)の測定結果から、光子の識別不可能性に関する光子可干渉性として0.89の高い値が得られた(1.0が理想の最大値) [1]。

量子ドットから効率よく光子を発生するためには、量子ドットの励起方法も高度化する必要がある。図2(a)は量子ドットの第一励起状態を共鳴励起した際の発光スペクトルであり、基底状態の中性励起子(X^0)発光のみが強く発光している。また光励起強度を変えた場合には、挿入図に示すように明瞭なラビ振動が観測され、量子ドットが励起光でコヒーレントに制御されていることがわかる[1]。最初の発光ピークはπパルス励起条件と呼ばれ、励起状態がほぼ100%コヒーレントに励起された理想的な励起状態にあたる。この状態から発生している単一光子について光子相関測定した結果を図2(b)に示す。複数の光子が発生している確率を与える、零遅延時間での2次光子相関関数の値$g^{(2)}(0)$は、パルス励起毎に光子が発生するように強く励起している状態にもかかわらず、0.008と世界的なこれまでの報告の中でも最低レベルの良好な特性を示している。

(b)高いQ値を持つ金属埋め込み微小光共振器

単一光子で伝送した量子情報は物質と相互作用させて情報処理、制御していく必要がある。量子ドットとの相互作用は、光子の偏光をスピンに変換するなど、量子情報変換に有効な手法を提供している。しかし入射した単一光子の

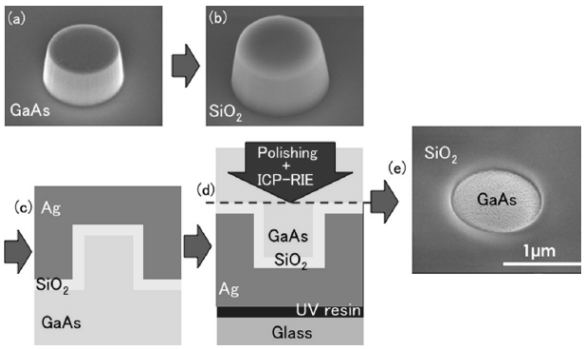


図 3　金属埋め込み微小光共振器の作製方法。

空間広がりはその波長程度であり、量子ドットのサイズとは一桁以上異なり、そのままでは効率よい相互作用は期待できない。そのため、量子ドットを微小光共振器に埋め込み、入射光子を効率よく微小共振器に結合させた上で相互作用させることが有効となる。

量子情報伝送では光ファイバ通信が想定されており、その意味では単一モード光ファイバと効率よく結合させることのできる微小光共振器を開発することが重要である。我々はこれまで量子ドット発光源と光ファイバを結合させる実験的な試み[2]、シミュレーション[3]を行い、金属埋め込み半導体ナノ構造を用いて、効率よく光ファイバと結合できることを示してきた。今回同じ金属埋め込み構造で高い共振Q値を持つ微小光共振器が実現可能であることを見いだした。

図3にその製作方法を示す。側面がほぼ垂直な半導体ナノ構造をドライエッチング(RIE)技術で作製し、表面を均一に薄いSiO_2膜で覆う。これをAgで埋めこみ、埋めこんだAg表面をガラス支持基板にレジンで貼り付けUV光照射で固定化する。その後半導体基板を機械研磨とRIEとを組み合わせて除去した表面を図3(e)に示す。

埋めこむ半導体としてSiドープしたGaAsを用いると、SiがGa位置とAs位置の両方に入り込むことによるブロードなDAP発光が図4(a)上側のように観測される。これを図3のように金属埋め込みすると、図4(a)下側に示すようにシャープな発光スペクトルが観測される。１つのピークを拡大すると、図4(b)に示すようにローレンツ関数でうまくフィトできることがわかり、その線幅から9000と高い共振Q値を持つ共振モードであることがわかった。通常の発光は励起光パワーや温度によってその線幅が変化するが、このピークは図4(c), 4(d)に示すようにほとんど不変であることからも、共振ピークと同定できる[4]。

このような金属埋め込み微小光共振器は、金属によって遮蔽されているので集積された他の共振器との結合によるリークが少ないなどの特徴があるが、これまで微小領域に光を閉じ込めたナノレーザとしても活発に研究されてきた。レーザとしても共振Q値が高いことは内部での光吸収が小さく、レーザの発振しきい値を低減して高性能化する上で重要である。しかし我々の研究以前に報告されているQ値はほとんどが500以下であり、関連分野に新たな可能性を与えている。この高いQ値を持つ共振モードは有限要素シミュレーションより、図5に示すWhispering Galleryモードと特定された。

3．今後の研究の展望

これまで単一量子ドットから発生した単一光子を効率よく外部に取り出し、パルス励起毎に確実に光子を発生するオンデマンド光子源へ近づけ、これを単一モード光ファイバへ効率よく結合する検討を続けてきたが、シミュレーションでも実験的にも効率のよい光ファイバ結合光子源開発の見通しが開けてきた。今回発生した光子が互いに識別不可能と見なせる良好な光子可干渉性を示すことを確認し、半導体量子ドットによる量子もつれ光源とベル測定による量子テレポーテーションや量子もつれ交換などの量子情報処理へと研究を展開する重要な基礎を築くことができた。

さらに、光ファイバで伝送されてきた光子が運ぶ量子情報を個体の量子情報へ転送して制御するためには、量子ドットと光子の相互作用を強める必要がある。そのためには光子を効率よく微小光共振器に結合して閉じ込め、内部の

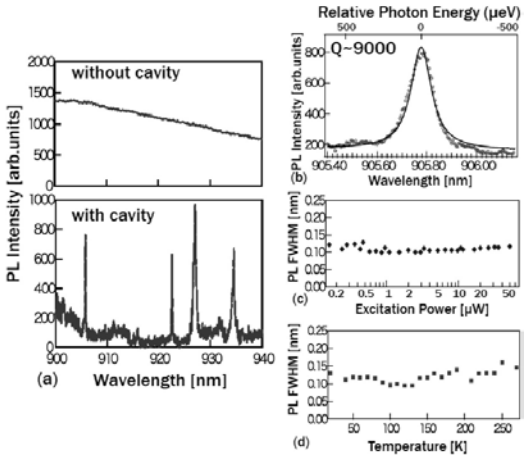


図 4　(a)共振器がない場合と共振器がある場合のSi-doped GaAsのPL発光スペクトル。(b)ピークの１つに関するローレンツ関数フィティング。(c)発光スペクトル幅の励起強度依存性。(d)発光スペクトル幅の温度依存性。

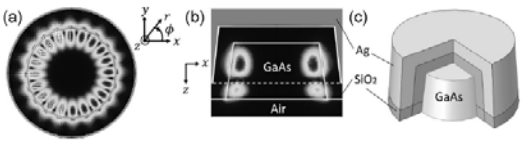


図 5　円柱型微小光共振器の(a)上から見た電界強度分布と(b)横方向から見た電界強度分布。(c)(b)と同じ方向から見た場合の計算された構造の模式図。(b)の破線は円柱構造外部のAg/SiO_2境界。

量子ドットと光子の空間的・時間的な重なりを増すことが有効である。今回、これまで光ファイバとの結合を研究してきた金属埋め込み半導体ナノ構造が、共振Q値～9000と従来報告されてきた値よりも格段に大きなQ値を持つ微小共振器として動作することを確認した。従って今後、光ファイバと金属埋め込み構造の結合という同じ基盤技術に基づいて、効率のよい光子源、光子制御部を実現し、量子情報通信ネットワークの実現へと展開していくことが期待される。

参考文献

[1] X. Liu, et al., *J. Appl. Phys.* **116**, 043103 (July 25, 2014).
[2] H. Sasakura, et al., *Appl. Phys. Express* **6** (2013) 065203.
[3] I. Suemune, et al., *Nanotechnology* **24**, 455205 (2013).
[4] N. Ishihara, et al., *Nanotechnology* **26**, 085201 (2015).

４．資料

4.1　学術論文等

1) R. Inoue, H. Takayanagi, T. Akazaki, K. Tanaka, H. Sasakura, and I. Suemune: “Carrier Flow and Non-equilibrium superconductivity in Superconductor-based Light-emitting Diode” *Appl. Phys. Express* **7**, 073101 (June 16, 2014).
2) X. Liu, H. Kumano, H. Nakajima, S. Odashima, T. Asano, T. Kuroda, and I. Suemune: “Two-photon Interference and Coherent Control of Single InAs Quantum Dot Emissions in an Ag-embedded Structure” *J. Appl. Phys.* **116**, 043103 (July 25, 2014).
3) X. Liu, N. Ha, H. Nakajima, T. Mano, T. Kuroda, B. Urbaszek, H. Kumano, I. Suemune, Y. Sakuma, K. Sakoda: “Vanishing Fine-structure Splittings in Telecommunication-wavelength Quantum Dots Grown on (111)A Surfaces by Droplet Epitaxy” *Phys. Rev. B* **90**, 081301(R) (August 27, 2014).
4) N. Ishihara, H. Kurosawa, T. Takemoto, N. A. Jahan, H. Nakajima, H. Kumano, and I. Suemune: “Subwavelength Metallic Cavities with High-Q Resonance Modes” *Nanotechnology* **26**, 085201 (February 4, 2015).
5) S. S. Mou, H. Irie, Y. Asano, H. Nakajima, H. Kurosawa, H. Kumano, I. Suemune: “Superconducting Light-Emitting Diodes” *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* **21**, 2, 7900111 (March/April, 2015) (**invited paper**).

4.2　総説・解説・評論等

1) 末宗幾夫:「超伝導フォトニクス(超伝導現象とそのフォトニクス応用)」機械の研究(養賢堂発行)第66巻,第5号,2014年pp.371-377。

4.3　特許

1) 末宗幾夫、笹倉弘理、熊野英和、赤崎達志「量子もつれ光子対発生素子および量子もつれ光子対発生方法」
出願番号：特願2013-099881
出願日：平成25年5月10日
2) 末宗幾夫、入江　宏「量子もつれ光子対発生素子および量子もつれ光子対発生方法」
出願番号：特願 2014-097372
出願日：平成26年5月9日

4.4　講演

ａ．招待講演

1) H. Kumano, H. Kurosawa, X. Liu, H. Nakajima, S. Odashima, and I. Suemune: “Metallic Semiconductor Nanostructures for Photonic Applications” International Conference on Metamaterials and Nanostructures, Varadero, Cuba, April 23rd-30th, 2014 (**Invited**).
2) I. Suemune, N. Ishihara, H. Kurosawa, R. Takemoto, H. Nakajima and H. Kumano: “Metallic Nanocavities with High Q Resonance” EMN Summer Meeting, June 9-13, 2014, Cancun, Mexico (**Invited**).
3) H. Kumano, H. Nakajima, X. Liu, T. Harada, and I. Suemune: “Metallic Confinement of Semiconductor Nanostructures and High-efficiency Coupling to Single-mode Optical Fibers” The Collaborative Conference on Materials Research (CCMR) 2014, June 23-27, 2014, Incheon/Seoul, South Korea (**Invited**).
4) T. Kuroda, T. Mano, K. Sakoda, B. Urbaszek, X. Marie, T. Amand, H. Nakajima, H. Kumano, and I. Suemune: “Postselection-free Entangled Photons from Highly Symmetric Quantum Dots Grown by Droplet Epitaxy” SPIE Nanoscience + Engineering, 17-21 August 2014, San Diego, CA, USA, 9167-15 (**invited**).
5) H. Kumano, H. Nakajima, T. Kuroda, T. Mano, H. Kurosawa, S. Odashima, R. Takemoto, X. Liu, K. Sakoda, and I. Suemune: “Single and entangled biphoton generation from semiconductor quantum dot for secure cryptographic telecommunication” 2015 Collaborative Conference on 3D and Materials Research (CC3DMR), June 15-19, 2015, Busan, Korea (**invited**).
6) 熊野英和、中島秀朗、末宗幾夫：「半導体量子ドットによる単一光子および量子もつれ光源」2015 年（平成 27 年）春季第 62 回応用物理学関係連合講演会（平成 27 年 3 月 11-14 日、東海大学）（招待講演）.

ｂ．一般講演

i) **学会**

1) H. Nakajima, H. Kumano, T. Kuroda, T. Mano, B. Urbaszek, Y. Sakuma, K. Sakoda, and I. Suemune: “ Filtering-free Violation of Bell’s Inequality Using Photon Pairs

Generated from a Quantum Dot Grown by Droplet Epitaxy" 8th International Conference on Quantum Dots (QD2014), May 11-16, 2014, Pisa, Italy.

2) H. Kurosawa, N. Ishihara, R. Takemoto, N. A. Jahan, H. Nakajima, H. Kumano, and I. Suemune: "Observation of High Q Cavity Mode in Metal Embedded Semiconductor Nano-pillars" The 41st International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS 2014) May 11-15, 2014, Montpellier, France

3) S. S. Mou, H. Kurosawa, H. Irie, K. Akahane, S. Odashima, H. Kumano, M. Sasaki, and I. Suemune: "Luminescence of Cooper Pairs in an InAs Quantum Dot Heterostructure" The 26th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials (IPRM 2014) May 11-15, 2014, Montpellier, France

4) N. A. Jahan, P. Ahirwar, T. J. Rotter, G. Balakrishnan, H. Kumano, and I. Suemune: "Study of Carrier Transfer Processes in InAs Quantum Dots Grown on InP Substrates" 56th Electronic Materials Conference 2014, June 25-27, University of California Santa Barbara, Santa Barbara, California, USA.

5) H. Kumano, X. Liu, H. Nakajima, S. Odashima, and I. Suemune: "Second-order and Bosonic Interference Properties of a Quantum Dot with Silver Microcolumnar Photon Reflector" 32nd International Conference on the Physics of Semiconductors, August 10-14, 2014, Austin Texas, USA, Session Quantum Optics, Nanophotonics V.

6) S. S. Mou, H. Irie, K. Akahane, H. Kurosawa, H. Nakajima, H. Kumano, M. Sasaki, and I. Suemune: "Signature of Superconducting Density of States in Luminescence Spectra of InAs Quantum Dots" International Conference on Solid-State Devices and Materials, September 8-11, 2014, Tsukuba, H-6-3.

7) 熊野英和、中島秀朗、黒田　隆、劉祥明、間野高明、迫田和彰、末宗幾夫：「量子ドット起源の2光子状態評価と Werner 状態生成」2014 年（平成 26 年）秋季第 75 回応用物理学関係連合講演会（平成 26 年 9 月 17 日－9 月 20 日，北海道大学））18p-C2-16.

8) 原田拓弥、小田島　聡、熊野英和、末宗幾夫：「高 NA レンズ結合型シングルモードファイバ系を用いた量子ドット光源の開発」2014 年（平成 26 年）秋季第 75 回応用物理学関係連合講演会（平成 26 年 9 月 17 日－ 9 月 20 日，北海道大学）18p-A27-15.

9) 中島秀朗、原田拓弥、熊野英和、小田島聡、末宗幾夫：「2波長励起による量子ドット荷電状態制御とその励起ダイナミクスの考察」2014 年（平成 26 年）秋季第 75 回応用物理学関係連合講演会（平成 26 年 9 月 17 日－9 月 20 日，北海道大学）18p-A27-16.

10) Sinthia S. Mou, Hiroshi Irie, Kouichi Akahane, Hiroyuki Kurosawa, Hideaki Nakajima, Hidekazu Kumano, Masahide Sasaki, and Ikuo Suemune:「Enhancement of Luminescence in InAs Quantum Dots employing Cooper-pair Recombination」2014 年（平成 26 年）秋季第 75 回応用物理学関係連合講演会（平成 26 年 9 月 17 日－ 9 月 20 日，北海道大学）18p-C2-17.

11) 黒澤裕之、澤田　桂、熊野英和、末宗幾夫：「一般化された光線方程式と磁気カイラルメタマテリアルにおける光のローレンツ力」物理学会 2014 年秋季大会（平成 26 年 9 月 7-10 日，中部大学）7pAD-7.

12) 細井響子、高橋　亨、黒澤裕之、中島秀朗、赤羽浩一、熊野英和、末宗幾夫、早瀬潤子：「InP(311)B 基板上 InAs 量子ドットからの単一光子発生とその温度特性」2015 年（平成 27 年）春季第 62 回応用物理学関係連合講演会（平成 27 年 3 月 11-14 日、東海大学）.

13) 熊野英和、中島秀朗、末宗幾夫：「半導体量子ドットによる単一光子および量子もつれ光源」2015 年（平成 27 年）春季第 62 回応用物理学関係連合講演会（平成 27 年 3 月 11-14 日、東海大学）.

14) 中島秀朗、熊野英和、劉　祥明、間野高明、黒田　隆、末宗幾夫：「(111)A 面上量子ドットにおける励起子微細構造分裂の高精度評価」2015 年（平成 27 年）春季第 62 回応用物理学関係連合講演会（平成 27 年 3 月 11-14 日、東海大学）.

