

研究活動

北海道大学電子科学研究所

平成27年度

— 点検評価報告書 —

Research Activities

**Research Institute for Electronic Science
Hokkaido University
2015 - 2016**

北海道大学電子科学研究所

〒001-0021 札幌市北区北21条西10丁目
〒060-0812 札幌市北区北12条西6丁目¹
TEL(011)706-9102 FAX(011)706-9110

URL <http://www.es.hokudai.ac.jp/>

平成28年8月発行

はじめに

いよいよ国立大学法人第3期中期目標期間に入りました。昨年から今年にかけて、文部科学省の評価指針に沿った第3期中期目標・中期計画の策定や、独立行政法人大学評価・学位授与機構による第2期業績評価のための資料作成など、様々な作業に追われました。それに伴い、第1期中期目標期間も含めた電子科学研究所のこれまでの業績を細かく調査・解析したことは、今後の取り組むべき課題を見極める上でよい機会であったと思います。その中で顕在化したのは、第1期に比べて第2期の運営費交付金と特別経費の大幅な減少分を科学研究費補助金や受託研究費で補いつつ、受賞、招待講演、高インパクトファクターの論文数が増加傾向にある点でした。また、電子科学研究所では、率先して大型設備の共用化に注力しておりますが、最近は利用者数と利用時間が大幅に増加し、学外の利用者数の比率も伸びました。その一方で、今後改善すべき点としてグローバル化への対応が挙げられます。第2期に電子科学研究所に滞在した外国人研究者数、および共同研究のために海外の研究機関に滞在した研究者数は横ばいで、そのことは、国際共著論文数の伸び悩みにも影響を与えておりました。これまで、電子科学研究所では、分野毎に研究プロジェクトを実施する体制をとっており、国内外からの研究者の受け入れや海外の研究機関との共同研究などは、分野長の判断に委ねておりました。このようなボトムアップ的な取り組みは、研究の多様性を担保する上で極めて重要ではありますが、限られた財源の中で研究所のアクティビティーのさらなる向上を図るために、トップダウン的な施策も必要であると考えております。

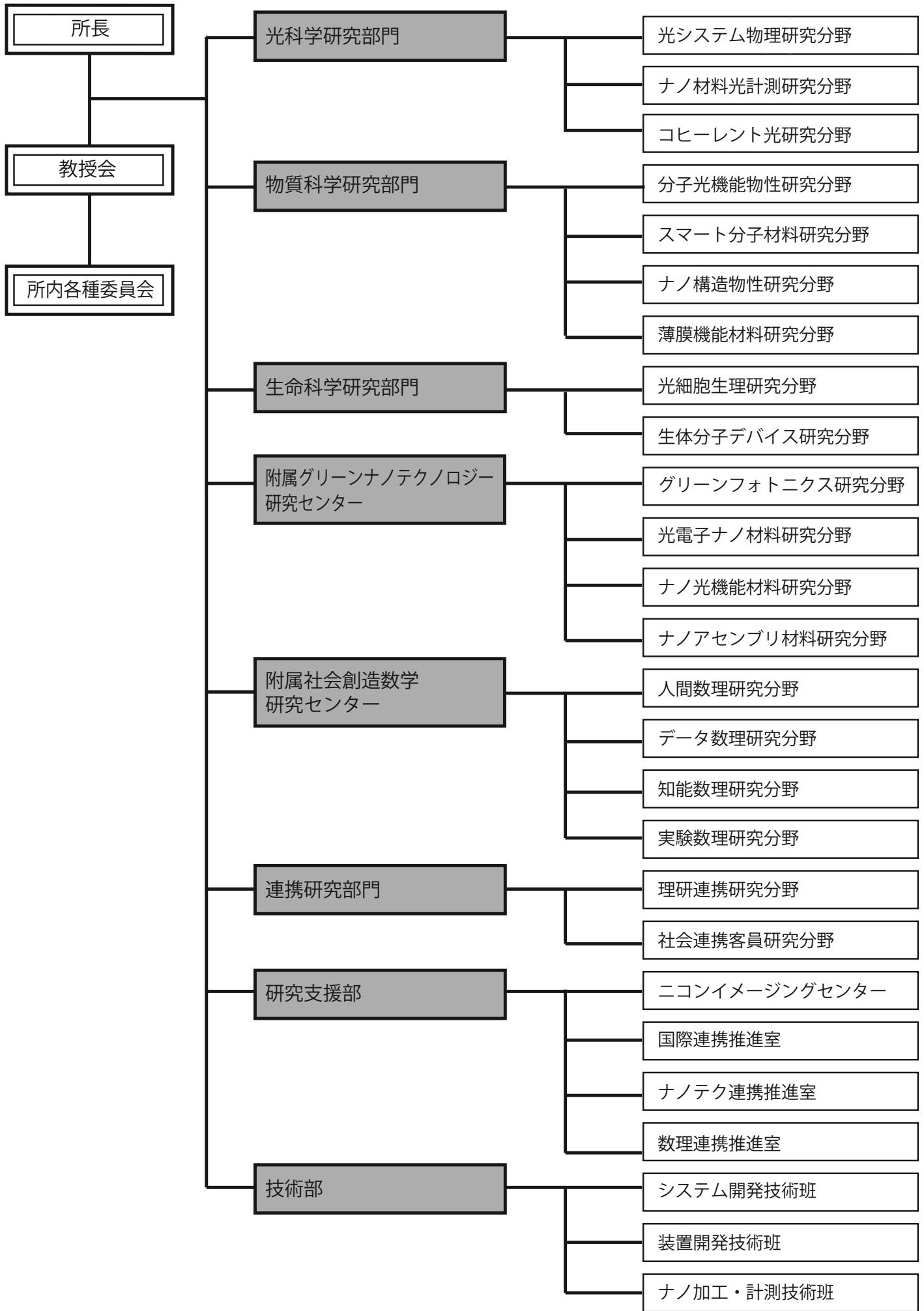
そのような観点で、今後の研究所のグローバル化を推進する上で重要な役割を担うのが「物質・デバイス領域ネットワーク型共同研究拠点」と、そのフレームワークとなる「ナノマクロ物質・デバイス・システム創製アライアンス」です。法人化第2期がスタートした平成22年度から、電子科学研究所は、多元物質科学研究所(東北大学)、資源化学研究所(東京工業大学)、産業科学研究所(大阪大学)、先導物質化学研究所(九州大学)とアライアンスを締結して、主に国内の研究者との共同研究を推進すると同時に、拠点を利用する若手研究者が5研究所に長期滞在して共同研究に取り組むための「コアラボ」を立ち上げました。第3期においては、この取り組みをさらに強化・拡充し、電子科学研究所では、“若手研究者がダイナミックに躍動する国際ネットワーク”を構築することに注力します。

平成4年に発足した電子科学研究所は、光科学、物質科学、生命科学、数理科学の4つの研究領域からなる総合理工系の研究所として北海道大学の教育・研究に貢献してきました。今後もこの体制を維持・強化し、国家・国民に理解されやすく世界に開かれた研究所を目指す上で、本来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27年度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くださるようお願い申し上げます。

平成28年6月

北海道大学 電子科学研究所長

西井準治



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
ナノ材料光計測研究分野	10
コヒーレント光研究分野	13

物質科学研究部門

スマート分子材料研究分野	20
ナノ構造物性研究分野	25
薄膜機能材料研究分野	31

生命科学研究部門

光細胞生理研究分野	40
生体分子デバイス研究分野	47

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	56
光電子ナノ材料研究分野	65
ナノ光機能材料研究分野	71
ナノアセンブリ材料研究分野	75

附属社会創造数学研究センター

人間数理研究分野	82
データ数理研究分野	92
知能数理研究分野	104

連携研究部門

理研連携研究分野	110
----------	-----

研究支援部

ニコンイメージングセンター	113
国際連携推進室	116
ナノテク連携推進室	118

II. 予算

II-1. 研究成果公表に関する各種の統計表	122
II-2. 予算	123
II-3. 外国人研究者の受入状況	125
II-4. 修士学位及び博士学位の取得状況	126

III. 研究支援体制

III-1. 技術部	130
------------	-----

III - 2. 学術情報.....	131
IV. 資料	
IV - 1. 沿革.....	134
IV - 2. 建物.....	137
IV - 3. 現員.....	137
IV - 4. 教員の異動状況	138
IV - 5. 構成員.....	139

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、光と電子系との相互作用に関わる先端的な計測・制御・操作技術、高度光ナノイメージング技術、および微細加工技術をベースとして、フォトンマニピュレーション、プラズモニック材料、コヒーレントX線イメージングなどの光科学・光技術のフロンティア開拓に取り組んでいます。このような研究を、量子情報通信や機能性ナノ材料デバイスなどの量子工学や、生命現象や病理の解明などの生命科学に広く応用展開します。

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～）
院 生
博士課程 烹雪亮
修士課程 小野寺俊平、鈴木健正、和田崇、大村竜矢

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を取り組んでいる。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、プラズモン場を利用したナノ空間の光計測技術やマニピュレーション、單一分子・單一ナノ微粒子の分光計測、光の偏光・位相によるプラズモン場の直接制御や電子状態制御に関する研究を行っている。

2. 研究成果

(a) プラズモニック結晶の欠陥モード制御

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、四重極子や六重極子モード等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、直線偏光や円偏光等の双極子場、さらには多重極子場が、分子やタンパクなどの大きさであるナノメートルサイズまで局在化する金属ナノ構造(プラズモニック結晶+欠陥)を検討した。プラズモニック結晶の欠陥として金属ナノ構造を設置することで、波長以下の小さな構造であっても、結晶のアンテナ効果で効率的なエネルギーの注入が可能になる。欠陥構造としては、スピンおよび軌道角運動量を有するナノ光場を形成する各種の多量体を用いた(図1(a))。ナノ空間に所望のプラズモン場を局在させるには、求める欠陥モードと合致する共鳴モードを有する結晶構造を設計する。例えば、直線偏光の欠

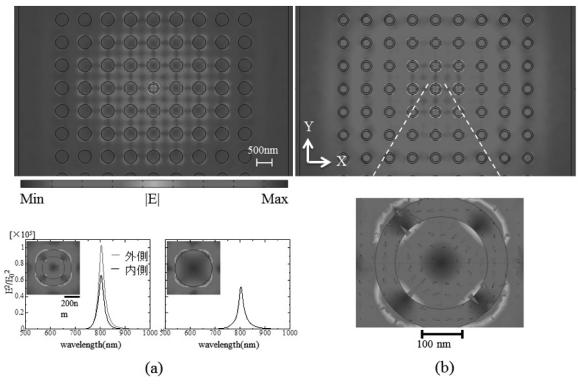


図1 プラズモニック結晶の電界($|E|$)分布。(a) リング状欠陥を導入した構造での分布(上図)と近接場スペクトル(下図)。(b) 全てをリングとした場合の分布。拡大図中の三角は、電界ベクトルを示す。

陷モードを実現するには、双極子で共鳴する結晶構造を用いる(左図)。この場合、欠陥構造を設置する位置は、結晶中で共鳴が得られる場所ならどこでもよく、入射ビームとの位置合わせ精度は低くても良いというメリットがある。フォトニック結晶におけるバンドギャップ中の欠陥モードではなく、本研究ではバンドエッジに合わせた欠陥モードを利用しており、これが実験上の利点を生み出している。図1(b)に、図1(a)の多量体に合わせて設計した結晶での電界強度分布を示す。所望の共鳴モードが、欠陥周辺および欠陥内部に形成されていることが分かる。結晶構造は、入射光を効率的に欠陥モードへ注入する役割も果たすため、今回得られた構造は、ナノ空間での局在プラズモン場と物質との強い相互作用を研究するための適切な反応基板を提供することになると期待している。

(b) 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

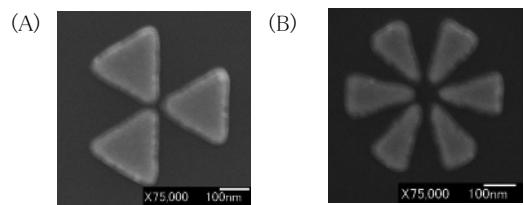


図2 波長 1064 nm に共鳴を有するナノギャップ構造
(A) 三量体、(B) 六量体

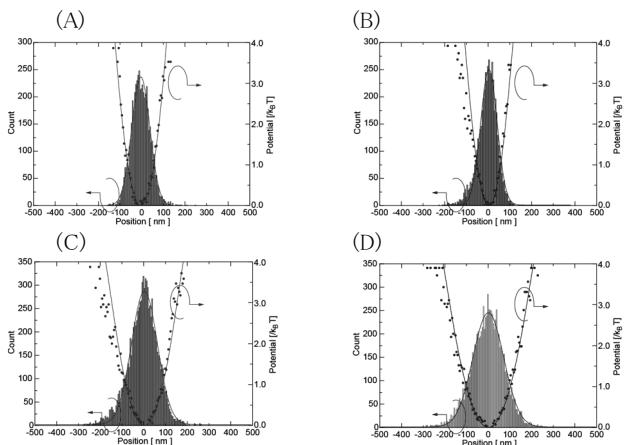


図3 ナノ粒子に作用する捕捉ポテンシャル (A)三量体x軸, (B)六量体x軸, (C)三量体y軸, (D)六量体y軸

ナノギャップ構造(三量体、六量体)に誘起されるLSPで捕獲された粒径100 nmの蛍光粒子に働く捕捉ポテンシャルを計測した。図2に波長1064 nmに共鳴を有する金ナノギャップ構造(三量体、六量体)のSEM像を示す。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の單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3に示す。

図3の三量体構造(A,B)では、直交する二軸に対し、等方的なポテンシャルが形成していることを確認した。一方、六量体構造に形成したポテンシャルでも、等方的なポテンシャルが形成されることが確認できるが、三量体と比べて緩やかなポテンシャル形状になっており、金属ナノ構造におけるギャップが広いことによる誘起される局在場の減少が起因と考える。この結果により、局在プラズモン場を用いた光捕捉において、金属ナノ構造を精密に制御することによって、ギャップ中に誘起する局在場分布の制御を用いた光捕捉ポテンシャルの形状制御の可能性を示した。

(c) 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

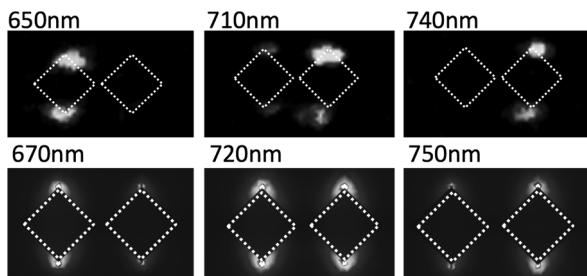


図4 金ナノダイマー構造に誘起される局在場の分光イメージング結果。S偏光の光が左から右方向に全反射条件を満たす様に入射している。上段：実験結果、下段：数値計算結果。

の光局在場を利用した光一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、散乱スペクトルと、ナノ構造の形状、および、その光局在場分布をナノメートルスケールの空間分解能で同時にイメージングできる分光ナノイメージングシステムの開発を行ってきた。今年度は、昨年度に引き続き、本装置を用いた金ナノダイマー構造中に誘起される光局在場の研究を行い、特にプラズモンモードの干渉効果が局在場分布に及ぼす影響について検証を行った。

白色光源からの光を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、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する事で、形状像の測定を行うとともに、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行った。評価用の試料として、これまでと同様に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。本構造では、垂直入射による短軸方向の電場振動成分により、構造の4つの角に強い局在場が誘起される短軸モードが誘起される事が知られている。図4は、本システムを用いて長軸方向からのS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。短軸方向の電場振動成分の散乱スペクトルの結果から、共鳴ピーク波長が~700 nm付近に存在しており、その波長では予想される通り構造の4つの角に強い局在場が誘起される様子を確認した。しかし、観測波長を短波長あるいは長波長側にシフトさせると、予想される局在場分布とは異なり、片側のブロック端のみに局在場が誘起され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S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。

(d) ファイバ結合微小球を介した金ナノ構造体のプラズモン励起による2光子励起発光増強

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(局在表面プラズモン)が生じ、この光局在場を利用して光反応の増強効果が様々な分野で研究されている。しかし、局在プラズモンを励起させる際に、伝搬光のモード断面積と金属ナノ構造サイズとの間のミスマッチにより、伝搬光を金属ナノ構造に効率よく結合させる事は困難である。この問題に対して、これまでに我々はファイバ結合微小球共振器を介した方法を提案し、金属ナノ構造体への高効率光結合を実現してきた。本年度は、高効率に励起された金属ナノ構造体のプラズモン場による微小球表面のErドープガラス層か

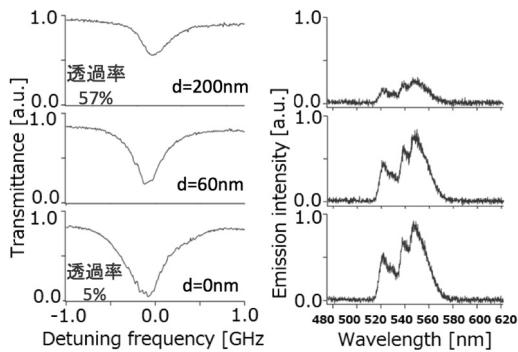


図5 (左図) 金チップ・Er-微小球共振器間距離に対する透過率スペクトル. (右図) 金チップ・Er-微小球共振器間距離に対する金コートチップ先端でのプラズモン励起によるErドープガラス層からの2光子励起発光スペクトル.

らの2光子励起発光増強について研究を行った。

光源として波長可変半導体レーザー(発振波長~780 nm)を用い、テープファイバ(直径300 nm)に入射した。Erドープゼルゲル溶液を作製し、微小球にディップコートした後、CO₂レーザーでアニールする事でErドープガラス層を微小球表面に作製した。金薄膜コートAFMチップ(金膜厚~50 nm)をテープファイバ結合微小球に近接させ、テープファイバ端からの透過率をモニターしながら、対物レンズを介してチップ先端付近からのErの2光子励起発光スペクトルの測定を行った。図5に金コートチップを微小球表面に接近させた際のテープファイバ端での透過率とチップ近傍の発光スペクトルを示す。チップ-微小球間距離を小さくするに従い、WGMの共鳴に起因する透過率ディップが深くなり、その透過率変化から約52%の入射光がチップ先端の局所領域に集光される事が確認できる。また、これと同時に測定した2光子励起発光スペクトルを見ると、Erに起因するスペクトルが確認でき、距離が近づくに連れてその発光強度が約5倍程度に増大する様子が確認できる。これらの結果は、テープファイバ結合微小球共振器を介した金コートチップ先端の高効率プラズモン励起により、Erドープガラス薄膜層からの2光子励起発光が増強されたと考えられる。

(e) レーザー誘起水熱合成を利用したZnOナノロッドアレイランダムレーザーの開発

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

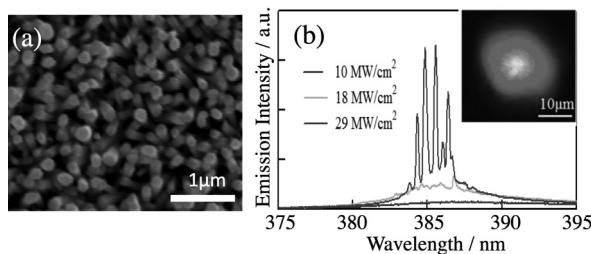


図6 (a)作製したZnOナノロッドアレイのSEM像と(b)発光スペクトルの励起光強度依存性. 揃入図: レーザー発振時の発光画像.

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が、ナノ粒子膜を利用したランダム構造は、多重散乱や粒子間の抵抗値が高く、応用上有用な電流駆動での使用には不向きとなる。このため、本研究ではナノロッドアレイ構造に注目し、近年提案されたレーザー照射による局所加熱を利用する水熱合成法(レーザー誘起水熱合成法)を用いたナノロッドアレイランダムレーザーの開発を試みた。本作製手法は、レーザー照射による基板の局所加熱を利用するため、照射範囲にのみナノロッドを作製でき、照射パワーと時間の調整によりナノロッドサイズを容易に制御できるといった利点をもつ。

実験では、ZnOナノロッドアレイを作製するため、25 mMの硝酸亜鉛六水和物水溶液(ZnNT)と同濃度のヘキサメチレンテトラミン水溶液(HMT)の1:1混合溶液を作製し、この溶液をガラス基板と厚さ50 nmの金薄膜をコートしたガラス基板で挟み込み、波長405 nmのCWレーザーを照射して金薄膜を局所加熱することでZnOナノロッドアレイを作製した。照射パワーおよび照射時間はそれぞれ2 kW/cm²、10分とした。試料を洗浄・乾燥した後、CO₂レーザー照射による加熱処理を行い、ZnOの発光特性の改善を行った。図6(a)に作製したナノロッドアレイのSEM像を示す。得られた試料に紫外パルスレーザー(355 nm, 300 ps, 1 kHz)を照射した際の発光スペクトルを図6(b)に示す。約18 MW/cm²以上の励起光強度において複数のシャープなピークが現れ、レーザー水熱合成法によって得られたZnOナノロッドアレイ構造においてレーザー発振を確認する事に成功した。本手法では、レーザー照射条件によりナノロッドサイズを制御できる可能性を持つため、局在モードを制御したランダムレーザーや光反応場への応用が期待できる。

3. 今後の研究の展望

本研究分野では現在、「金属ナノ構造中のプラズモン局在モードの自在制御」、「微小共振器構造を用いた高効率プラズモン励起」、「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)テープ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)輻射場を制御した單一分子の分光計測、(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) R. Niyuki, H. Fujiwara, Y. Ishikawa, N. Koshizaki, T. Tsuji and K. Sasaki : "Toward single-mode random lasing within a submicrometre-sized spherical ZnO particle film", *Journal of Optics*, 18 : 035202/1-035202/6 (2016)
- 2) Y. Tanaka, M. Komatsu, H. Fujiwara and K. Sasaki : "Nanoscale Color Sorting of Surface Plasmons in a Double-Nanogap Structure with Multipolar Plasmon Excitation", *Nano Lett.*, 15 : 7086-7090 (2015)
- 3) F. Ren, H. Takashima, Y. Tanaka, H. Fujiwara and K. Sasaki : "Two-photon excited fluorescence from a pseudoisocyanine-attached gold-coated tip via a thin tapered fiber under a weak CW excitation", *Opt. Exp.*, 23(17) : 21730-21740 (2015)

4.2 総説・解説・評論等

- 1) 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光学特性」、*化学工業、化学工業社*、66(7) : 66-71 (2015)

4.7 講演

a. 招待講演

- 1) 酒井 恭輔* : 「未来は自分で変えられる～ドイツのエネルギー自立に学ぶニセコの挑戦～」、第87回サイエンス・カフェ札幌、紀伊國屋書店札幌本店 (2016-02)
- 2) 酒井 恭輔* : 「自然エネルギー先進国ドイツの最前線」、NEPA 自然エネルギー実践講座、コーポさっぽろルーシー店文化教室 (2016-01)
- 3) 藤原 英樹* : 「新奇ランダムレーザーの開発」、レーザー学会学術講演会 第36回年次大会、名城大学 天白キャンパス (2016-01)
- 4) 藤原 英樹* : 「ランダムレーザーの発振モード制御と新奇光応答特性の観測」、光波シンセンス研究グループ主催 第25回研究会、北海道大学 (2015-12)
- 5) K. Sasaki* : "Nano-sized whispering gallery modes of designed plasmonic structure", The 4th International Workshop on Microcavities and Their Applications (WOMA2015) , Hokkaido University Conference Hall (2015-12)
- 6) K. Sasaki* : "Plasmonic nano-shaping and nano-manipulation", XVIIIth International Krutyn Summer School 2015, Krutyn, Poland (2015-09 ~ 2015-10)
- 7) 笹木 敬司* : 「プラズモン角運動量制御によるナノ光渦形成」、京都大学理学研究科セミナー、京都大学 (2015-07)
- 8) K. Sasaki* : "Coupling between Photonic Microcavity and Plasmonic Nanocavity", The36th PIERS in Prague, Top

Hotel Praha, Czech Republic (2015-07)

b. 一般講演

- 1) 小野寺 俊平*、任 芳、高島 秀聰、藤原 英樹、笹木 敬司 : 「局在プラズモン結合 Er ドープガラス微小球共振器を用いた高効率 2 光子励起発光」、2016 年 第 63 回 応用物理学会春季学術講演会、東京工業大学 大岡山キャンパス (2016-03)
- 2) 煮雪 亮*、藤原 英樹、笹木 敬司 : 「白色光照射によるグラフェン粉末混入 ZnO ランダム構造における発振モード変化」、2016 年 第 63 回 応用物理学会春季学術講演会、東京工業大学 大岡山キャンパス (2016-03)
- 3) 酒井 恭輔*、新宅 貴志、大村 竜矢、菅原 翔太郎、笹木 敬司 : 「プラズモニック結晶の欠陥モード制御」、2016 年 第 63 回 応用物理学会春季学術講演会、東京工業大学 大岡山キャンパス (2016-03)
- 4) 石田 周太郎*、新宅 貴志、笹木 敬司 : 「2 層レジスト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」、2016 年 第 63 回 応用物理学会春季学術講演会、東京工業大学 大岡山キャンパス (2016-03)
- 5) 笹木 敬司、藤原 英樹、酒井 恭輔*、石田 周太郎 : 「プラズモニック結晶による電磁場制御」、平成 27 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 (2016-01)
- 6) 笹木 敬司*、竹井 涼、酒井 恭輔 : 「Nano-vortex fields formed by designed plasmonic structures」、The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies 2015 (Pacificchem 2015) 、Hawaii Convention Center、USA (2015-12)
- 7) R. Niyuki*, H. Fujiwara, T. Tsuji and K. Sasaki : "The origins of resonance-controlled ZnO random laser", Asia core student meeting 2015, Photonics Center, Osaka University (2015-12)
- 8) R. Niyuki*, H. Fujiwara, H. Takashima, T. Nakamura, T. Tsuji and K. Sasaki : "Characteristic analysis of resonance-controlled ZnO random laser", The 4th International Workshop on Microcavities and Their Applications (WOMA2015) , Hokkaido University Conference Hall (2015-12)
- 9) S. Onodera*, R. Fang, H. Takashima, H. Fujiwara and K. Sasaki : "Two-photon excited fluorescence by efficient localized plasmon excitation via a fiber-coupled microspherical cavity", The 4th International Workshop on Microcavities and Their Applications (WOMA2015) , Hokkaido University Conference Hall (2015-12)
- 10) T. Suzuki*, R. Niyuki, H. Fujiwara and K. Sasaki : "Random lasing within a two-dimensional ZnO nanorod array fabricated by a laser-induced hydrothermal synthesis", The 4th International Workshop on Microcavi-

- ties and Their Applications (WOMA2015) , Hokkaido University Conference Hall (2015-12)
- 1 1) T. Suzuki*, R. Niyuki, H. Fujiwara and K. Sasaki : "ZnO nanorod array random laser fabricated by a laser-induced hydrothermal synthesis", The 16th Rise-Hokudai International Symposium, Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (2015-11)
 - 1 2) H. Fujiwara*, R. Niyuki and K. Sasaki : "Study on origins of resonance-controlled random lasers", The 16th Rise-Hokudai International Symposium, Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (2015-11)
 - 1 3) R. Niyuki*, H. Fujiwara, T. Nakamura, Y. Ishikawa, N. Koshizaki, T. Tsuji and K. Sasaki : "Double threshold behavior in a resonance-controlled ZnO random laser", Frontiers in Optics / Laser Science , The Fairmont San Jose, USA (2015-10)
 - 1 4) K. Sasaki* : "Quadrupole Field in Plasmonic Crystal", Frontiers in Optics / Laser Science , The Fairmont San Jose, USA (2015-10)
 - 1 5) 煮雪 亮*、藤原 英樹、中村 俊博、安達 定雄、笹木 敬司 : 「硫酸バリウム粒子薄膜を用いた紫外域におけるラマン増幅の観測」、2015 年第 76 回応用物理学会秋季学術講演会、名古屋国際会議場 (2015-09)
 - 1 6) 酒井 恭輔*、山本 岳明、大村 竜矢、菅原 翔太郎、笹木 敬司 : 「プラズモニック結晶の四量体欠陥 - 局在四重極子モード -」、2015 年第 76 回応用物理学会秋季学術講演会、名古屋国際会議場 (2015-09)
 - 1 7) 和田 崇*、石田 周太郎、笹木 敬司 : 「金属ナノトライマー構造による円偏光励起プラズモントラッピングとポテンシャル解析」、2015 年第 76 回応用物理学会秋季学術講演会、名古屋国際会議場 (2015-09)
 - 1 8) 鈴木 健正*、煮雪 亮、藤原 英樹、笹木 敬司 : 「レーザー水熱合成法により作製した ZnO ナノロッドアレイ構造におけるランダムレーザー発振の観測」、2015 年第 76 回応用物理学会秋季学術講演会、名古屋国際会議場 (2015-09)
 - 1 9) 大村 竜矢*、酒井 恭輔、菅原 翔太郎、笹木 敬司 : 「プラズモニック結晶における発光増強の構造依存性」、2015 年第 76 回応用物理学会秋季学術講演会、名古屋国際会議場 (2015-09)
 - 2 0) K. Sakai*, K. Nomura, T. Yamamoto, T. Omura and K. Sasaki : "Multipole resonances in plasmonic crystal", The 2nd Optical Manipulation Conference(OMC) '15, PACIFICO Yokohama (2015-04)

4.8 シンポジウムの開催

- 1) K. Sasaki : "Workshop on Microcavities and Their Applications(WOMA2015)", 80 人, Hokkaido University (Sapporo) (2015 年 12 月 01 日～2015 年 12 月 04 日)
- 2) H. Ohta, Y. Nishino, M. Nagayama, H. Fujiwara, H. Kaiju,

M. Yamanouchi, E. Ginder, T. Katase, S. Kuroda, H. Mitomo, R. Yoshida, Y. Iseya and S. RIES : "The 16th RIES-Hokudai International Symposium "術"[JUTSU] joined with the 6th International Symposium of Nano-Macro Materials, Devices, and System Research Alliance Project", 111 人, Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (Sapporo) (2015 年 11 月 10 日～2015 年 11 月 11 日)

4.9 共同研究

- 1) 辻剛志 (島根大)「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 (北大工)、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

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) 藤原 英樹、公益財団法人 天田学術振興財団、プラズモン場を用いたレーザー水熱合成によるナノ発光体の最適配置、2015～2016 年度
- 3) 酒井 恭輔、公益財団法人 住友財団、ナノ空間でのプラズモン光渦による角運動量制御の研究、2015 年度～2016 年度

4.12 社会教育活動

a. 公的機関の委員

- 1) 笹木 敬司 : ノーステック財団「研究開発助成事業」審査委員会 専門委員 (2015 年 06 月 20 日～2016 年 03 月 31 日)
- 2) 笹木 敬司 : 応用物理学会刊行委員 (2012 年 03 月 12 日～現在)
- 3) 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) 藤原英樹 : 日本光学会北海道支部 支部運営委員 (2015年1月～2017年3月)

- 2) 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～現在)

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)

d. 外国人研究者の招聘

1) Yun-Feng XIAO、China、(2015年12月01日～2015年12月05日)

2) Hui CAO、USA、(2015年12月01日～2015年12月05日)

3) Sang Wook KIM、Korea、(2015年12月01日～2015年12月05日)

4) Kerry VAHALA、USA、(2015年11月30日～2015年12月05日)

5) Chil-Min KIM、Korea、(2015年11月30日～2015年12月05日)

6) Martina HENTSCHEL、Germany、(2015年11月30日～2015年12月04日)

7) Qinghai SONG、China、(2015年11月30日～2015年12月05日)

8) AN Kyungwon、Korea、(2015年11月30日～2015年12月05日)

9) Andrew. W POON、China、(2015年11月30日～2015年12月04日)

10) Stefan ROTTER、Austria、(2015年11月30日～2015年12月04日)

11) Jung-Wan RYU、Korea、(2015年11月30日～2015年12月04日)

12) Oliver BENSON、Germany、(2015年11月30日～2015年12月05日)

13) Limin TONG、China、(2015年11月30日～2015年12月05日)

14) A.Douglas STONE、USA、(2015年11月30日～2015年12月03日)

15) Frank VOLLMER、Germany、(2015年11月30日～2015年12月05日)

16) Jan WIERSIG、Germany、(2015年11月30日～2015年12月05日)

17) Lan YANG、USA、(2015年11月30日～2015年12月05日)

18) Lei XU、China、(2015年11月30日～2015年12月03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、2015年10月01日～2016年03月31日

2) 工学部、電磁気学、藤原英樹、2015年10月01日～2016年03月31日

3) 工学部、光エレクトロニクス、笹木敬司、2015年04月01日～2015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、2015年04月01日～2016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、2015年04月01日～2016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、2015年04月01日～2016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、2015年4月1日～2015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、2015年10月1日～2016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、2015年10月1日～2016年3月31日

f. 新聞・テレビ等の報道

1) 2015年10月6日 日経産業新聞 「光閉じ込め色制御」

2) 2015年10月6日 Optronics Online「北大、プラズモンによる光ナノ集光に成功」

3) 2015年11月15日 財経新聞「ナノサイズの虹を形成することに成功—北大・笹木敬司氏ら」

g. 修士学位及び博士学位の取得状況

修士学位（3名）：

1) 小野寺俊平：局在プラズモン結合微小球共振器を用いた高効率二光子励起発光に関する研究

2) 鈴木健正：レーザー誘起水熱合成法を用いた酸化亜鉛ナノロッドアレイランダムレーザーの開発

3) 和田崇：金ナノトライマー構造によるナノ粒子プラズモントラッピングのポテンシャル解析

ナノ材料光計測研究分野

教授 雲林院 宏（東北大院、理博、2015.7～）
准教授 辻見裕史（北大院、理博、2007.6～）
助教 猪瀬 朋子（阪大院、理博、2015.10～）

1. 研究目標

本研究分野では、金属ナノ構造を化学的手法により作成し、その光特性を最大限に利用して新たな光学顕微鏡の開発を行っている。また、その新規光学顕微鏡を用いて生体細胞など、不均一で複雑なシステムの理解、病理診断・治療への応用を目指している。具体的には、銀ナノワイヤーで作られた光導波路近傍に存在する蛍光分子を導波する光によりリモート励起し、単一の蛍光分子からの発光を顕微鏡測定することに成功した。その単一分子蛍光像を数値計算と比較することにより、蛍光とプラズモン導波路との相互作用及びその結果生じる複雑な発光角度分布の解析を行った。さらに、ロッド型の金ナノ粒子の光アンテナ効果を遠視野光学顕微鏡によって同定する手法を提案した。本研究では、貴金属ナノ構造近傍で起こる蛍光増強とその生体測定手法への応用に役立つ基礎的な物理の進化を目指している。

2. 研究成果

(a) プラズモン導波路を用いたリモート励起単一分子蛍光分光

貴金属（金や銀）で作られたナノワイヤーなどのナノ構造は、伝搬表面プラズモン効果により、回折限界に縛られない光導波路としての機能を果たすことが知られている。本研究分野では、これまでに、化学的合成法により作成した直径100～300ナノメートル、長さ数 $10\mu\text{m}$ の銀ナノワイヤーを光導波路として使用し、導波路を伝わった先で局所的な表面増強ラマン散乱を励起する、いわゆる「リモート励起」表面増強ラマン分光法を世界で初めて提案した。（Uji-i et al. Nano Lett., 2009, 9, 995 – 1001）我々はこれまでに本手法を用いて、生きた単一細胞の内部、数nm領域からのラマン散乱を、細胞を殺傷することなく測定することにも成功している。（Uji-i et al. Adv. Mater., 2014. 26, 5124–5128..）

本研究では、このプラズモン導波路を用いて、単一蛍光分子の「リモート励起」を実現した。リモート励起による単一蛍光分子のリモート励起表面増強蛍光を遠視野光学顕微鏡でイメージ化し、観測された単一分子蛍光像をFinite-difference time-domain (FDTD) 法による数値計算と比較することにより、蛍光とプラズモン構造との近接場相互作用、およびその結果生じる遠視野への放射角度分布の歪みを詳細に検討した（図2）。その結果、光の回折限界（波長の約半分）以下の金属構造では、角度分布の歪みは遠視野像にそれほど大きく影響しないが、回折限界程度までナノ構造

が大きくなると、歪みは大きくなり、遠視野蛍光像にもその歪みが大きく反映されることがわかった。この結果を踏まえて、いわゆる超解像蛍光イメージングと数値解析を用いることで、金属ナノ構造のサイズを比較的正確に見積もることが可能であることを、電子顕微鏡像と超解像蛍光イメージを比較することで証明した。（Uji-i et al. Nature Commun. 2015, 6, 6287.）

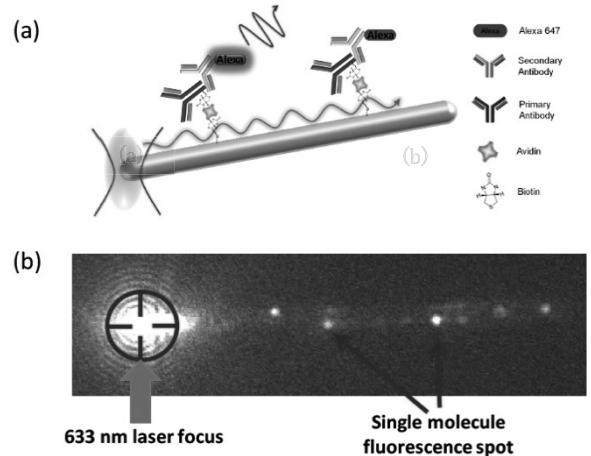


図 1(a) リモート励起の概念図。(b) リモート励起によるプラズモン導波路上の単一分子蛍光像。

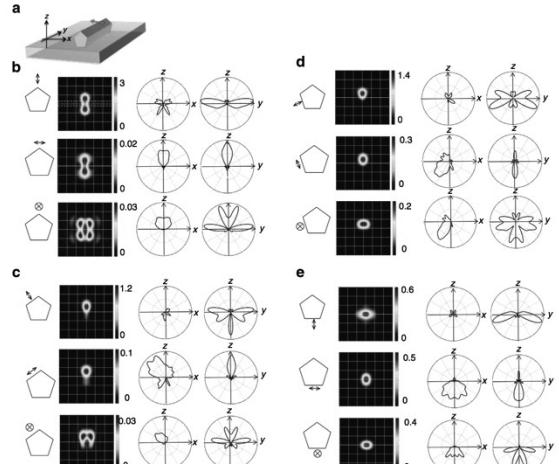


図 2(a) 導波路の配置図。(b~e) 左から、蛍光分子の配置、数値計算による蛍光像、発光角度分布の見積もり。

(b) 金ナノロッドの光アンテナ効果の解析

金ナノロッドは、そのアスペクト比（径 vs 長さ）によって、可視域から近赤外域の光電場と共に鳴して局在プラズモン場を発生する。もっとも強い共鳴は、ナノロッドの長軸に沿って発生する双極子モードのプラズモン場であり、効率良く光電場の増強と電場の向きをナノメートル領域で操作できるため、光アンテナとしての応用が期待される。

本研究では、ナノロッド近傍で発光する蛍光とナノロッドの双極子プラズモンとの相互作用、その結果の発光角度分布の解析を、高空間分解能単一分子蛍光顕微鏡を用いて詳細に調べた (Uji-i, ACS Nano 10, 2455-2466, 2016.)

図3は走査型電子顕微鏡像と高空間分解能蛍光顕微鏡の結果の比較を、電子顕微鏡と自作光学顕微鏡の組み合わせで測定した結果である (Adv. Mater. Technol. 2016, DOI: 10.1002/admt.201600014.)。図d-iに示すように、ナノロッド近傍の蛍光発光はナノロッドのほぼ中心に集中していることがわかる。単一分子は主にナノロッドの先端部分で蛍光増強を受けるため、実際の発光はナノロッドの先端付近で起こっている。そのため、実際の蛍光分子の位置はナノロッドの先端付近である。にもかかわらず、ナノロッド

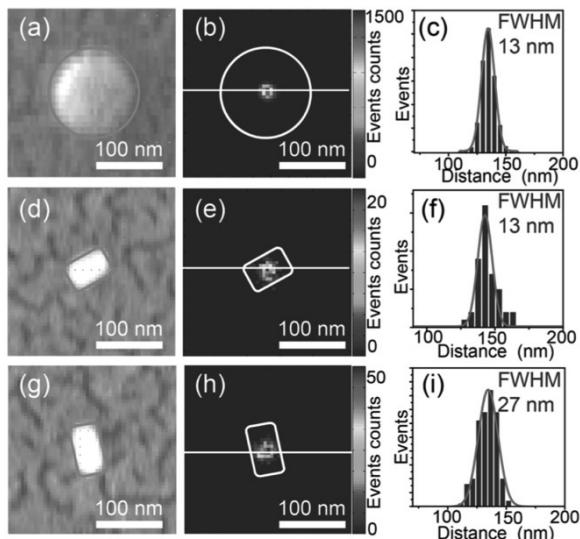


図3 電子顕微鏡像と高分解能蛍光像との比較。ポリスチレン蛍光ビーズの電子顕微鏡像(a)と蛍光像(b)、金ナノロッドの電子顕微鏡像(c, g)と蛍光像(e, h)。

の中心から発光が観測されるのは、蛍光分子からの発光が金ナノロッドの双極子プラズモンに一度変換され、その励起された双極子プラズモンが発光をしていることを示している。このことは数値計算と比較して確認している(図4)。

さらにプラズモンと相互作用した蛍光分子からの発光のtransition dipole momentの向きを、「defocus imaging」

(Uji-i Polymer, 2006, 47, 2511 – 2518.) を用いて観測した結果を図5に示す。発光のtransition dipole momentはナノロッドの長軸と常に平行であることから、蛍光分子からの発光はプラズモンに変換され、励起されたプラズモンが発光していることを示唆している(図5)。本結果も、数値計算と比較することで確認をしている。

3. 今後の研究の展望

本研究では、単一のプラズモン構造近傍での蛍光分子発光の特性をあらたな手法で詳しく調べた。金ナノ構造は、生体細胞などのラベリングやバイオセンサーなどにも多く利

用されている。本研究で明らかとなった発光特性を利用して、ラベリングやセンシングの性能向上を考察する。さらに、今後、本手法を用いて、さらに複雑なナノ構造、例えばナノ粒子の凝集構造などの解析に応用する。

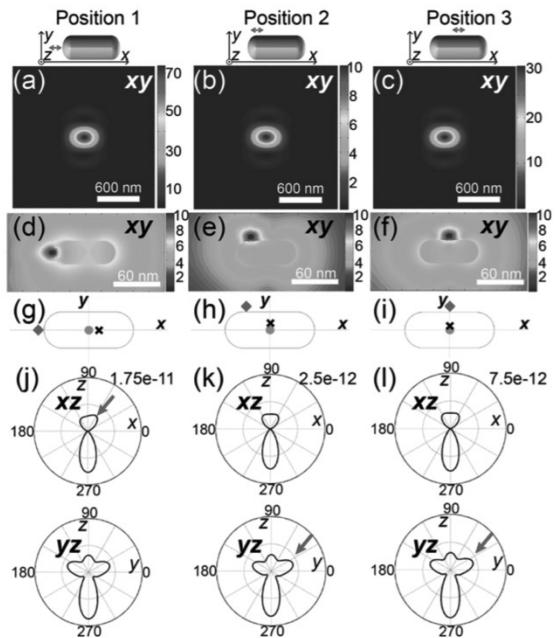


図4 ナノロッド近傍での蛍光発光とプラズモンとの相互作用(a-f)、遠視や顕微鏡で観測される発光中心位置(g-i)、放電角度分布(j-l)の蛍光分子位置依存の数値計算結果。

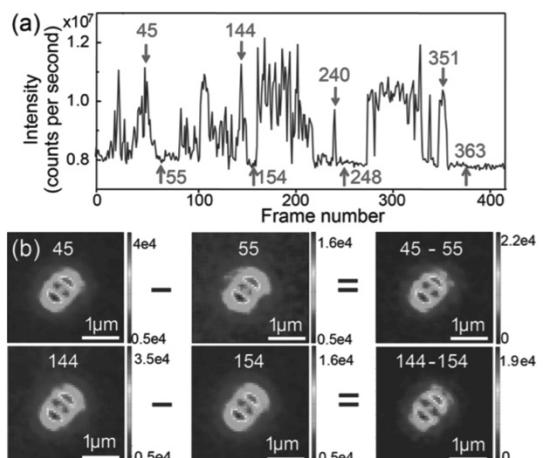


図5 ナノロッド近傍での蛍光発光の defocused imaging

4. 資料

4.1 学術論文等

1. Su, H. Yuan, G. Lu, G. S. Rocha, M. Orrit, J. Hofkens, H. Uji-i, “Super-resolution Localization and Defocused Fluorescence Microscopy on Resonantly Coupled Single-Molecule, Single-Nanorod Hybrids” ACS Nano 10, 2455-2466, 2016.

2. Haifeng Yuan, Elke Debroye, Kris Janssen, Hiroyuki Naiki, Christian Steuwe, Gang Lu, Michele Moris, Emanuele Orgiu, Hiroshi Uji-i, Frans De Schryver, Paolo Samori, Johan Hofkens, Maarten Roeffaers "Degradation of Methylammonium Lead Iodide Perovskite Structures through Light and Electron Beam Driven Ion Migration", *J. Phys. Chem. Lett.* 2016, 7, 561–566.
3. Masoumeh Keshavarz, Hans Engelkamp, Jialiang Xu, Els Braeken, Matthijs B. J. Otten, Hiroshi Uji-i, Erik Schwartz, Matthieu Koepf, Anja Vananroye, Jan Vermant, Roeland J. M. Nolte, Frans De Schryver, Jan C. Maan, Johan Hofkens, Peter C. M. Christiaen†, Alan E. Rowan, "Nanoscale Study of Polymer Dynamics", *ACS Nano*, 2016, 10 (1), 1434–1441.
4. Hannelore Bové, Christian Steuwe, Eduard Fron, Eli Slenders, Jan D'Haen, Yasuhiko Fujita, Hiroshi Uji-i, Martin vandeVen, Maarten Roeffaers, Marcel Ameloot, "Biocompatible Label-Free Detection of Carbon Black Particles by Femtosecond Pulsed Laser Microscopy", *Nano Lett.* DOI: 10.1021/acs.nanolett.6b00502, 2016.
5. L. Su, G. Lu, B. Kenens, S. Rocha, E. Fron, H. Yuan, C. Chen, P. Van Dorpe, M. B. J. Roeffaers, H. Mizuno, J. Hofkens, J. A. Hutchison, H. Uji-i*, "Visualization of molecular-fluorescence point spread functions via remote excitation switching fluorescence microscopy", *Nature Commun.* 2015, 6, 6287 DOI: 10.1038/ncomms7287.
6. C. Raimondo, B. Kenens, F. Reinders, M. Mayor, H. Uji-i, P. Samori, "Au nanoparticle scaffolds modulating intermolecular interactions among conjugated azobenzenes chemisorbed on curved surfaces: Tuning the kinetics of cis-trans isomerisation", *Nanoscale*, 2015, 7, 13836-13839.
7. Eduard Fron, Herlinde De Keersmaecker, Susana Rocha, Yannick Baeten, Gang Lu, Hiroshi Uji-i, Mark Van der Auweraer, Johan Hofkens, Hideaki Mizuno, "Mechanism Behind the Apparent Large Stokes Shift in LSSmOrange Investigated by Time-Resolved Spectroscopy", *J. Phys. Chem. B*, 2015, 119 (47), 14880–14891.
8. J. Greenwood, T. H. Phan, Y. Fujita, Z. Li, O. Lvasenko, W. Vanderlinden, H. Van Gorp, W. Frederickx, G. Lu, K. Tashara, Y. Tobe, H. Uji-i* S. F. L. Mertens, S. De Feyter, "Covalent Modification of Graphene and Graphite Using Diazonium Chemistry: Tunable Grafting and Nanomanipulation", *ACS Nano* 2015, 9, 5520-5535.
9. H. Yuan, K. P. F. Janssen, T. Franklin, G. Lu, L. Su, X. Gu, H. Uji-i, M. B. J. Roeffaers, J. Hofkens, "Reshaping anisotropic gold nanoparticles through oxidative etching: the role of the surfactant and nanoparticle surface curvature", *RSC Advances*, 2015, 5, 6829-6833.

4.2 総説・解説・評論等

1. J. A. Hutchison, H. Uji-i, "Remote spectroscopy below the diffraction limit", *The Annual Reviews in Plasmonics* 2015.

4.3 講演

a. 招待講演

- 1) BIT's 3rd Annual World Congress of Smart Materials 2017, Singapopol, "Remote Excitation of Surface Enhanced Raman/Fluorescence for single cell interrogation"
- 2) 23rd ICSPM 2015 (Japan), "Remote spectroscopy below the diffraction limit"
- 3) XXIth International Krutyn Summer School 2016, Krutyn, Masurian Lake District, Poland, September 4-10, 2016. "Basic of Plasmonics"

b. 一般講演（ポスター）

- 1) 2015/12/10~12 ICSPM23
ヒルトンニセコビレッジホテル (北海道虻田郡ニセコ町)
Silver Nanowire-Based Tip for STM-Tip-Enhanced Raman Scattering Microscopy
Y. Fujita, T. Inose, S. De Feyter, H. Uji-i
- 2) 2016/3/4~6 WCSM-2016
Singapore
Visualization of molecular fluorescence point spread functions via remote excitation switching fluorescence microscopy
Tomoko Inose, James A. Hutchison, Hiroshi Uji-i
- 3) 2016/3/24~27 日本化学会 第96春季年会
同志社大学 京田辺キャンパス (京都府京田辺市)
接合界面にエチレングリコールを用いた金/酸化チタン触媒能の高活性化
Improving the Au/TiO₂ catalytic activity by controlling Au grafting with Ethylene Glycol
INOSE, Tomoko, KENENS, Bart, AUBERT, Remko, CHAMTOURI, Maha, UJI-I Hiroshi

4.4 共同研究

- 1) ISIS & icFRC, Université de Strasbourg and CNRS (France)
- 2) University of Melbourne (Australia)
- 3) Radboud University (The Netherlands)
- 4) University of Copenhagen (Denmark)
- 5) Universidad de Málaga Campus Teatinos (Spain)
- 6) Universite Lille1 (France)
- 7) Max-Planck-Institut fur Polymerforschung (Germany)
- 8) ETH Zürich (Switzerland)
- 9) Osaka University (Japan)
- 10) Tohoku University (Japan)

4.3 社会教育活動

a. 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、雲林院宏、「応用工学物性」

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、2014.4～2015.8）
特任助教 于健（北大院、生命博、2014.4～）
博士研究員 楊影（東工大院、工博、2015.12～）
学術研究員 倉本真弓（2012.10～2015.12）
技術補助員 新井田雅学（2015.12～）
小林夏子（2015.11～）
事務補助員 山崎涼子（2014.7～）
院生 Krishna Khakurel (DC3)、佐々木智也 (MC2)、
高畠雄輝 (MC2)、山本耕平 (MC2)、
後藤遼平 (MC1)、丸岡篤史 (MC1)、
坂口慧 (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、独自提案したパルス状コヒーレントX線溶液散乱(PCXS法)の構築を、文科省委託研究「X線自由電子レーザー重点戦略研究課題」の一環として進めている。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なく、溶液中で自然な状態にある生物試料等をスナップショットイメージングする。PCXS測定において、試料を溶液中で自然な状態に保持する環境

セルアレイチップの作製には、文科省ナノテクノロジープラットフォーム事業で運用されている北大のクリーンルーム内の微細加工装置群を利用している。

平成27年度は、より高空間分解能でのPCXS法によるイメージングを目指して、試料粒子を配列しコヒーレントX線回折シグナルを増強する試みや、開発中の集光光学系を用いたフルエンスの向上したX線自由電子レーザー利用のための環境セルアレイチップの設計などの技術開発を行った。さらに、PCXS測定の直前に微量な溶液試料を環境セルアレイに封入し、新鮮な試料に対して測定を行えるよう、XFEL施設SACLAにインクジェット描画装置を導入した。

PCXS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、溶液中で自己集合した金ナノ粒子自己集合体の、PCXS法によるナノイメージングがある(図1)。グルコース末端を持つフッ素化オリゴエチレングリコールで表面を修飾した2つのサイズの異なる金ナノ粒子が、ジオキサン水溶液中でサイズ分離し、小さなサイズの金ナノ粒子が外殻に一層あり、内側に大きなサイズの金ナノ粒子が分布する、Yolk/Shell(卵黄/卵殻)構造に自己集合することを、直接観察することに成功した(J. Wei *et al.*, J. Am. Chem. Soc. 138, 3274-3277 (2016))。