15) X.Liu, T. Kuroda, T. Mano, H. Nakajima, H. Kumano, I. Suemune, Y. Sakuma, and K. Sakoda:「Entangled Photon Emission at Temperature up to 60 K from Droplet Epitaxial Quantum Dots」2015 年（平成 27 年）春季第 62 回応用物理学関係連合講演会（平成 27 年 3 月 11-14 日、東海大学）.

4.5　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）

1) 末宗幾夫、京セラ株式会社：「PbS太陽電池における光方向変換層の特性シミュレーションと微細加工」(2015年3月1日～2015年12月31日)

4.6　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、研究期間）

1) 熊野英和、基盤研究(B)（2012年度～2014年度）半導体ナノ構造中２準位系の共鳴エネルギー変動の研究

f．その他（研究担当者、機関名、研究課題、研究期間）

1）熊野英和、大川情報通信基金、(2014年度）微小金属鏡筒構造の導入による広帯域高効率量子情報通信用光源の開発

2) 熊野英和、村田学術振興財団、(2015年度)　長期安定性に優れたﾌﾟﾚｰﾅ型高輝度単一光子光源の開発

4.8　社会教育活動

ａ．公的機関の委員

1)　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）
2)　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）

ｂ．国内外の学会の主要役職

1)　末宗幾夫：電子情報通信学会　レーザ・量子エレクトロニクス研究専門委員会専門委員(平成７年5月20日～現在)
2)　末宗幾夫:Journal of Nanoelectronics and Optoelectronics, Editorial Board (2005年12月～現在)
3)　末宗幾夫：電子情報通信学会　次世代ナノ技術に関する時限研究専門委員会専門委員（2004年５月～現在）
4)　熊野英和:(公社)日本応用物理学会人材育成委員(2012年 4月～現在)

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、電子デバイス工学、末宗　幾夫、2014年4月1日～2014年9月30日
2)　工学部、応用数学Ⅱ演習、末宗　幾夫、2014年04月01日～2014年09月30日
3)　工学部、統計力学、熊野 英和、2014年10月01日～2015年03月31日
4)　工学部、電子情報工学実験、熊野 英和、2014年04月01日～2015年03月31日
5)　情報科学研究科、光電子物性学特論、末宗　幾夫、熊野　英和、2014年04月01日～2014年09月30日

ｉ．ポスドク・客員研究員など

黒澤裕之
中島秀朗

ｊ．修士学位及び博士学位の取得状況

・修士学位

1)　原田拓弥：「半導体量子ドット単一光子光源のシングルモード光ファイバへの高効率結合に関する研究」

ナノアセンブリ材料研究分野

教　授　中村貴義（東大院、理博、1997.4～）
准教授　野呂真一郎（京大院、工博、2004.7～）
助　教　久保和也（阪大院、工博、2010.10～）
博士研究員　越智里香　(2014.4～)
研究員　遠藤大五郎　(2014.4～2015.3)
院　生　吉竹理 (DC2)、熊俊(DC2)、大島雄(DC1)、中川翔太(MC2)、山田晃弘(MC2)、渡辺大樹(MC2)

１．研究目標

一つの分子が発現する機能は多様であり、分子が示す光・電子機能性、生理活性などに基づき、エレクトロニクス・材料・医薬など広範な分野での応用に供されている。一方、複数の分子が集合すると、それぞれの分子に起因する機能だけでなく、異種分子間の相互作用により、単一の分子では実現できない新たな機能発現が期待できる。我々の研究室では、ナノメートル領域で複数の分子が集合した“ナノアセンブリ”に着目し研究を進めている。分子の自己集積化過程を設計・制御することで新奇なナノアセンブリ構造を実現し、さらに集合体における協同現象を積極的に利用することで、単一分子では達成できない機能の発現を目指す。ナノメートル領域で設計されたナノアセンブリを周期的に配列した材料、すなわちナノアセンブリ材料は、多くの場合、単結晶の形態を有する。その構造と機能の相関を詳細に検討し、次代を担う新奇材料を開拓することが、我々の研究目標である。

２．研究成果

(a)　結晶性超分子ローターによるマルチフェロイクス材料の構築

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行っている。

これまでに、Cs_2([18]crown-6)$_3$[Ni(dmit)$_2$]$_2$ や (anilinium)([18]crown-6)[Ni(dmit)$_2$]結晶における、[18]crown-6分子の回転運動や、anilinium (ani$^+$) カチオンあるいは*m*-fluoroanilinium (*m*-Fani$^+$)カチオンの180°フリップーフロップ運動に関する報告を行った。例えば既に報告した(*m*-Fani$^+$)(dibenzo[18]crown-6)[Ni(dmit)$_2$]結晶では、ani$^+$カチオンのフリップーフロップ運動が、固体中で分極反転場を起こすことで強誘電体となることを見いだした。この超分子カチオンのエネルギー反転機構による強誘電性発現と強磁性など物性発現機構に組み合わせることができれば、マルチフェロイクス材料開発につながる複合的な物性を発現する分子集合体の構築手法を確立することができる。分子性結晶中における複合機能発現を実現するためには、エネルギー反転機構を実現する回転分子周りの結晶空間の確保ならびに、強磁性発現部位の精密設計が重要である。本研究では、上述のFlip-Flop運動をより効果的に発現させるための空間制御と強磁性発現機構を安定に共存させた系の確立を目的とし、パラ-フェニレンジアミンの二プロトン化体(H_2PPD^{2+})を含む超分子カチオンとマンガン-クロムオギザレート錯体($[Mn^{II}Cr^{II}(oxalate)_3]^-$)から構築される結晶を合成した。このカチオンは二価のカチオンであるため、マイナス一価のアニオンとの結晶を構築した場合、一価のカチオンである*m*-Fani$^+$に比べ結晶内でのフリップーフロップ分子回転運動に対する空間が二倍になり、結晶内における分子回転には極めて有利である。さらに、$[Mn^{II}Cr^{II}(oxalate)_3]^-$錯体は強磁性を発現する可能性が高いため、結晶内における超分子カチオンの回転空間制御と強磁性発現部位の共存が可能となる。そこで二価のカチオンが存在する結晶として　(H_2PPD^{2+})(benzo[18]crown-6)$_2$[MnCr(oxalate)$_3$](CH$_3$OH)(CH$_3$CN)$_2$ (**1**)を、一価のカチオンを有する結晶として(*o*-FAni$^+$)$_2$(DCH[18]crown-6)$_2$[Mn(CH$_3$OH)Cr(oxalate)$_3$][MnCr(oxalate)$_3$](CH$_3$OH)　(*o*-FAni$^+$ = *m*-fluoroanilinium, DCH[18]crown-6 = dicyclohexano[18]crown-6) (**2**) を合成し、回転子周りにおける結晶空間の変化ならびに強磁性発現を検証し、マルチフェロイクス材料の構築に向けた設計指針の確立を目指した。

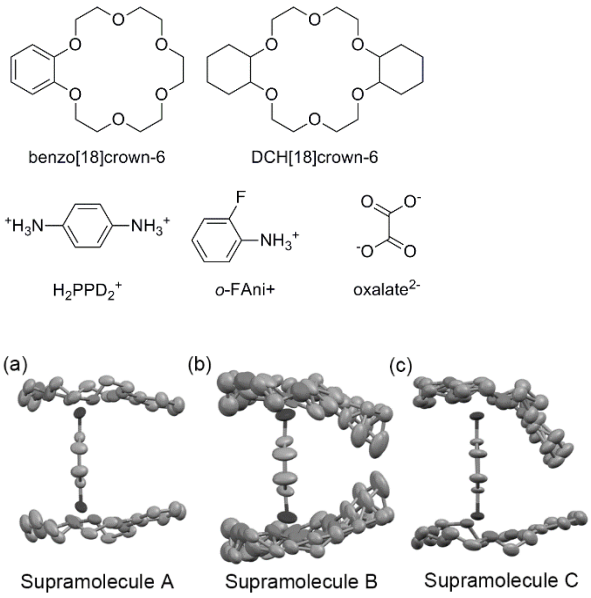


図1　結晶1における超分子カチオンの構造

結晶**1**に存在するH_2PPD^{2+}の窒素原子は、N-H···O水素結合を通じて、クラウンエーテルとサンドイッチ型の超分子カチオンを形成した（図1）。この超分子カチオンの構造は、(*m*-Fani$^+$)(dibenzo[18]crown-6)[Ni(dmit)$_2$]結晶とは大きく異なり、回転分子となるH_2PPD^{2+}カチオン周りに分子回転に有利な広い空隙をもつ。回転軸に対し二つの水素結合部位を導

入したカチオンを用いた結果と言えるが、このようなサンドイッチ型構造の超分子カチオンの安定化には、$[Mn^{II}Cr^{II}(oxalate)_3]^-$アニオン錯体の構造が大きく影響している。図2に、結晶**1**の*a*軸方向から見た構造を示す。一般的に$[Mn^{II}Cr^{II}(oxalate)_3]^-$錯体は、二次元ハニカム構造を構築することが多い。これは、金属イオン周りが$[Mn(\Lambda)Cr(\Delta)(oxalate)_3]^-$型の配向をもつためである。しかし結晶**1**では、超分子カチオン周りを囲む三次元的なかご型構造を構築している。これは結晶**1**には結晶学的に独立な二つのユニット$[Mn(\Lambda)Cr(\Lambda)(oxalate)_3]^-$と$[Mn(\Lambda)Cr(\Delta)(oxalate)_3]^-$が存在し、その結果新規な3次元構造をもつオギザレート骨格が実現していることが分かった。一方、結晶**2**のオギザレート部位も結晶**1**とは異なる3次元構造を構築し、超分子カチオン周りに大きな空隙が形成されていることが分かった。これらの結果から超分子カチオンのような嵩高く柔軟なカチオンは、$[Mn^{II}Cr^{II}(oxalate)_3]^-$錯体の構造を大きく変化させ、超分子カチオンの回転運動に対し有利に働くことが分かった。いずれの3次元構造も、5.5 Kにおいて強磁性転移を発現する。結晶**1**の超分子カチオンによるフリップ−フロップ運動に対する回転障壁を見積もったRHF計算では、各回転障壁が20, 60, および100 kJmol^{-1}という、(*m*-Fani$^+$)(dibenzo[18]crown-6)の回転障壁に比べ非常に小さくなっている。この回転分子に双極子モーメントを導入することができれば、強誘電性と強磁性が共存した分子性結晶の構築が可能となった。結晶**1**と**2**は、超分子カチオンと$[Mn^{II}Cr^{II}(oxalate)_3]^-$錯体間に存在する静電的相互作用により形成される、安定なイオン性結晶である。本研究で用いた超分子カチオンは、様々な機能性アニオンとイオン性結晶を構築できる利点があることから、将来的な複合機能材料開発のビルディングブロックとして活用できることが期待できる。フリップ−フロップ運動に伴う複合的に大きな分子座標の変位が起こることに加えて、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、マルチフェロイクス材料を代表とする複合機能発現材料などへの展開が期待できる。

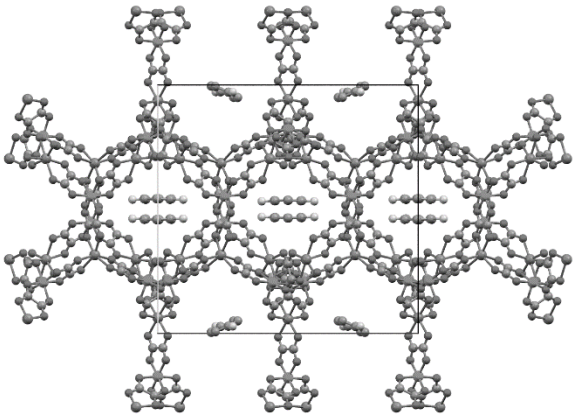


図2　結晶1の*a*軸方向から見た構造

(b)　超分子ローター構造—ポリオキソメタレート錯体水素結合ネットワーク系への展開

上述のローター分子はカチオン性であるため、対アニオンとして様々な機能を有する対アニオンとネットワーク構造を構築することが可能である。超分子ローターの分子回転に必要な空間を制御する手法として、我々は、複数の水素結合部位を有する、ポリオキソメタレート(POM)錯体との水素結合ネットワークに着目した。Keggin型のPOMは、$[SMo_{12}O_4O^{2-}]$は球状の嵩高いアニオンで、分子内に存在する複数の水素受容部位と超分子カチオンが水素結合でネットワークを構築し、ローター構造の分子回転に有利な空隙を構築することができる。本研究では、$[(m\text{-}XAni^+)(DB[18]crown\text{-}6)]_2[SMo_{12}O_{40}^{2-}]\cdot 4CH_3CN$ (X = F, Cl, Br or I; それぞれ結晶**3**, **4**, **5** および **6**)を合成した。結晶**3**のネットワーク構造を図3に示す。*m*-Xani$^+$の窒素原子とクラウンエーテルの酸素原子間の水素結合により超分子カチオンが形成されていた。さらにこの超分子カチオンのDB[18]crown-6の芳香族水素とKeggin型POM錯体の分子表面に存在する複数の酸素原子間に水素結合が形成され、図3に示すような超分子ローター−ポリオキソメタレート錯体の三次元的なネットワーク構造が構築されることが分かった。結晶**3**, **4**, および**5**では超分子カチオン内の回転分子に存在するハロゲン原子に、強誘電結晶(*m*-Fani$^+$)(dibenzo[18]crown-6)$[Ni(dmit)_2]$のフッ素原子に見られたようなディスオーダーがみられた。結晶内の分子配列により、カチオンの分子回転運動は阻害されていたが、POM錯体のような嵩高い分子でも水素結合ネットワーク構造形成により、分子回転制御に対し有効に働くことを明らかにすることができた。本研究で用いたPOM錯体は、気体や溶媒の吸着剤としても有用な材料である。結晶内で分子回転可能な超分子カチオン分子とPOM錯体を組み合わせたネットワーク構造は、フリップ−フロップ運動に伴う分子座用の変位に伴う吸着挙動の制御など、新しい複合機能発現材料への展開が可能となる結果を得た。

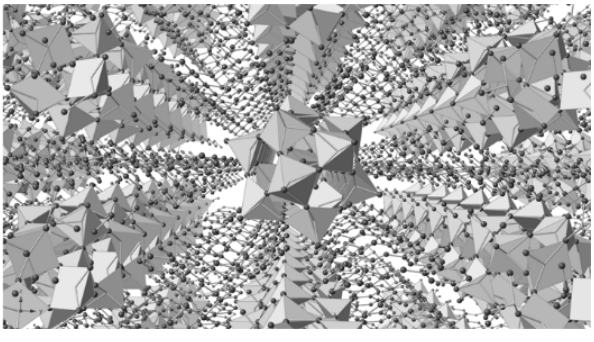


図 3. 結晶 3 の構造

(c) 金属錯体を用いた新奇多孔性材料の開発

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、金属錯体の構築部品として軽量、低毒性、ユビキタス元素である軽金属イオンに着目し、これらを骨格中に導入した新奇多孔性材料の開発を試みた。

これまで金属錯体の金属イオンとして重金属イオンが用いられてきたが、これらを軽金属イオンに置換することができれば安価で生物に優しい多孔性金属錯体が構築できる。しかしながら、軽金属イオンを含む多孔性軽金属錯体の合成例は重金属イオンに比べて圧倒的に少なかった。我々は、軽金属イオンが硬い酸であることに着目し、軽金属イオンに配位可能な中性の硬い塩基性有機配位子4,4'-bipyridine-*N*,*N*'-dioxide (bpdo)を用いて錯体合成を試みた。その結果、二種類の多孔性軽金属錯体 $\{[Mg_2(1,4\text{-bdc})_2(bpdo)]\cdot 2DMF\}_n$ (**7**⊃2DMF; 1,4-bdc = 1,4-benzenedicarboxylate) と $\{[Ca(1,4\text{-bdc})(bpdo)]\cdot 0.5DMF\}_n$ (**8**⊃0.5DMF)の単結晶を得ることに成功した。単結晶X線構造解析から、両錯体は一次元の細孔をもつ三次元構造を形成し、bpdo配位子は我々の期待通り軽金属イオン間を架橋していることが明らかとなった（図4）。これまで、中性配位子で架橋された多孔性軽金属錯体の合成例はほとんどなく、我々の合成戦略による多様な多孔性軽金属錯体の構築が期待される。また細孔構造は、ゲスト分子DMF除去後も安定であり、可逆的にN_2やCO_2などのガスを吸脱着できることが分かった。さらに、室温におけるCO_2/CH_4混合ガスを用いた分離実験を試みたところ、高選択的にCO_2が分離除去できることを確認した(図5)。以上の結果から、両錯体は吸着分離材料への応用が強く期待できる。今後は、bpdo配位子の誘導体を用いた多孔性軽金属錯体の合成を進め、多孔性軽金属錯体の構造多様化と実用化を進める。

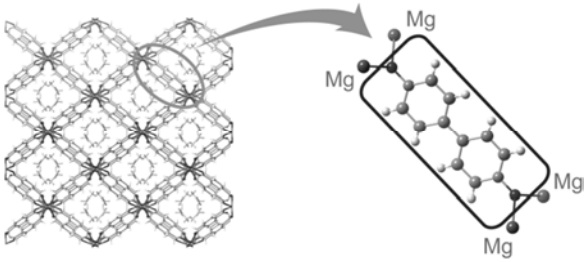


図4. 結晶7の(a)細孔構造、(b)bpdo配位子のMgイオン架橋構造。

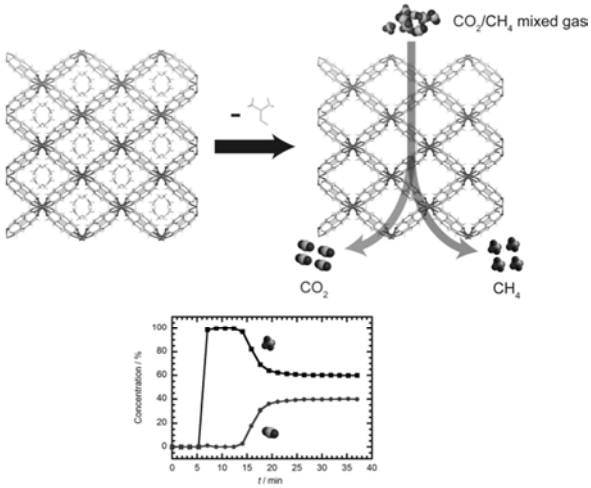


図5. 結晶7 の298KにおけるCO_2/CH_4混合ガス（40:60）分離特性。

3．今後の研究の展望

ナノアセンブリ材料として、(1)分子回転など結晶内における分子集合体の分子運動を積極的に利用した、強誘電体、分子ローター・プロトン移動共存体による機能性材料開拓を行うとともに、(2)柔軟な構造を持つ金属錯体を用いた新規多孔性材料の開発を進めてきた。いずれの材料系においても、分子集合体において分子の動的自由度を確保し、それを活用することが機能発現の鍵となっており、単一分子では実現し難い、分子集合体特有の性質を積極的に利用した材料系であるといえる。分子集合体を用いる最大の利点は、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も大きな特徴である。今後も、このような分子集合体特有の機能に基づく材料の開拓を進めていく。

4．資料

4.1 学術論文等

1）K. Takahashi, N. Hoshino, T. Takeda, S. Noro, T. Nakamura, S. Takeda, T. Akutagawa*, "Crystal structures, CO_2 adsorption, and dielectric properties of $[Cu(II)_2(R\text{-Benzoate})_4(pyrazine)]^{\infty}$ polymers (R = m-F, 2,3-F_2, m-Cl, and m-CH_3)", *Dalton Transactions*, **43**, 9081-9089 (2014).

2）K. Takahashi, N. Hoshino, S. Noro, T. Nakamura, T. Akutagawa*, "Crystal Structures, Dielectric, and CO2-adsorption Properties of One-dimensional $[Cu(II)_2(Adamantane\text{-}1\text{-}carboxylate)_4(pyrazine)]$ Coordination Polymers with Polar Ligands", *Science of Advanced Materials*, **6**, 1417-1424 (2014).

3）Y. Shishido, T. Takeda, N. Hoshino, S. Noro, T. Nakamura,

T. Akutagawa*, “Molecular Assembly and Ferroelectric Response of Benzenecarboxamides Bearing Multiple —$CONHC_{14}H_{29}$ Chains”, *Journal of Physical Chemistry C*, **118**, 21204-21214 (2014).

４） Y. Yoshii, N. Hoshino, T. Takeda, H. Moritomo, J. Kawamata, T. Nakamura, T. Akutagawa*, “The Formation of Organogels and Helical Nanofibers from Simple Organic Salts”, *Chemistry – A European Journal*, **20**, 16279-16285 (2014).

５） K. Rijeesh, P. K. Hashim, S. Noro, N. Tamaoki*, “Dynamic induction of enantiomeric excess from a prochiral azobenzene dimer under circularly polarized light”, *Chemical Science*, **6**, 973-980 (2014).

６） Z. Zhang, M. Sadakane*, S. Noro, T. Murayama, T. Kamachi, K. Yoshizawa, W. Ueda*, “Selective carbon dioxide adsorption of ε-Keggin-type zincomolybdate-based purely-inorganic 3D frameworks”, *Journal of Materials Chemistry A*, **3**, 746-755 (2014).

７） J. Xiong, K. Kubo*, S. Noro, T. Akutagawa, T. Nakamura*, “Supramolecular cations of (*m*-halogenated-anilinium)(dibenzo[18]crown-6) in Keggin [$SMo_{12}O_{40}^{2-}$] polyoxometallates”, *CrystEngComm*, **17**, 856-861 (2015).

８） S. Noro*, J. Mizutani, Y. Hijikata, R. Matsuda, H. Sato, S. Kitagawa, K. Sugimoto, Y. Inubushi, K. Kubo, T. Nakamura*, “Porous coordination polymers with ubiquitous and biocompatible metals and a neutral bridging ligand”, *Nature Communications*, **6**, 5851 (2015).

９） T. Endo, K. Kubo*, M. Yoshitake, S. Noro, N. Hoshino, T. Akutagawa, T. Nakamura*, “Three-Dimensional Architectures of $[Mn^{II}Cr^{III}(oxalate)_3]^-$ Complexes with Cage-Type Networks Surrounding Supramolecular Cations”, Crystal Growth and Design, **15**, 1186-1193 (2015).

１０） M. Endo, Y. Nakane, K. Takahashi, N. Hoshino, T. Takeda, S. Noro, T. Nakamura, T. Akutagawa*, “Mesophases and Ionic Conductivities of Simple Organic Salts of M(*m*-Iodobenzoate) (M = Li^+, Na^+, K^+, Rb^+, and Cs^+)”, *Journal of Physical Chemistry B*, **119**, 1768-1777 (2015).

１１） T. Takeda, J. Tsutsumi, T. Hasegawa, S. Noro, T. Nakamura, T. Akutagawa*, “Electron-deficient Acene-based Liquid Crystals: Dialkoxydicyanopyrazinoquinoxalines”, *Journal of Materials Chemistry C*, **3**, 3016-3022 (2015).

１２） A. Kobayashi*, Y. Suzuki, T. Ohba, T. Ogawa, T. Matsumoto, S. Noro, H. Chang, M. Kato*, “Systematic Syntheses and Metalloligand-Doping in Flexible Porous Coordination Polymers Composed of a Co(III)-metalloligand”, Inorganic Chemistry, **54**, 2522-2535 (2015).

１３） S. Noro*, R. Ochi, Y. Inubushi, K. Kubo, T. Nakamura*, “CH_4/CO_2 and CH_4/C_2H_6 gas separation using a flexible one-dimensional copper(II) porous coordination polymer”, *Microporous and Mesoporous Materials*, **212**, in Press.

4.2 講演

a. 招待講演

ⅰ）国際学会

１） K. Kubo*, T. Endo, M. Yoshitake, N. Hoshino, T. Akutagawa, S. Noro, T. Nakamura : “Structure and physical properties of ferromagnetic crystals with supramolecular cations”, 3rd International Conference and Exhibition on Materials Science & Engineering (OMICS Group Journals), San Antonio, USA (2014-10).

ⅱ）研究会・シンポジウム・ワークショップ

１） T. Nakamura : “Dielectrics based on Supramolecular Rotators”, The 8th International Symposium on Organic Molecular Electronics (ISOME 2014), Koganei (2014-05).

ⅲ）コロキウム・セミナー・その他

１） 中村貴義 : “分子性材料の多重機能化に必要な設計指針”, 分子性材料の多重機能化に関する第1回インキュベーションセミナー小金井 (2014-10).

２） T. Nakamura : “Dielectrics based on Supramolecular Rotator Units in Single Crystals”, Lecture for Students in Graduate School of Zhengzhou University, 鄭州, China (2014-10).

３） 中村貴義 : “分子の回転を利用した電子材料の開拓”, 第四回 次世代の物質科学・ナノサイエンスを探る, 札幌 (2015-01).

b. 一般講演

ⅰ）学会

１） M. Yoshitake*, K. Kubo, S. Nishihara, K. Inoue, T. Akutagawa, S. Noro, T. Nakamura : “MAGNETIC PROPERTIES OF A $[MnCr(OXALATE)_3]^-$ SALT WITH CHIRAL SUPRAMOLECULAR CATION”, International Conference of Synthetic Metals (ICSM2014), Turku, Finland (2014-07).

２） Y. Ohshima*, K. Kubo, S. Noro, T. Akutagawa, T. Nakamura : “Proton Transfer and Dielectric Properties of 4-Aminopyridinium/Crown Ether Supramolecular Crystals”, International Conference of Synthetic Metals (ICSM2014), Turku, Finland (2014-07).

３） S. Nakagawa, K. Kubo, S. Noro, T. Akutagawa, T. Nakamura : “SUBSTITUENT EFFECTS ON THE DIELECTRIC RESPONSE AND MOLECULAR MOTIONS IN THE SUPRAMOLECULAR CRYSTALS”, International

Conference of Synthetic Metals (ICSM2014), Turku, Finland (2014-07).

４）A. Yamada*, K. Kubo, N. Hoshino, T. Akutagawa, S. Noro, T. Nakamura : “ DIELECTRIC PROPERTIES OF $[Ni(DMIT)_2]^-$ CRYSTALS WITH (AMINOPYRIDINIUM DERIVATIVES)(DICYCLOHEXANO[18]CROWN-6) SUPRAMOLECULAR CATIONS”, International Conference of Synthetic Metals (ICSM2014), Turku, Finland (2014-07).

５）D. Watanabe*, K. Kubo, N. Hoshino, T. Akutagawa, S. Noro, T. Nakamura : “CRYSTAL STRUCTURE AND DIELECTRIC PROPERTIES OF (4-AMINOPYRIDINIUM$^+$) (TRANS-ANTI-TRANS- DICYCLOHEXANO[18]CROWN-6)$[Ni(DMIT)_2]^-$”, International Conference of Synthetic Metals (ICSM2014), Turku, Finland (2014-07).

６）J. Xiong*, D. Endo, K. Kubo, S Noro, T. Nakamura : “Mixed-valence $[S_2Mo_{18}O_{62}]^{n-}$ (n = 4, 5, 6) and $[Ln(Mo_8O_{26})_2]^{5-}$ (Ln = Gd, Tb, Dy, Ho, Er), as magnetic counter anions for supramolecular rotators.”, The 14th International Conference on Molecule-Based Magnets (ICMM2014), Saint Petersburg, Russia (2014-07).

７）吉竹理*、久保和也、西原禎文、井上克也、芥川智行、野呂真一郎、中村貴義 : “キラル超分子カチオンを導入した[MnCr(oxalate)3]-結晶の磁気挙動”, 日本化学会北海道支部　2014年　夏季研究発表会, 苫小牧 (2014-07).

８）大島雄*、久保和也、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義: “4-aminopyridinium/crown ether 超分子結晶における水素結合と誘電性”, 日本化学会北海道支部　2014年夏季研究発表会, 苫小牧 (2014-07).

９）中川翔太*、久保和也、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義 : “結晶性分子ローターの置換基交換による誘電応答の変化”, 日本化学会北海道支部　2014年　夏季研究発表会, 苫小牧 (2014-07).

１０）S. Noro*, T. Nakamura : “New Synthetic Strategy for Construction of Light Metal Porous Coordination Polymer”, 41th International Conference on Coordination Chemistry (ICCC2014), Singapore (2014-07).

１１）越智里香*、野呂真一郎、久保和也、中村貴義 : “電荷分極したピリジン - N-オキシド構造を有する配位子を用いた高分子状軽金属錯体の合成と構造”、錯体化学会第64回討論会、東京 (2014-09).

１２）久保和也*、劉尊奇、山田晃弘、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義 : “2,6-ジアミノピリジンおよび2-アミノピリミジンとクラウンエーテル誘導体からなる超分子カチオン結晶の誘電応答”, 第8回分子科学討論会, 東広島 (2014-09).

１３）渡辺大樹*、久保和也、星野哲久、芥川智行、野呂真一郎、中村貴義 : “アミノピリジニウム/キラルクラウンエーテル誘導体カチオンを導入した$[Ni(dmit)_2]^-$錯体結晶の合成と物性”, 第8回分子科学討論会, 東広島 (2014-09).

１４）中川翔太*、久保 和也、野呂真一郎、芥川智行、中村 貴義 : “アニリニウム誘導体/ジベンゾ[18]クラウン-6超分子ローター構造を有する混晶の合成と物性評価”, 第8回分子科学討論会, 東広島 (2014-09).

１５）S. Noro*, J. Mizutani, Y. Hijikata, K. Kubo, T. Nakamura : “Porous Light Metal Coordination Polymers with Charge-Polarized Neutral Ligand”, MOF2014, 神戸 (2014-09).

１６）T. Nakamura* : “Functional Magnetic Materials based on Mn-Cr Oxalte Complexs”, 10th IUPAC International Conference on Novel Materials and their Synthesis (NMS-X), Zhengzhou, China (2014-10).

１７）J. Xiong*, D. Endo, K. Kubo, S. Noro, T. Nakamura : “Designing ferroelectric materials by modulating polyoxometallates and supramolecular cations”, 10th IUPAC International Conference on Novel Materials and their Synthesis (NMS-X), Zhengzhou, China (2014-10).

１８）野呂真一郎* : “表面固溶化法による金属錯体のゲスト分子吸着分離特性の精密制御”, 日本化学会中国四国支部大会, 山口 (2014-11).

１９)吉竹理*、久保 和也、西原禎文、井上克也、芥川智行、野呂真一郎、中村貴義 : “有機アンモニウム / クラウンエーテル誘導体超分子カチオンが誘起する$[MnCr(oxalate)_3]^-$キラル結晶の磁気挙動”、 化学系学協会北海道支部2015年冬季研究発表会、札幌 (2015-01).

２０）越智里香*、野呂真一郎、魚谷信夫、高橋由紀子、久保和也、中村貴義 : “多孔性金属錯体の細孔を反応場とする新規糖鎖合成法の開発”、 日本化学会第95春季年会、船橋 (2015-03).

ii）研究会・シンポジウム・ワークショップ

１）T. Nakamura* : “Supramolecular Rotator Structures in Magnetic Crystals”, Core-to-Core/Leverhulme Trust Joint Workshop, Otaru 2014 “Organic Electronics of Highly-Correlated Molecular Systems”, Otaru (2014-10) .

２）S. Noro* : “Rational Design and Realization of Ubiquitous and Biocompatible Metal-Based Porous Coordination Polymers”, Core-to-Core/Leverhulme Trust Joint Workshop, Otaru 2014 “Organic Electronics of Highly-Correlated Molecular Systems”, Otaru (2014-10).

３）Y. Ohshima*, K. Kubo, S. Noro, T. Akutagawa, T. Nakamura : “Structure and Physical Properties of (Fluoroadamantylammonium)(Dicyclohexano[18]crown-6) Supramolecular Cation in $[Ni(dmit)_2]$ Crystal”, Core-to-Core/Leverhulme Trust Joint Workshop, Otaru 2014 “Organic Electronics of Highly-Correlated Molecular Systems” , Otaru (2014-10).

４）M. Yoshitake*, K. Kubo, S. Nishihara, K. Inoue, T. Akutagawa, S. Noro, T. Nakamura : “Crystal structure and physical properties of $[MnCr(oxalate)_3]^-$ complexes with supramolecular cations”, Core-to-Core/Leverhulme Trust Joint Workshop, Otaru 2014 “Organic Electronics of Highly-Correlated Molecular Systems”, Otaru (2014-10).

５）J. Xiong*, D. Endo, K. Kubo, S. Noro, T. Nakamura : “Designing ferroelectric materials by modulating polyoxometallates and supramolecular cations”, Core-to-Core/Leverhulme Trust Joint Workshop, Otaru 2014 “Organic Electronics of Highly-Correlated Molecular Systems”, Otaru (2014-10).

６）S. Nakagawa*, K. Kubo, S. Noro, T. Akutagawa, T. Nakamura : “Substituent Effect on Molecular Motions in Supramolecular Crystals of (Anilinium Derivatives)(Dibenzo[18]crown-6)$[Ni(dmit)_2]$”, Core-to-Core/Leverhulme Trust Joint Workshop, Otaru 2014 “Organic Electronics of Highly-Correlated Molecular Systems”, Otaru (2014-10).