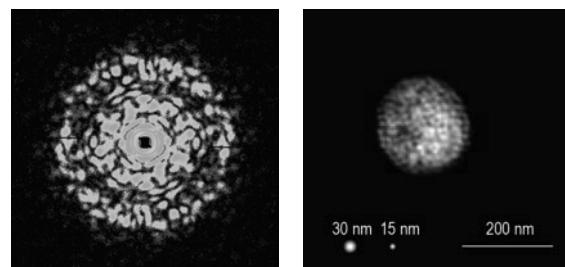


図1 溶液中でサイズ分離したYolk/Shell構造に自己集合した金ナノ粒子集合体のPCXS法による直接イメージング。

(左) シングルショットX線レーザー回折パターン。(右) 再構成像。外殻を構成するサイズの小さな直径15 nmの個々の金ナノ粒子を見分けることのできる高い分解能で試料を可視化することに成功した。

さらに、理化学研究所が平成26年度より行っているSACLA产学連携プログラムにトヨタ自動車(株)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」)、PCXS法の産業応用に向けた研究を進めている。平成27年度は、SACLAを用いて、自動車排ガスの浄化に用いられる三元触媒に対してコヒーレント回折イメージング測定を行った(図2)。得られた試料像やコヒーレント回折パターンの解析の結果、母材であるアルミナの表面に、触媒であるロジウムのナノ粒子が担持されていることが示唆された(R. Yoshida *et al.*, J. Phys. B 48, 244008-244012 (2015))。これはXFELを用いた世界初の产学連携研究の成果である。

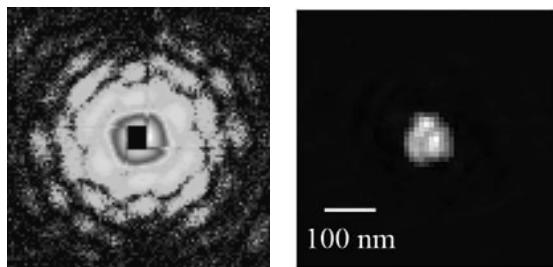


図2 自動車排ガス浄化用三元触媒に対するコヒーレント回折イメージング。(左) シングルショットX線レーザー回折パターン。(右) 再構成像。

(b) X線レーザー回折による生細胞ダイナミクスの解明に向けた研究

X F E Lのフェムト秒オーダーのパルス幅を利用して、異なる状態の細胞を、独自開発したP C X S S法で放射線損傷なくイメージングすることにより、生細胞のナノレベルダイナミクスを観察することを目指した研究を、平成27年度に新たに採択された科研費基盤(S)(課題名「X線レーザー回折による生細胞ダイナミクス」)の一環として進めた。異なる状態の細胞の調製方法として、同調培養による細胞周期の同期、温度制御、ケージド化合物を用いたフラッシュ・フォトリシスなど異なる手法の検討を進めた。

同調培養に関しては、P C X S S測定に適する*Microbacterium*菌の細胞周期を検討し、同調培養の条件を定めた。さらに、調製した*Microbacterium*菌に対してS A C L Aを用いたP C X S S測定を行い、細胞の画像をナノレベルで得ることに成功した。

温度制御に関しては、装置の仕様を検討・策定し開発を行った。ケージド化合物を用いたフラッシュ・フォトリシスに関しては、ケージドプロトンによるp Hの制御や*Microbacterium*菌への適用などのスタディーに着手した。

また、細胞ダイナミクスをX F E Lとは相補的に観察することを目的として、高速原子間力顕微鏡および蛍光顕微鏡のカメラシステムを導入した。さらに、P C X S S測定技術や試料像再構成(位相回復)技術を高度化する技術開発などを進めた。

(c) 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、C R E S Tプロジェクト(課題名「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」(研究代表:山内和人教授(大阪大学)))の一環として進めている。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、2段のアダプティブKB光学系を用いる。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。

2段のアダプティブKB光学系により実現する集光ビームを用いると、非孤立試料にも適用可能な、試料走査の必要のない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ことを独自提案している。平成25年度までに波動光学シミュレータによりアポダイズ照明コヒーレント回折イメージングの原理検証を行い、その後、可視光レーザーを用いた実証実験を進めている。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を再構成することに成功した(K. P. Khakurel *et al.*, Opt. Express, 23, 28182-28190 (2015))。図3に、振幅物体に対するアポダイズ照明コヒーレント回折イメージングの実験結果を示す。さらに、透明な位相物体に対しても、アポダイズ照明コヒーレント回折イメージングに成功した。

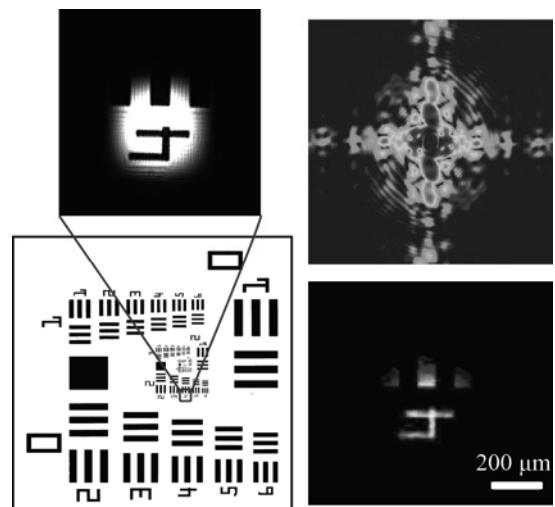


図3 可視光レーザーを用いたアポダイズ照明コヒーレント回折イメージングの実証実験。(左) 試料に用いたUSA F 分解能ターゲットとアポダイズ照明された部分のレンズにより結像した拡大像。(右上) コヒーレント回折パターン。(右下) 再構成像。

3. 今後の研究の展望

X F E L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X F E L施設S A C L A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を行っている。研究は順調に進んでおり、さらなる論文発表を目指す。また、平成26年度より開始したトヨタ自動車(株)との共同研究では、触媒や電池材料など産業応用上重要な物質の実使用環境やプロセス過程でのナノレベル解析が期待される。

放射光を用いた研究では、開発したコヒーレントX線を

用いた走査透過X線顕微鏡システムを利用して、生物学や医療への応用を目指したイメージング研究を引き続き推し進める。さらに、可視光レーザーを用いたアポダイズ照明コヒーレント回折イメージングは、透明な位相物体にも適用可能であり、今後、高速の生細胞ダイナミクスの定量的なイメージングへの応用が期待される。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) J. Wei, K. Niikura, T. Higuchi, T. Kimura, H. Mitomo, H. Jinnai, Y. Joti, Y. Bessho, Y. Nishino, Y. Matsuo and K. Ijiro : “Yolk/Shell Assembly of Gold Nanoparticles by Size Segregation in Solution”, *J. Am. Chem. Soc.*, 138(10) : 3274–3277 (2016)
- 2) R. Yoshida, H. Yamashige, M. Miura, T. Kimura, Y. Joti, Y. Bessho, M. Kuramoto, J. Yu, K. Khakurel, K. Tono, M. Yabashi, T. Ishikawa and Y. Nishino : “Extending the potential of x-ray free-electron lasers to industrial applications – an initiatory attempt at coherent diffractive imaging on car-related nanomaterials –”, *J. Phys. B*, 48(24) : 244008–244012 (2015)
- 3) M. Taguchi, A. Chainani, S. Ueda, M. Matsunami, Y. Ishida, R. Eguchi, S. Tsuda, Y. Takata, M. Yabashi, K. Tamasaku, Y. Nishino, T. Ishikawa, H. Daimon, S. Todo, H. Tanaka, M. Oura, Y. Senba, H. Ohashi and S. Shin : “Temperature Dependence of Magnetically Active Charge Excitations in Magnetite across the Verwey Transition”, *Phys. Rev. Lett.*, 115(25) : 256405 (2015)
- 4) K. Khakurel, T. Kimura, Y. Joti, S. Matsuyama, K. Yamauchi and Y. Nishino : “Coherent diffraction imaging of non-isolated object with apodized illumination”, *Opt. Express*, 23(22) : 28182–28190 (2015)
- 5) 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)
- 6) 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)

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線レーザー回折による生きた細胞のナノイメージング」、オプトロニクス、35(1) : 48–52 (2015)
- 2) 西野 吉則 : 「X線自由電子レーザーを用いた生きた細胞のナノイメージング 一フェムト秒の発光時間のX線で生きた細胞の一瞬の姿を映し出す」、化学と工業、68(11) : 1018–1020 (2015)
- 3) 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を用いた生きた細胞のナノイメージング」、SPring-8/SACLA利用者情報、20(3) : 237–240 (2015)
- 4) Y. Nishino, T. Kimura, Y. Joti and Y. Bessho : “Imaging live cells by X-ray laser diffraction”, *SPring-8 Research Frontiers* 2014 : 126–127 (2015)
- 5) 木村 隆志、城地 保昌、別所 義隆、西野 吉則、松尾 保孝 : 「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」、*Nanotech Japan Bulletin*, 8(3) (2015)
- 6) 西野 吉則 : 「コヒーレントX線回折イメージング」、ATI News、公益財団法人 新世代研究所、18 : 2–7 (2015)

4.3 講演

a. 招待講演

- 1) 西野 吉則* : 「コヒーレントX線イメージング」、平成27年度ソフトマター中性子散乱研究会、エッサム神田ホール (2016-03)
- 2) 西野 吉則* : 「X線自由電子レーザーを用いた生きた細胞のナノイメージング」、ISSP ワークショップ「SPring-8 BL07LSUの現状 -X線分光と回折の協奏へ-」、東京大学物性研究所 (2016-03)
- 3) Y. Nishino* : “Frontiers in high-contrast nano-imaging opened up by coherent X-rays”, International Forum on Detectors for Photon Science (IFDEPS), Fuji View Hotel (2016-02 ~ 2016-03)
- 4) 西野 吉則* : 「X線自由電子レーザーを用いた生きた細胞のナノイメージング」、日本顕微鏡学会第40回関東支部講演会「顕微鏡が切り拓く最先端科学 — Leading edge of science advanced by microscopy」、帝京大学板橋キャンパス (2016-02)
- 5) 西野 吉則* : 「エックス線レーザーで観た、生きた細胞」、「国民との科学・技術対話推進事業」藤女子中学校・高等学校出張講義、藤女子中学校・高等学校 (2016-02)
- 6) 西野 吉則* : 「X線レーザーで観た、生きた細胞」、第53回北海道高等学校教育研究会(高教研)理科部会物理分科会、札幌市立札幌大通高校 (2016-01)
- 7) 西野 吉則* : 「コヒーレントX線が照らすナノ世界」、CREST「先端光源を駆使した光科学・光技術の融合展開」領域公開研究報告会、JST 東京本部別館 (2015-12)
- 8) Y. Nishino*, T. Kimura, Y. Joti, T. Oshima and Y. Bessho : “Live cell nano-imaging free from radiation damage by using X-ray free-electron laser”, The 13th Conference of the Asian Crystallographic Association (AsCA 2015), Kolkata, India (2015-12)

- 9) 西野 吉則*、木村 隆志、城地 保昌、大島 泰郎、別所 義隆 : 「Live cell nano-imaging free from radiation damage by using X-ray free-electron laser」、第 38 回分子生物学会年会・第 88 回生化学会大会合同大会 (BMB2015)、神戸ポートアイランド (2015-12)
- 10) Y. Nishino*, T. Kimura, Y. Joti and Y. Bessho : "Live cell nano-imaging free from radiation damage by using X-ray free-electron laser", The 9th Asia Oceania Forum for Synchrotron Radiation Research (AOFSRR 2015), National Centre for Synchrotron Science, Melbourne, Australia (2015-11)
- 11) 西野 吉則*、木村 隆志、城地 保昌、大島 泰郎、別所 義隆 : 「X 線自由電子レーザーを用いた環境制御ナノイメージング」、第 13 回 X 線結像光学シンポジウム、名古屋大学 (2015-11)
- 12) 西野 吉則* : 「X 線自由電子レーザーを用いた生きた細胞のナノイメージング」、平成 27 年度第 1 回生物構造学研究会、エッサム神田ホール (2015-11)
- 13) 西野 吉則* : 「X 線顕微鏡」、大阪大学ナノサイエンス・ナノテクノロジー高度学際教育研究プログラム、大阪大学中之島センター (2015-10)
- 14) 西野 吉則*、木村 隆志、城地 保昌、大島 泰郎、別所 義隆 : 「X 線自由電子レーザーを用いた生きた細胞のナノイメージング」、第 110 回日本医学物理学会学術大会、北海道大学 (2015-09)
- 15) 西野 吉則*、木村 隆志、魏 金建、飯田 良、新倉 謙一、三友 秀之、居城 邦治、城地 保昌、別所 義隆 : 「X 線自由電子レーザーを用いた環境を制御したナノイメージング」、第 64 回高分子討論会、東北大学川内キャンパス (2015-09)
- 16) 西野 吉則*、木村 隆志、城地 保昌、別所 義隆 : 「Imaging live cells by X-ray laser diffraction」、日本生物物理学学会、金沢大学角間キャンパス (2015-09)
- 17) 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 (2015-07)
- 18) 西野 吉則*、木村 隆志、吉田 力矢、于 健、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」、第 15 回蛋白質科学会年会、あわぎんホール、徳島市 (2015-06)
- 19) 西野 吉則* : 「エックス線レーザーで観た、生きた細胞」、北海道大学電子科学研究所一般公開サイエンストーク (市民講座)、北海道大学 (2015-06)
- 20) Y. Nishino* : "Chromosome structure as revealed by X-ray scattering", The 2nd UK-Japan Chromosome Workshop, Kasetsart University, Bangkok, Thailand (2015-05)
- b. 一般講演**
- 1) Y. Nishino* : "High-contrast nano-imaging of unstained biological samples opened up by coherent X-rays", The 1st international seminar on synchrotron X-ray bioimaging, Research Institute for Electronic Science, Hokkaido University (2016-01)
- 2) 木村 隆志*、後藤 遼平、丸岡 篤史、城地 保昌、大島 泰郎、別所 義隆、西野 吉則 : 「X 線自由電子レーザーによる溶液中試料ダイナミクス計測の試み」、第 29 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、東京大学柏の葉キャンパス駅前サテライト (2016-01)
- 3) 後藤 遼平*、木村 隆志、城地 保昌、大島 泰郎、別所 義隆、西野 吉則 : 「生物試料イメージング実験における測定効率の向上」、第 29 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、東京大学柏の葉キャンパス駅前サテライト (2016-01)
- 4) 丸岡 篤史*、木村 隆志、城地 保昌、別所 義隆、西野 吉則 : 「X 線レーザー回折イメージングによる溶液中試料の反応解析に向けたサンプルホルダーの改良」、第 29 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、東京大学柏の葉キャンパス駅前サテライト (2016-01)
- 5) 木村 隆志*、城地 保昌、別所 義隆、西野 吉則 : 「液中試料ダイナミクスのコヒーレント回折イメージングによる計測の試み」、附置研究所間アライアンス 第三回若手研究交流会、九州大学 筑紫キャンパス 総合研究棟 (C-cube)・1F 筑紫ホール (2015-11)
- 6) 木村 隆志* : 「コヒーレント回折イメージングによる液中試料の動的構造計測に向けた取り組み」、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、大阪大学中之島センター (2015-11)
- 7) 西野 吉則*、木村 隆志 : 「Nano Imaging Under Controlled Environment Using X-ray Free-Electron Lasers」、平成 27 年度アライアンス G3 分科会、大阪大学中之島センター (2015-11)
- 8) T. Kimura* : "Damage Free Imaging of Samples in Solution by X-ray Free-Electron Laser Diffraction", The 16th RIES-Hokudai International Symposium, Châteraisé Ga-teaux Kingdom, Sapporo (2015-11)
- 9) J. Yu*, Y. Joti, T. Kimura, Y. Bessho and Y. Nishino : "Numerical simulation of XFEL diffraction patterns of biological macromolecules in solution for PCXSS", The 16th RIES-Hokudai International Symposium, Châteraisé Ga-teaux Kingdom Sapporo (2015-11)
- 10) T. Sasaki*, T. Kimura, T. Uchihashi, T. Ando, Y. Joti, Y. Bessho and Y. Nishino : "Nano-patterning of organic samples for signal enhancement Using in X-ray laser diffraction imaging," , The 16th RIES-Hokudai International Symposium, Châteraisé Gateaux Kingdom, Sapporo (2015-11)
- 11) Y. Takabatake*, T. Kimura, K. Yamazaki, Y. Maehara, J. Wei, K. Niikura, K. Ijiro, Y. Joti, Y. Bessho, K. Gohara

- and Y. Nishino : "X-ray Laser Diffraction In-Solution Imaging Using Environmental Cell Array Chips with Graphene Windows", The 16th RIES-Hokudai International Symposium, Châteraisé Gateaux Kingdom Sapporo (2015-11)
- 1 2) 西野 吉則*：「X線自由電子レーザーを用いた生きた細胞のナノイメージング」、2015 年度第 1 回バイオ单分子研究会、(公財) 新世代研究所、東京 (2015-08)
- 1 3) J. Yu*, Y. Joti, T. Kimura, Y. Bessho and Y. Nishino : "XFEL diffraction pattern simulation and image reconstruction of biomolecular complexes for pulsed coherent X-ray solution scattering" , 平成 26 年度アライアンス成果報告会、九州大学伊都地区カーボンニュートラル・エネルギー国際研究所 (2015-04)

4.4 シンポジウムの開催

- 1) Y. Nishino : "The 1st international seminar on synchrotron X-ray bioimaging" , 12 人, RIES, Hokkaido University (Sapporo) (2016 年 01 月 27 日)
- 2) H. Ohta, Y. Nishino, M. Nagayama, H. Fujiwara, H. Kaiju, M. Yamanouchi, E. Ginder, T. Katase, S. Kuroda, H. Mitomo, R. Yoshida, Y. Iseya and S. RIES : "The 16th RIES-Hokudai International Symposium "術"[JUTSU] joined with the 6th International Symposium of Nano-Macro Materials, Devices, and System Research Alliance Project" , 111 人, Châteraise Gateaux Kingdom Sapporo (Sapporo) (2015 年 11 月 10 日～2015 年 11 月 11 日)
- 3) 西野 吉則 : 「パルス状コヒーレント X 線溶液散乱 (PCXSS) ワークショップ」、25 人, RIES, Hokkaido University (Sapporo) (2015 年 08 月 12 日)

4.5 共同研究

a. 民間等との共同研究

- 1) 西野 吉則 (トヨタ自動車株式会社) : 「X 線分光・イメージングによるリチウムイオン電池材料の状態分析」、2015 年度
- 2) 西野 吉則 (トヨタ自動車株式会社) : 「平成 27 年度 SACL A 産学連携プログラム「X F E L を用いた自動車用ナノマテリアルの形態や状態の把握」」、2015 年度

b. 受託研究

- 1) 西野 吉則 (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 年度～

c. その他

- 1) 山内 和人、西野 吉則、前島 一博、志村 まり (科学技術振興機構 戰略的創造研究推進事業 (C R E S T)) : 「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」、2009～2015 年度

4.6 予算獲得状況

a. 科学研究費補助金

- 1) 西野 吉則、基盤研究 S、X 線レーザー回折による生細胞ダイナミクス、2015～2019 年度
- 2) 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

4.7 受賞

- 1) 西野 吉則 : 北海道大学研究総長賞奨励賞 (北海道大学) 2016 年 02 月

4.8 社会教育活動

a. 公的機関の委員

- 1) 西野 吉則 : 公益財団法人 新世代研究所 バイオ单分子研究会 委員長 (2015 年 04 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)
- 3) 西野 吉則 : SACL A ユーザー協同体 評議員 (2013 年 05 月 01 日～現在)

b. 国内外の学会の役職

- 1) 西野 吉則 : International Program Committee of the 13th Conference of the Asian Crystallographic Association (AsCA 2015) (2015 年 12 月 05 日～2015 年 12 月 08 日)

c. 併任・兼任

- 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)

d. 新聞・テレビ等の報道

- 1) 西野 吉則 : 科学新聞 2015 年 11 月 20 日 「自動車排ガス浄化用触媒材料 放射線損傷なくナノレベルで観察 産学連携研究」
- 2) 西野 吉則 : 日経産業新 2015 年 11 月 18 日 「自動車排ガス浄化用触媒材料 放射線損傷なくナノレベルで観察 産学連携研究」
- 3) 西野 吉則 : 日刊自動車新聞 2015 年 11 月 12 日 「放射線での損傷なし 排ガス浄化触媒観察 ナノレベルでトヨタなど」
- 4) 西野 吉則 : Security Online News 2015 年 11 月 12 日 「SACL A 産学連携プログラムで、自動車排ガス浄化用触媒材料を放射線損傷なくナノレベル観察することに成功」
- 5) 西野 吉則 : OPTRONICS ONLINE 2015 年 11 月 11 日 「北大ら、産学連携で排ガス用触媒を XFEL 観察」
- 6) 西野 吉則 : Response 2015 年 11 月 11 日 「北大とトヨタなど、自動車排ガス浄化用触媒材料のナノレベルでの観察に成功」

7) 西野 吉則：財経新聞 2015年11月11日 「北大ら、自動車排ガス浄化材料をナノレベル観察」

8) 西野 吉則：Car Watch 2015年11月11日 「X線自由電子レーザー（XFEL）施設「SACLA」を用いて、自動車排ガス浄化用触媒材料を放射線損傷なくナノレベルで観察することに成功」

9) 西野 吉則：北海道新聞 2015年08月09日 「Academic Fantasista 2015 -エルムの知から、世界を知る-」

10) 西野 吉則：放送大学 2015年07月02日 「「分子分光学」第13回「電子線回折とX線回折」」

e. 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「2030年エレクトロニクスの旅」、西野 吉則、2016年01月05日

2) 工学部、生体工学概論、西野 吉則、2015年12月16日

3) 情報科学研究科、ナノイメージング特論、木村 隆志、2015年10月01日～2016年03月31日

4) 情報科学研究科、ナノイメージング特論、西野 吉則、2015年10月01日～2016年03月31日

5) 工学部、ナノ工学基礎、西野 吉則、2015年10月01日～2016年03月31日

6) 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、2015年05月08日

7) 工学部、情報エレクトロニクス演習、木村 隆志、2015年04月01日～2015年09月30日

8) 全学共通、生体情報工学実験1、木村 隆志、2015年04月01日～2015年09月30日

9) 全学共通、フレッシュマンセミナー、木村 隆志、2015年04月01日～2015年09月30日

10) 工学部、科学技術英語演習、西野 吉則、2015年04月01日～2016年03月31日

f. 北大以外での非常勤講師

1) 西野 吉則、大阪大学ナノサイエンス・ナノテクノロジー高度学際教育研究プログラム、X線顕微鏡、2015年10月29日

g. ポスドク・客員研究員など

・ポスドク（2名）

1) 于 健（特任助教）

2) 楊 影（博士研究員）

h. 修士学位及び博士学位の取得状況

・修士論文

1) 佐々木 智也：X線レーザー回折イメージングの高度化へ向けた生体試料ナノパターニング

2) 高畠 雄輝：グラフェン隔膜環境セルアレイを用いたX線レーザー回折イメージング

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、フォトニック応用のための機能性分子と分子ナノ材料の創製、生体の情報機能や運動機能を理解し応用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、バルクでは見られない特異な電子・イオン輸送現象を示す薄膜機能材料の合成とそれを用いたデバイス開発に取り組んでいます。このような研究は、実社会で役に立つ機能材料や機能デバイスの創製に貢献します。

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 相良剛光（東京大院、工博、2015.7～）
松尾和哉（京都大院、工博、2015.6～）
Yuna Kim (Yonsei University、工博、2011.8～)
博士研究員 Kanthyappa Rajanna Sunilkumar (2014.7～)
事務補助員 大木真理子
学 生
博士課程
Halley M M, Islam MD Jahirul, Amrutha A S, Viswanatha H M
学部生 芦野史弥

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) モータータンパク質の運動を制御する光応答性阻害剤の分子構造－物性相関

アクチニーミオシン、キネシンー微小管、ダイニンー微小管といったモータータンパク質は、われわれの体の中で様々な運動機能を達成するために働いている。そこでキネシンー微小管およびダイニンー微小管は、細胞内で物質輸送を担っていることから、これらモータータンパク質を細胞外に取り出して、ミクローナノレベルでの人工的な物質輸送に応用しようという研究が盛んになっている。人の望む場所とタイミングでモータータンパク質を働かせようとした時、人工的な何らかの制御機構を組み込むことが有用である。当研究室ではすでに、光に応答してその活性を自ら変化させるATP（アデノシン三リン酸）に代わる光応答性高エネルギー分子や光に応答してATP活性に対する阻害効果を変化させる光応答性阻害剤を開発して、モータータンパク質の運動を完全に可逆的に光でスイッチできることを示してきた。この光応答性阻害剤分子は、本来キネシンー1が有するテール部ペプチドの自己阻害作用と光応答性分子としてよく知られたアゾベンゼンを組み合わせた

ものである。分子構造としては、アゾベンゼンペプチドの構造を有する。本光応答性阻害剤は、キネシンー微小管の運動機能の完全ON-OFFスイッチングを達成したもののが幾つかの問題点および未解明な点が残っている。一つの問題は、比較的高濃度（2.5mM）が必要な点である。もう一つは、キネシンのテール部から取つてくるペプチド鎖の中で必須のアミノ酸はどこかが不明な点である。さらに、アゾベンゼンへの置換基の導入が、必要添加濃度へ以下に影響をあたえるかもわかつてない。今年度は、上記の点を明らかにするために、光応答性阻害剤の分子構造－物性相関を調べることとした。その結果、6つの必須アミノ酸の配列が明らかとなり、さらに、750 μMでも十分有効にキネシンー微小管の運動機能をON-OFFスイッチングできる新規光応答性阻害剤を開発することに至った。