７）A. Yamada*, K. Kubo, N. Hoshino, T. Akutagawa, S. Noro, T. Nakamura : “Structure and Dielectric Properties of the Crystals Composed of Supramolecular Cations Having Multi Hydrogen Bonding Sites”, Core-to-Core/Leverhulme Trust Joint Workshop, Otaru 2014 “Organic Electronics of Highly-Correlated Molecular Systems”, Otaru (2014-10).

８）久保和也*、劉尊奇、山田晃弘、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義 : “結晶内分子ローター/プロトン移動共存系超分子結晶開発”, 附置研究所間アライアンス第二回若手研究会, 吹田 (2014-11).

９） T. Nakamura* : “Supramolecular Rotators in Single Crystals”, 4th Symposium on Artificial Life and Biomimetic Functional Materials, Tokyo (2014-11).

１０）中村 貴義* : “二次元層状強磁性体を用いた機能開拓”, 有機固体化学の最前線、松山 (2014-12).

１１）R. Ochi*, S. Noro, K. Kubo, T. Nakamura : “Synthesis, structure, and host-guest properties of light metal coordination polymer using pyridine-N-oxide-based ligand”、2014年電子研国際シンポジウム″響″、札幌 (2014-12).

１２）M. Yoshitake*, K. Kubo, S. Nishihara, K. Inoue, T. Akutagawa, S. Noro, T. Nakamura : “Crystal structure and physical properties of $[MnCr(oxalate)_3]^-$ salts with supramolecular cations”、2014年電子研国際シンポジウム″響″、札幌 (2014-12)

１３）J. Xiong*, D. Endo, K. Kubo, S. Noro, T. Nakamura : “Designing ferroelectric materials by modulating polyoxometallates and supramolecular cations”、2014年電子研国際シンポジウム″響″、札幌 (2014-12).

１４）Y. Ohshima*, K. Kubo, S. Noro, T. Akutagawa, T. Nakamura : “Structure and dielectric properties of supramolecular rotators composed of trans-syn-trans-dicyclohexano[18]crown-6 and alkyl and aryl ammonium derivatives”、2014年電子研国際シンポジウム″響″、札幌 (2014-12).

１５）中村貴義* : “(強磁性 2次元層状錯体を用いた機能性物質開拓”、 新学術領域研究「元素ブロック高分子材料の創出」第6回合同班会議、東京 (2015-01).

ⅲ）コロキウム・セミナー・その他

１）野呂真一郎* : “分子吸着を利用した多重機能性の実現”、分子性材料の多重機能化に関する第1回インキュベーションセミナー、小金井 (2014-10).

4.3 共同研究

ｄ．受託研究

１）野呂真一郎、戦略的創造研究推進事業　さきがけ（科学技術振興機構)、「「フェイク分子」法による多孔性金属錯体空間の超精密ポテンシャル制御とオンデマンド二酸化炭素分離機能発現」、2011年度～2014年度 : 本研究は、分子固溶に基づく「フェイク分子」法により、従来の分子合成技術では構築不可能な“仮想分子”を構築し、CO_2吸着ポテンシャル場を“超精密”に創出することで、極めて高い構造設計性・柔軟性を有する多孔性金属錯体による吸着分離材料を創製し、低エネルギーコスト・高選択的かつ大量にCO_2を分離することができる“オンデマンドな完全CO_2吸着分離”の実現をめざす。

2) 野呂真一郎、戦略的創造研究推進事業　ACCEL（科学技術振興機構)、「PCPナノ空間による分子制御科学と応用展開」、2014年度～2017年度 : 柔軟性PCPは、ゲートメカニズムに基づくガスの容易な吸脱着等、ガス分離材料として優れたポテンシャルを有している。一方で、吸脱着に際してマクロスコピックなレベルで材料の体積が変化する事から、賦形体の変形、崩壊等の現象が生じる事が知られている。本研究では、柔軟性PCPの優れた気体分離及び貯蔵機能を損なうことなく発揮できるPCP賦形体作製技術の開発を目的とする。

4.4 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、新学術領域研究、超分子ローター構造を包含する元素ブロック高分子の階層化と機能相関（2013～2014年度）

２）中村貴義、基盤研究A、分子回転を利用したリラクサーの構築（2014～2017年度）

３）野呂真一郎、基盤研究C、電荷分離型中性配分子を利用した多孔性軽金属錯体の構造多様化（2012～2014年度）

５）久保和也、基盤研究C、多孔性キラル強磁性体と超分子カチオンローターによるマルチフェロイクス材料開発（2014～2016年度）

4.5　受賞

１）大島雄：日本化学会北海道支部優秀講演賞、2014年7月
２）中川翔太：日本化学会北海道支部優秀講演賞、2014年7月

4.6　社会教育活動

a.　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、野呂真一郎
２）　環境科学院、環境物質科学実習II、中村貴義、野呂真一郎、久保和也
３）　環境科学院、環境物質科学論文購読I、中村貴義、野呂真一郎、久保和也
４）　環境科学院、環境物質科学論文購読II、中村貴義、野呂真一郎、久保和也
５）　環境科学院、環境物質科学特別研究I、中村貴義、野呂真一郎、久保和也
６）　環境科学院、環境物質科学特別研究II、中村貴義、野呂真一郎、久保和也
７）　環境科学院、分子環境学特論III、久保和也
８）　全学教育、一般教育演習（フレッシュマンセミナー）、久保和也

b.　ポスドク・客員研究員など

・ポスドク（1名）
１）越智里香（博士研究員）
・研究員（1名）
１）遠藤大五郎（研究員）

c.　修士学位及び博士学位の取得状況

・修士課程（３名）
１）中川翔太
２）山田晃弘
３）渡辺大樹

連携研究部門

研究支援部

理研連携研究分野

客員教授　田中拓男（阪大院、博（工）、2010.4～）
特任助教　石田周太郎（名大院、博（工）、2013.1～）
博士研究員　横田幸恵（北大院、博(情科科学)、2011.4～）

１．研究目標

本連携研究分野では、ナノスケールの人工構造体と光波との相互作用を利用して、「光を止める」、「光を閉じ込める」、「光の波長を変える」といった光の性質を自由自在に操作できる新しい光制御技術の開発を行い、それを利用して、全く新しい原理に基づく、高効率光電変換デバイスや光触媒材料、新奇光量子デバイスの創成を目指している。

理化学研究所の研究室では、光の波長オーダーもしくはそれ以下の構造を人工的に物質に導入することで、より自在に光の振る舞いを制御しようとする技術の一つであるプラズモニック・メタマテリアルを研究テーマの中心に設定し、理論解析と実験の両面から全く新しい光制御物質の研究を進めている。メタマテリアルとは、ナノサイズの金属構造体から構成される一種の人工物質であり、この研究では、ナノ金属と光との相互作用を利用することで物質の光学特性を人工的に制御し、これが生み出す新しい光学現象を利用することで、光を自由自在に制御することを目的としている。このメタマテリアルの面白さは、その光学特性が人工的にデザインした金属の形・構造によって制御できる点で、その構造をうまく設計することで、「負の屈折率」を持つ物質や数百万という巨大な屈折率を持つ物質、光の磁場に応答する物質など自然界の材料ではあり得ないような物質を人工的に作り出す事ができることである。

理研のチームは、これまで立体的なナノ金属構造と光波との相互作用を正確に記述する理論的解析技術を元に、主に赤外～可視光で動作するプラズモニック・メタマテリアルに最適な材料選定や構造設計方法を世界に先駆けて明らかにし、さらにこれを用いた新奇光機能デバイスの提案を行ってきた。一方、本連携研究室のパートナーである北大電子研の三澤、笹木両教授のグループは、高分子の３次元加工や電子線リソグラフィー法を用いた２次元金属構造体のトップダウン加工技術については世界トップレベルの技術を持っている。さらに、高分子の改質や光化学反応など光反応性物質に関する知識と経験も深く、近年では、光子−分子間の結合を４～５桁増強できるという成果を発表している。本連携研究室では、これら2つのグループが持つ技術を相補的に活用し、両者が共同で研究を実施することで、ナノの構造体を使って光を自在に操る技術を付加した従来とは全く異なる原理に基づく超高率光電変換デバイスの実現を目指す。

このような研究を効率良く実行するには、材料物性の知識だけでも、また純粋な光学技術の知識だけでもだめで、電磁気学的理論解析技術、光学材料合成技術、マイクロ／ナノ加工技術、量子光学理論などさまざまな分野の技術を融合させることが必要である。理研田中メタマテリアル研究室が持つナノ光学に関する知識と経験に、北大電子研グリーンフォトニクス研究室、光システム物理研究室の光機能材料、光化学反応、トップダウン型加工技術等を融合・連携させ、これを新しい光エネルギー変換デバイスの高効率化といったテーマに応用して理論解析と実験を通してその有効性を実証する。

２．研究成果

（ｉ）光電子顕微鏡を用いたナノギャップを有する湾曲金ナノロッドと直線金ナノロッドのプラズモンカップリングモードの可視化（共同研究：グリーンフォトニクス研究室及びナノテク連携推進室）

プラズモニック・メタマテリアル技術を用いて、金のみから構成される効率の高い光捕捉素子の構築を目指し、平成 26 年度はグリーンフォトニクス研究室とナノテク連携推進室との共同研究でそのプロトタイプの評価を行った。ダークモードプラズモンは放射損失がない分 Q 値が高いという性質があり、近年このダークモードと Q 値が低いブライトモードとの共鳴相互作用を利用した疑似電磁誘起透明化現象が注目されている。これまでの研究から湾曲金ナノロッドと直線金ナノロッドが相互作用するように近接して配置したハイブリッド金ナノ構造では、2 つの透過ディップの間に透過ピークが得られた。単独の湾曲金ナノロッドは単純な直線ロッドとは異なる湾曲形状に起因するプラズモン共鳴ピークを示す。これは偶数次数の共鳴モードであり、直線ロッドの場合には平面波を垂直に入射するだけでは励起できないダークモードに対応する。透過スペクトルの結果から、ハイブリッド金ナノ構造は湾曲ロッドのブライトモードを介して直線ロッドのダークモードを励起し、さらに両者の相互作用の結果発現する疑似電磁誘起透明化現象の透過ピークを引き起こしたと結論した。一方、グリーンフォトニクス研究室及びナノテク連携推進室では超高速時間分解光電子顕微鏡システムを用いて、フェムト秒レーザーで励起することにより金属ナノ構造の局在プラズモン共鳴に基づく光電場強度分布を観測できることを明らかにした。そこで本研究ではグリーンフォトニクス研究室とナノテク連携推進室との共同研究で、近赤外フェムト秒レーザーを光源とした光電子顕微鏡を用いてハイブリッド金ナノ構造内に励起される表面プラズモン共鳴を直接観察し、プラズモンカップリングモードの可視化を行った。

ハイブリッド金ナノ構造は湾曲ロッドの弧長と同じ長さを持つ直線ロッドを図 1(a)に示すようにギャップサイズ 10 nm と近接させて配置し、ITO 基板上に電子線リソグラフィー／リフトオフ技術を用いて作製した。図 1(b)は、入射光の直線偏波を X 方向に照射した際の透過スペクトルである。ハイブリッド金ナノ構造は、2 つの共鳴ディップの間であ

る波長 770 nm 付近に透過ピークが観測された。

励起光源に水銀ランプ及びフェムト秒レーザー（中心波長域：720 nm–900 nm）を使用した超高速時間分解光電子顕微鏡システムを用いて、ハイブリッド金ナノ構造の光電子顕微鏡像を観察した。図1(c)に示すように水銀ランプで励起した場合、ハイブリッド金ナノ構造全体が明るい光電子顕微鏡像を得られた。ハイブリッド金ナノ構造の直線ロッドの短軸方向に偏波した直線偏波レーザーを基板に対して垂直に照射したところ、図 1(d)–(f)に示すように励起波長によりホットスポット部分及びフォトエミッション強度の異なる光電子顕微鏡像が観察された。フェムト秒レーザーの励起波長が共鳴ディップの波長である 740 nm と820 nm ではそれぞれ、湾曲ロッドの両端と中心部分の三箇所に、ハイブリッド金ナノ構造のギャップ部分にホットスポットのある光電子顕微鏡像が観察された。透過ピークを示すフェムト秒レーザーの励起波長 770 nm ではダークモードである直線ロッド上に、ホットスポットのある光電子顕微鏡像が観察された。これらの結果から、光電子顕微鏡を用いてハイブリッド金ナノ構造の湾曲ロッドと直線ロッドとのプラズモンカップリング、つまり直線ロッドのダークモードの可視化に成功したといえる。

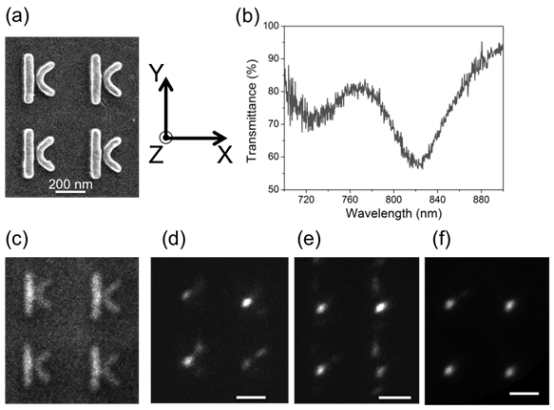


図1: 湾曲ロッドと直線ロッドのハイブリッド金ナノ構造の（a）電子顕微鏡像，（b）入射光の直線偏波x方向の透過スペクトル，(c)–(f) 光電子顕微鏡像，励起光源は（c）水銀ランプ，（d)–(f）フェムト秒レーザー（中心波長(d) 740 nm, (e) 770 nm, (f) 820 nm）．図中の白線は200 nmのスケールを表す．（共同研究：グリーンフォトニクス研究室及びナノテク連携推進室）

（ii）グラフェンナノ構造を用いた光増強場デバイスの製作

単層グラフェンは、炭素原子が六角形の頂点に配置した二次元層構造であり、近年その特異なエネルギーバンド構造や高い移動度のために注目を集め活発に研究がなされている。光学デバイスとしては、テラヘルツ帯域におけるプラズモンの励振や可飽和吸収特性を用いた超短パルスモードロックレーザーの開発、高速な光強度変調器の開発など近赤外から中赤外に渡る広い帯域に渡る応用が進められている。現在、可視波長領域でのグラフェンデバイスの実現が求められ、10 nmに迫る大きさの制御されたナノ構造の作製手法について研究が進められている。本研究は、単層グラフェンシートをナノドット形状にすることで、伝導体と価電子帯のクロスポイントにバンドギャップを生成し、可視領域における光増強場デバイスを作製することにある。そこで、ガラス基板上に転写した単層グラフェンシート上に電子ビーム描画装置を用いてレジストのナノパターンを製作し、金属Crの蒸着後にリフトオフすることによって金属ナノドットパターンを製作する。作製したCrナノ構造をマスクとして、酸素プラズマエッチングを行い、Crナノ構造以外のところで露出しているグラフェンをエッチングした後、Crをウェットエッチングによって取り除くことでガラス基板上にグラフェンナノ構造を作製した。図2に作製したグラフェンナノ構造のSEM像と粒径を示す。トップダウンプロセスにおいて、粒径50 nm以下の構造を制御性良く作製することに成功した。

図3に、ラマン散乱スペクトルのナノ構造粒径依存性を示す。欠陥由来のDバンド(1350 cm^{-1})の信号強度で規格化することで図3(a)に示すように粒径に依存してGバンド（1580 cm^{-1}）の強度が小さくなることを確認した。また図3(b)に示すように、酸素プラズマエッチングのプロセス時間を長くすることによって同一設計パターンの微細化を確認した。この結果は、アンダーカット量の調整によるグラフェンナノ構造の更なる微細化の可能性を示唆している。

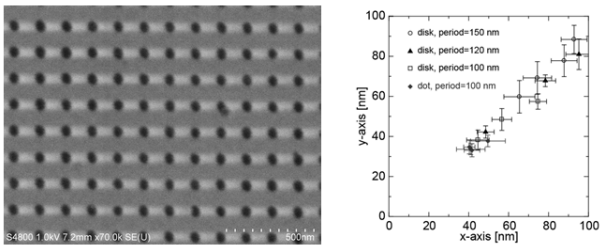


図2: (a) グラフェンナノディスク構造のSEM像, (b) 製作したナノ構造サイズの粒径.

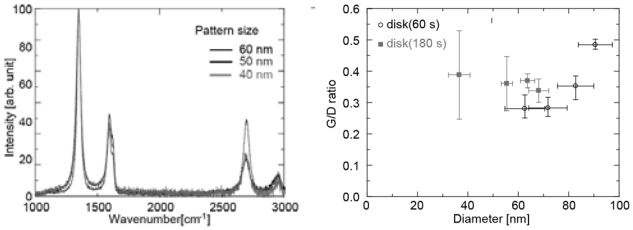


図3: (a) ラマン散乱スペクトルのディスクサイズ依存性, (b) G/D比のディスク直径依存性.

これらの結果は、金属マスクを用いたことによってグラフェンを更にナノ粒子化できることを示しており、制御された微細なナノ構造の実現と可視領域におけるグラフェンデバイスの実現の可能性を示唆するものである。

3．今後の研究の展望

平成26年度の結果から、湾曲金ナノ構造及びグラフェンを用いて高効率光電変換素子に向けた新しい光機能デバイスの開発を目指す。今後も北大電子研グリーンフォトニクス研究室、光システム物理研究室との共同研究も進めていく予定である。

4．資料

4.1 学術論文等

1) T. Amemiya, A. Ishikawa, T. Kanazawa, J.-H. Kang, N. Nishiyama, Y. Miyamoto, T. Tanaka, and S. Arai: "Permeability-controlled optical modulator with Tri-gate metamaterial: control of permeability on InP-based photonic integration platform", Sci. Rep., 5: 8985 (2015).
2) C.-C. Chen, A. Ishikawa, Y.-H. Tang, M.-H. Shiao, D. P. Tsai, and T. Tanaka: "Uniaxial-isotropic Metamaterials by Three-dimensional Split-Ring Resonators", Adv. Opt. Mater., 3: 44-48 (2015).
3) K. Kamata, P. Zhenzi, S. Suzuki, T. Fujimori, W. Tajiri, K. Nagai, T. Iyoda, A. Yamada, T. Hayakawa, M. Ishiwara, S. Horaguchi, A. Belay, T. Tanaka, K. Takano, and M. Hangyo: "Spirulina-Templated Metal Microcoils with Controlled Helical Structures for THz Electromagnetic Responses", Sci. Rep., 4: 4919 (2014).

4.2 総説・解説・評論等

1) 田中拓男：「総論 光メタマテリアルの作り方」、 オプトロニクス、33巻、8号、48-49 (2014).
2) 田中拓男：「DNAや外部磁場を使った光メタマテリアルの自己組織化作成法」、オプトロニクス、33巻、8号、60-64 (2014).
3) 田中拓男：「光メタマテリアルの作製技術」、日本赤外線学会誌、24巻、1号、23-31 (2014).

4.3 講演

a．招請講演

ⅰ）学会

1) T. Tanaka*: "Three-dimensional two-photon laser fabrication for metals, polymers, and magneto-optical materials", Photonics West 2015, SanFrancisco, USA (2015-02).
2) T. Tanaka* and A. Ishikawa: "Fabrication of Isotropic Infrared Metamaterials", The 8th International Congress on Advanced Electromagnetic Materials in Microwaves and Optics (Metamaterials 2014), Technical University of Denmark, Copenhagen, Denmark (2014-08).
3) T. Tanaka*, A. Ishikawa, C.-C Chen, and D-P. Tsai: "Isotropic Infrared Metamaterials", SPIE Optics&Photonics 2014, SanDiego, USA (2014-08).
4) T. Tanaka*, C.-C. Chen, A. Ishikawa, Y.-H. Tang, M.-H. Shiao, and D. P. Tsai: "Isotropic metamaterials", META2014, Nanyang Technological University, Singapore, Singapore (2014-05).

ⅱ）研究会・シンポジウム・ワークショップ

1) T. Tanaka*: "Isotropic metamaterials", Japan-Singapore International Workshop on Nanophotonics, Plasmonics and Metamaterials, Nanyang Technological University, Singapore, Singapore (2014-12).
2) T. Tanaka*: "Optical Metamaterials", The 2nd RIKEN-SJTU Workshop on Energy and Environment, 理研, 和光 (2014-11).
3) 田中拓男*：「光メタマテリアルをめざして」、関東光科学若手研究会、明治大学、川崎 (2014-11).
4) T. Tanaka*: "Combination of top-down and bottom-up techniques for isotropic metamterials", IWAMSN2014, Ha Long City, Vietnam (2014-11).
5) 田中拓男*:「光メタマテリアルとその加工技術」、2014最先端実装技術シンポジウム、東京ビッグサイト、東京 (2014-06).
6) 田中拓男*：「等方性メタマテリアル」、有機エレクトロニクス材料研究会 (JOEM)「プラズモニクス最前線」、新宿 NS ビル、東京 (2014-04).
7) T. Tanaka*: "Towards Three-dimensional Optical Metamaterials", RIKEN iTHES (Interdisciplinary Theoretical Science) Workshop, 理研, 和光 (2014-04).

ⅲ）コロキウム・セミナー等・その他

1) 田中拓男*：「プラズモニック・メタマテリアル」、日本オプトメカトロニクス協会セミナー　基礎からよく分かる「ナノ領域の光学」入門、機械振興会館、東京 (2015-02).
2) 田中拓男*：「科研費新学術計画班オ　共振型３次元メタマテリアルの作製と機能評価」、科研費新学術「電磁メタマテリアル」全体会議 (2014-10).
3) 田中拓男*：「メタマテリアルとものづくり」、モノづくり日本会議、ホテルグランドパレス、東京 (2014-09).

b．一般講演

1) 石田 周太郎*、田中 隆介、笹木 敬司：「グラフェンナノ構造における光学特性のサイズ依存性評価」、2015年第62回応用物理学会春季学術講演会、東海大学湘南キャンパス、平塚 (2015-03).
2) 横田幸恵*、田中拓男：「湾曲金ナノロッドダイマー構造とV字型金ナノダイマー構造の光学特性の比較」、2015年第62回応用物理学会学術講演会講演、東海大学湘南キャンパス、平塚 (2015-03).
3) Y. Yokota* and T. Tanaka: "Plasmonic resonant interaction between gold nanostructures of curvilinear and straight nanorods", The 4th Korea-Japan Metamaterials Forum, Osaka Univ., 豊中 (2014-12).
4) S. Ishida* and K. Sasaki: "Fabrication of graphene nano-disks and analysis of their Raman spectra", The 15th RIES-Hokudai international symposium 響 [hibiki], CHÂTERAISÉ Gateaux Kingdom Sapporo, Sapporo (2014-12).

5) Y. Yokota* and T. Tanaka: “Photoelectron observation of Plasmonic Coupling Properties of hybrid gold nanostructures of curvilinear and straight nanorods”, The 15th RIES-Hokudai International Symposium 響 [hibiki], CHÂTERAISÉ Gateaux Kingdom Sapporo, Sapporo (2014-12).
6) 石田周太郎*、笹木敬司 : 「グラフェンナノディスクの微細加工とその光学特性評価」、第 2 回アライアンス若手研究交流会、大阪大学産業科学研究所、茨木 (2014-11).
7) 横田幸恵*、田中拓男 : 「構造配置による湾曲金ナノロッド構造のプラズモン特性」、2014年光化学討論会、北海道大学、札幌 (2014-10).
8) S. Ishida* and K. Sasaki: “Fabrication of graphene nano-disk and analysis of their optical properties”, Belgium and Japan Joint Symposium on Nanoplasmonics and Nanoimaging Chemistry, Hokkaido University, Sapporo (2014-10).
9) Y. Yokota* and T. Tanaka: “Dark-Bright Plasmon Coupling between Gold Curvilinear Nanorods and Straight Nanorods”, Belgium and Japan Joint Symposium on Nanoplasmonic and Nanoimaging Chemistry, Hokkaido University, Sapporo (2014-10).
10) 石田 周太郎*、関根 裕明、笹木 敬司 : 「電子ビーム描画を用いたグラフェンナノディスクの作製と光学特性評価」、2014年第75回応用物理学会秋季学術講演会、北海道大学札幌キャンパス、札幌 (2014-09).
11) Y. Yokota*, Q. Sun, K. Ueno, Y. Matuo, H. Misawa, and T. Tanaka: “Visualization of Plasmonic Coupled mode of Gold Curvilinear Nanorods and Straight Nanorods by Photoemission Electron Microscopy”, 2014年第75回応用物理学会秋季学術講演会OSA Joint Meeting, Hokkaido University, Sapporo (2014-09).
12) 横田幸恵*、田中拓男:「メタマテリアルにおけるプラズモン誘起透明化現象」、第4回先端フォトニクスシンポジウム、日本学術振興会、東京 (2014-08).
13) H. Kawagoe*, S. Ishida, M. Aramaki, Y. Sakakibara, E. Omoda, H. Kataura and N. Nishizwa: “Improvement of Sensitivity and Penetration Depth in Ultrahigh-resolution Optical Coherence”, Advanced Lasers and Photon Sources (ALPS)’14, PACIFICO Yokohama, Yokohama (2014-04).

4.4 予算獲得状況

ａ. 科学研究費補助金

1) 田中拓男、新学術領域研究、「共振型３次元メタマテリアルの作製と機能評価」 (2010～2014年度) .

4.6 共同研究

a. 所内共同研究

1) グリーンフォトニクス研究分野(三澤弘明教授, 上野貢生准教授, 孫泉特任助教)及びナノテク連携推進室(松尾保孝准教授)と「光電子顕微鏡を用いたナノヤップを有する湾曲金ナノロッドと直線金ナノロッドのプラズモンカップリングモードの可視化」に関して共同研究を実施した。

4.7 社会教育活動

ａ. 公的機関の委員

1) 田中拓男 : 光産業技術振興協会動向調査委員会委員 (2008年4月1日～)
2) 田中拓男 : 日本学術振興会第151委員会企画委員 (2010年4月1日～)
3) 田中拓男 : 日本学術振興会第187委員会企画委員 (2012年10月1日～)
4) 田中拓男 : 公益社団法人応用物理学会代議員第52期 (2015年2月1日～)

ｂ. 国内外の学会の役職

1) 田中拓男 : 公益社団法人応用物理学会代議員第52期 (2015年2月1日～)

ニコンイメージングセンター

教　授　根本知己（東工大院、博士(理学)、2012.03～）
准教授　松尾保孝（北大院、博士(工学)、2012.03～）
特任助教　大友康平（東北大院、博士(薬学)、2012.06～）
技術職員　小林健太郎（北大院、博士(理学)、2012.03～）

１．研究目標

近年になって蛍光バイオイメージング技術の必要性が増大し、そうした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の作成技術も大きく向上している。また顕微鏡やカメラなどの各種機器の性能も、飛躍的な向上を遂げている。しかしながら、これらの最新技術・機器を用いることで、誰でも即座に優れたデータを得ることができる訳ではないところに、蛍光バイオイメージング技術の難しさがある。

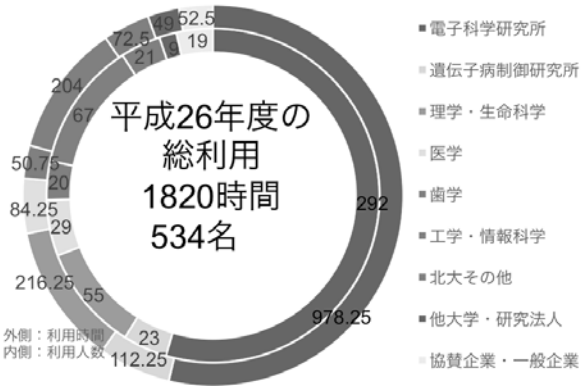
ニコンイメージングセンターは、北海道大学にとどまらず国内外の研究者が最新の生物顕微鏡を利用できる施設として、平成18年にニコンインステック社をはじめとした多数の協賛企業の協力による寄附研究部門として設立された。平成24年度の研究所の改組に伴い、現在は研究支援部の一部門として活動している。研究者と企業の双方と緊密な連絡を取り合うことでニーズとシーズを結びつけ、利用者の要望を速やかに反映させたバイオイメージングに関する更なる技術改良や新技術開発、およびその生物学研究への応用を推進し、そして本学と顕微観察技術の関連企業との連携強化、ならびに本学における教育研究の量と質の充実や活性化や国際的な交流を目指し、以下に掲げる項目に沿った活動を展開している。

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．バイオイメージングの知識と技術の習得を目的として、専属スタッフがイメージング操作の指導を行う。
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26年4月～平成27年3月）

平成26年度の延べ利用人数・利用時間は、534人・1820時間に達した。平成24、25年度のデータ（H24: 261人・1297時間, H25: 404人・2356時間）と比較し、着実にユーザー数が増加していることがわかる。研究者の所属の内訳としては、本学では所内はもちろんのこと、学内の幅広い部局からの利用があった。一方で学外利用としては、他大学の継続的利用者に加え、一般企業数社から新規利用があった。本年度より学会、展示会等でのニコンイメージングセンターの活動アピールを開始したことが一要因になっていると考えられる。



図．平成 26 年度の利用状況と利用者所属の内訳

(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つけている。また本年度は、ニコンイメージングセンターにて開発を行った新規蛍光顕微鏡技術について学会発表、原著論文を通して成果発表を行った。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。

平成25年度からの試みとして、ライフテクノロジーズジャパン株式会社との共催により、蛍光イメージングセミナーシリーズを開催した。ライフテクノロジーズジャパン株式会社から講師を招き、バイオイメージングの基礎、原理から最先端技術を用いた応用例まで幅広い内容のレクチャーを行った。さらに、新体制となった昨年度に引き続き、株式会社ニコンインステックとの共催の蛍光イメージングミニシンポジウムを始めとする各種学術講演会、セミナーを開催し、分野の最先端研究、協賛企業による最新機器開発状況に関する講演を通じ、互いがフィードバックをし合える環境を定期的に提供し続けている。また、本年は電子科学研究所国際シンポジウムにおいてニコンイメージングセンター–ナノテクプラットフォームジョイントセッションを開催し、沖縄科学技術大学院大学のBernd Kuhn博士、筑波大学の久保 敦 博士にご講演いただいた。

３．今後の研究の展望

引き続き、学内外へ当センターを広くアピールするとともに、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。また協賛企業と連携した新型蛍光顕微観察技術開発や各種セミナーの開催など、顕微鏡やその関連手法に関する知識と技術の更なる普及と

深化に努めてゆきたい。

4．資料

4.1 学術論文等

1) K. Otomo, T. Hibi, Y. kozawa, M. Kurihara, N. Hashimoto, H. Yokoyama, S. Sato, T. Nemoto : “Two-photon excitation STED microscopy by utilizing transmissive liquid crystal devices”, Optics Express, 22(23) : 28215-28221 (2014)
2) K. Otomo, T. Hibi, T. Murata, H. Watanabe, R. Kawakami, H. Nakayama, M. Hasebe, T. Nemoto : “Multi-point scanning two-photon excitation microscopy by utilising a high-peak power 1042-nm laser”, Analytical Science, 31 (4) : 307-313 (2015)

4.2 総説・解説・評論等

1) K. Otomo, T. Hibi, Y. kozawa, S. Ipponjima, S. Sato, T. Nemoto : “Super-resolution two-photon excitation microscopy utilizing transmissive liquid crystal devices”, SUPER-RESOLUTION IMAGING IN MEDICINE AND BIOLOGY, Taylor & Francis Books, Inc., in press (2015)
2) T. Nemoto, R. Kawakami, T. Hibi, K. Iijima, K. Otomo : “Two-photon excitation fluorescence microscopy and its application in functional connectomics”, Microscopy, 64(1): 9-15 (2014)
3) 大友康平、日比輝正、根本知己 : “STED 顕微鏡法 － 光渦を用いた誘導放出制御による超解像バイオイメージング”, O Plus E, 37(4) : 283-288 (2015)
4) K. Otomo, T. Hibi, Y. Kozawa, T. Nemoto : “STED microscopy - super-resolution bio-imaging utilising a stimulated emission depletion”, Microscopy, in press (2015)

4.4 受賞

1) 伊藤里紗、日比輝正、大友康平、一本嶋佐理、大嶋佑介、今村健志、根本知己：ベストイメージング賞（畫間賞）「スーパーコンティニュウム光を用いた多色励起高速共焦点顕微鏡法」、第23回バイオイメージング学会学術集会、吹田 (2014-09)
2) 渡邊裕貴、大友康平、日比輝正、村田隆、川上良介、中山博史、根本知己：ベストイメージング賞 オリンパス賞）「2光子励起確率の向上に向けた多点走査方式多光子励起顕微鏡の開発」、第23回バイオイメージング学会学術集会、吹田 (2014-09)

4.5 講演

a．招待講演

ⅰ）学会

1) 大友康平:「新規レーザー走査型蛍光顕微鏡を用いた生体内微細構造の可視化」、日本顕微鏡学会第70回記念学術講演会、千葉 (2014-05)
2) 大友康平, 日比輝正, 小澤祐市, 一本嶋佐理, 横山弘之, 佐藤俊一, 根本知己,「Improvement of spatial resolution of two-photon microscopy by utilizing transmissive liquid crystal devices」, 第37回日本分子生物学会年会、横浜 (2014-11)