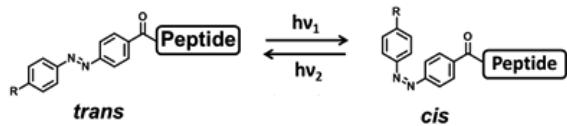


図1 光応答性阻害剤の構造と光異性化挙動

すでに報告していた光応答性阻害剤の構造は以下のとおりである（一般的な構造は図1を参照）。
Azo-Ile-Pro-Lys-Ala-Ile-Gln-Ala-Ser-His-Gly-Arg-OH
Azoはパラ位でアミド結合を介してペプチドのアミノ末端に導入されたアゾベンゼンを示す。実験では、10個のアミノ酸を一つ一つ系統的に削除したアゾベンゼンペプチドを合成し、その溶解性と阻害特性および光応答性を調べた。その結果、Ile-Pro-Lys-Ala-Ile-Glnのアミノ酸配列が阻害効果を示す上で重要であり、この配列のアミノ末端にさらにArgを挿入した化合物が高い阻害活性を示すことがわかった。この結果は、すでに報告されている *D. melanogaster* kinesin-1（われわれが用いているヒトキネシンー1のホモログ）とテール部ペプチドの複合体のX線結晶構造解析で確認できるアミノ酸残基間の相互作用の考察からもうまく説明できた。すなわち、キネシンー1のポケット内のアミノ酸残基と静電的または疎水的相互作用を示すアミノ酸残基が適切な配列をとっていることが高い阻害効果を示すために重要であることがわかった。さらに、アゾベンゼンへ導入する置換基の効果を調べた結果、パラ位にメトキシ基を導入することで、より低濃度で光ON-OFFスイッチが可能となり、結果的にMeO-Azo-Arg-Ile-Pro-Lys-Ala-Ile-Arg-OHは750 μMでキネシンー微小管の運動を完全に光スイッチできることを明らかにした。

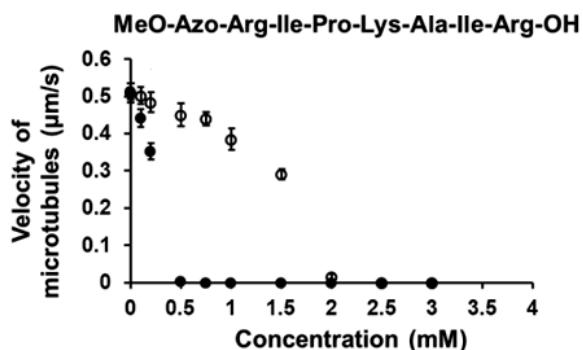


図2 基板表面に固定されたキネシンの運動による微小管の滑走速度の阻害剤濃度依存性。黒丸は光照射前（トランス体）、白丸は紫外線照射後（シス体）。

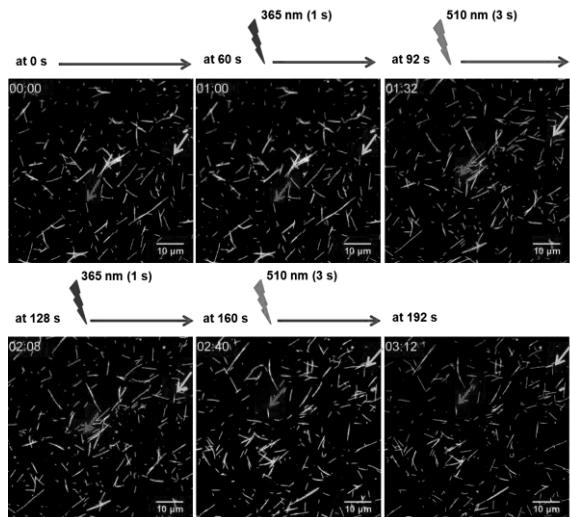


図3 蛍光顕微鏡で観察した微小管の運動。左上：初期状態、白い線は一本の微小管。赤と黄色の矢印は注目している微小管を示す。中上：暗所 60 秒後。微小管の位置は全く変化していない。右上：365nm 光を 1 秒照射した後 31 秒後。微小管が移動している。左下：510nm 光を 3 秒照射した後 33 秒後。微小管は 510nm 光を照射した後は移動していない。中下、右下はそれぞれ 365nm 光または 510nm 光を照射した後の微小管の位置。

(b) コレスティック液晶を光制御する新規キラルアゾベンゼンの開発

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。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。われわれはすでに面性不齊を示す環状アゾベンゼン誘導体を開発し、数百ミクロンサイズのガラスロッドやガラスプレートを360°以上可逆的に回転できる液晶薄膜を実現している。しかし、キラルアゾベンゼンの分子構造とねじり力の関係については不明な点が多い。

一般的にはキラルアゾベンゼンがトランス体からシス体へと異性化反応を起こすとき、ねじり力は減少することが知られていた。今回、コレステロール部位とアゾベンゼン部位を結合した単純な構造の化合物のネマティック液晶中でのねじり力が、アゾベンゼンのトランス体からシス体へ異性化するとき、ねじり力が増大することを発見した。また、その現象が、キラルネマティック液晶中に形成されるサイボタクティクスマクティック構造に起因する現象であることを明らかにした（図4）。さらに、得られた光応答性キラル化合物は、単純な構造であるにもかかわらず360°の比較的大きな物体回転を達成することを明らかにした。

図4に合成した化合物の構造を示す。これらの化合物は、既知のジカルボン酸誘導体とヒドロキシアゾベンゼン誘導体およびコレステロールを一段で縮合することで得られた（図4）。

これらの化合物を市販のネマティック液晶に添加するとキラルネマティック液晶が誘起された。図5には、N8を5CBに添加した時の、キラルネマティック液晶由来のウェッジセル中での欠陥線を観察した時の様子を示す。欠陥線の間隔は366nm光を照射してアゾベンゼン部位の構造をトランス体からシス体へと変化させた時短くなり、436nm光を照射してアゾベンゼン部位をシス体からトランス体へ戻すときに長くなっている。すなわち、トランスアゾベンゼンに比べてシスアゾベンゼンの方がねじり力は小さい。本結果は、パラ位に置換基を導入したアゾベンゼン誘導体に於いて初めての例であり、これまでに知られていない機構によっているものと考えられた。

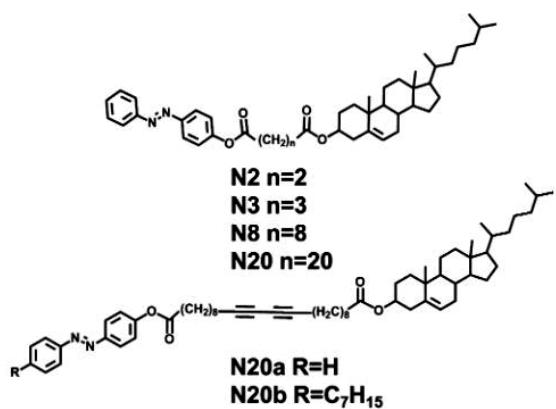


図4 合成した光応答性キラル化合物の分子構造

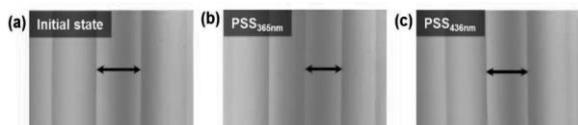


図5 ホストネマティック液晶 5CBにN8を5%添加した材料のウェッジセル中での欠陥線の様子。（a）光照射前、（b）365nm光下での光定常状態、（c）436nm光下での光定常状態。欠陥線間の間隔は、（a）12.04μm、（b）9.07μm、（c）11.82μm

X線構造解析により、アゾベンゼン部位の光異性化反応に伴う液晶構造の変化を詳細に調べることで、トランス体で誘起されるキラルネマティック液晶中の（ねじり効果の無い）サイボタクティッククラスターの大きさと量が、システムへの異性化反応によって減少していることが明らかになった。これによりねじり力の増強が生まれているとして説明された（図6）。また、光異性化反応に伴うサイボタクティッククラスターの大きさと量の変化は、中心のアルキル鎖長の長さと炭素数の偶奇に大きく依存した。これらの現象も光異性化によるサイボタクティック構造の安定化と破壊という機構をさらに裏付けた。

もっともねじり力変化が大きかったN2を市販のネマティック液晶に添加した液晶膜を用いてマイクロサイズのガラスロッドを分子の光異性化反応によって回転させる実験を行った。その結果、 430° のガラスロッドの回転が観察され、容易に合成できる単純な構造のアゾベンゼン誘導体でも、十分性能の良い分子機械のエンジン分子となり得ることが明らかとなった（図7）。

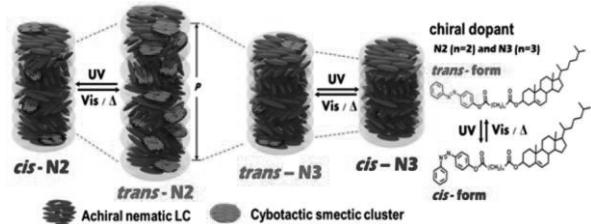


図6 合成した光応答性キラル化合物の構造と光異性化に伴うコレステリックピッチの変化を示す模式図

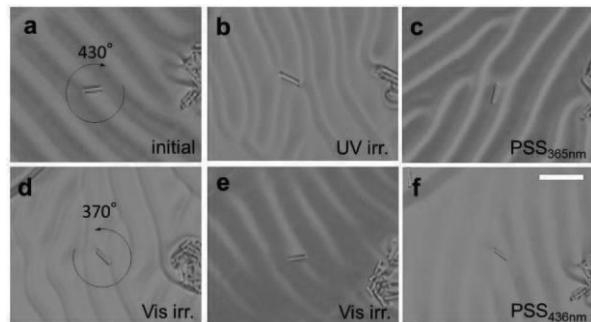


図7 N2を市販のネマティック液晶に5wt%添加した液晶膜の上にのせたガラスロッドの光照射による回転運動。aからcは365nm光を照射。dからfは436nm光を照射

3. 今後の研究の展望

アゾベンゼンペプチドのキネシ－微小管モータータンパク質の運動に対する光応答性阻害機能に関しては、分子構造と阻害剤としての活性の相関が明らかになり、従来よりもペプチド鎖の短い化合物でより高い光応答性素材機能を有する物質の発見につながった。本課題に関しては、よ

り優れた物質が見つかったことで、従来の目的である单一モータータンパク質もしくは单一微小管の光マニピュレーションを達成するための研究に移ることが可能であると考える。そのためには、光学顕微鏡上で5ミクロン程度以下に絞った光を局所的に照射し、その光の位置を自由に動かすことが必要となる。今後は、そのような光学装置を顕微鏡に組み込んで、今回発見した高性能光応答性阻害剤を用いて分子機械の高時空間選択的マニピュレーションを達成する。

液晶用光応答性キラル添加剤に関しては、今回ネマティックホスト中の効果としては全く新しいサイボタクティッククラスターの安定化と破壊によるねじり力の制御という現象を見つけた。本現象は全く新しい概念を含んでいるため、どの程度の大きさのねじり力変化を誘起できるのかどの程度のガラスロッドの回転角が達成可能なのかが明らかでない。今後は、この概念に基づく新構造化合物をさらに合成し、より大きなねじり力変化を達成する。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) R. Ochi, N. Perur, K. Yoshida, N. Tamaoki: "Fast thermal cis?trans isomerization depending on pH and metal ions of water-soluble azobenzene derivatives containing a phosphate group", *Tetrahedron*, 71(21):3500–3506 (2015)
- 2) Y. Kim and N. Tamaoki: "Asymmetric Dimers of Chiral Azobenzene Dopants Exhibiting Unusual Helical Twisting Power upon Photoswitching in Cholesteric Liquid Crystals", *ACS Applied Materials Interfaces*, 8(7):4918–4926 (2016)
- 3) Y. Sagara, Y. C. Simon, N. Tamaoki and C. Weder: "A mechano- and thermoresponsive luminescent cyclophane", *Chemical Communications*, 52:5694–5697 (2016)

4.2 総説、解説、評論等

- 1) 玉置信之：“見て、判断して、行動する分子ロボットの構築” *生物物理*, 55(4):203–205 (2015)

4.3 講演

a. 招待講演

- 1) 玉置信之：“Photo-switching of Motor Proteins toward Smart Molecular Systems”, *The 3rd International Life-Science Symposium*, 北海道大学 学術交流会館 (2015-11)
- 2) N. Tamaoki: “Advanced Materials and Characterisation”, CityU/Hokkaido University Joint Workshop, City University of HongKong, HongKong (2015-12)
- 3) 玉置信之：“超分子的手法によるモータータンパク質の光機能化とそれによるスマート分子ロボットの構築”, 15-2 超分子研究会, 大阪大学 豊中キャンパス(2016-01)

- 4) N. Tamaoki: "Reversible photo-regulation of motor proteins toward smart molecular systems", Bologna University, Bologna, Italy(2016-02)
- b. 一般講演
- i.) 学会
- 1) K. R. Sunil Kumar and N. Tamaoki: "Spatiotemporal Regulation of the Motility of a Nanobiomolecular Machine through ON/OFF Photoswitching", G3 meeting, Kyushu University, Fukuoka, Japan(2015-04)
 - 2) Y. Kim and N. Tamaoki: "Dimeric chiral azobenzene dopants exhibiting unusual photoswitching behavior of helical twisting power in cholesteric liquid crystal", 2015年日本液晶学会討論会 東京工業大学すずかけ台キャンパス(2015-09)
 - 3) 高橋大樹、楳崎健太、玉置信之、青木健一：“高い重合活性を示すジアセチレンゲル化剤の開発とゲル中へのポリジアセチレンパターンの形成”，ポリマー材料フォーラム 東京都 タワーホール船堀(2015-11)
 - 4) 小林佑子、玉置信之、青木健一：“末端にアミノ酸構造を有するジアセチレン有機ゲル化剤のゲル化および光重合特性”，ポリマー材料フォーラム 東京都 タワーホール船堀(2015-11)
 - 5) 植田美里、小林佑子、玉置信之、青木健一：“アラニンベンジルエステル部位を末端に有する光重合性ジアセチレンゲル化剤の合成と特性評価”，ポリマー材料フォーラム 東京都 タワーホール船堀(2015-11)
 - 6) 楠崎健太、高橋大樹、玉置信之、青木健一：“芳香環末端型ジアセチレンゲル化剤の構造最適化による有機ゲル中での高効率な光重合”，ポリマー材料フォーラム 東京都 タワーホール船堀(2015-11)
 - 7) K. R. Sunil Kumar, A. S. Amrutha and N. Tamaoki: "Concentrating, Dispensing and Guiding of the Microtubules", The 16th RIES-Hokudai International Symposium, Gorteaux Kingdom Hotel, Sapporo, Japan(2015-11)
 - 8) A. S. Amrutha, K. R. Sunil Kumar, N. Tamaoki : "Effects of the peptide sequences and the substituents at the photoresponsive unit on the properties of the azopeptide working as the kinesin motor inhibitor", The 16th RIES-Hokudai International Symposium, Gorteaux Kingdom Hotel, Sapporo, Japan(2015-11)
 - 9) A. S. Amrutha, K. R. Sunil Kumar, N. Tamaoki: "Influence of structural modifications made at the photoresponsive unit and the peptide sequence on the efficiency of the photoresponsive inhibitor of kinesin motor", 3rd International Life-Science Symposium, Hokkaido University, Japan(2015-11)
 - 10) Y. Kim and N. Tamaoki: "Unusual photoswitching behavior of helical twisting power from dimeric chiral azobenzene dopants in cholesteric liquid crystal", Pacificchem2015, Hawaii Convention Center(2015-12)
 - 11) K. Narazaki, K. Horitsugu, N. Tamaoki and K. Aoki "Novel odd/even effect of alkylene chain length of diacetylene gelators on molecular packing modes in gel states to affect subsequent photopolymerization behaviors", 環太平洋国際化学会議 ハワイ(2015-12)
 - 12) D. Takahashi, K. Narazaki, N. Tamaoki and K. Aoki: "Photopatterning of pi-conjugated polydiacetylene polymers by using organogelators with excellent photopolymerizability", 環太平洋国際化学会議 ハワイ(2015-12)
 - 13) M. Ueda, Y. Kobayashi, N. Tamaoki and K. Aoki "Effect of chemical structures of terminal optically active groups of the amino-acid based diacetylene gelators on the gelation and photopolymerization behaviors", 環太平洋国際化学会議 ハワイ(2015-12)
 - 14) Y. Kobayashi, K. Horitsugu, N. Tamaoki and K. Aoki: "Effect of chemical structures of amino acid-based diacetylene gelators on gelation and photopolymerization behaviors", 環太平洋国際化学会議 ハワイ(2015-12)
 - 15) K. R. Sunil Kumar, A. S. Amrutha and N. Tamaoki: "Photoregulation of the Kinesin-Microtubule Motor System", CEMS International Symposium on Supramolecular Chemistry and Functional Materials 2016, Ito Hall, The University of Tokyo, Tokyo, Japan(2016-01)
 - 16) K. R. Sunil Kumar and N. Tamaoki: "Manipulation of a single microtubule by light", 2015 fiscal year research exchange meeting, Research Institute for Electronic Science, Hokkaido University, Sapporo, Japan(2016-01)
 - 17) Y. Kim : "Novelazobenzene dopants exhibiting unusual helical twisting power upon photoswitching in cholesteric liquid crystals", Pusan National University, Busan, Korea(2016-03)
 - 18) 玉置信之、松尾和哉：“モータータンパク質キネシンを光制御する新規アゾベンゼン連結ペプチド”，日本化学会 第96春季年会 同志社大学京田辺キャンパス(2016-03)
 - 19) Y. Kim and N. Tamaoki: "Unprecedented photoswitching behavior of helical twisting power from dimeric chiral azobenzene dopants in cholesteric liquid crystal", 日本化学会第96春季年会 同志社大学 京田辺キャンパス(2016-03)

- 20) 相良 剛光, S. Yoan, 玉置 信之, W. Christoph: “機械的刺激と熱刺激により発光色が固相で変化するシリコファン”、日本化学会第96春季年会 同志社大学京田辺キャンパス(2016-03)
- 21) A. S. Amrutha, K. R. Sunil Kumar, N. Tamaoki: “A new class of azobenzene tethered peptides allowing the reversible kinesin motility control by the single wavelength of visible region”, 96th annual meeting of Chemical Society of Japan, Kyotanabe campus, Doshisha University, Kyoto, Japan(2016-03)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) Halley M. M. and N. Tamaoki: “Photo-control of contraction of glycerinated muscle with a non-nucleoside triphosphate at the macroscopic level”, The 3rd International Life-Science Symposium, 北海道大学 学術交流会館(2015-11)
- 2) Halley M. M. and N. Tamaoki: “Pho-to-control of contraction of glycerinated muscle with a non-nucleoside triphosphate at the macroscopic level”, The 16th RIES-Hokudai International Symposium(2015-11)
- 3) Y. Kim : “English for scientists: The first step”, 北海道大学 理学部(2016-01)
- 4) Y. Kim : “Joint Symposium for English Education: How do we teach English for science and engineering students?”, 北海道大学 理学部(2016-03)

4.4 予算獲得状況

a. 科学研究費補助金以外

- 1) Yuna Kim、東洋合成記念財団 平成27年度研究助成金「光書き換え無電力表示を可能とする液晶性感光材料の研究」 平成27年度～平成28年度

4.5 受賞

- 1) Excellent Presentation Award

Halley M. M. and N. Tamaoki: “Pho-to-control of contraction of glycerinated muscle with a non-nucleoside triphosphate at the macroscopic level”, The 3rd International Life-Science Symposium(2015-11)

4.6 社会教育活動

a. 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、2015年7月24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、2015年6月25日
- 3) 理学部、生物系の熱力学、玉置信之、2015年4月7日～2015年5月29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、2015年7月6日～2015年8月3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、2015年5月14日

- 6) 全学教育科目、国際交流科目「Introduction to Soft Electronics」、キム ユナ、2015年4月15日～2015年8月5日
 - 7) 大学院共通授業科目、生命科学特別講義II（国際）、キム ユナ、2015年6月3日～2015年7月29日
- b. ポスドク・客員研究員など
- ポスドク（1名）
- 1) Kanthyappa Rajanna Sunilkumar

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（東大院、工博、2003.04～）

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 [ABE²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。

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や従来型太陽電池は、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。次世代高機能デバイス・システムに向けて、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）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、もしトップダウン一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。

次世代デバイスの作成に向け、極限高清淨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指している。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そうとは極めて重要な要素でもあるが、未だ実現されていない。

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。

2. 研究成果

(a) 次世代高機能デバイス・システムに向けて

Atom-Bit-Energy・Environment(ABE²)空間での
次世代デバイス・システム創出の試み

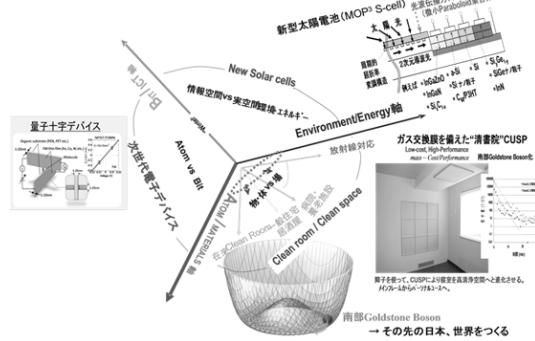


図1. ABE²空間における展開

(a1) 新型光電変換システム

非対称導波路を用いて、図2に示すような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、フォトンの進行方向に沿ってバンドギャップが減少する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2右下の断面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が直交するため、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の右下内挿図に示すような周期配列のパラボラミラーを配置した構造体を検討した。屈折率異方性を有する層を2次元導波路のクラッド層として用いる

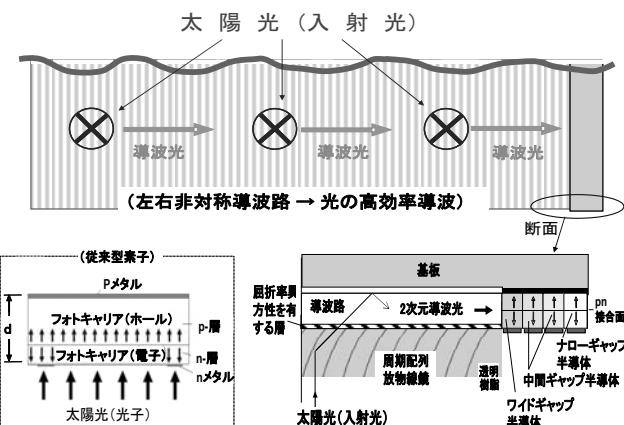


図2. 非対称導波路を有する新型太陽電池システム。左下は在来型素子の断面図、右下は、新型構造の断面図。

ことで、図の垂直下方から入射した光が、面内方向に伝播するように制御できることが示唆された。今後、導波路構造の最適化を行い、素子の性能向上も行っていく。新しい光電変換システムである非対称導波路結合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により、太陽光の全スペクトルに亘って光電変換が可能で、拡散光にも強く、熱力学限界に迫る光電変換効率を有する集光発電システムが期待できる。

(a2) 極限高清淨環境 (Clean Unit System Platform: CUSP) の展開

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) を用いて、人が内部にて就寝することで、通常環境でのまま就寝する (1立方フィート当たり、 $0.5 \mu\text{m}$ 以上の塵埃の総和が数十万である典型的な通常環境にて睡眠をする) 場合にくらべ、肺への塵埃の取り込みを数千分の一に抑えることができ、毎晩、呼吸器系の良いリフレッシュとなる。粉塵微粒子密度は10分以内に、US 209Dクラス100級を実現するが、この高清淨度環境下では、残留する粉塵微粒子によるバックグラウンドが大幅に抑えられるため、睡眠中の体動により発生する僅かな粉塵微粒子密度の変化を明確に抽出することができる。この変動は、睡眠の深さと相関し、この時間的変化を“Kinetosomnogram (KSG)”として睡眠クオリティーの検出パラメータとして利用するという新しい概念を提出するに至った。CUSP中での就寝時に、ポリソムノグラフィー (PSG) 測定を行うことで、KSGとPSGの同時計測を行うことができ、そのスペクトルを比較することができる。KSGにおけるピークは、PSGの“Wake”状態と高い精度で相関がみられるところから、KSGによってPSGにおける“Wake”状態に絡む睡眠状態が高精度に検出できることが見出された。KSGおよびそこから得られるビッグデータも活用しながら、今後老齢人口比率の高まる日本の健康維持・増進に向けて展開できる可能性がある。

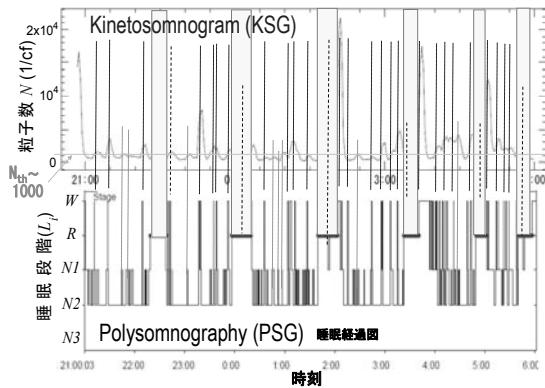


図 3:本研究により見出されたKinetosomnogram (KSG) とポリソムノグラフィー (PSG) の比較。

(b)理論：全体の目的としては、物性理論の観点から、トポロジカルな磁性現象の解明やトポロジカル絶縁体の特異なバンド構造を利用した新奇なスピンドバイスの提案ならびにスピントラベル作用の非可換ゲージ場の側面を活かしたデバイスの検討を行うことにより、工学的にはスピントロニクスへ寄与することを目指しており、理学的にはトポロジーの物性への影響を調べることを目的としている。

今年度の成果は以下のものである。スピントラベル作用を非可換ゲージ場とみなした場合に1次の Rashba 効果や1次の Dresselhaus 効果では、その非可換ゲージ場を Hamiltonian の平方完成を用いて得ることが出来て、それによるアハラノフ・キャッシャー(AC)位相が得られることが、先行研究で知られていた。しかしながら、2次や3次の Rashba 効果などの高次の場合には得ることが出来ていなかった。そのため1次 Rashba スピントラベル作用を有するAB リングの理論や実験は沢山報告されているにも関わらず、2次や3次といった高次 Rashba スピントラベル作用によるAB リングの理論や実験は報告されていない。そこで、非可換ゲージ場の理論を援用することにより、2次や3次の Rashba 効果などの高次の場合に対しても AC 位相を導出することを試み、成功した。またその過程で断熱近似あるいはアーベリアン近似と呼ばれる近似に2種類の取り方があり、それらが等価であることも示せた。具体的にはパウリスピント行列 $\sigma_\alpha (\alpha = x, y, z)$ を基底とする非可換ゲージ場を \vec{A}_μ とするとそれに対応する Field of Strength $\mathbf{F}_{\mu\nu}$ は

$$\mathbf{F}_{\mu\nu} = (\partial_\mu A_\nu^\alpha - \partial_\nu A_\mu^\alpha) \boldsymbol{\sigma}_\alpha - \frac{i\tilde{e}}{\hbar} [A_\mu^\alpha \boldsymbol{\sigma}_\alpha, A_\nu^\beta \boldsymbol{\sigma}_\beta]$$

と表現できる。一般的な断熱近似の場合の $\mathbf{F}_{\mu\nu}^{\text{ad}}$ は、ゲージ場の対角要素を残す近似であるが、それは、Field of Strength の対角要素を残すことによく近似は一定の考査のもとにわかった。従って、一般的な断熱近似の場合の $\mathbf{F}_{\mu\nu}^{\text{ad}}$ は、

$$\mathbf{F}_{\mu\nu}^{\text{ad}} = (\partial_\mu A_\nu^z - \partial_\nu A_\mu^z) \boldsymbol{\sigma}_z$$

である。一方、ある条件を満たせば、実は、ゲージ場の対角要素をなくして、非対角要素のみで、作られる以下に示す量も等価な断熱近似の $\mathbf{F}_{\mu\nu}^{\text{ad}}$ になることが分かった。

$$\mathbf{F}_{\mu\nu}^{\text{ad}} = \frac{2\tilde{e}}{\hbar} (A_\mu^x A_\nu^y - A_\mu^y A_\nu^x) \boldsymbol{\sigma}_z$$

これは実空間での1次の Rashba効果で自然に起こっている現象でもある。このことをを利用して、 n 次ラシバ効果のAC効果による位相演算子 \mathbf{U}_{AC} を以下のように導出することに成功した。

$$U_{\text{AC}} = \exp(i\vec{\beta}_{\text{AC}} \cdot \vec{\sigma}), \vec{\beta}_{\text{AC}} = k_{\text{Rn}} L (-nl_y, nl_x, 0)$$

ここで k_{Rn} は n 次のスピン軌道相互作用定数、 L は電子が走行した距離、 l_x, l_y は電子が走行した方向の単位ベクトルの x, y 成分である。この結果を用いて図 4(a) のようにリング状に形成された 2 個の量子ドットと量子ナノワイヤにおいて 1 次、2 次、そして 3 次の Rashba スピン軌道相互作用が働く場合に外部磁場を作用させた際に起る AB 効果において、高次スピン軌道相互作用が及ぼす影響について検討した。図 4(b) は計算に用いた強結合近似のモデルである。

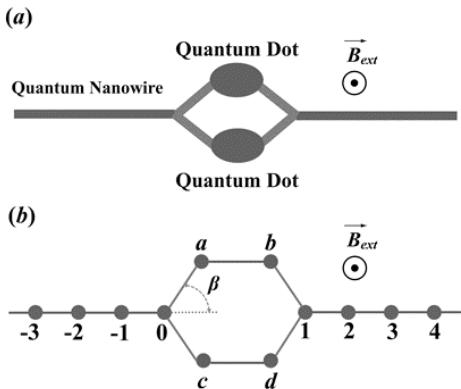


図 4: (a) モデル構造と(b) tight-binding 近似

図 5 は、この 2 個の量子ドットからなるアハラノフ・ボームリングのデバイスにおいて、1 次、2 次、3 次 Rashba 効果が働いた場合のスピン分極率の磁束依存性のグラフであり、スピンフィルタリング効果における 1 次、2 次、そして 3 次の Rashba スピン軌道相互作用の効果の違いを示す。この結果から、この素子でスピンを完全にフィルタリング出来ること、ならびに完全スピン偏極を起こす磁束の値から働いている Rashba スpin 軌道相互作用の次数の決定を容易に実行可能であることがわかる。

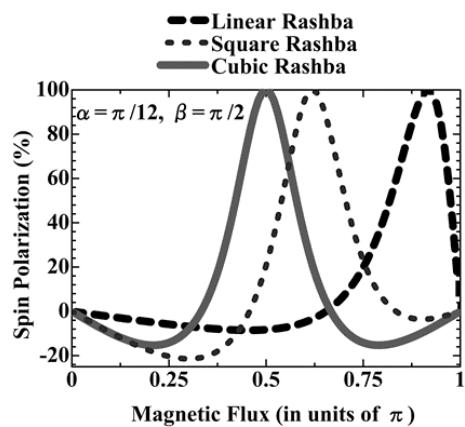


図 5: 外部磁束とリング状のドットとナノワイヤによるスピンフィルタリング効果の結果

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（黒体輐射）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、太陽光の全スペクトルに亘って光電変換が可能で、熱はけが良くまた拡散光にも強い熱力学限界に迫る高光電変換効率を有する集光発電システムの可能性を追求して行く。

理論の方からは、トポロジカルな Dirac 点や Weyl 点における摂動を Universal unfolding という特異点論の手法で行い、従来と異なる観点から、トポジカル絶縁体の分類を行う予定である。これはすでに寺本先生などと一緒に、一部行い、発表している。同時にトポロジカルな観点からは、マヨラナ粒子を用いたデバイスの提案も行なっていきたい。また、核スピンにおける核電気共鳴による DNP (Dynamic Nuclear Polarization) の基礎理論の構築と実験の解釈も工学部の植村先生と一緒に行なう予定である。一方、低次元電子のシステムにスピン軌道相互作用と電子間斥力が同時に働く場合において、1 電子スペクトラムやスピン圧縮率や電荷圧縮率にどのような変化が定量的に現れるかも基礎理論として検討する予定である。今年度は非可換ゲージ場による高次 Rashba の解釈に進展があったが、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、それらの探索も行なう予定である。

今後もアトム(Atom)・ビット(Bit)・エネルギー(Energy)/環境(Environment)空間 [ABE²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 技術を開拓し、“Clean space for all 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つなげていく。市民生活の様々な局面で生活水準の向上、健康維持に役立ち、高齢者はもとより、乳幼児等の免疫力が弱く環境対応力が相対的に少ない高感受性者への福音となる。ナノとマクロの世界とをつなぎ、トップダウン-ボトムアップ両系の統合に端緒をつける可能性を目指していく。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) A. Ishibashi and M. Yasutake, "Clean Unit System Platform (CUSP) for Medical/Hygienic Applications", Int. J. Eng. Sci., 2(3) : 92–97 (2016)
- 2) 石橋 晃：「フォトンフォトキャリア直交型太陽電池」、エネルギーデバイス、技術情報協会、3(4) 印刷中 (2016)
- 3) Z. Lin, K. Kondo, M. Yamamoto, and T. Uemura: "Transient analysis of oblique Hanle signals observed in GaAs", Jpn. J. Appl. Phys. [to be published] (2016).
- 4) K. Kondo: "Spin filter effects in an Aharonov-Bohm ring with double quantum dots under general Rashba spin-orbit interactions", New J. Phys. Vol.18, pp.013002-1-013002-11 (2016).
- 5) K. Kondo: "Validity of the Free Electron Model for Two-Dimensional Electrodes", Mat. Res. Soc. Symp. Proc., Vol.1753, mrsf14-1753-nn08-03 (2015).

4.2 著書

特になし。

4.3 特許

・国内特許

- 1) 石橋 晃：特願2015-200705、光導波装置、光電変換装置、建築物、電子機器及び発光装置、2015年10月09日
- 2) 石橋 晃：特願2015-516351、睡眠時無意識体動情報活用システム及び方法並びに就寝状況検知システムおよび方法、2015年04月13日

・国際特許

- 1) S. Hara, S. Haraichi and A. Ishibashi : US 9209054 B2, Device Manufacturing Apparatus, 2015年 12 月 08 日

4.4 講演

a. 招待講演

- 1) A. Ishibashi*, "Clean Unit System Platform in "atom-bit-energy/ environment" space for high-efficiency solar cells and kinetosomnogram (KSG) applications", Int'l Conference and Exhibition on Mesoscopic & Condensed Matter Physics, Boston, USA (2015-06)
- 2) A. Ishibashi* and M. Yasutake : "Clean Unit System Platform (CUSP) for Processing New Solar Cells and for Medical/ Hygienic Applications ", 2015 Collaborative Conference on 3D and Materials Research (CC3DMR), Busan, Korea (2015-06)
- 3) 松田 順治*、石橋 晃、「簡易クリーンルーム」、北海道医療福祉産業研究会、札幌市立大学サテライトキャンパス、札幌市 (2016-02)

b. 一般講演

i) 学会

- 1) A. Ishibashi*, T. Matsuoka, T. Kasai, K. Kondo and N. Sawamura, "Waveguide-coupled Multi-striped Orthogonal Photon-Photocarrier-Propagation Solar Cells with InGaN layers", The 16th Ries-Hokudai International Symposium, Sapporo (2015-11)
- 2) A. Ishibashi*, M. Yasutake, R. Enomoto, J. Matsuda and Y. Ohashi : "Recent progress in Clean Unit System Platform (CUSP)", The 16th Ries-Hokudai International Symposium, Sapporo (2015-11)
- 3) K. Kondo*, "Spin filtering in Double Quantum Dots Aharonov-Bohm Ring under Cubic Rashba Spin Orbit Interaction", The 20th International Conference on Magnetism, Barcelona, Spain July 5- July 10 (2015).
- 4) H. Teramoto*, M. Toda, K. Kondo, and T. Komatsuzaki, "Classification of band crossings in terms of theory of singularities", Inamori Hall & Yamauchi Hall, Shirankaikan, Kyoto University, Japan December-11-December-13 (2015).
- 5) K. Kondo*, "A Derivation of Aharonov-Casher Phase under General Rashba Effects and Its Application to Spin Filter", The 16th Ries-Hokudai International Symposium, Sapporo, Japan November 10-November 11 (2015).
- 6) 石橋 晃*、河西 剛、近藤 憲治、澤村 信雄、「導波路結合フォトン・フォトキャリア直交型 太陽電池システムのプロセスの検討」、平成27年度ファブリシステム研究会臨時総会、産業技術総合研究所（つくば中央）(2015-10)
- 7) 石橋 晃*、松田 順治、大橋 美久、「無塵・無菌高清淨環境 (CUSP)の応用～安否確認・睡眠 分析(KSG) ビッグデータへの展開」、札幌市立大学(SCU)産学官研究交流会、Advanced Center for Universities (ACU), 札幌市 (2015-11)
- 8) 石橋 晃*、「導波路結合フォトンフォトキャリア直交型太陽電池R&Dの現況」、平成27年度物質・デバイス領域共同研究拠点事業『次世代デバイス・システムの展望～高効率太陽電池の展望、並びに清浄環境の新展開』研究会（電子研学術講演会）、北海道大学 (2015-07)
- 9) 石橋 晃*、「高清淨環境CUSP技術は、“南部ゴールドストーンボソン”的に振舞える？」、平成27年度物質・デバイス領域共同研究拠点事業『次世代デバイス・システムの展望～高効率太陽電池の展望、並びに清浄環境の新展開』研究会（電子研学術講演会）、北海道大学 (2015-07)
- 10) 石橋 晃*、「量子十字素子、高効率太陽電池プロセス用高清淨環境の展開」、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26年度成果報告会、九州大学 (2015-04)

- 11) 石橋 晃*、永井 亨、柴田 行治、西村 一知、大橋 美久、松田 順治、野口 伸守、江藤 月生、原 史朗、「Versatile Clean Unit System Platform (CUSP) for new solar cells and devices in ABE2 four-dimensional space」、平成27年度ファブシステム研究会定期総会、産業技術総合研究所（つくば中央）（2015-04）
- 12) 石橋 晃*、「空気質の改善～クリーンな環境と健康」、「放射性物質の影響回避」研究会、南相馬（2015-04）
- 13) 石橋 晃*、「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展開」、PV Japan 2015、Tokyo（2015-07）
- 14) 石橋 晃*、「フォトンフォトキャリア直交型太陽電池及び「TD UBUデバイス」のプロセス環境としてのClean Unit System Platform(CUSP)の発展」、PV Japan 2015、Tokyo（2015-07）
- 15) 石橋 晃*、河西 剛、近藤 憲治、澤村 信雄、「非対称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」、日本応用物理学会 2016年春季大会、東京工業大学大岡山キャンパス（2016-03）
- 16) 近藤 憲治*，“新規なスピントロニクス・デバイスの探索および低次元電子ガスのエネルギースペクトラムの研究”，附置研究所間アライアンス「次世代エレクトロニクス」グループ(G1)分科会(高知大学ジョイントシンポジウム)，高知大学 朝倉キャンパス メディアホール，日本 11/16-11/17 (2015).
- 17) 近藤 憲治*，“3次のRashbaスピントロニクスの探索における低次元電子ガスのエネルギースペクトラムの研究”，日本物理学会 2015年秋季大会，関西大学 千里山キャンパス，日本09/16-09/19 (2015).
- 18) 近藤 憲治*，“任意の次数のRashbaスピントロニクスの探索における2個の量子ドットが埋め込まれたAharonov-Bohmリングにおけるスピントロニクスの研究”，第76回応用物理学会秋季学術講演会，名古屋国際会議場，日本09/13-09/16 (2015).

4.5 共同研究

c. 民間等との共同研究

- 1) 石橋 晃 (H27年度物質・デバイス領域共同研究拠点共同研究)：「放射線検出器γ Iと清浄環境CUSPの結合の進展」研究代表者 東京大学宇宙線研究所 榎本 良治
- 2) 石橋 晃 (H27年度物質・デバイス領域共同研究拠点共同研究)：「高齢者の睡眠障害診断への高清浄度環境技術CUSPの応用」研究代表者 日本医科大学 安武正弘
- 3) 石橋 晃 (H27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に向けたラテラル方向に組成の傾斜したInGaAlN層の成長」研究代表者 東北大学金属材料研究所 松岡隆志
- 4) 石橋 晃 (H27年度物質・デバイス領域共同研究拠点共同研究)：「ミラー構造を組み込んだ非対称リディレク

- ション導波路の検討」研究代表者 帝人デュポン㈱ 久保耕司
- 5) 石橋 晃 (H27年度物質・デバイス領域共同研究拠点共同研究)：「ガス交換ボックスによるCUSP高清浄環境の展開の研究」研究代表者 シーズテック㈱ 大橋美久
 - 6) 石橋 晃 (H27年度物質・デバイス領域共同研究拠点共同研究)：「清浄環境の齋すポジティブ効果のFlexible CUSPによる展開の検討」研究代表者 ㈱飛栄建設 松田順治
 - 7) 石橋 晃 (京セラ株式会社)：「光進行方向変換膜の検討」、2015年度、700千円、

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
- c. 大型プロジェクト・受託研究
 - 1) 石橋 晃(京セラ株式会社)「光進行方向変換膜の検討」、2015年度、700千円、
- f. その他

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: 2015 International Magnetic Conferenceのレフェリー(2015年4月1日～2015年4月30日)
 - 2) 近藤憲治: 電子情報通信学会論文誌 C(電子情報通信学会)のレフェリー(2015年4月1日～2015年4月10日)

e. 新聞・テレビ等の報道

新聞

- 1) 石橋 晃 : 日経産業新聞 2015年08月31日 「北大、光電変換効率60%～多接合型の太陽電池～」
- 2) 松田 順治、大橋 美久、石橋 晃 : 北海道建設新聞 2016年01月27日 「クリーンルーム構築システム カス

ブ開発」

雑誌

- 1) 石橋 晃、松岡 隆志：日経サイエンス 2015年11月01日「究極効率の太陽電池～普及が進むシリコン太陽電池は最終目標への経過点にすぎない～」

その他

- 1) 石橋 晃 : C-net通信 2016年02月16日 「B P材・T K S工法／CUSP高清淨空氣環境」

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 I 石橋 晃、2015年10月1日～2016年3月31日
- 2) 理学院: 現代物理学(分担)、石橋 晃、2015年4月1日～2016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、2015年4月1日～2016年9月30日
- 4) 全学教育: 現代物理学(分担)、石橋 晃、2015年4月1日～2016年9月30日
- 5) 理学部、物理外国語文献講読I、近藤憲治、2015年10月1日～2016年3月31日
- 6) 理学院、物理学特別研究I、近藤憲治、2015年4月1日～2016年3月31日
- 7) 理学院、物理学論文輪講、近藤憲治、2015年4月1日～2016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、2015年10月1日～2016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～）
博士研究員 片山翔太（京大院、工博、2015.4～2016.3）
事務補助員 柴田燈美（2015.4～2015.10）
事務補助員 吉田恵美（2015.10～）
研究生 張雨橋（2015.10～2016.3.）
大学院生 遠藤賢司（情報科学研究科生命人間情報科学）
小野里尚記（情報科学研究科生命人間情報科学）
坂上朗康（情報科学研究科生命人間情報科学）
鈴木雄喜（情報科学研究科生命人間情報科学）
学部生 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）
小山田達郎（工学部情報エレクトロニクス学科）
佐藤達典（工学部情報エレクトロニクス学科）
島田巡（工学部情報エレクトロニクス学科）
根津有希央（工学部情報エレクトロニクス学科）

1. 研究目標

從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。具体的には、「光・電気・磁気記憶デバイス」、「熱電変換材料」、「スピントロニクスデバイス」の開発を行っている。そのために必要な高品質薄膜を作製するための「特殊なエピタキシャル薄膜成長方法」の開発も行っている。

(a) 光・電気・磁気記憶デバイスの開発(図1)

遷移金属酸化物の多くは、酸素過剰／欠損やプロトン化などの非化学量論組成とすることにより、その光・電気・磁気特性が大きく変化することが知られている。例えば、エレクトロクロミック材料として知られる WO_3 は、そのままでは可視光に対して透明な絶縁体だが、電気化学反応を

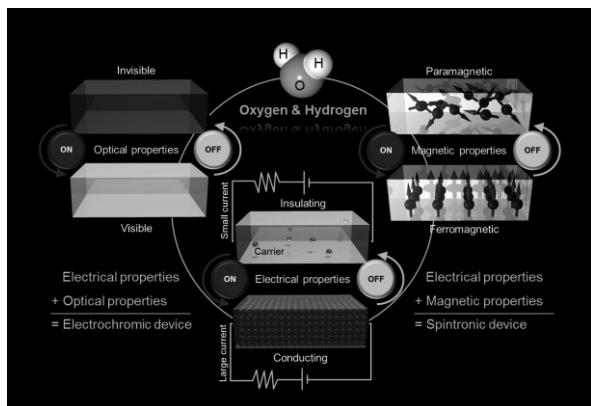


図1 水を利用した酸化物の光・電気・磁気記憶デバイス

利用してプロトン化する (H_xWO_3) ことで青色の金属に変化する。また、ブラウンミラライト型の結晶構造を有する $\text{SrCoO}_{2.5}$ は、磁石にならない絶縁体だが、酸素中で加熱して酸化するか、電気化学的に酸化すると、ペロブスカイト型の結晶構造を有する SrCoO_3 に変化し、電気が良く流れる強磁性金属になることが知られている。このように、遷移金属酸化物をうまく利用することで、光透過率と電気伝導度、磁性と電気伝導度を切替え、記憶するデバイスが実現できると考えられる。遷移金属酸化物にとって、 H^+ イオン（プロトン）は強力な還元剤、 OH^- イオンは強力な酸化剤として働くので、電気化学反応を利用すれば上記デバイスは実現可能だが、電解液などの液体を用いなければならないという課題がある。当研究分野では、ナノ多孔質ガラスのナノ孔に自然に導入される水を電解液の代わりに使い、様々な機能性酸化物の光・電気・磁気特性を切替えることに成功した。

(b) 熱電変換材料の開発

熱を電力に変える「ゼーベック効果」と、電流で冷やす「ペルチェ効果」に代表される、金属や半導体などの導体が示す、熱 \leftrightarrow 電気変換効果は、総称して「熱電効果」と呼ばれている。熱電効果は、熱源さえあれば電力を取り出せるという特長を利用して惑星探査機の動力源や、振動・騒音を発生しない冷却が可能という特長を利用して小型冷蔵庫として実用化されている。希少・毒性元素を含まず、化学的・熱的に安定な金属酸化物で高い変換性能を示すものが見つかれば、例えば、工場や発電所、自動車などから排出される熱を電力に変換できるようになる。現在は、超精密な薄膜合成技術を武器として、極薄の金属酸化物が示す巨大な熱電効果の起源を解き明かし、真に実用的な変換性能を示す酸化物熱電材料の実現を目指している。

(c) スピントロニクスデバイスの開発

エレクトロニクスの低消費電力化を可能とする不揮発性ランダムアクセスメモリや不揮発性ロジックの構成素子として、電流誘起磁壁移動(CIDWM)素子が注目されている。この磁壁移動素子の高性能化のために、スピントロニクスデバイスの開発を行っている。

(d) 特殊なエピタキシャル薄膜成長方法の開発

高温超伝導体として知られる $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ に代表されるように、多くの複合酸化物が複雑な層状の結晶構造になることが知られている。層状複合酸化物を原子・分子オーダー周期の超格子とみなすと、様々な興味深い物性を示すことが期待される。単結晶薄膜は薄膜デバイスを作製するために必要不可欠だが、層状複合酸化物の単結晶薄膜を合成することは容易ではない。例えば、 $\text{InGaO}_3(\text{ZnO})_m$ (m は自然数) 単結晶薄膜を一般的な気相薄膜成長法で作製しようとしても、構成成分の蒸気圧差が大きいため、单一結晶相を得ることすらできない。当研究分野では「反応性固相エピタキシャル成長(R-SPE)法」を発展させ、様々な層状複合酸化物のエピタキシャル薄膜作製に取り組んでいる。

2. 研究成果

(a) 光・電気・磁気記憶デバイスの開発

オンデマンド赤外線透過率-導電率同時切替デバイス

赤外線透過率と導電率を同時に切り替え可能なデバイスは、例えば夏の日差しが強い時に赤外線(熱線)を遮断し、同時に冷房のスイッチをオンにすることが可能なスマートウインドウとして有用である。本研究では、単斜晶 \leftrightarrow 正方晶の結晶構造転移に伴い、赤外線透過・絶縁体 \leftrightarrow 赤外線遮断・金属の同時変化を示すことが知られる二酸化バナジウム(VO_2)薄膜を用いた、オンデマンド赤外線透過率-導電率切替デバイス(図2)を安価なガラス基板上に試作した。

無アルカリガラス基板上にPLD法により VO_2 薄膜を作製し、含水多孔質ガラス(CAN)薄膜をゲート絶縁体とする薄膜トランジスタ構造を作製した。ゲート電極としてはITO薄膜、ソース・ドレイン電極としてFドープ SnO_2 薄膜をそれぞれ用いた。

+1 Vから+12 Vまでのゲート電圧を各10秒間印加し、 VO_2 層のプロトン化を行った。プロトン化前後の光透過率を比較したところ、可視光領域には殆ど変化がなかったが、波長800 nm以上の赤外線領域はプロトン化に伴い大きく減少した(波長3.0 μm で51%の透過率減少)。またプロトン化により、シート抵抗は室温において二桁近く減少した(プロトン化前 450 $\text{k}\Omega \text{ sq}^{-1}$ 、プロトン化後 16 $\text{k}\Omega \text{ sq}^{-1}$)。プロトン化前後で熱電能(=Seebeck係数)を比較したところ、プロトン化前は $-400 \mu\text{V K}^{-1}$ であったが、プロトン化後に約 $-30 \mu\text{V K}^{-1}$ となり、Wをドープした金属 $\text{V}_{0.97}\text{W}_{0.03}\text{O}_2$ 薄膜の値とほぼ一致した。以上のことから、試作したガラス上のデバイスはオンデマンド赤外線透過率-導電率切替能を有することを実証した。

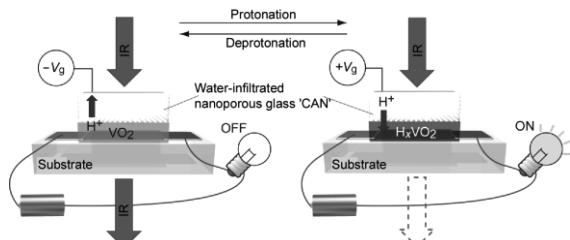


図2 赤外線透過率-導電率同時切替デバイスのイメージ図

薄膜トランジスタ構造を有するアモルファス酸化物エレクトロクロミック素子

エレクトロクロミック(EC)素子の活性層として用いられる WO_3 は、 $\text{WO}_3 + xA^+ + xe^- \leftrightarrow A_x\text{WO}_3$ ($A=\text{H}, \text{Li}$)で表される電気化学反応により、無色透明絶縁体 \leftrightarrow 青色金属の可逆的な光・電子物性変化を示すことが知られている。この光・電子物性変化を同時に利用することができれば、例えば、遮光と同時に電子機器のスイッチを入れる多機能EC素子として応用できるが、現在のEC素子は二枚の透明電極間に活性層を挟み込んだ平行平板構造であるため、活性層

の電子物性変化を利用することはできない。本研究では、静電的な電界効果と電気化学反応を組合わせることが可能なCANゲート薄膜トランジスタ(TFT)構造に着目し、アモルファス(a-) WO_3 を活性層として用いたTFT型EC素子を試作した。

無アルカリガラス基板上にa- WO_3 TFT-EC(トップゲート型, $L/W=800/400 \mu\text{m}$)を作製した。各薄膜はPLD法により、基板加熱なし(室温)で成膜した。ゲート電極下での酸素ガス発生を抑制するためにNiO層を用いた。

作製したa- WO_3 TFT-ECでは、正のゲート電圧($V_g=3\text{--}10 \text{ V}$)を印加することで、静電的な電界効果により平行平板構造ができ、次いでCAN中の H^+ がa- WO_3 薄膜中に電気化学的に拡散することによってゲート電流が流れる。流れたゲート電流密度の時間変化から電子密度を算出し、a- WO_3 のシート抵抗 R_s に対してプロットしたところ(図3左、プロトン化)、 R_s は電子密度の二乗に比例して減少し、電子密度 $1.2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-2}$ ($\approx 1.5 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$)で $40 \Omega \text{ sq}^{-1}$ の金属になり飽和した。次いで、負のゲート電圧($V_g=3\text{--}10 \text{ V}$)を印加したところ(図3右、脱プロトン化)、流れた電子密度が $1.3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-2}$ ($\approx 1.6 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$)を超えると急激に R_s が増大し、絶縁体a- WO_3 に戻った。無色透明絶縁体 \leftrightarrow 青色金属の切替えに必要な電子密度 $1.5 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ は、 $\text{WO}_3 + x\text{H}^+ + xe^- \leftrightarrow \text{H}_x\text{WO}_3$ における $x=1$ と一致することから、作製したa- WO_3 TFT-ECはFaradayの電気分解の法則に従って、無色透明絶縁体 \leftrightarrow 青色金属の切替動作することが分かった。