ⅱ）研究会・シンポジウム・ワークショップ

1) 大友康平 :「多光子顕微鏡の時間・空間分解能向上」、理研シンポジウム: 最先端光計測とライフサイエンスの近未来- バイオ・ラマン2017、仙台 (2014-05)
2) Kohei Otomo, Terumasa Hibi, Tomomi Nemoto: “Improvement of spatial and temporal resolution of two-photon excitation microscopy for biological specimen”, Narional Chiao Tung University, Taiwan Joint Symposium on Nano, Photo and Bio Sciences, Sapporo (2014-09)
3) 大友康平:「蛍光バイオイメージングにおけるレーザー走査型顕微鏡の役割」、大学力強化のための技術研究会 C コース、札幌 (2015-03)

ⅲ）コロキウム・セミナー等・その他

1) 大友康平:「北海道大学ニコンイメージングセンターの紹介」、Molecular Probes 蛍光イメージングセミナー、札幌 (2014-06)
2) 大友康平 :「空間･時間分解能を向上させた多光子顕微鏡法を用いた生体内微細構造の可視化」、東北大学大学院薬学研究科 第445回薬学研究科セミナー、仙台 (2014-11)
3) 大友康平 :「Improvement of spatial, temporal resolution of two-photon excitation fluorescence microscopy」、第3回自然科学研究機構コロキウム、足柄下 (2014-12)

b．一般講演

ⅰ）学会

1) Kohei Otomo, Terumasa Hibi, Yuichi Kozawa, Hitoyuki Yokoyama, Shunichi Sato, Tomomi Nemoto: “DEVELOPMENT OF THE STIMULATED EMISSION DEPLETION MICROSCOPE USING TRANSMISSION-TYPE LIQUID CRYSTAL DEVICES”, Focus On Microscopy 2014, Sydney (2014-04)
2) Hiroshi Nakayama, Kohei Otomo, Terumasa Hibi, Takashi Murata, Ryosuke Kawakami, Tomomi Nemoto: “MULTIPOINT MULTIPHOTON MICROSCOPE”, Focus On Microscopy 2014, Sydney (2014-04)
3) 伊藤里紗、日比輝正、大友康平、一本嶋佐理、大嶋佑介、今村健志、根本知己:「スーパーコンティニュウム光を用いた多色励起高速共焦点顕微鏡法」、第23回バイオイメージング学会学術集会、吹田 (2014-09)
4) 渡邊裕貴、大友康平、日比輝正、村田隆、川上良介、中山博史、根本知己:「2光子励起確率の向上に向けた多点走査方式多光子励起顕微鏡の開発」、第23回バイオイメ

ージング学会学術集会、吹田（2014-09）
5) 村田隆、大友康平、日比輝正、川上良介、中山博史、野中茂紀、根本知己、長谷部光泰:「2光子スピニングディスク顕微鏡による紡錘体形成の3D タイムラプス解析」、第23回植物形態学会第26回総会・大会、川崎（2014-09）
6) 村田隆、大友康平、日比輝正、川上良介、中山博史、根本知己、長谷部光泰:「2光子スピニングディスク顕微鏡の広視野化と植物紡錘体の4D イメージングへの応用」、定量生物学の会 第七回年会、春日（2015-01）

ⅱ）研究会・シンポジウム・ワークショップ

1) 大友康平、日比輝正、小澤祐市、横山弘之、佐藤俊一、根本知己、「透過型液晶デバイスを用いて作成した光渦による多光子励起 STED 顕微鏡の開発」、附置研究所間アライアンスによるナノとマクロをつなぐ物質・デバイス・システム創製戦略プロジェクト 平成25年度成果報告会、豊中（2014-05）
2) Kohei Otomo, Terumasa Hibi, Tomomi Nemoto: “Improvement of spatial and temporal resolution of multi-photon excitation microscopy for live specimens”, The 37th Naito Conference, Abuta (2014-07)
3) 大友康平、日比輝正、根本知己：「新規レーザー走査型多光子顕微鏡による生体内微細構造の可視化」、認定NPO 法人 綜合画像研究支援（IIRS）創立十周年記念学術講演会、東京（2014-11）
4) Kohei Otomo, Terumasa Hibi, Tomomi Nemoto: “Improvement of spatial and temporal resolution in two-photon excitation microscopy”, 附置研究所間アライアンスによるナノとマクロをつなぐ物質・デバイス・システム創製戦略プロジェクト（ナノマクロ物質・デバイス・システム創製アライアンス）医療材料・デバイス・システムグループ G3 分科会、博多（2014-11）
5) Kohei Otomo, Terumasa Hibi, Risa Ito, Sari Ipponjima, Yusuke Oshima, Takeshi Imamura, Tomomi Nemoto: “Excitation spectral imaging by utilizing supercontinuum laser light source”, 附置研究所間アライアンスによるナノとマクロをつなぐ物質・デバイス・システム創製戦略プロジェクト（ナノマクロ物質・デバイス・システム創製アライアンス）医療材料・デバイス・システムグループ G3 分科会、博多（2014-11）

4.8 シンポジウムの開催

ｂ．一般のシンポジウム

1) ニコンイメージングセンターとライフテクノロジーズジャパン社との共同開催：「Molecular Probes 蛍光イメージングセミナーシリーズ –発見にスピードを–」、参加者15名、北海道大学（2014年6月24日）
2) ニコンイメージングセンターとニコンインステック社との共同開催：「第三回 蛍光バイオイメージング・ミニシンポジウム」、参加者40名以上、北海道大学（2014年9月24日）
3) ニコンイメージングセンターとニコンインステック社との共同開催:「ニコンイメージングセンター超解像セミナー」、総参加者30名、北海道大学（2014年11月6日）
4) ニコンイメージングセンターとニコンインステック社との共同開催:「ニコンイメージングセンター超解像セミナー ″シナプス可視化による脳の機能解明–新しい光学顕微鏡と電子顕微鏡技術″, 岡部繁男 教授（東京大学・大学院医学系研究科)」、総参加者30名、北海道大学（2015年1月29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) 大友康平、若手研究（B)、多光子励起光活性化法を利用した生体深部の単一細胞内 cAMP 濃度制御手法の開発、2013 ～ 2014年度

国際連携推進室

教　授　小松崎民樹（総研大、理博、2007.10～）
教　授　三澤　弘明（筑波大学、理博、2003.5～）
教　授　笹木　敬司（阪大院、工博、1997.11～）
教　授　太田　裕道（東工大院、工博、2012.9～）
教　授　根本　知己（東工大院、理博、2009.9～）
准教授　上野　貢生（北大院、博(理)、2010.1～）
准教授　藤原　英樹（北大院、工博、2008.6～）
助　教　川上　良介（九大院、理博、2010.6～）

１．研究目標

電子科学研究所は、欧米の4つの研究所、アジアの3つの研究所と交流協定を締結し、スタッフや学生の交流、ジョイントシンポジウム等や共同研究プロジェクトを積極的に実施している。国際連携推進室は、これまでの国際連携活動を発展させて、国際連携に関する企画立案・企画助言の役割を担うとともに、国際ネットワークのハブとして連携活動を充実・強化するために平成24年度に設置されたものである。国内の研究所ネットワークと海外の研究組織ネットワークが連携するプログラムなども計画している。

２．研究成果

(a) 国内の研究所ネットワークと海外の研究組織ネットワークが連携するプログラムの推進

電子科学研究所の今後の国際連携戦略を推進するための準備、共同研究打ち合わせを行った。具体的には、電子科学研究所のいくつかの研究室と共同研究が実施されているリヨン高等師範学校（フランス）、ベルリン・フンボルト大学（ドイツ）、ルーヴァン・カトリック大学（ベルギー）を中心として、日本学術振興会先端拠点形成事業に申請した。申請は書類選考を通過し、国際連携推進室室長の小松崎教授、三澤教授、リヨン高等師範学校のコーディネーターのArezki Boudaud 教授らと面接に臨んだが採択に至らなかったが、2015 年度、再申請する予定である。

(b) トップランナーとの協働体制の構築

世界の課題解決に貢献する教育研究力ならびに知名度を向上させることを目標に掲げ、北海道大学が主導となって行う「Hokkaido ユニバーサルキャンパス・イニシアチブ」構想の一環である、平成 26 年度トップランナーとの協働教育機会拡大支援事業（トップコラボ事業）に小松崎教授を代表とするグループが採択された。それにより、世界でも有数の研究機関のトップランナー達を招聘することができ、2015 年 1 月にリヨン高等師範学校（フランス）の Arezki Boudaud 教授、2 月にアカデミアシニカ(台湾)の Peilin Chen 研究員、Bi-Chang Chen 研究員、3 月にアカデミアシニカ物理学研究所（台湾）の Ting-Kuo Lee 所長、Hwu Yen-Kuang 研究員、Chia-Fu Chou 研究員、Lee Wei-Li 研究員、Chii-Dong Chan 研究員、Chia-Seng Chang 研究員を招聘した。各トップランナーの来研時には、URA ステーション担当者との意見交換、講演会、他部局を含むラボツアー等を実施し、電子研を軸とした全学の国際連携推進を行った。3 月のアカデミアシニカ物理学研究所の Ting-Kuo Lee 所長（他 5 名）の来研時には電子科学研究所との研究交流協定の調印式を実施し、組織レベルでの国際連携推進をサポートした。このような活動を今後に繋げ、2015 年度はトップランナーと本学関係者の間で Hokkaido SI（北海道サマー・インスティュート）に係る合意形成を進めていきたい。

資料 1. アカデミアシニカ物理学研究所とトップコラボ事業の共催で The 1st IOP-RIES Joint Workshop (also as Top-Collaboration Support Project Workshop)を開催（2015 年 3 月 23 日）。

資料 2. 台湾 Academia Sinica の Peilin Chen 博士、Bi-Chang Chen 博士との座談会の様子。Spotlight on Research と題して特集記事が北大ホームページに掲載された（2015 年 2 月 23 日）。

(c) 第 15 回 RIES-HOKUDAI 国際シンポジウム「響」開催に貢献

本シンポジウムは北大・電子科学研究所が主催し、所内だけでなく海外、国内、及び、学内の研究機関に広く開かれた国際シンポジウムであり、関係機関の新たな連携と分野横断的な学問や技術を生み出す土壌を提供することを目

的としている。2014 年度は国際連携推進室の委員である根本教授が委員長を、上野准教授が委員を担当し、本学の支援の下、the 3rd International Symposium of Nano-Macro Materials, Devices, and System Research Alliance Project との共催により 12 月 16･17 日、シャトレーゼ ・ ガトーキングダム・サッポロにおいて開催した。本学をはじめ、国内では東北大学、九州大学、東京工業大学、金沢大学、大阪大学、東京大学、沖縄科学技術大学院大学、筑波大学から、海外では国立陽明大学(台湾)、清华大学（中国)、ローレンス・バークレー国立研究所（米国）からの総勢 150 人を超える院生、ポスドク、研究者などの参加者が集った。本学は、電子科学研究所のほかに先端生命科学研究院、工学研究院からも参加があり、ポスター賞の授与などを行い、新たな国際連携推進を促した。

３．今後の研究の展望

電子科学研究所における国際的なネットワークを構築するうえで、海外から見て、電子科学研究所がどのような国際連携活動をしているのかを情報発信していくことが肝要であろう。そのうえで、学術協定をすでに締結しているいくつかの海外研究機関とのより強固な協力関係の構築、実質が伴った新たな学術協定の締結、先端拠点形成事業などの新たな研究資金の調達などを通して、電子科学研究所のもつ国内ネットワークと海外の研究組織ネットワークが連携するプログラムなどをサポートしていく。国際共同研究を展開している教授4－5名がコアとなり、戦略的かつ多角的に国際連携推進室の充実をさらに図っていきたい。

４．資料

2014年度はトップコラボ事業を充当していただいた。その予算などを利活用して、トップコラボ事業に関係の深い海外の研究者を電子研に招へいした。

また、以下、（）内の研究分野は各訪問者の主な訪問先である。

1. Arezki Boudaud教授、France、リヨン高等師範学校（2015年01月24日～2015年01月28日）（分子生命数理研究分野、生命科学院・芳賀／川端研、生命科学院・佐々木／福井研、医学部・佐邊研など）
2. Peilin Chen研究員、Bi-Chang Chen研究員、Taiwan、アカデミアシニカ（2015年02月02日～2015年02月04日）（ニコン・イメージングセンター、光細胞生理研究分野、コヒーレント光研究分野、医学部・佐邊研、先端生命・金城研、情報・岡嶋研）
3. Ting-Kuo Lee所長、Hwu Yen-Kuang研究員、Chia-Fu Chou研究員、Lee Wei-Li研究員、Chii-Dong Chan研究員、Chia-Seng Chang研究員、Taiwan、アカデミアシニカ（2015年03月22日～2015年03月25日）（ニコン・イメージングセンター、クリーンルーム、グリーンフォトニクス研究分野、コヒーレント光研究分野）

ナノテク連携推進室

准 教 授　松尾保孝（北大院、博士(工学)、2010.1～）
(以下、創成研究機構・ナノテク連携研究推進室)
特任助教　吉田　裕（2012.4～）
特任助教　王　永明（2012.9～）
学術研究員　福本　愛（2007.6～）
学術研究員　川井直美（2012.4～）
学術研究員　細井浩貴（2012.9～）
学術研究員　中野和佳子（2014.4～）
学術研究員　渡辺真理子（2013.8～）

１．研究目標

ナノテク連携推進室はグリーンイノベーションやライフイノベーションといった社会的課題を解決するための学術研究、技術・産業創出には欠かせない超微細加工やナノ領域の構造解析・分析といったナノテクノロジーの利用を支援する組織となっている。通常、ナノテクノロジーを利用・活用するためにはクリーンルームのような特殊環境や最新鋭の大型設備を有し、かつ運用するための知識と経験が無くてはならないが、単独の研究室や研究者だけで実現することは困難になりつつある。そこで、ナノテクノロジー連携推進室では電子研技術部と協力しながら電子研オープンファシリティー機器（共用化装置）に関する運営、学内外からのナノテクノロジー研究の相談窓口としての機能を担っている。加えて、平成24年7月よりスタートした文部科学省が行う全国的なナノテクノロジー装置共用化プログラムである「ナノテクノロジープラットフォーム」事業についても業務実施者として参画している。北海道大学は微細構造解析プラットフォーム、微細加工プラットフォーム事業の実施機関として名を連ねることとなったが、ナノテクノロジープラットフォーム事業は全学事業として創成研究機構・ナノテクノロジー連携研究推進室が担っており、電子科学研究所ナノテク連携推進室はその一部として工学研究院（ナノ・マイクロマテリアル分析研究室、光電子分光分析研究室、超高圧電子顕微鏡室）、情報科学研究科と連携し、学内だけでなく全国の大学・公的研究機関・民間企業に対してナノテクノロジーに関する支援に取り組んでいる。特に、超微細加工と微細構造解析の 二つの 機能を有機的に連携させた支援を実現し、光・電子・スピンを制御する新規ナノデバイス創製、および新機能ナノ物質創出に関する研究開発を支援することを目的として事業推進を行っている。原子層堆積装置やプラズマCVD装置、超高精度EB 描画装置、マスクアライナー、RIE 装置、ICPドライエッチング装置、FIB 装置、イオンビームスパッタ装置などのナノ加工・デバイス化装置による超微細加工に関する支援を行うとともに、高性能 STEM、超高圧透過型電子顕微鏡、各種プローブ顕微鏡、X線光電子顕微鏡装置、オージェ電子分光装置、集束イオンビーム加工・分析 装置などによる種々のナノ計測・表面分析支援までを幅広く行っている。

２．研究成果

(a)　利用実績（平成26年４月～平成27年３月）

平成26年度の支援状況として、ナノテクノロジープラットフォーム事業としての実施内容について記載する。微細加工PFに関する利用件数は84件、うち、企業15件・他大学24件・公的研究機関5件と半数以上を学外への支援として実施した。また微細構造解析PFに関しては、電子研以外の施設による支援も含めて利用件数は89件、うち、企業22件・他大学14件・公的研究機関6件とこちらも半数近くを学外への支援として実施した。昨年度よりも全支援課題数は減少したが、これは学外への支援を優先して行った結果である。これ以外にも成果非公開（自主事業）として行った支援活動や、ナノテクノロジープラットフォーム以外の電子研共用設備による支援活動も継続して行った。