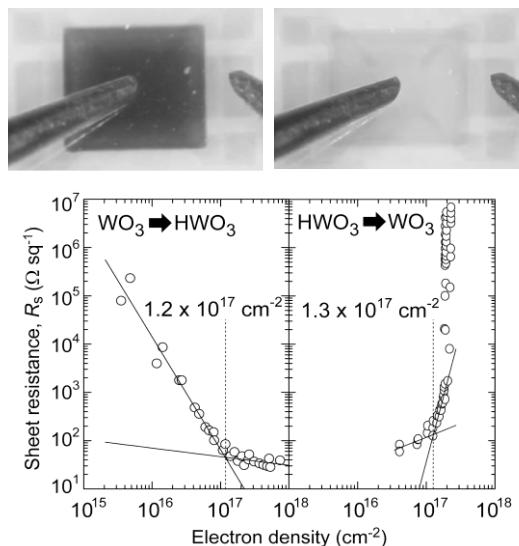


図3 ゲート電圧($V_g=3\text{--}10 \text{ V}$)印加によって流れた電子密度に対する、a- WO_3 活性層のシート抵抗変化。プロトン化(左)によって青色に着色した低抵抗状態になり、脱プロトン化(右)によって無色透明な高抵抗状態に切り替わる。

絶縁体を電気が流れる磁石に一情報記憶容量の大幅向上に新たな道

USBメモリーなどの情報記憶装置は、材料の電気抵抗変化を利用して、電気が流れる状態=1、流れない状態=0と

して情報を記憶する。しかし、その記憶容量は上限に近づいているため、将来の大容量化に向けた新しい技術が求められている。例えば、「電気が「流れる=1」、「流れない=0」に加えて、「磁石につく=A」、「つかない=B」という情報を同時に記憶することで、記憶容量を飛躍的に向上させられるが、従来の金属や半導体材料では実現できなかった。

コバルトなどの金属を含む酸化物は、内包されている酸素の比率によって性質が大きく変化することが知られている。中でもコバルト酸ストロンチウムは、本来、内包されている酸素比率が83%の、電気を通さない絶縁体だが、酸素比率を100%にすることで、電気を良く通す磁石になることから、情報記憶装置の大容量化に適した材料と言える。しかし、酸素比率を100%にするためには、酸素中で高温に加熱するか、危険なアルカリ溶液中で電流を流す必要があるため、情報記憶装置には応用されていない。

本研究では、室温・空气中で、安全に、コバルト酸ストロンチウムに内包されている酸素比率を変化させ、電気を通さず (=0)、磁石にもつかない (=B) 絶縁体の状態から、電気を良く通し (=1)、磁石につく (=A) 状態に、可逆的に切替えることに成功した。精密な作製技術を駆使して10ナノドル(1ナノドルは十億分の1ドル)の孔が多数開いた、ナトリウムを含む酸化物の薄膜を、コバルト酸ストロンチウムに貼り付け、その上下に電極を被せた「電池」のような構造を作製した。ナトリウム酸化物薄膜の小さな孔に空気中の湿気が入り込むことで、膜の中のナトリウムがわずかに溶解し、アルカリ溶液が染み込んだ状態になる。電流を流すことで酸素比率が100%の電気を良く通す磁石に、逆方向に電流を流すことで元の絶縁体に、室温で可逆的に変化させられることを発見した。

現在、切替えに必要な電圧は3ボルト、時間は2–3秒だが、今後、低電圧化・高速動作に向けた最適化を行うことで、真に実用的な大容量の情報記憶装置が実現できると期待される。(プレスリリース、HBCニュースで放送された)

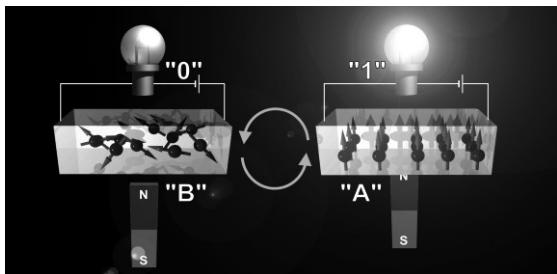


図4 本研究の情報記憶装置の概念図 電気が流れる=情報「1」、流れない=情報「0」に加え、磁石につく=情報「A」、つかない=情報「B」を記憶することで、記憶容量が二倍になる。

価数制御したアモルファスニオブ酸化物薄膜の光・電子輸送特性

我々は、クロミック現象を示す酸化物薄膜の光・電子物

性を、ゲート絶縁体として用いるナノ多孔質ガラス中の水電解で発生するH⁺/OH⁻によって、可逆的に変調可能なエレクトロクロミックトランジスタの開発を行っている。本研究ではクロミック物質として酸化ニオブ(NbO_x)に着目した。NbO_xは1980年にエレクトロクロミズムを示す物質として報告されて以来、最近ではReRAMやセンサーの活性層としての応用が検討されるなど、酸素濃度に敏感な光・電子物性変化を示す物質として知られている。また、NbO_xはアモルファス化が可能であることから実用化に適しているが、電子輸送特性に関する報告がほとんどない。本研究では、水電解トランジスタとしてのNbO_xの適性を調べるため、酸素濃度xの異なるアモルファスNbO_x薄膜を作製し、その光・電子輸送特性を調べた。

Nb₂O₅焼結体をターゲットとして用い、PLD法により無アルカリガラス基板(Corning® EAGLE XG®)上にNbO_x薄膜(膜厚100 nm)を作製した(室温、2.5 J cm⁻² pulse⁻¹、10 Hz)。NbO_x薄膜の酸素濃度xを変化させるために、成膜時の酸素圧力を10⁻³–10⁰ Paの範囲で変化させた。XRD測定(入射角固定、2θ走査)を行ったところ、ガラス基板由来のハローとともにNbO_x薄膜由来のハローが観測された。また、AFM観察の結果、使用した無アルカリガラス基板(R_{rms} 約0.2 nm)に匹敵する表面粗さしかしない極めて平坦な薄膜であることが分かった。光透過率を調べたところ、0.3 Pa以下の酸素圧力下で作製した薄膜は可視光を全く通さないが、1.0 Paで作製した薄膜は可視光全域で無色透明であった。Nbカチオン周りのO²⁻イオン配位数に応じてNbの電子配置が[Kr]4d¹ (4⁺) ⇌ [Kr]4d⁰ (5⁺) のように切り替わることに起因するとと思われる。図5左に作製した α -NbO_x薄膜の導電率–熱電能の関係(Jonkerプロット)を示す。導電率の増加に伴い $-k_B/e \ln 10$ (=−198 μV K⁻¹ decade⁻¹)に相当する傾きで熱電能の絶対値が減少したことから、成膜時の酸素圧力変化に伴う導電率の変化は、主として酸素欠損生成によるキャリア濃度変化に起因すると考えられる。さらに、比抵抗の温度依存性を計測したところ、全ての薄膜が半導体的な変化を示した(図右)。以上の結果から、アモルファスNbO_xは酸素濃度変調によるエレクトロクロミックトランジスタの活性層として有望であると言えよう。

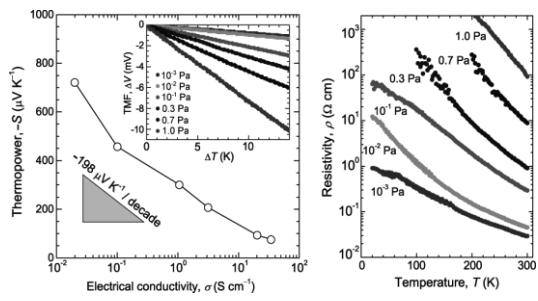


図5 10⁻³–10⁰ Paの酸素圧下で作製したアモルファス NbO_x薄膜の導電率–熱電能(Jonker) プロット(左)と抵抗率の温度変化(右)。

(b) 熱電変換材料の開発

2015年度に研究を開始したばかりであり、データの記載は省略する。

(c) スピントロニクスデバイスの開発

面直方向に磁化容易軸を有する $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{Mn}_{0.8}\text{Ru}_{0.2}\text{O}_3$ エピタキシャル薄膜の作製と磁界誘起磁壁移動

エレクトロニクスの低消費電力化を可能とする不揮発性ランダムアクセスメモリや不揮発性ロジックの構成素子として、電流誘起磁壁移動(CIDWM)素子が注目されている。この磁壁移動素子の高性能化のために、これまでに高スピノ偏極率かつ面内磁化容易の $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ (LSMO)を用いた磁壁移動素子の研究を行ってきた。本年度はさらなる高性能化めざしてLSMOをベースとし、かつ面直方向に磁化容易軸を有する $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{Mn}_{0.8}\text{Ru}_{0.2}\text{O}_3$ (LSMRO)に着目した。Ru組成を変えて歪みの異なるLSMROエピタキシャル薄膜を作製することにより、面直方向に磁化容易軸を有するLSMRO薄膜の作製に成功した。さらに、それを用いて作製したホールバーにおいて、磁界誘起の磁壁移動を反映したホール抵抗の変化を電気的に検出することに成功した。LSMRO薄膜を(001) $(\text{LaAlO}_3)_{0.3} \cdot (\text{SrAl}_{0.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_3)$ 基板上にパルスレーザ堆積法によりエピタキシャル成長させた。そして、その薄膜をフォトリソグラフィとウェットエッティングにより、図6のような、(A)と(B)の2対のホールプローブを備えたホールバー形状に加工した。面直方向に外部磁界を印加してLSMRO全体の磁化方向を揃えた後、磁化反転を誘起する方向に外部磁界を印加して、(A)と(B)のホール抵抗の時間依存性をそれぞれ測定した。図4に示すように磁界を印加してから約3秒後に(A)のホール抵抗が急激に減少し、それから遅れて約250秒後に(B)のホール抵抗が急激に減少した。これは、(A)側から注入された磁壁が時間とともにチャネル内を左から右に移動したことを反映していると考えられる。

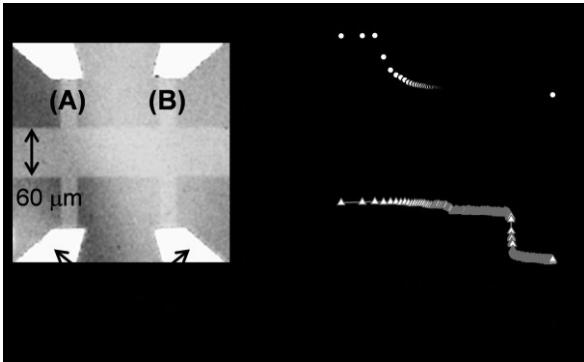


図6 2対のホールプローブを有するLSMROホールバー。磁化反転を誘起する方向に外部磁界を印加した後の(A)と(B)におけるホール抵抗の時間依存性。

(d) 特殊なエピタキシャル薄膜成長方法の開発

反応性固相エピタキシャル成長法による Na_xMnO_2 薄膜の作製

アルカリ層状遷移金属酸化物 $A_x\text{MO}_2$ ($A:\text{Na}, \text{Li}$ など、 $M:$ 遷移金属)は、 A イオン電池用正極活物質や熱電材料とし

ての特性に優れていることから、次世代エネルギー材料として精力的に研究されている。本研究では、最近 Na イオン電池用の正極活物質として注目されている Na_xMnO_2 をターゲットとし、R-SPE法によるエピタキシャル薄膜成長を試みた。

まず、 Mn_2O_3 焼結体をターゲットとしたパルスレーザー堆積法($2 \text{ J cm}^{-2} \text{ pulse}^{-1}$, 700°C , $P_{\text{O}_2} = 10^{-2} \text{ Pa}$)により、(0001) $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 単結晶上に MnO_x 薄膜をヘテロエピタキシャル成長させた。次いで、 MnO_x 薄膜表面を別の $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 基板でカバーし、全体を Na_2CO_3 粉末で覆った後、大気中 700°C 、0.5 h加熱した。炉冷後、カバーした $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 基板を取り除くことで Na_xMnO_2 薄膜を得た(図7)。XRD測定の結果、アウトオブプレーンXRDパターンには、基板の0006回折ピークと共に Na_xMnO_2 の000回折ピークのみが見られ、そのロッキングカーブの半値幅は約 0.8° であった。また、インプレーンXRDパターンには、基板の $1\bar{1}\bar{2}0$ 回折ピークと共に Na_xMnO_2 の $1\bar{1}00$ 回折ピークが見られ、そのロッキングカーブには、六回対称性を示す 60° 毎のピークが観測された。以上の結果から、 MnO_x エピタキシャル薄膜と Na_2CO_3 粉末を反応させるR-SPE法により Na_xMnO_2 エピタキシャル薄膜が作製でき、そのエピタキシャル方位関係は、(0001)[$1\bar{1}00$] $\text{Na}_x\text{MnO}_2 \parallel$ (0001)[$11\bar{2}0$] $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ であることが分かった。

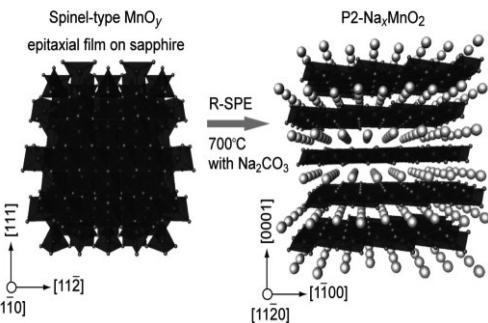


図7 反応性固相エピタキシャル成長(R-SPE)法による Na_xMnO_2 薄膜の作製レシピ。

3. 今後の研究の展望

水の電気分解を利用した遷移金属酸化物の光・電気・磁気記憶デバイスの開発については、大学の研究室で実施可能な基礎研究はほぼ完了した。今後は、実用化に向けた対外的アピールを行い、共同研究先(企業)を探して、世の中で役に立つデバイス開発を行いたい。今後、注力する熱電変換については既に興味深い現象を発見し、現在全力で現象解明に取り組んでいる。スピントロニクスデバイスについては、今年度に得られた知見をもとに、酸化物ハーフメタルをベースとした強磁性酸化物において電流誘起磁壁移動デバイスの開発を急ぐ。なお、機能性酸化物の薄膜化・デバイス化に関する基礎研究については、今後も国内外の大学・研究機関を中心として共同研究を広く展開し、世の中で役立つ材料・デバイス開発に貢献する。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) T. Katase*, K. Endo, and H. Ohta*, "Characterization of electronic structure around metal-insulator transition in $V_{1-x}W_xO_2$ thin films by thermopower measurement", *J. Ceram. Soc. Jpn.* **123**, 307–311 (2015).
- 2) T. Katase*, K. Endo, T. Tohei, Y. Ikuhara, and H. Ohta*, "Room-temperature-protonation-driven on-demand metal-insulator conversion of a transition metal oxide", *Adv. Electron. Mater.* **1**, 1500063 (2015).
- 3) T. Katase*, K. Endo, and H. Ohta*, "Thermopower analysis of metal-insulator transition temperature modulations in vanadium dioxide thin films with lattice distortion", *Phys. Rev. B* **92**, 035302 (2015).
- 4) K. Yokoyama, Y. Sato, K. Hirano, H. Ohta, M. Kenichi, K. Tohji, Y. Sato*, "Defluorination-assisted nano-tube-substitution reaction with ammonia gas for synthesis of nitrogen-doped single-walled carbon nanotubes", *Carbon* **94**, 1052–1060 (2015). (共同研究拠点)
- 5) T. Katase*, H. Takahashi, T. Tohei, Y. Suzuki, M. Yamamoto, Y. Ikuhara, I. Terasaki*, and H. Ohta*, "Solid-phase epitaxial growth of A-site-ordered perovskite $Sr_{4-x}Er_xCo_4O_{12-d}$: A room temperature ferrimagnetic p-type semiconductor", *Adv. Electron. Mater.* **1**, 1500199 (2015).
- 6) B. Feng, I. Sugiyama, H. Hojo, H. Ohta, N. Shibata, and Y. Ikuhara*, "Atomic structures and oxygen dynamics of CeO_2 grain boundaries", *Sci. Rep.* **6**, 20288 (2016).
- 7) T. Katase*, Y. Suzuki, and H. Ohta*, "Reversibly switchable electromagnetic device with leakage-free electrolyte", *Adv. Electron. Mater.* (2016) published online 2016.3.29.

4.2 総説・解説・評論等

- 1) I. Terasaki*, R. Okazaki, and H. Ohta, "Search for non-equilibrium thermoelectrics", *Scripta Mater.* **111**, 23–28 (2016). (共同研究拠点).

4.3 その他の執筆

- 1) T. Katase*, K. Endo, and H. Ohta*, "Electrolysis-induced protonation of VO₂ thin film transistor for the metal-insulator phase modulation", *Proc. SPIE* **9749**, Oxide-based Materials and Devices VII, 974916, 974916 (2016). (SPIEのプロシーディング).

4.4 講演

a. 招待講演

i) 学会

- 1) T. Katase*, H. Ohta, "Electro-magnetic properties control of functional oxides by pseudo solid-state electrochemistry", 2015 EMN Qingdao Meeting, Qingdao, China, 2015年6月14日–17日.
- 2) H. Ohta*, "Two-dimensional giant thermopower -SrTiO₃-based superlattices and transistors-", The American Ceramic Society's 11th International Conference on Ceramic Materials and Components for Energy and Environmental Applications (CMCEE-11), Vancouver, Canada, 2015年6月14日–19日.
- 3) H. Ohta*, "Development of oxide-based nanostructured thermoelectric materials", 4th International Symposium on Energy Challenges and Mechanics –working on small scales", Scotland, UK, 2015年8月11日–13日 (Keynote).
- 4) 太田裕道*, "水の電気分解を利用した機能性酸化物ナノ層創製", 日本金属学会 2015年秋期講演大会, 九州大学伊都キャンパス, 福岡, 2015年9月16日–18日(基調講演).
- 5) 太田裕道*, "熱電変換材料って何?", 日本化学会秋季事業 第5回CSJ化学フェスタ2015, タワーホール船橋, 東京, 2015年10月13日–15日.
- 6) H. Ohta*, T. Katase, "Water electrolysis induced modification of functional oxides—Thermoelectric properties—", IUMRS-ICAM 2015, Jeju island, Korea, 2015年10月25日–29日.
- 7) H. Ohta* and T. Katase, "Electro-chemical redox switching of functional oxide thin films using water-infiltrated nanoporous glass", International Workshop on Oxide Surfaces (IWOX-X), Dalian / Liaoyang, China, 2016年1月10日–15日.
- 8) T. Katase* and H. Ohta, "All-Solid-State Electro-Magnetic Phase Switching Device Operating at Room Temperature", Energy Materials Nanotechnology (EMN) Meeting on Ceramics, Hong Kong, China, 2016年1月25日–28日.
- 9) T. Katase* and H. Ohta, "Reversible switching of optoelectric and electromagnetic properties of functional oxides using water-infiltrated glass", SPIE Photonics West 2016 Oxide-based Materials and Devices VII, San Francisco, USA, 2016年2月13日–18日.

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) H. Ohta*, "Epitaxial film growth and characterization of functional oxides", Seminar talk (60 min), National Chiao Tung University, Taiwan, 2015年10月1日.
- 2) H. Ohta*, T. Katase, K. Endo, Y. Suzuki, "Electro-chemical modulation of functional properties for oxide thin films using water-infiltrated nanoporous glass", CEMS Topical Meeting on Oxide Interfaces 2015, Okochi Hall, RIKEN, Wako, Japan, 2015年11月5日–6日.
- 3) 片瀬貴義*, 太田裕道, "水電気分解を利用した機能性酸化物の光・電子・磁気物性可逆変調" 附置研究所間アライアンス 第三回若手研究交流会, 九州大学, 福岡, 2015年11月16–17日.
- 4) 片瀬貴義*, 太田裕道, "水の電気分解を利用した機能

- 性酸化物の電気・磁気・光物性変調デバイス”, 第311回 応用セラミックス研究所学術講演会〔第7回 材料構造講演会〕, 東京工業大学すずかけ台キャンパス, 神奈川, 2015年2月3日.
- 5) T. Katase* and H. Ohta, “Electrochemically switchable electromagnetic device with water electrolysis”, Mini-workshop on oxides and related materials, Tohoku University, Sendai, Japan, 2016年2月24–25日.
 - 6) 太田裕道*, 片瀬貴義, 平松秀典, 「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3回公開シンポジウム, 名古屋大学, 2016年3月8日.
- b. 一般講演**
- i) 学会**
- 1) Kaito Kanahashi*, Jiang Pu, Nguyen Thanh Cuoug, Lain-Jong Li, Susumu Okada, Hiromichi Ohta, Taishi Takenobu, “Thermoelectric properties of CVD-grown transition metal dichalcogenide monolayers”, NT15 The Sixteenth International Conference on the Science and Application of Nanotubes, Nagoya University, Nagoya, Japan, 2015年6月29日–7月3日 (poster) (共同研究拠点).
 - 2) Ya-Nan Wu*, Misako Hirono, Takayoshi Katase, Hiromichi Ohta, and Juhn-Jong Lin, “Thermoelectric and transport properties of epitaxial ITO and In_2O_3 films”, Workshop on Renewable Energies - Thermoelectrics and Photovoltaics -, Academia Sinica, Taipei, Taiwan, 2015年8月27日–28日(Poster) (国際共同研究).
 - 3) 片山翔太*, 片瀬貴義, 太田裕道, “反応性固相エピタキシャル成長法による Na_xMnO_2 薄膜の作製”, 第76回 応用物理学会秋季学術講演会, 名古屋国際会議場, 名古屋, 2015年9月13日–16日.
 - 4) 小野里尚記*, 片山翔太, 片瀬貴義, 太田裕道, “アモルファス NbO_x 薄膜の光・電子輸送特性”, 第76回 応用物理学会秋季学術講演会, 名古屋国際会議場, 名古屋, 2015年9月13日–16日.
 - 5) T. Katase*, Y. Suzuki, H. Ohta, “Room-temperature-operatable electro-magnetic phase switching device”, Workshop on Oxide Electronics 22, College de France, Paris, 2015年10月7日–9日 (oral).
 - 6) T. Katase*, Y. Suzuki, and H. Ohta, “All-solid-state non-volatile electro-magnetic phase switching device”, STAC-9 & TOEO-9, Epocal Rsukuba, Ibaraki, Japan, 2015年10月19日–21日(oral).
 - 7) M. Hirono, T. Katase, H. Ohta, “A transparent electro-chromic transistor”, PACIFICHEM2015 (The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies 2015), Honolulu, Hawaii, 2015年12月15日–20日(oral).
 - 8) T. Katase*, Y. Suzuki, H. Ohta, “Electrically controlled electro-magnetic phase conversion in magnetic oxide at room temperature”, PACIFICHEM2015 (The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies 2015), Honolulu, Hawaii, 2015年12月15日–20日(oral).
 - 9) K. Nakamura*, T. Katasei, T. Oshikiri, K. Ueno, H. Ohta, and H. Misawa, “Fabrication of thin film plasmonic solar cell using controlled nano structure”, PACIFICHEM2015 (The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies 2015), Honolulu, Hawaii, 2015年12月15日–20日 (Poster) (所内共同研究).
 - 10) 鈴木雄喜*, 片瀬貴義, 太田裕道, “含水多孔質ガラスを用いた全固体導電率-磁性スイッチングデバイス”, 第51回応用物理学会北海道支部学術講演会, 北海道大学 学術交流会館, 札幌, 2016年1月9日–10日.
 - 11) 遠藤賢司*, 片瀬貴義, 太田裕道, “オンデマンド電気抵抗-赤外線透過率切替デバイス”, 第51回応用物理学会北海道支部学術講演会, 北海道大学 学術交流会館, 札幌, 2016年1月9日–10日.
 - 12) 小野里尚記*, 片瀬貴義, 片山翔太, 太田裕道, “超平坦アモルファス NbO_x 薄膜の作製と光・電子輸送特性”, 第51回応用物理学会北海道支部学術講演会, 北海道大学 学術交流会館, 札幌, 2016年1月9日–10日.
 - 13) 片山翔太*, 片瀬貴義, 太田裕道, “反応性固相エピタキシャル成長法による Na_xMnO_2 薄膜の作製とイオン輸送特性”, 第51回応用物理学会北海道支部学術講演会, 北海道大学 学術交流会館, 札幌, 2016年1月9日–10日.
 - 14) 片瀬貴義*, 遠藤賢司、太田裕道, “オンデマンド赤外線透過率-導電率同時切替デバイスの作製”, 第63回 応用物理学会春季学術講演会, 東工大 大岡山キャンパス, 東京, 2016年3月19日–22日.
 - 15) 鈴木雄喜*, 片瀬貴義, 太田裕道, “漏液しないアルカリ電解液による導電性-磁性切替デバイスの省電力化”, 第63回 応用物理学会春季学術講演会, 東工大 大岡山キャンパス, 東京, 2016年3月19日–22日.
 - 16) 小野里尚記*, 片瀬貴義, 太田裕道, “薄膜トランジスタ構造を有するアモルファス酸化物エレクトロクロミック素子”, 第63回 応用物理学会春季学術講演会, 東工大 大岡山キャンパス, 東京, 2016年3月19日–22日.
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ**
- 1) M. Yamanouchi*, A. Sakagami, K. Takoshima, N. Kumanishi, T. Katase, and H. Ohta, “Domain wall motion devices using ferromagnetic oxides”, 2015 CRL Forum International, 東工大蔵前会館くらまえ・ロイヤルブルー, 東京, 2015年10月19日–20日 (ポスター).
 - 2) S. Katayama*, T. Katase, and H. Ohta, “Reactive solid-phase epitaxial growth of layered alkali transition metal oxide, Na_xMnO_2 ”, THE 16th RIES-HOKUDAI INTERNATIONAL SYMPOSIUM “術” [JUTSU] , Gateaux Kingdom SAPPORO, Sapporo, Japan, 2015年11月10日–11日 (ポスター) .
 - 3) Y. Suzuki*, T. Katase, and H. Ohta, “All-solid-state

- non-volatile electromagnetic phase switching device”, THE 16th RIES-HOKUDAI INTERNATIONAL SYMPOSIUM “術” [JUTSU] , Gateaux Kingdom SAPPORO, Sapporo, Japan, 2015年11月10日-11日 (ポスター) .
- 4) T. Onozato*, T. Katase, S. Katayama, and H. Ohta, “Opto-electronic properties of amorphous NbO_x thin films”, THE 16th RIES-HOKUDAI INTERNATIONAL SYMPOSIUM “術” [JUTSU] , Gateaux Kingdom SAPPORO, Sapporo, Japan, 2015年11月10日-11日 (ポスター) .
- iii) コロキウム・セミナー等・その他**
- 1) 太田裕道*, 片瀬貴義, “水の電気分解を利用した機能性酸化物の光・電子・磁気特性の可逆変調”, 附置研究会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26年度アライアンス成果報告会, 九州大学伊都地区 I2CNERホール, 福岡, 2015年4月21日(ポスター).
 - 2) 研究室メンバー全員*, “ぐるぐる回して冷やそう！”, 北海道大学電子科学研究所一般公開, 北海道大学, 札幌, 2015年6月6日 (展示) .
 - 3) 太田裕道*, 片瀬貴義, 平松秀典, 「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5回全体会議, 京都, 2015年7月24日.
 - 4) 片山翔太*, 片瀬貴義, 太田裕道, “ナトリウムイオン電池用正極活物質Na_xMnO₂の反応性固相エピタキシャル薄膜成長”, 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3回若手の会, ホテルグランテラス千歳, 北海道, 2015年7月27日-28日 (ポスター) .
 - 5) 鈴木雄喜*, 片瀬貴義, 太田裕道,”固体電解質を利用した磁性酸化物薄膜の反強磁性絶縁体—強磁性金属スイッチング”, 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3回若手の会, ホテルグランテラス千歳, 北海道, 2015年7月27日-28日 (ポスター) .
 - 6) 小野里尚記*, 片山翔太, 片瀬貴義, 太田裕道, “アモルファスNbO_x薄膜の作製と光・電子輸送特性—新しいエレクトロクロミックトランジスタを目指して—”, 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3回若手の会, ホテルグランテラス千歳, 北海道, 2015年7月27日-28日 (ポスター) .
 - 7) 片瀬貴義, 太田裕道*, “水の電気分解を利用した機能性酸化物の光・電子・磁気物性可逆変調”, 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27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, 東京工業大学, 大阪, 2015年10月20日-21日 (ポスター) .