支援を行った研究は国内外への論文投稿、学会発表につながっている。微細加工PFでは学会発表が108件、論文掲載が21件、特許出願が2件であった。また、微細構造解析では学会発表が203件、論文掲載が58件、特許出願が1件となった。加えて、本学利用実績が平成25年度のナノテクノロジープラットフォーム事業の優れた支援成果として選定され、nanotech2015のナノテクノロジー総合シンポジウムで表彰、成果発表が行われた。

(b)　ナノテクノロジープラットフォーム事業活動

ナノテクノロジープラットフォーム事業は3つのプラットフォーム（微細加工、微細構造解析、分子物質合成）ごとに各機関が参画して行う事業となっており、北海道大学は微細加工・微細構造解析の2つのプラットフォームに属している。電子科学研究所としても両方のプラットフォーム対して装置供出を行っており、研究支援と共に関連する会議などにおいて支援成果報告や広報活動を行っている。また、技術職員を含めた研究支援者は外部での技術研修に参加し、より優れたナノテクノロジー支援の実現を目指して技術研鑽に務めている。昨年度は技術部から微細加工PFの技術支援者交流に参加、日常的な支援活動への工夫などを報告し、その発表に対して有識者から表彰を受けている。この他に、北洋銀行ものづくりフェア、応用物理学会、生物物理学会、BioOptioJapan2014など、数多くの学会・展示会へ出展を行い、外部ユーザーへの広報活動を行った。

(c)　低炭素研究ネットワーク事業

北海道大学は「低炭素社会構築に向けた研究基盤ネットワークの整備」事業において、サテライト研究拠点「光アンテナ搭載高効率光電変換システム研究拠点の整備構想」（拠点長：佐伯浩、研究代表：三澤弘明）が採択され、現在

事業実施中である。本事業は「グリーン・ナノテクノロジー」の研究開発を加速推進することを目的とする文部科学省のプロジェクトであり、18拠点（3ハブ拠点／15サテライト拠点）がネットワーク化し、最先端の研究開発機器を広く有効活用すると共に、研究拠点相互の連携を強め、「低炭素社会」の早期実現を目指す研究推進プログラムとなっている。高精度電子線描画装置やレーザー描画装置、原子層堆積装置（ALD）や時間分解光電子分光装置（TR-PEEM）が稼働し、学内外から積極的に利用されるようになった。ナノテクノロジープラットフォームと一体となって運用を行い、幅広いユーザーへの装置開放を行った。

特に原子層堆積装置はユーザー側に立った柔軟な運用を行っており、企業ユーザー数社の利用につながっている。

（d）創成研究機構　北海道企業群によるナノ加工技術集積拠点の形成　－ナノインプリントによる生産技術の開発－

「創成研究機構」が中核となり、北海道立の研究施設群及び北海道内の各企業との間において産学官連携研究を推進し、「ナノ加工技術を集積した拠点」を形成すると共にナノインプリント生産技術を開発・産業応用や新たな産業の創出を目指すプロジェクトを実施いている。現在は主担当部局として事業推進を行っている。道総研や道内企業との共同研究によりナノインプリント技術自身に関する開発とその応用技術開発を行い、参画企業への技術移転の推進を図った。

(e)設備運用状況

平成26年度からは電子科学研究所として導入を希望していた収差補正電子顕微鏡の本格稼働を始めた。本装置は、従来の共用化電子顕微鏡とは異なり、収差を補正することで原子分解能のTEM/STEM像ならびに元素マッピングを実現可能な装置である。メーカーからの技術指導を受け、これまでよりも格段に向上したTEM/STEM像の取得が可能になっている。徐々に所内ユーザーへ技術的な指導を行うことで良好なデータが得られるようになりつつある。今後は学内外ユーザーにも積極的な装置開放を進めていく。また、ナノテクノロジープラットフォーム事業で導入した超高速スキャン電子線描画装置については、企業ユーザーからの積極的な利用により高い稼働率が実現できた。このほかにも収差補正機能を追加した光電子顕微鏡システム、TEM/STEM収差補正電子顕微鏡（超高圧電子顕微鏡室に設置）が支援装置として順調に運用され、民間企業からの利用につながっている。微細加工や構造解析を支援するための試料前処理装置（基板切断機、研磨機、加熱処理装置など）についての技術蓄積も行い、より一層の支援体制の充実に努めた。

3．今後の研究の展望

ナノテク連携室はこれまでと同様に文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム事業を核として研究支援活動を行っていく予定である。また、各事業を統括する代表機関（物質・材料研究機構、京都大学）やセンター機関（物質・材料研究機構、JST）との連携による支援活動の充実、学内の共同利用施設とも密な関係を築き、研究支援の効率化や高度化を進める。また、技術部とも協力して、新しい支援技術の開発や民間企業を含めた学内外との共同研究、若手研究者や企業技術者への技術指導を行い、研究開発力強化への支援を継続していく。

4．資料

4.1　その他

1）　平成26年度　成果報告書

4.2　講演

ⅲ）コロキウム・セミナー等・その他

1）　松尾保孝､大西広　「大面積･高速描画への取り組み」、微細加工プラットフォーム　ナノフォトニクス＆EB実践セミナー、東工大（2014-6）
2）　松尾保孝、大西広　「ALDを用いた多様な構造・材料への薄膜形成」、微細加工プラットフォーム　3次元造形＆薄膜実践セミナー、東工大（2014-9）
3）　松尾保孝　「ナノテクノロジープラットフォーム事業の紹介」、北大リサーチ＆ビジネスパークセミナー、ホテル日航大阪（2014-11）
4）　松尾保孝　「北大微細加工・微細構造解析プラットフォーム」、平成26年度第1回地域セミナーin北海道、札幌市（2014-10）
5）　松尾保孝　「焼結体材料によるインプリント用金型作製技術」､ナノテクノロジープラットフォーム新技術説明会、東京JSTホール　（2014-12）

4.3　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）

1）　笹木敬司、大塚俊明（工学研究院）、北海道大学、ナノテクノロジープラットフォーム(微細加工PF,微細構造解析PF)、2012年度～21年度
2）　三澤弘明、北海道大学、光アンテナ搭載高効率光電変換システム研究拠点の整備構想、2010年度
3）　松尾保孝、北海道大学、チタン窒化物による可視光域のプラズモニックデバイス創製、2013年度～14年度

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

年度／部門等		平成23年	年度／部門等		平成24年	平成25年	平成26年
電子材料物性部門	欧　文	33 (32)	光科学研究部門	欧　文	25 (24)	21 (21)	9 (7)
	邦　文	0		邦　文	0	0	5 (2)
電子機能素子部門	欧　文	24 (21)	物質科学研究部門	欧　文	17(14)	11 (10)	23 (18)
	邦　文	1 (1)		邦　文	2(2)	0	3
電子計測制御部門	欧　文	20 (20)	生命科学研究部門	欧　文	9(9)	5 (3)	17 (17)
	邦　文	2 (1)		邦　文	0	2	1
電子情報処理部門※	欧　文	(31)	数理科学研究部門	欧　文	20(19)	16 (16)	14 (14)
	邦　文	(3)		邦　文	2(1)	1 (1)	1
ナノテクノロジー研究センター	欧　文	42 (38)	ｸﾞﾘｰﾝﾅﾉﾃｸﾉﾛｼﾞｰ研究センター	欧　文	33(33)	30 (30)	24 (24)
	邦　文	(0)		邦　文	1	1	0
計	欧　文	(135)	計	欧　文	102(97)	78 (75)	85 (78)
	邦　文			邦　文	5(3)	4 (1)	10 (2)

(　)内の数はレフェリー付き。
※客員研究分野は除外した。
※出版済のもの

２．総覧、解説、評論等及び著書数

年度／部門等		平成23年	年度／部門等		平成24年	平成25年	平成26年
電子材料物性部門	総説等	5	光科学研究部門	総説等	4(1)	4	1
	著　書	3		著　書	0	0	2
電子機能素子部門	総説等	1	物質科学研究部門	総説等	4(1)	1	2
	著　書	1		著　書	2(2)	2 (1)	2 (1)
電子計測制御部門	総説等	15 (3)	生命科学研究部門	総説等	7(1)	4 (1)	4 (2)
	著　書	2		著　書	0	0	1
電子情報処理部門※	総説等	4	数理科学研究部門	総説等	1	1 (1)	2 (1)
	著　書	0		著　書	0	2 (1)	1
ナノテクノロジー研究センター	総説等	7 (1)	ｸﾞﾘｰﾝﾅﾉﾃｸﾉﾛｼﾞｰ研究センター	総説等	2(1)	3	2
	著　書	2		著　書	4	2	0
計	総説等	32 (4)	計	総説等	18(4)	13 (2)	11 (3)
	著　書	8		著　書	6(2)	5 (2)	6 (1)

(　)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「計」が表から算出したものと一致しない場合あり。
※年度をまたがっている場合、それぞれの年度でカウントしている。

３．国際学会・国内学会発表件数

年度／部門等		平成23年	年度／部門等		平成24年	平成25年	平成26年
電子材料物性部門	国際学会	34 (15)	光科学研究部門	国際学会	24(7)	35 (14)	13 (7)
	国内学会	63 (6)		国内学会	40(4)	39 (6)	23 (3)
電子機能素子部門	国際学会	16 (4)	物質科学研究部門	国際学会	18(4)	13 (6)	12 (4)
	国内学会	31 (4)		国内学会	24(1)	36 (3)	25 (3)
電子計測制御部門	国際学会	15 (10)	生命科学研究部門	国際学会	14(3)	8 (3)	13 (7)
	国内学会	31 (4)		国内学会	22(4)	19 (9)	45 (13)
電子情報処理部門 ※	国際学会	18	数理科学研究部門	国際学会	24(11)	22 (8)	28 (9)
	国内学会	33		国内学会	38(4)	41 (6)	35 (6)
ナノテクノロジー研究センター	国際学会	19 (3)	ｸﾞﾘｰﾝﾅﾉﾃｸﾉﾛｼﾞｰ研究センター	国際学会	62(12)	40 (10)	47 (14)
	国内学会	45		国内学会	66(5)	45 (4)	55 (5)
計	国際学会	102 (32)	計	国際学会	141(37)	114 (38)	110 (41)
	国内学会	215 (14)		国内学会	187(18)	173 (28)	181 (30)

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「計」が表から算出したものと一致しない場合あり。
※年度をまたがっている場合、それぞれの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／部門等	平成 23 年度	平成 24 年度	平成 25 年度	平成 26 年度
業　務　費	237,734	165,907	137,446	128,162
科学研究費補助金	470,802(80)	316,687(75)	269,062(61)	192,260(61)
その他の補助金	23,696(4)	10,997(5)	18,748(7)	4,396(3)
寄　附　金	31,640(14)	25,026(15)	22,993(16)	36,958(18)
受託事業等経費	510,564(38)	328,523(32)	329,456(31)	306,421(27)
（受託研究費）	471,438(24)	296,957(20)	291,264(18)	280,205(14)
（共同研究費）	39,126(14)	31,566(12)	38,192(13)	26,216(13)
合計	1,274,436(136)	847,140(127)	777,705(115)	668,197(109)

() 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 23 年度	部門等	平成 24 年度	平成 25 年度	平成 26 年度
電子材料物性部門	科学研究費補助金	93,734(18)	光科学研究部門	68,300(16)	47,457(9)	14,600(3)
	その他の補助金	0		0	0	0
	寄　附　金　Ⅰ	3,500(3)		880(1)	3,815(7)	3,252(5)
	寄　附　金　Ⅱ	0		0	0	1,000(1)
	受託事業等経費	108,316(8)		102,696(4)	135,581(4)	81,090(4)
	（受託研究費）	108,316(8)		102,696(4)	135,581(4)	81,090(4)
	（共同研究費）	0		0	0	0
	小　　計	205,550(29)		171,876(21)	186,853(20)	99,942(13)
電子機能素子部門	科学研究費補助金	24,310(8)	物質科学研究部門	28,800(11)	69,700(9)	30,300(7)
	その他の補助金	0		7,000(1)	8,000(2)	0
	寄　附　金　Ⅰ	1,500(1)		1,000(1)	0	4,570(4)
	寄　附　金　Ⅱ	2,350(3)		6,897(2)	1,750(4)	0
	受託事業等経費	24,731(5)		15,706(3)	1,000(1)	5,000(3)
	（受託研究費）	11,245(2)		5,806(2)	0	0
	（共同研究費）	13,486(3)		9,900(1)	1,000(1)	5,000(3)
	小　　計	52,891(17)		59,403(18)	80,450(16)	39,870(14)
電子計測制御部門	科学研究費補助金	166,104(25)	生命科学研究部門	35,724(9)	30,200(7)	47,300(10)
	その他の補助金	22,696(3)		1,500(1)	400(1)	296(1)
	寄　附　金　Ⅰ	17,290(2)		0	3,000(1)	9,300(1)
	寄　附　金　Ⅱ	0		0	1,122(1)	0
	受託事業等経費	58,140(7)		39,391(5)	36,152(8)	56,445(5)
	（受託研究費）	52,640(5)		38,480(3)	34,895(5)	55,180(2)
	（共同研究費）	5,500(2)		911(2)	1,257(3)	1,265(3)
	小　　計	264,230(37)		76,615(15)	70,874(18)	113,341(17)
電子情報処理部門	科学研究費補助金	61,457(14)	数理科学研究部門	56,496(17)	56,442(19)	35,660(25)
	その他の補助金	0		2,097(2)	0	2,000(1)
	寄　附　金　Ⅰ	500(1)		9,949(3)	11,106(1)	12,191(2)
	寄　附　金　Ⅱ	0		700(1)	0	0
	受託事業等経費	18,100(3)		52,006(2)	61,210(4)	70,463(4)
	（受託研究費）	17,550(2)		52,006(2)	58,035(2)	67,763(3)
	（共同研究費）	550(1)		0	3,175(2)	2,700(1)
	小　　計	80,057(18)		121,248(25)	128,758(24)	120,314(32)

部門等	研究費	平成 23 年度	部門等	平成 24 年度	平成 25 年度	平成 26 年度
附属ナノテクノロジー研究センター	科学研究費補助金	125,197(15)	附属グリーンナノテクノロジー研究センター	124,690(18)	58,063(13)	56,300(11)
	その他の補助金	1,000(1)		0	972(1)	0
	寄　附　金　Ⅰ	2,500(2)		2,100(2)	1,200(1)	2,000(1)
	寄　附　金　Ⅱ	400(1)		3,300(4)	1,000(1)	3,050(3)
	受託事業等経費	301,277(15)		118,224(17)	75,278(12)	75,192(10)
	(受託研究費)	281,687(7)		97,969(9)	43,018(6)	57,941(4)
	(共同研究費)	19,590(8)		20,255(8)	32,260(6)	17,251(6)
	小　　計	430,374(34)		248,314(41)	136,513(28)	136,542(25)
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	0	その他	2,677(4)	7,200(4)	8,100(5)
	その他の補助金	0		400(1)	9,376(3)	2,100(1)
	寄　附　金　Ⅰ	0		0	0	1,595(1)
	寄　附　金　Ⅱ	3,600(1)		200(1)	0	0
	受託事業等経費	0		500(1)	20,235(2)	18,231(1)
	(受託研究費)	0		0	19,735(1)	18,231(1)
	(共同研究費)	0		500(1)	500(1)	0
	小　　計	3,600(1)		3,777(7)	36,811(9)	30,026(8)

() 内の数は受け入れ件数。　寄附金Ⅰ：申請による財団等からの研究補助金。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

年 / 部門等	平成21年度	平成22年度	平成23年度
電子材料物性部門	11	8	5
電子機能素子部門	0	1	0
電子計測制御部門	4	4	5
電子情報処理部門	4	4	1
ナノテクノロジー研究センター	9	6	5
計	28	23	16

年 / 部門等	平成24年度	平成25年度	平成26年度
光科学研究部門	6	2	1
物質科学研究部門	1	5	3
生命科学研究部門	0	0	0
数理科学研究部門	4	4	2
附属グリーンナノテクノロジー研究センター	6	9	3
計	17	20	9