4.5 特許

a. 国際特許出願

- 1) H. Ohta, T. Katase, Y. Suzuki, PCT/JP2016/050206 (2015年1月9日 出願)(備考: 特願2015-002769 「半導体装置」)

4.6 シンポジウム・セミナー・ワークショップの開催

- 1) 電子科学研究所学術講演会、「酸化物新材料の物性と応用: IGZOと先端ディスプレイを例に」、講師: 神谷利夫 (東京工業大学 応用セラミックス研究所)、電子科学研究所学術交流委員会主催 (応用物理学会北海道支部共催)、2015年6月26日.
- 2) 電子科学研究所学術講演会、「Defect Engineering in Complex Oxide Thin Films」、講師: Woo Seok Choi (Sungkyunkwan University)、電子科学研究所学術交流委員会主催 (応用物理学会北海道支部共催)、2015年7月31日.
- 3) 第16回 電子研国際シンポジウム 組織委員会委員長、太田裕道、2015年11月10日～11日.
- 4) 電子科学研究所学術講演会、「電圧スピントロニクスの実現に向けて」、講師:野崎隆行 (産業技術総合研究所 スピントロニクス研究センター)、電子科学研究所学術交流委員会主催(応用物理学会北海道支部共催)、2015年11月26日.
- 5) 電子科学研究所学術講演会(兼物質デバイス共同研究拠点報告会)、寺尾潤 (京都大学)、竹延大志 (早稲田大学)、藤平哲也 (東京大学)、電子科学研究所学術交流委員会主催、2016年1月21日.

4.7 共同研究

a. 海外機関との共同研究

- 1) 韓国・成均館大学校のWoo Seok Choi助教と密接に遷移金属酸化物薄膜の熱電能計測に関する共同研究を実施した。現在先方にて論文執筆中.
- 2) 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、共同研究を継続中。成果は今のところ学会発表1件。
- 3) 台湾・アカデミアシニカのWei-Li Lee博士にCANゲート SrTiO₃トランジスタを送付し、共同研究を開始した。
- 4) 中国・大連化学物理研究所(CAS)のPeng Jiang教授に BaTiO₃エピタキシャル薄膜を送付し、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、上野貢准教授、押切友也助教)と密接に共同研究を実施した.

4.8 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。
- 4) 山ノ内路彦（代表）、若手研究(A)：「酸化物ヘテロ構造におけるスピinn軌道トルク」、2015～2016年度。
 - 5) 片瀬貴義（代表）、若手研究(A)：「水の電気分解を利用した酸化物薄膜固体デバイスの電気物性制御」、2015～2017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、公益財団法人マツダ財団 第31回 研究助成「全固体エレクトロクロミック薄膜トランジスタの開発」、平成27年11月～平成28年11月。

4.9 受賞

- 1) 鈴木雄喜*、片瀬貴義、太田裕道、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3回若手の会、平成27年度 増本賞 金賞。
- 2) 小野里尚記*、片山翔太、片瀬貴義、太田裕道、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3回若手の会、平成27年度 増本賞 金賞。
- 3) Y. Suzuki*, T. Katase, and H. Ohta, THE 16th RIES-HOKUDAI INTERNATIONAL SYMPOSIUM "術" [JUTSU], Poster Award.
- 4) 遠藤賢司*、「二酸化バナジウム薄膜のプロトン化を利用したエレクトロクロミック素子に関する研究」、平成27年度修士論文発表会 平成27年度 三上賞。

4.10 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. 併任・兼業

- 1) 太田裕道：韓国・成均館大学校BK21+プロジェクト Visiting Professor、2014年3月～。

c. 新聞・テレビ等の報道

- 1) 「北大が新しい記憶装置を開発」、北海道放送HBC、2016年3月30日 11:49 HBCニュースでオンエア(約1分間)。
- 2) 「電気・磁化の両方で記憶 北大、新メモリーを開発」、化学工業日報(第1面)、2016年3月30日。
- 3) 「北大、レーザー堆積法で電気／磁気メモリーを開発」、OPTRONICS ONLINE、2016年3月31日。

d. 外国人研究者の招聘（氏名、国名、期間）

- 1) Eun Sung Kim, 韓国, 2015年5月18日～2015年5月20日。
- 2) Woo Seok Choi, 韓国, 2015年7月30日～2015年7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) 工学部情報エレクトロニクス学科、電子デバイス工学、太田裕道、2015年4月～7月。
- 2) 大学院、ナノマテリアル特論、太田裕道、2015年4月～

7月。

- 3) 大学院、光電子物性学特論、太田裕道、熊野英和、2015年4月～7月。
- 4) 全学教育科目「環境と人間」ナノって何なの？(分担)、太田裕道、2015年6月26日。
- 5) 大学院、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論Ⅱ、太田裕道、2015年11月25日。
- 6) 工学部情報エレクトロニクス学科、応用数学演習Ⅱ、山ノ内路彦、2015年4月～7月。
- 7) 一般教育演習フレッシュマンセミナー(分担)、片瀬貴義、2015年4月～7月。
- 8) 工学部情報エレクトロニクス学科、学生実験(分担)、片瀬貴義、2015年4月～7月。
- 9) 工学部情報エレクトロニクス学科、学生実験(分担)、片瀬貴義、2015年10月～2016年3月。
- 10) 工学部情報エレクトロニクス学科電気電子工学コース、科学技術英語演習、太田裕道、山ノ内路彦、片瀬貴義、2015年11月～2016年3月。

f. 北大以外での非常勤講師

- 1) 太田裕道、九州大学大学院総合理工学府、集中講義「量子プロセス理工学特論第二」、「機能性酸化物薄膜の物理とデバイス応用」(全7講)、2015年11月19日～20日。

g. ポスドク・客員研究員など

- 1) 博士研究員 片山翔太 (2015.4.1～2016.3.31)

h. 修士学位及び博士学位の取得状況

修士学位：

- 1) 遠藤賢司、「二酸化バナジウム薄膜のプロトン化を利用したエレクトロクロミック素子に関する研究」(三上賞受賞:北海道大学 情報科学研究科 生命人間情報科学専攻の賞)。

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、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)、2010.4～2015.9）
特任講師 日比輝正（名古屋市大院、博(薬)、2015.10～）
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～）
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 大島太暉人、北村瞭次、山口和志

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）。特に、物質・デバイス共同研究拠点事業やJST・CREST、AMED・BRAIN/MIND（革新脳）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ている。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。

(b) 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

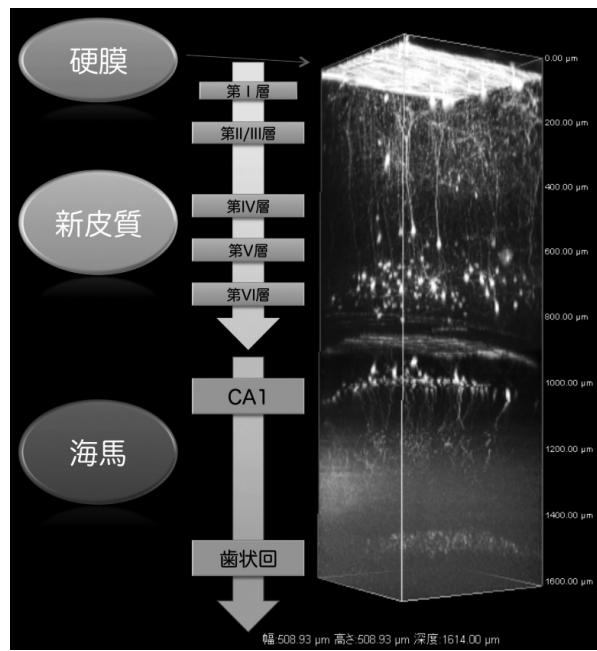


図1 “*in vivo*”2光子顕微鏡は生体内の組織の深部を高分解能で長期間観察が可能である。麻酔下のマウス大脳新皮質の神経細胞及び海馬CA1・歯状回ニューロン。

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。そこでレーザー波面操作による収差補償に関する補償光学の研究を推進した。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脳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。この方法論を用いて、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。浸液の屈折率のミスマッチによって発生する球面収差がマウス生体脳深部の空間分解能に与える影響を検討し、最も高い空間分解能を与える条件を決定した。

この方法論を用いて、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500 μm以上の深部で神経線維の*in vivo*光操作・光破壊に成功した（図2）。なお本成果は「2015年度日本生物物理

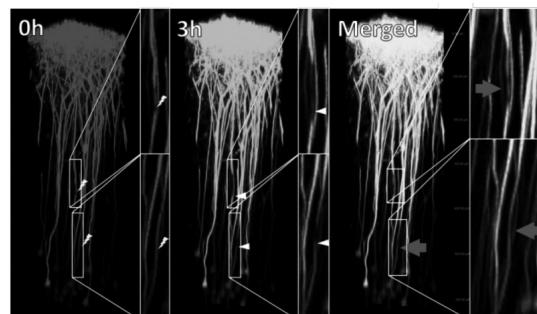


図2 マウス生体脳における頂上樹状突起の光操作と経時時間

学会北海道支部例会発表賞」と「第93回日本生理学会大会学生ポスター賞」を受賞した。

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、球面収差を補償するための液晶デバイスの開発に成功し、原著論文で発表を行った(J. Biomed. Opt., 2015)。さらに、非対称収差などの高次の成分についても補償を可能とするデバイスの開発に着手し、査読付国際会議 (SPIE BIOS, 2016) で発表を行った。

(c) これらの方法論を用いて、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。昨年度に引き続き、科学技術振興機構 (JST) 戰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」を実施した。特に、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愛媛大学の移設と “*in vivo*” 2光子顕微鏡の立ち上げに参加した。

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

グを実現した。特に今年度は画像取得から画像処理までを一括して実施するための自動システムを構築した。

(d) 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した。本方法論を用いて、古屋市立大・医、澤本和延教授との共同研究を通じて、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、脳側室から、RMSから嗅球への移動する新生ニューロンの観察に成功し、微細なニューロン形態の解析を進めた。さらに詳細なニューロン形態の解析については、自然科学研究機構基礎生物学研究所との研究を開始した。これらの成果は、第11回成体脳のニューロン新生懇談会Abcam賞及びThe 16 th RIES-Hokudai international symposium 2015, 優秀ポスター賞を受賞した。

また、超解像顕微鏡である構造化照明法とこの新規透徹剤を組み合わせることで、樹上突起スパンネックなど微細な構造が可視化できることが明らかになった。鬱病モデルマウスにおいて樹上突起スパンの構造が変化する様子を解析することに成功し、ニューロフォトニクス研究会、日本生理学会等で発表した。

(e) AMED BRAIN/MINDを受託し、超解像イメージングに関する研究を実施した(図3)。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、

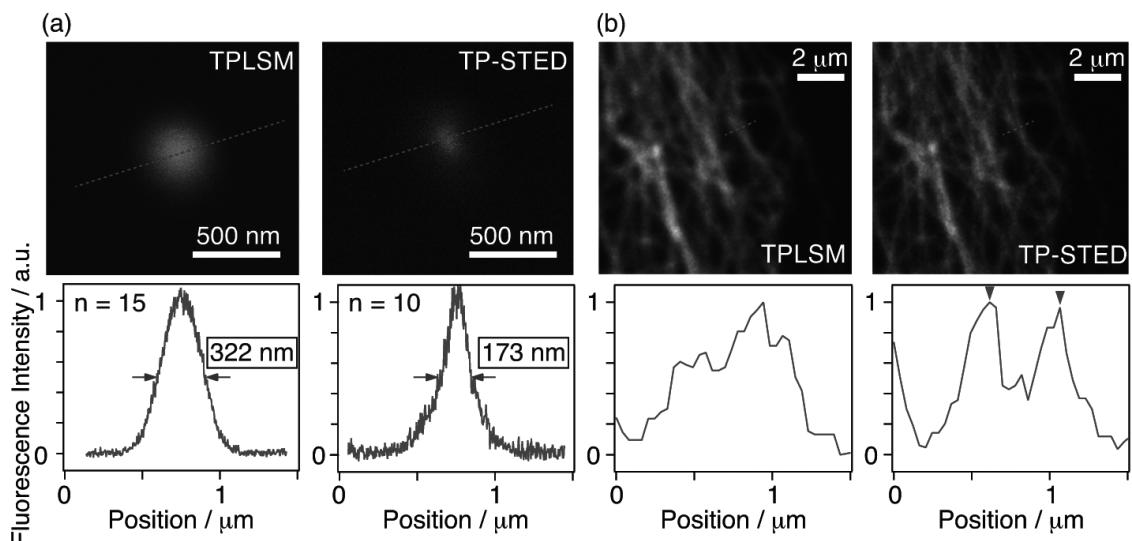


図3 2光子STED顕微鏡による超解像イメージングの比較。(a)微小蛍光ビーズ像、(b)固定したCOS7細胞の微小管の抗体蛍光染色サンプル。TPLSMは通常の2光子顕微鏡、TP-STEDは2光子STED顕微鏡による。

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た。現在、さらに新規レーザー光源による超解像顕微鏡の開発に着手した。

(f) 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。また麻酔下のマウスの血流を、2光子励起蛍光や第2次高調波発生を用いて100fps以上の高速度で、撮影することにも成功した。これらの成果は原著論文として発表し(*Anal. Sci.*, 2015)、Hot article awardを受賞した。

さらに5附置研アライアンスに関連して、東北大多元研・佐藤俊一研究室小澤祐市助教の協力を得つつ、液晶デバイスを用いたベクトルビームを発生させる技術を活用し、ビーム形状のトップハットを可能とする機器の開発を推進した。その結果、ニポウディスク式高速2光子顕微鏡において、広視野化が実現でき、広視野・高速の蛍光3Dイメージングが可能となった。これらのアイデアは特許として出願した。

これらの成果に基づき、本年度から新学術領域研究(研究領域提案型)「レゾナントバイオロジー」において研究計画「ベクトルレーザー光を用いた高速in vivoイメージング技術の高度化と応用」を受託し研究を開始した。

(g) 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Ca²⁺センサーチ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てきたので、そのマウスのCa²⁺依存性の生理機能の解析を推進した。本年度は、慶應大学医学部眼科学教室と涙腺におけるCa²⁺依存性の開口放出や水・電解質について共同研究を開始した。

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、眞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) A. Tanabe, T. Hibi, S. Ipponjima, K. Matsumoto, M. Yokoyama, M. Kurihara, N. Hashimoto and T. Nemoto : “Transmissive liquid-crystal device correcting primary coma aberration and astigmatism in laser scanning microscopy”, *Proc. SPIE* (2016)
- 2) A. Tanabe, T. Hibi, S. Ipponjima, K. Matsumoto, M. Yokoyama, M. Kurihara, N. Hashimoto and T. Nemoto : “Correcting spherical aberrations in biospecimen using transmissive liquid crystal device in two-photon excitation laser scanning microscopy”, *J. Biomed. Opt.*, 20(10) : 101204-1-101204-11 (2015)
- 3) 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.*, 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 and T. Nemoto : “Super-resolution two-photon excitation microscopy utilizing transmissive liquid crystal devices”, Super-resolution imaging in medicine and biology, Taylor & Francis Books, inc. : Chapter 12- (in press)
- 2) 川上 良介、北村 瞭次、山口 和志、根本 知己 : 「マウス生体脳in vivo2光子イメージングにおける空間分解能の評価と応用」、レーザー学会第484回研究会報告書 : 87-91 (2015)

- 3) 澤田 和明、川上 良介、根本 知己：「透徹化固定脳における大脳皮質スペイン形態の超解像イメージング」、レーザー学会第484回研究会報告書：29–34 (2015)
- 4) 川上 良介、根本 知己：「生体深部の高解像度イメージング技術」、応用物理、84(10) : 913–917 (2015)
- 5) 川上 良介、根本 知己：「生命現象を生きたまま可視化する2光子顕微鏡法」、比較内分泌学、41(156) : 136–137 (2015)
- 6) 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 一基礎からイメージングまで」(木下修一・太田信廣・永井健治・南不二雄(共編))、朝倉書店、(第7. 3. 2節) : 630–636 (2015)
- 7) T. Murata, K. Otomo, T. Hibi, H. Nakayama, T. Nemoto and M. Hasebe : “Two-photon spinning disk confocal microscopy of living cells and tissues”, Plant Morphology, 27(1) : 27–32 (2015)
- 8) K. Otomo, T. Hibi, Y. Kozawa and T. Nemoto : “STED microscopy—super-resolution bio-imaging utilizing a stimulated emission depletion”, Microscopy, 64(4) : 227–236 (2015)

4.3 特許、知的財産等

- 1) 田辺 紗乃、橋本 信幸、根本 知己、日比 輝正、大友 康平、小澤 祐市：特願2016-023924、照明装置及び照明光生成方法、2016年02月10日

4.4 受賞

- 1) K. Yamaguchi, R. Kitamura, R. Kawakami and T. Nemoto : 学生ポスター賞 “In vivo two-photon laser ablation by improvement of focusing property in living mouse brains” (日本生理学会) 2016年03月
- 2) 山口 和志、北村 瞭次、川上 良介、根本 知己：支部例会発表賞「生体脳の光学特性に整合した集光条件の改良による生体脳2光子イメージングの劇的な改善」(日本生物物理学会北海道支部) 2016年03月
- 3) 根本 知己：北海道大学研究総長賞奨励賞 (北海道大学) 2016年02月
- 4) 青柳 佑佳、日比 輝正、根本 知己：Abcam賞「生後マウス脳における新生ニューロンの移動様式の解明に向けた観察法の確立」(第11回成体脳のニューロン新生懇談会) 2015年11月
- 5) Y. Aoyagi, T. Hibi and T. Nemoto : 優秀ポスター賞 “3D-visualization of SVZ-derived immature neurons in postnatal mouse brain for the elucidation of migratory behavior”(生後マウス脳におけるSVZ発生未成熟ニューロンの移動様式の解明のための3次元可視化)” (the 16 th RIES-Hokudai international symposium 2015) 2015年11月
- 6) K. Otomo, T. Hibi, T. Murata, H. Watanabe, R. Kawakami, H. Nakayama, M. Hasebe and T. Nemoto : Hot Article Award Analytical Sciences “Multi-point Scanning Two-photon Excitation Microscopy by Utilizing a

High-peak-power 1042-nm Laser” (the Japan Society for Analytical Chemistry) 2015年04月

4.5 講演

a. 招待講演

i) 学会

- 1) 川上 良介*、澤田 和明、草間 裕太、房 宜激、金沢 信哉、小澤 祐市、佐藤 俊一、横山 弘之、根本 知己：「高出力 1064 nm光源によるマウス大脳皮質-海馬歯状回のin vivo 2光子イメージング」、第93回日本生理学会大会、札幌コンベンションセンター(札幌市) (2016-03)
- 2) 根本 知己* : 「Improvement of two-photon microscopy using a new optical technology」、THE INTERNATIONAL CHEMICAL CONGRESS OF PACIFIC BASIN SOCIETIES 2015 (PACIFICHEM2015), Mariotte Hotel, Honolulu, USA (2015-12)
- 3) 飯島 光一朗*、川上 良介、根本 知己 : 「機能的コネクトーム解析に向けた生体脳イメージング技術について」、日本光学会年次学術講演会Optics & Photonics Japan 2015、筑波大学東京キャンパス文京校舎(東京都文京区) (2015-10)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 根本 知己* : 「レーザー光技術を用いた新規バイオイメージング法の開発」、レゾナントバイオ公開シンポジウム、KKR ホテル熱海、熱海市 (静岡市) (2016-03)
- 2) 大友 康平*、根本 知己 : 「二光子励起顕微鏡の機能向上と生体内現象の詳細可視化追跡」、北大・産総研若手研究者研究交流会、北海道大学 学術交流会館 (札幌市) (2016-02)
- 3) 大友 康平*、根本 知己 : 「北海道大学ニコンイメージングセンターにおける光学顕微鏡開発」、理化学研究所 ライフサイエンス技術基盤研究センター 顕微鏡開発ワークショップ、理化学研究所 ライフサイエンス技術基盤研究センター (神戸市) (2016-01)
- 4) 根本 知己* : 「非線形光学による in vivo イメージング」、顕微鏡開発ワークショップ～全階層マルチモダルイメージングの実装に向けて～、理化学研究所 (神戸市) (2016-01)
- 5) T. Nemoto*, R. Kawakami, T. Hibi, K. Iijima and K. Otomo : “Improvement of Two-photon Microscopy for Real Time 3D Imaging of Biological Specimens”, 9th International Symposium on Nanomedicine (ISNM2015), Mie Univ., Tsu, Mie (2015-12)
- 6) K. Otomo* and T. Nemoto : “Improvement of two-photon excitation microscopy for biological specimens by utilizing novel technologies”, RIES-RCAS Workshop, Academia Sinica, Taipei, Taiwan (2015-11)
- 7) 山口 和志*、北村 瞭次、川上 良介、根本 知己 : 「マウス生体脳の in vivo 2光子イメージングにおける空間分解能の評価法の確立と応用」、生物物理若手の会・生化

- 学若手の会合同セミナー、北海道大学理学部（札幌市）
(2015-11)
- 8) 根本 知己*、川上 良介、田辺 綾乃、日比 輝正、大友 康平、橋本 信幸：「多光子顕微鏡を用いたマウス生体脳の 3D イメージング」、3 次元画像コンファレンス 2015、海洋研究開発機構横浜研究所（横浜市）（2015-07）
- 9) R. Kawakami, K. Otomo, T. Hibi, K. Iijima and T. Nemoto* : “Two-photon Microscopy with New Optical Technologies for Brain Research”, The 3rd China-Japan Symposium on Nanomedicine, Institute of Basic Medical Sciences, Chinese Academy of Medical Sciences & Peking Union Medical College, Beijin, China (2015-06)
- iii) コロキウム・セミナー等・その他
- 1) 根本 知己*：「非線形光学過程を利用した顕微鏡法の基礎と応用」、機能生物学セミナー（医学共通講義 III 機能生物学入門）、東京大学医学部（東京都文京区）(2016-01)
- 2) 根本 知己*：「多光子顕微鏡の現状について」、放射線医学総合研究所「レーザーのバイオロジーへの応用の可能性について」、AP 東京八重洲通り（東京都）(2015-12)
- 3) K. Otomo* and T. Nemoto : “NIC@Hokkaido Univ. and collaborative works”, NIC Director’s Meeting, Heidelberg University, Heidelberg, Germany (2015-10)
- 4) 根本 知己*：「超短光パルスレーザーを用いた多光子イメージング」、第1回レーザー学会「レーザーバイオ医療」技術専門委員会、千歳科学技術大学、千歳市 (2015-06)
- b. 一般講演
- i) 学会
- 1) 澤田 和明*、川上 良介、根本 知己：「Morphological analysis of dendritic spines using structured illumination microscopy with a clearing method for the fixed mouse Brain」、第93回日本生理学会大会、札幌コンベンションセンター（札幌市）（2016-03）
- 2) 山口 和志*、北村 瞭次、川上 良介、根本 知己：「In vivo two-photon laser ablation by improvement of focusing property in living mouse brains」、第93回日本生理学会大会、札幌コンベンションセンター（札幌市）（2016-03）
- 3) K. Otomo*, T. Hibi, H. Watanabe, Y. Yamanaka, H. Nakayama and T. Nemoto : “High-temporal resolution 3D and 4D bio-imaging by two-photon excitation spinning disk confocal microscopy”, Focus on Microscopy 2016, the NTUH (National Taiwan University Hospital) International Convention Center, Taipei, Taiwan (2016-03)
- 4) 山口 和志*、北村 瞭次、川上 良介、根本 知己：「生体脳の光学特性に整合した集光条件の改良による生体脳 2 光子イメージングの劇的な改善」、2015 年度日本生物物理学年次学術講演会 Optics & Photonics Japan 2015、筑波大学東京キャンパス文京校舎（東京都文京区）（2015-03）
- 理学会北海道支部例会、北海道大学薬学部（札幌市）(2016-03)
- 5) 田辺 綾乃*、日比 輝正、一本嶋 佐理、松本 健志、横山 正史、栗原 誠、橋本 信幸、根本 知己 : 「Transmissive liquid-crystal device correcting primary coma aberration and astigmatism in laser scanning microscopy」、BiOS, SPIE, The Moscone Center, San Francisco, California, USA (2016-02)
- 6) T. Murata*, K. Otomo, T. Hibi, H. Nakayama, T. Nemoto and M. Hasebe : “Perinuclear microtubule clusters initiate a spindle as centrosomes in tobacco cells” , ASCB 2015 Meeting, San Diego Convention Center, San Diego, CA, USA (2015-12)
- 7) R. Kitamura*, K. Sawada, R. Kawakami and T. Nemoto : “Evaluation of spatial resolution in “in vivo” two-photon microscopy by fluorescent microbeads injected into living mouse brain cortex” , 8th FAOPS Congress, Centara Grand & Bangkok Convention Centre, Bangkok, Thailand (2015-11)
- 8) K. Yamaguchi*, R. Kitamura, R. Kawakami and T. Nemoto : “In vivo two-photon laser ablation of neural processes within cortical layer V of mouse under an optimized condition” , 8th FAOPS Congress, Centara Grand & Bangkok Convention Centre, Bangkok, Thailand (2015-11)
- 9) 田辺 綾乃*、日比 輝正、一本嶋 佐理、松本 健志、横山 正史、栗原 誠、橋本 信幸、根本 知己 : 「透過型液晶収差補正素子の開発と生体組織標本への応用」、日本光学会年次学術講演会 Optics & Photonics Japan 2015、筑波大学東京キャンパス文京校舎（東京都文京区）（2015-10）
- 10) R. Kitamura*, K. Sawada, R. Kawakami and T. Nemoto : “Quantitative evaluation of the resolution of In vivo two-photon microscopy by imaging of single fluorescent beads in living mouse brain” , Neuroscience2015, McCormick Place, Chicago, USA (2015-10)
- 11) K. Yamaguchi*, R. Kitamura, R. Kawakami and T. Nemoto : “Improvement in focusing properties enables in vivo two-photon laser ablation in deep cortical regions of living mouse brain” , Neuroscience2015, McCormick Place, Chicago, USA (2015-10)
- 12) 房 宜激*、草間 裕太、川上 良介、根本 知己、横山 弘之 : 「Two-photon microscopy with an $1\mu\text{m}$ -band wavelength-selectable picosecond light pulse source based on a gain-switched laser diode」、The 76th JSAP Autumn Meeting、名古屋国際会議場（名古屋市）(2015-09)
- 13) 村田 隆*、大友 康平、日比 輝正、中山 博史、根本 知己、長谷部 光泰 : 「2 光子励起スピニングディスク共焦点顕微鏡による植物紡錘体形成の 3D ライブイメージング」、第 67 回日本細胞生物学会大会、タワーホール船堀（東京都江戸川区）（2015-06 ~ 2015-07）