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２６年度

情報科学研究科

- 長尾 優樹：TiO_2基板上単一CdSe/ZnS量子ドットの発光特性解析
- 煮雪　亮：ZnOナノ粒子フィルムにおけるランダムレーザー発振モード制御に関する研究
- 野村 健介：金ナノディスク周期構造における多重極子プラズモンモードと光渦励振の研究
- 添田　慧：コヒーレントＸ線回折イメージングに向けたVO_2ナノ結晶の合成と評価
- 青柳 佑佳：生後マウス脳における新生ニューロンの移動様式解明に向けた3次元イメージング
- 澤田 和明：高出力1μmピコ秒パルスレーザー光源のマウス脳深部イメージングへの適用
- 松塚 祐貴：光電子顕微鏡を用いた積層型ナノギャップ金構造における光電場増強効果の検討(Probing the Electromagnetic Field Enhancement Effects Induced on Stacked Nanogap Gold Structures using Photoemission Electron Microscopy)
- 鎌田 義臣:ホール移動層として酸化ニッケルを用いた全固体プラズモン太陽電池の構築（Construction of Solid-state Plasmonic Solar Cell using Nickel Oxide as Hole Transport Layer)
- 于 瀚:光電子顕微鏡を用いた金ナノ微粒子に誘起される局在表面プラズモンの近接場分布とダイナミクスの追跡(Probing the Near-Field and Dynamics of Localized Surface Plasmon Resonance in Gold Nanoparticles by Photoemission Electron Microscopy)
- 石原　渚:金属ナノ共振器に埋めこんだ量子ドットの発光特性と共振モード発光増強メカニズムに関する研究
- 根岸 洋介：半導体量子ドット発光特性の電界制御に向けた微細金属電極作製に関する研究
- 竹本　亮：金属埋め込み半導体ピラー微小光共振器の作製と高Q値共振特性評価に関する研究

生命科学院

- 井部 邦彦：遷移ネットワークによるたんぱく質折り畳み運動の理解

総合化学院

- 柴田 智広:パラジウム回折格子の光学特性と水素検出
- 荘司 孝斗:リン酸塩ガラスへのプロトン導入法の検討と伝導性評価
- 鈴木 康修：DNAブラシをテンプレートとしたボトムアップ型3D金属パターニング法に関する研究
- 杉村 尚俊：酵素を内包したウイルスカプセルの作製と微小空間での酵素反応

Ⅱ－４－２）博士学位

平成２６年度

環境科学院

- Chiang Hung-Chu:Study on Electroabsorption and Electrophotoluminescence of Optoelectronic Functional Materials in Solution
- 厳　寅男：大振幅分子運動を示す超分カチオンを導入した[$Ni(dmit)_2$]塩の構造と誘電性

情報科学研究科

- 任　芳：Study on plasmonic-photonic hybrid systems for efficient excitation of nonlinear phenomena
- 石　旭:金ナノアイランド/酸化チタン電極によるプラズモン増強光電流の発生と水の酸化反応に関する研究(Plasmon-Enhanced Photocurrent Generation and Water Oxidation with Gold Nanoislands Loaded Titanium Dioxide Photoelectrodes)
- 中島 秀朗：半導体量子ドットを用いた単一光子・量子もつれ光子対生成に関する研究

生命科学院

- Tahmina Sultana：A Theoretical Study on Multiscale Reaction Network Extracted from Single Molecule Time Series
- Nishad Perur：Driving and Reversible Controlling of Motor Proteins by Photochromic Non- Nucleoside Triphosphates

Ⅱ－4－3）大学院生在籍数

年 / 研究科名	修士			博士		
	平成24年	平成25年	平成26年	平成24年	平成25年	平成26年
理学院	8	14	13	10	4	6
工学研究科	5	5	0	4	1	0
環境科学院	13	12	5	8	5	3
情報科学研究科	27	22	23	11	8	10
生命科学院	3	4	4	5	10	10
地球環境科学生命科	1	0	0	0	0	0
総合化学院	8	9	8	2	1	4
計	65	66	53	40	29	33

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、ナノ加工・計測技術班、装置開発技術班(機械工作室・ガラス工作室)からなる。

システム開発技術班は、広報・情報・ネットワーク・研究所のウェブサイト管理運営、ニコンイメージングセンターへの技術支援などを行っている。

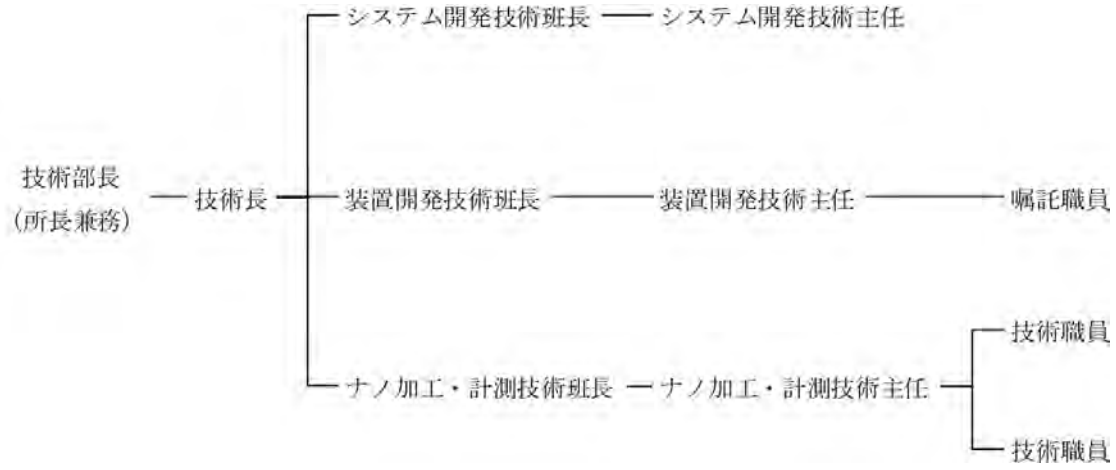
ナノ加工・計測技術班はクリーンルーム及び共用設備の維持管理、利用指導、ナノ加工計測を行っており、それらに関する技術相談も受けている。また両班は研究所全体に関わる業務として行事等の技術支援や液化窒素ガス汲み出し作業従事者への講習会の支援なども行っている。

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、汎用工作機械、NC 加工機を利用した金属・樹脂の精密加工や TIG 溶接(SUS, AL)技術を用いて多くの実験装置の開発・製作を行っている。近年は三次元 CAD を用いた設計相談にも対応している。

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・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。

1．蔵書冊数

年　度	平成23年*	平成24年*	平成25年*	平成26年*
和　書	5,623	5,649	5,666	5,670
洋　書	17,515	17,442	17,516	17,519
計	23,138	23,091	23,182	23,189

2．所蔵雑誌種類数

年　度	平成23年*	平成24年*	平成25年*	平成26年*
和雑誌	118	106	107	107
洋雑誌	410	385	387	387
計	528	491	494	494

3．購入雑誌受入種類数

年　度	平成23年*	平成24年*	平成25年*	平成26年*
和雑誌	46	46	48	48
洋雑誌	9	6	8	6
計	55	52	56	54

4．学外文献複写数

年　度	平成23年*	平成24年*	平成25年*	平成26年*
依　頼	109	129	34	87
受　付	110	77	88	137

* 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る。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、22,800タイトルを超える電子ジャーナルの利用が可能で、フルテキストを閲覧・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”“SciFinder Web””Inspec”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のサービスが利用可能である。

電子ジャーナルおよびデータベースは、平成22年度より運用開始したリモートアクセスサービスにより、一部のタイトルを除き、出張先、自宅など学外からも利用可能となった。

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（22.10　協定終了）

19．4　附属ナノテクノロジー研究センターの「10年時限」撤廃

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ニ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
(21.12　大学間交流協定へ移行　責任部局：大学院歯学研究科)

20．1　台湾・国立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　台湾・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　米国・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
20.10　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）
22. 3　フランス・リヨン高等師範学校との学術交流協定締結
22. 4　電子材料物性研究部門ナノ光高機能材料研究分野をコヒーレントＸ線光学研究分野に名称変更
電子機能素子研究部門分子認識素子研究分野を光波制御材料研究分野に名称変更
電子計測制御研究部門量子計測研究分野を生体物理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理論研究分野をナノ光高機能材料研究分野に名称変更
連携研究部門理研連携研究分野を新設
22. 9　ドイツ・オットー・フォン・ゲーリケ大学マクデブルク自然科学部との学術交流協定締結
23. 1　台湾・国立交通大学理学院との学術交流協定締結
23. 9　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」開設期間満了
24. 4　改組に伴い研究部門名、研究分野名を全面改称
附属ナノテクノロジー研究センターを附属グリーンナノテクノロジー研究センターに改組転換
研究支援部を新設
支援部構成：ニコンイメージングセンター、国際連携推進室、ナノテク連携推進室
25. 7　ベルギー・ルーヴェン・カトリック大学との学術交流協定締結
25.11　英国・グラスゴー大学理工学部との学術交流協定締結
26. 3　中国・吉林大学、ハルピン工業大学及び北京国家ナノテクノロジーセンターとの学術交流協定締結
26.12　台湾・中央研究院応用科学研究センターとの学術交流協定締結
27. 3　台湾・中央研究院物理研究所との学術交流協定締結

［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	淺見　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～平成25年９月30日	三澤　弘明
	平成25年10月１日～現在	西井　準治

〔名誉教授〕

昭和32年４月	（故）	蓑島　　高
昭和37年４月	（故）	淺見　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
	（故）	馬場　宏明
	（故）	松本　伍良
昭和63年４月	（故）	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	（故）	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
平成21年４月		栗城　眞也
平成23年４月		上田　哲男

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年度に北キャンパス総合研究棟５号館が新築され、平成21年度に同館５階の一部が増築された。平成21年度には中央キャンパス総合研究棟２号館（旧Ｂ棟）が改修された。

建物名称	構造	建面積 ㎡	延面積 ㎡	建築年度
創成科学研究棟	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	5,419 (116)	平成20年度 (平成21年度増築)
中央キャンパス総合研究棟２号館	鉄筋コンクリート造5階建	——	1,294	平成21年度 (改修)
計		——	10,867	

延面積欄の（ ）内の数字は増築分で内数

Ⅳ－3. 現員（平成26年度）

（３月末 日現在）

職名	人数
教授	14 (5)
准教授	14
講師	0
助教	18
特任教授	2
特任准教授	0
特任助教	6
教員小計	54 (5)
技術部	10
合計	64 (5)

（ ）内の数字は客員で外数

Ⅳ－4. 教員の異動状況（平成26年度）

○転入状況

所属部門	職　名	氏　　名	採用年月日	前　　職
物質科学研究部門	助教	KIM YUNA	H26.4.1	電子科学研究所特任助教
光科学研究部門	助教	吉田　力矢	H26.4.1	日本学術振興会特別研究員
光科学研究部門	特任助教	于　健	H26.4.1	大学院先端生命科学研究院博士研究員
物質科学研究部門	准教授	山ノ内　路彦	H26.5.1	東北大学助教
所長付	准教授	佐藤　勝彦	H26.12.1	理化学研究所研究員

○転出状況

所属部門	職　名	氏　　名	退職年月日	転　出　先
物質科学研究部門	准教授	中林　孝和	H26.4.30	東北大学教授
光科学研究部門	助教	藤原　正澄	H26.9.30	大阪市立大学客員研究員
光科学研究部門	助教	岡本　亮	H26.9.30	京都大学助教
物質科学研究部門	助教	深港　豪	H27.1.31	熊本大学准教授
数理科学研究部門	助教	山口　裕	H27.3.31	福岡工業大学助教
物質科学研究部門	特任助教	AWASTHI KAMLESH	H27.3.31	台湾国立交通大学

○定年

所属部門	職名	氏名	発令年月日	定年後就職先
光科学研究部門	准教授	辻見　裕史	H27.3.31	電子科学研究所特任准教授

(27.3.31)

Ⅳ－5. 構成員（平成26年度）

所　長　　西　井　準　治

光科学研究部門
- 光システム物理研究分野
  - 教　授　笹　木　敬　司
  - 准教授　藤　原　英　樹
  - 助　教　酒　井　恭　輔
- 光量子情報研究分野
  - 准教授　辻　見　裕　史
- コヒーレント光研究分野
  - 教　授　西　野　吉　則
  - 助　教　木　村　隆　志
  - 助　教　吉　田　力　矢
  - 特任助教　于　　健

物質科学研究部門
- 分子光機能物性研究分野
  - 特任教授　太　田　信　廣
  - 特任助教　AWASTHI KAMLESH
- スマート分子材料研究分野
  - 教　授　玉　置　信　之
  - 助　教　亀　井　　敬
  - 助　教　KIM　YUNA
- ナノ構造物性研究分野
  - 教　授　石　橋　　晃
  - 准教授　近　藤　憲　治
- 薄膜機能材料研究分野
  - 教　授　太　田　裕　道
  - 准教授　山ノ内　路　彦
  - 助　教　片　瀬　貴　義

生命科学研究部門
- 生命動態研究分野
  - 教　授　中　垣　俊　之
  - 准教授　佐　藤　勝　彦
  - 助　教　黒　田　　茂
- 光細胞生理研究分野
  - 教　授　根　本　知　己
  - 助　教　日　比　輝　正
  - 助　教　川　上　良　介
  - 特任助教　飯　島　光一朗
- 生体分子デバイス研究分野
  - 教　授　居　城　邦　治
  - 准教授　新　倉　謙　一
  - 助　教　三　友　秀　之

数理科学研究部門
- 複雑系数理研究分野
  - 教　授　津　田　一　郎
  - 准教授　佐　藤　　譲
  - 准教授　青　沼　仁　志
  - 助　教　山　口　　裕
  - 助　教　西　野　浩　史
- 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
  - 特任助教　TAYLOR　JAMES　NICHOLAS
- 動的数理モデリング研究分野
  - 教　授　長　山　雅　晴
  - 助　教　秋　山　正　和
  - 助　教　GINDER ELLIOTT ABRAHAM

連携研究部門
- 産研アライアンス研究分野

- 理研連携研究分野
  - 客員教授　田　中　拓　男（理化学研究所）
  - 特任助教　石　田　周太郎
- 社会連携客員研究分野
  - 客員教授　永　島　英　夫（九州大学先導物質化学研究所）
  - 客員教授　桑　原　輝　隆（政策研究大学院大学）
  - 客員教授　細　野　秀　雄（東京工業大学フロンティア研究機構）
  - 客員教授　尾　関　　章（科学ジャーナリスト）

附属グリーンナノテクノロジー研究センター
- センター長（兼）　笹　木　敬　司
- グリーンフォトニクス研究分野
  - 教　授　三　澤　弘　明
  - 准教授　上　野　貢　生
  - 助　教　押　切　友　也
- 光電子ナノ材料研究分野
  - 教　授　西　井　準　治
  - 准教授　海　住　英　生
- ナノ光機能材料研究分野
  - 特任教授　末　宗　幾　夫
  - 准教授　熊　野　英　和
- ナノアセンブリ材料研究分野
  - 教　授　中　村　貴　義
  - 准教授　野　呂　真一郎
  - 助　教　久　保　和　也

研究支援部
- ニコンイメージングセンター
  - センター長（兼）　根　本　知　己
  - 特任助教　大　友　康　平
- 国際連携推進室
  - 室長（兼）　小松崎　民　樹
- ナノテク連携推進室
  - 室長　准教授　松　尾　保　孝

技術部
- 技術部長（兼）　西　井　準　治
- 技術長　太　田　隆　夫
- 装置開発技術班
  - 班　長　平　田　康　史
  - 技術職員　武　井　将　志
  - 嘱託職員　大　沼　英　雄
- システム開発技術班
  - 班　長　伊勢谷　陽　一
  - 主　任　小　林　健太郎

ナノ加工・計測技術班

班　長	今　村　逸　子
技術職員	笠　　晴　也
技術職員	遠　藤　礼　暁
技術職員	大　西　　広

契約職員・短時間勤務職員

理研連携推進員	横　田　幸　恵
博士研究員	FARZANA SABETH
〃	國　田　　樹
〃	古　川　大　介
〃	津　川　　暁
〃	小　林　康　明
〃	武　井　兼太郎
〃	石　　旭
〃	黒　澤　裕　之
〃	中　島　秀　朗
学術研究員	伊　藤　絵美子
〃	田　所　　智
〃	渡　部　大　志
〃	玉　井　信　也
〃	塚　田　啓　道
〃	岩　﨑　正　純
〃	PREETOM　NAG
〃	熊　本　淳　一
〃	森　　有　子
〃	上　原　日　和
〃	MOU SINTHIA SHABNAM
非常勤研究員	KANTHYAPPA RAJANNA SUNILKUMAR
〃	上　原　日　和
研究支援推進員	坪　井　　恵
〃	伊　藤　春　奈
〃	須々田　明　子
事務補佐員	山　田　美　和
〃	本　久　洋　子
技術補佐員	小　黒　真　紀
〃	出　羽　真樹子
〃	山　口　由美子
事務補助員	山　崎　涼　子
〃	菊　池　正　美
〃	大　木　真理子
〃	加　藤　まり子
〃	松　尾　直　子
〃	三　浦　由　貴
〃	黒　田　展　子
〃	笠　　瑞　穂
〃	中　岡　亜　弓
技術補助員	奥　原　亜　季
〃	石　田　麻衣子
〃	常　盤　塁　也
〃	野　澤　　翔
〃	小　林　留美子
〃	楊　　暁　龍
〃	中　村　圭　佑
〃	阿　部　太　郎

（平成27年３月末日現在）