- 14) 村田 隆*、大友 康平、日比 輝正、中山 博史、根本 知己、長谷部 光泰：「Visualization of mitotic spindle development of plants by two-photon spinning disk confocal microscopy」、第 67 回日本細胞生物学会大会、タワーホール船堀（東京都江戸川区）（2015-06 ~ 2015-07）
- 15) 一本嶋 佐理*、日比 輝正、根本 知己：「In vivo 2 光子イメージングによる表皮基底細胞における 3 次元的な分裂方向の解析」、第 67 回日本細胞生物学会大会、タワーホール船堀（東京都江戸川区）（2015-06 ~ 2015-07）
- 16) 一本嶋 佐理*、日比 輝正、根本 知己：「Three-dimensional analysis of cell division orientation in epidermal basal layer using in vivo two-photon microscopy」、第 67 回日本細胞生物学会大会、タワーホール船堀（東京都江戸川区）（2015-06 ~ 2015-07）
- 17) 日比 輝正*、大友 康平、伊藤 里紗、一本嶋 佐理、大嶋 佑介、今村 健志、根本 知己：「白色レーザー光を活用した多波長励起高速 4 次元イメージング」、第 67 回日本細胞生物学会大会、タワーホール船堀（東京都江戸川区）（2015-06 ~ 2015-07）
- 18) K. Otomo*, T. Hibi and T. Nemoto : "Visualization of biological nano, micro-structures by using novel two-photon excitation laser scanning microscopes", The 2015 ICME International Conference on Complex Medical Engineering, Okayama Univ., Okayama (2015-06)

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、村田 隆、中山 博史、長谷部 光泰、根本 知己：「マルチビーム走査型二光子顕微鏡の開発と生体内高速現象の可視化」、CREST「光展開」領域 公開研究報告会、JST 東京本部別館（東京都千代田区）（2015-12）
- 2) 川上 良介*、北村 瞭次、山口 和志、根本 知己：「マウス生体脳 in vivo 2 光子イメージングにおける空間分解能の評価と応用」、レーザー学会第 484 回研究会、ホテルグランドヒル市ヶ谷（東京都新宿区）（2015-12）
- 3) 澤田 和明*、川上 良介、根本 知己：「透徹化固定脳における大脳皮質スパイン形態の超解像イメージング」、レーザー学会第 484 回研究会、ホテルグランドヒル市ヶ谷（東京都新宿区）（2015-12）
- 4) 青柳 佑佳*、日比 輝正、根本 知己：「生後マウス脳における新生ニューロンの移動様式の解明に向けた観察法の確立」、第 11 回成体脳のニューロン新生懇談会、名古屋市立大学（名古屋市）（2015-11）
- 5) K. Sawada*, R. Kawakami and T. Nemoto : "Morphological analysis of dendritic spines in the mouse prefrontal cortex layer V pyramidal neurons induced by the depression-like symptom", the 16th RIES-Hokudai international symposium 2015, Hotel Châteraisé Gateaux, Kingdom Sapporo, Sapporo (2015-11)

Châteraisé Gateaux, Kingdom Sapporo, Sapporo (2015-11)

- 6) A. Tanabe*, T. Hibi, S. Ipponjima, K. Matsumoto, M. Yokoyama, M. Kurihara, N. Hashimoto and T. Nemoto : "Correcting spherical aberrations in a biospecimen using a transmissive liquid crystal device in two-photon excitation laser scanning microscopy", the 16th RIES-Hokudai international symposium 2015, Hotel Châteraisé Gateaux, Kingdom Sapporo, Sapporo (2015-11)
- 7) Y. Aoyagi*, T. Hibi and T. Nemoto : "3D-visualization of SVZ-derived immature neurons in postnatal mouse brain for the elucidation of migratory behavior", the 16th RIES-Hokudai international symposium 2015, Hotel Châteraisé Gateaux, Kingdom Sapporo, Sapporo (2015-11)
- 8) S. Ipponjima*, T. Hibi and T. Nemoto : "Visualization of epidermal cell division in living mice using two-photon microscopy", The 16th RIES-Hokudai international symposium 2015, Hotel Châteraisé Gateaux, Kingdom Sapporo, (2015-11)
- 9) 大友 康平*、日比 輝正、村田 隆、渡邊 裕貴、川上 良介、中山 博史、長谷部 光泰、根本 知己：「3D visualization of living cells and organs by two-photon excitation spinning disk confocal microscopy utilizing a high-peak-power 1042-nm laser」、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 26 年度アライアンス成果報告会、九州大学伊都地区 I2CNER ホール（福岡市）（2015-04）

4.5 シンポジウムの開催

- 1) 根本 知己：「第 93 回日本生理学会大会」、札幌コンベンションセンター（札幌市）（2016 年 03 月 22 日～2016 年 03 月 24 日）
- 2) T. Nemoto : "9th International symposium of Nanomedicine (ISNM2015)" , 愛媛大学南加記念ホール（松山市）（2015 年 12 月 11 日～2015 年 12 月 13 日）
- 3) 根本 知己、大友 康平：「平成 27 年度 ニコンイメージングセンター学術講演会」、45 人、北海道大学 電子科学研究所（札幌市）（2015 年 11 月 20 日）
- 4) T. Nemoto, T. Komatsuzaki and K. Otomo : "Top-Collaboration Support Project International Lecture also as Nikon Imaging Center at Hokkaido Univ. International Lecture" , 30 人, RIES, Hokkaido University (Sapporo) (2015 年 11 月 19 日)
- 5) 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 4 回蛍光バイオイメージング・ミニシンポジウム」」、49 人、北海道大学 電子科学研究所（札幌市）（2015 年 07 月 31 日）

4.6 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、2015年度

2) 根本 知己(株)ニコン:共同研究、2015年度

b. 受託研究

- 1) 根本 知己、横山 弘之、日比 輝正、川上 良介、大友 康平(国立研究開発法人日本医療研究開発機構 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、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、69200千円、
2. 今村 健志、根本 知己、鍋倉 淳一(科学技術振興機構) :「生物個体用in vivo2光子顕微鏡の高度化」、2010～2015年度、戦略的創造推進事業「光展開」「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:今村健志)

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) 根本 知己、新学術領域研究 研究領域提案型、ベクトルレーザー光を用いた高速in vivoイメージング技術の高度化と応用、2015～2019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
- 2) 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
- 3) 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
- 4) 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
- 5) 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」、2013～2015年度

4.8 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)

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:日本ナノメディシン交流協会・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年01月01日～現在)

- 2) 根本 知己 : (独)科学技術振興機構、専門委員 (2010年01月01日～現在)

d. 新聞雑誌等での報道

i) 雑誌

- 1) 根本 知己 : 日経テクノロジーオンライン 2015年11月27日 「非侵襲で海馬を観察、生体深部の高解像イメージング技術」

ii) その他

- 1) 根本 知己 : 北海道大学情報科学研究科ネットジャーナル 2015年12月11日 「生体内組織の深部を高分解能で観察－光・脳科学、光・細胞生理学の新しい研究領域を開拓」

- 2) 根本 知己 : (株)ニコン 「100周年ミュージアム」 2015年10月16日 「画像提供」

e. 外国人研究者の招聘

- 1) Peilin Chen, Taiwan, (2015年11月19日～2015年11月20日)
- 2) U. Valentin Nager, France, (2015年11月19日～2015年11月20日)

f. 北大での担当授業科目

- 1) 工学部、量子力学、根本 知己、2015年04月01日～2015年09月30日
- 2) 情報科学研究科、脳神経科学特論、根本 知己、2015年04月01日～2015年09月30日
- 3) 工学部、生体医工学基礎・医用工学概論、根本 知己、2012年10月10日～2016年03月10日
- 4) 全学共通、環境と人間、根本 知己、2015年05月22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) 大島 太矩人(北海道大学大学院情報科学研究科)
「生体適合性材料を活用したOpen skull法によるマウス生体脳イメージングの高度化」
- 2) 北村 瞭次(北海道大学大学院情報科学研究科)
「マウス生体脳の2光子イメージングにおける深部空間分解能の定量評価と改善」

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、飯田良
修士課程 田崎太悠、中村聰、鈴木重明
学部生 鳥居悠

1. 研究目標

物質をナノメートルサイズまで小さくすると本来の物性とは異なる性質が表れる。特に金属ナノ粒子は電子、光学、バイオ応答の点で特有な機能が発現することが知られており、近年はナノ粒子の集合体が有する特異な機能が注目されている。本研究分野では、生物に見られる生体分子の高度な分子認識と自己組織化に着目し、金属ナノ粒子の表面構造を操作することで金属ナノ粒子の集合体形成の制御を行い、新奇な物理現象の発見を機能性材料や薬物送達キャリアの開発につなげることをめざしている。

2. 研究成果

(a) 金ナノ粒子間距離の動的制御による表面増強ラマン散乱測定の高感度化

金属のナノ構造体は、光と相互作用して局在表面プラズモンを示す。現在、この局在プラズモンの有効利用が注目されている。特に、金属ナノ構造体表面におけるラマン散乱の増強は表面増強ラマン散乱 (SERS)と呼ばれ、センシングデバイスを指向した関連研究が数多く報告されている。しかしながら、これらの研究の多くは低分子を対象としたものであり、タンパク質や細菌などのセンシングではその感度は低分子の場合に比べて著しく低い。SERSはナノ構造体のギャップ部位、特にそのギャップ間距離が短いほど高い増強効果が期待できる。しかし、ギャップのスケールを小さく

すると測定対象物質がギャップ部位に入り込みにくくなるという問題があり、特にタンパク質や細菌などの大きな対象物質に対しては測定が難しくなっていると考えられる。そのため、本研究では外部刺激に応答して膨潤・収縮するハイドロゲルの上に金ナノ構造体を固定化し、ゲルの膨潤・収縮によるサイズの変化によって金ナノ構造体のギャップを動的に制御することで、効率よくターゲットを金ナノ構造体間に取り込み、SERSを著しく増強可能な高感度検出デバイスの創製を目指している。

これまでに、自己組織化によりガラス基板上に金ナノ粒子集積薄膜を作製し、ハイドロゲル上に金ナノ構造体を転写することに成功している。また、濃度の異なるNaCl水溶液を用いてゲルを膨潤・収縮させると、ゲルの膨潤・収縮に応じた吸収スペクトルの波長のシフトが観測され、金ナノ粒子間の距離が動的に変化することも確認されていた。そこで、本年度は、金ナノ粒子間距離を動的に変化させることによるSERS測定への効果について検討した。

金ナノ粒子集積薄膜転写ゲルを用いてhemoglobin (分子量 65 kDa) のラマン分光測定を行った結果、ゲルの膨潤により金ナノ粒子間距離を広げた状態でターゲット分子を添加し、そのままラマン分光測定を行うとシグナルは全く検出されず、また、粒子間距離を狭めたままタンパク質を添加しラマン測定を行うと、微弱ながらもプラズモンにより増強されたシグナルが観察された(図1B-a, b)。一方、粒子間距離を広げた状態でターゲット分子を添加し、その後ゲルを収縮させて測定を行った結果、著しく増強されたシグナルが観察された(図1B-c)。この増強効果は粒子間距離を変えなかった場合(図1B-a, b)と比べ、10倍以上であった。一方、Crystal Violet (分子量 408 Da) の測定においては粒子間距離を狭めたままターゲット分子を加えた場合と比べ、SERSのシグナル強度が約2.5倍増大した(図1C)。これらの結果より、粒子間距離を動的に変化させる本研究の手法は、微細な間隙に入りにくい巨大分子のSERS測定において特に有効であることが明らかになった。

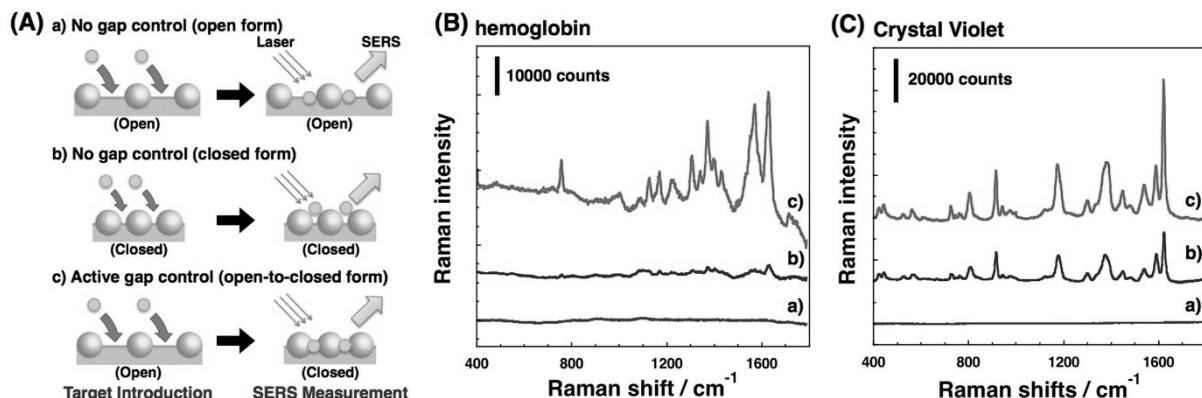


図1. 動的ギャップ制御を利用したhemoglobinおよびCrystal VioletのSERS測定

(A) 測定方法の模式図；a) ギャップが開いたままの状態での測定；b) ギャップが閉じたままの状態での測定；c) ギャップが開いた状態で対象物質を導入し、ギャップを狭めた後にSERSを測定 (B) hemoglobinのSERSスペクトル (C) Crystal VioletのSERSスペクトル

(b) 金ナノ粒子を使った経鼻インフルエンザワクチンの開発

一般的にワクチンの効果を高めるために、(輸入された)ワクチンには抗原の他に、免疫賦活増強を目的としたアジュバントとよばれる物質が含まれている。アジュバントは自然免疫を賦活化することで抗体産生を促し、ワクチンの効果を高める。アジュバントを添加したワクチンは、加えない場合に比べて必要な抗原量も少なく、抗体産生能も高い(「感染症新たな闇に向けて」,日経サイエンス, 95ページ)。しかしアジュバントは炎症作用によって起きる反応を利用しているため、ワクチンの副反応とのバランスが重要となる。また現行のワクチンは皮下接種によるもので、IgG抗体を主に誘導する。これは感染後の重篤化は防げるものの、感染自体を防ぐことはできない。一方、インフルエンザワクチンをスプレーで鼻に投与する、経鼻投与により、粘膜上のIgA抗体の分泌を誘導できることが明らかになった。すなわち、経鼻において局所的なIgAの誘導を助け、かつ副反応を最小にできるアジュバントが必要である。

我々は金ナノ粒子上に Poly(I:C)をコーティングし、これをアジュバントとして用いることで、低毒性で効果的に免疫応答を惹起することを着想した。Poly(I:C)はポリイノシン酸とポリシチジル酸からなる二本鎖 RNA であり、自然免疫を活性化することにより免疫原性を高めるが、その効果は塩基長に依存し、塩基長が長いほど活性が高い。しかし、塩基長が長いほど毒性が増大するため、塩基長を短く抑えかつ効果が高いアジュバント効果を維持するための工夫が必要となる。表面をカチオン性にした球状、もしくはロッド状の金ナノ粒子に Poly(I:C)をコーティングし、これと抗原と共に経鼻で投与した。その後、インフルエンザに感染させた後にブラークアッセイによりワクチンとしての効果を、ELISAにより抗体発現について調べた。

金ナノ粒子は Murphy らの手法を参考に合成を行い、表面がカチオン性界面活性剤で保護された直径 $38 \pm 4.3\text{nm}$ もしくは $20 \pm 1.4\text{nm}$ の球状金ナノ粒子、及び長軸 $27 \pm 3.1\text{nm}$ 、短軸 $7.3 \pm 0.97\text{nm}$ の金ナノロッドを得た(図 2-a)。遠心分離によって洗浄した後、4 級アンモニウム塩を先端にもつチオール分子(MTAB) を加え、金ナノ粒子表面を MTAB で修飾した。

精製した金ナノ粒子と Poly(I:C)の終濃度が 1mg/ml となるようにそれぞれ体積比 $1 : 1$ で純水中、室温で混合し、ナノ粒子表面を Poly(I:C)でコーティングした。これら複合体をアジュバントとして用い、抗原(インフルエンザのヘマグロビンタンパク質)と共に経鼻でマウスに投与した。ワクチン投与したマウスをインフルエンザウイルスに感染させ、経鼻に残ったウイルス量からワクチンの活性を評価した(図 2-b)。金ナノロッドを用いた場合にのみウイルスの減少が確認された。また、ELISAにより抗体値を測定したところ、金ナノロッドを用いた場合においてのみ IgA 抗体の産生が確認された。我々の結果は、ナノ粒子のサイズや形状が経鼻ワクチンのアジュバント効果に大きく影響を与えることを示す初めての知見であり、ワクチン設計にとってナノテクノロジーからのアプローチの重要性を支持する。

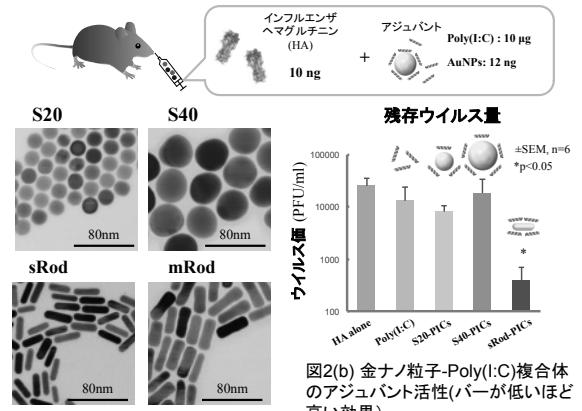


図2(a)ワクチンとして用いた金ナノ粒子

(c) 温度応答性金ナノ粒子の作製

金ナノ粒子(AuNPs)は局在表面プラズモン共鳴や生体適合性の高さといった特性を有しており、それらを自己集合化させることはさらなる機能発現に繋がる。特に自己集合化と分散を化学的・物理的な刺激で制御することができればセンシングデバイスや薬剤キャリアなどへの応用が期待できる。刺激の中でも最も簡便なものは熱である。これまで、高温で凝集する温度応答性金ナノ粒子は高分子で粒子表面を被覆することで作製してきた。しかし高分子の合成は低分子合成に比較して敷居が高く(ノウハウが必要)、高分子を高密度に被覆すると粒子集合化のレスポンスが遅いという課題もある。我々は低分子であり様々なアルキルヘッドを持つヘキサエチレンギコール誘導体を新規に合成し、金ナノ粒子表面に被覆することで、温度応答性金ナノ粒子を作製できることを見いだした(図3)。図3模式図右の縦軸はプラズモンピークの最大値に相当する波長で、上に行くほど凝集していることを示している。作製した温度応答性金ナノ粒子が凝集する温度はリガンドに導入するアルキルヘッドが疎水的になるほど下がった。加えて、凝集する温度は粒径が大きくなるほど低下した。これは、粒径によってリガンド一本当たりが占める体積が小さくなり、脱水和しやすくなるためであると考えられる。

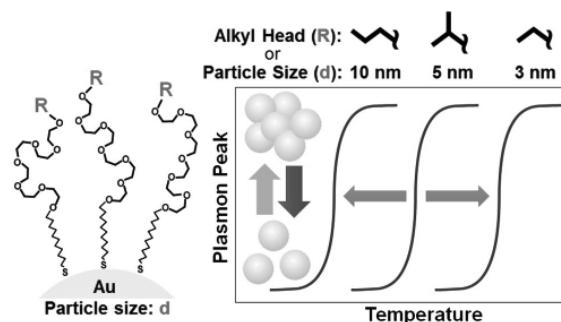


図3. アルキルヘッドをもつ分子で覆われた金ナノ粒子の温度依存的な凝集

(d) 2つの異なる粒径の金ナノ粒子の自発的分離を利用した階層構造をもつ集合体の形成

我々は、末端にチオール基を有するフッ素化オリゴエチレングリコール誘導体のジオキサン溶液と、水に分散したクエン酸修飾金ナノ粒子を混合すると粒子からなるベシクル状構造を形成することを見いだした。さらに大小(直径5nmと30nm) 2つのサイズの金ナノ粒子を混合すると、それぞれのサイズの金ナノ粒子が自然に分離したYolk/Shell構造(卵の黄身と殻に相当する構造)になることがわかった(図4)。これは小さな粒子が元来ベシクル状構造を作るという駆動力に加え、枯渇力によるサイズ分離の力が働いていると考えられる。溶液中で2つのサイズの粒子が自発的に分離して特異な構造を取り得ることを示した初めての例であり、シンプルな方法で階層構造をもつ粒子集合体をつくる方法を提案することができた。本研究は電子研の西野グループおよび東北大多元研の陣内グループとの共同研究で進められた。



図4. フッ素化リガンドで修飾することで2つの粒子が自発的に溶液中でYolk/Shell構造を形成。

3. 今後の研究の展望

自然に見られる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。当研究分野で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。今後はここで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) N. Nakayama, K. Hagiwara, Y. Ito, K. Ijiro, Y. Osada, and K. Sano: "Noncationic Rigid and Anisotropic Coiled-Coil Proteins Exhibit Cell-Penetration Activity", *Langmuir*, **31**(30): 8218-8223 (2015)
- 2) G. Wang, H. Mitomo, Y. Matsuo, K. Niikura, and K. Ijiro: "DNA-modulated photo-transformation of AgCl to silver nanoparticles: Visiting the formation mechanism", *J. Colloid Interface Sci.*, **452**, 224-234 (2015)

- 3) G. Wang, S. Tao, Y. Liu, L. Guo, G. Qin, K. Ijiro, M. Maeda, Y. Yin*: "High-yield halide-free synthesis of biocompatible Au nanoplates", *Chem. Commun.*, **52**(2), 398-401 (2016)
- 4) H. Mitomo, A. Eguchi, Y. Suzuki, Y. Matsuo, K. Niikura, K. Nakazawa, and K. Ijiro: "Fabrication of a Novel Cell Culture System using DNA-Grafted Substrates and Dnase", *J. Biomed. Nanotechnol.*, **12**(2), 286-295 (2016)
- 5) H. Mitomo, K. Horie, Y. Matsuo, K. Niikura, T. Tani, M. Naya, and K. Ijiro: "Active Gap SERS for the Sensitive Detection of Biomacromolecules with Plasmonic Nanostructures on Hydrogels", *Adv. Opt. Mater.*, **4**(2), 259-263 (2016)
- 6) 三友秀之、新倉謙一、居城邦治:「分子を超えた自己組織化:表面修飾を利用したナノ粒子集合体の形成と機能材料への展開」、高分子論文集、**73**(2), 147-156 (2016)
- 7) J. Wei, K. Niikura, T. Higuchi, T. Kimura, H. Mitomo, H. Jinnai, Y. Joti, Y. Bessho, Y. Nishino, Y. Matsuo, and K. Ijiro: "Yolk/Shell Assembly of Gold Nanoparticles by Size Segregation in Solution", *J. Am. Chem. Soc.*, **138**(10), 3274-3277 (2016)
- 8) Ryo Iida, Hideyuki Mitomo, Yasutaka Matsuo, Kenichi Niikura, and Kuniharu Ijiro: "Thermoresponsive Assembly of Gold Nanoparticles Coated with Oligo(Ethylene Glycol) Ligands with an Alkyl Head", *J. Phys. Chem. C*, (Accepted)

4.2 総説・解説・評論等

- 1) 新倉謙一、三友秀之、居城邦治:「生体分子の集合構造にならった金ナノ粒子の自己集合」、化学工業、**66**(4):300-304 (2015)

4.3 著書

なし

4.4 講演

- a. 招待講演
- i.) 学会

- 1) H. Mitomo*, S. Nakamura, S. Suzuki, Y. Matsuo, K. Niikura and K. Ijiro : "Metal pattern formation by using DNA brushes", SPIE Optics + Photonics 2015, San Diego, USA (2015-08)
- 2) K. Ijiro* : "Nanoparticle-based biomimetic functional materials", SPIE Optics + Photonics 2015, San Diego, USA (2015-08)
- 3) K. Ijiro* : "Plasmonic nanostructures based on self-assembled nanoparticles for biosensing", 第76回応用物理学会秋季講演会シンポジウム, 名古屋国際会議場 (2015-09)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 居城 邦治* : 「ハイドロゲルを用いたチューナブルプラズモン共鳴とラマン分光への応用」、日本学術振興会「先端ナノデバイス・材料テクノロジー第 151 委員会」平成26年度 第 1 回研究会 ハイスループット材料分科会研究会 合同研究会、早稲田大学 (2015-07)
- 2) 新倉 謙一* : 「金ナノ粒子の表面修飾によって 誘起される粒子集合体形成」、PCXSS Workshop、北海道大学 (2015-8)
- 3) 三友 秀之* : 「高分子による金属ナノ構造体の制御」、2015 年度 北海道高分子若手研究会、定山渓グランドホテル瑞苑 (2015-8)
- 4) K. Ijiro* : "Polymer Network Based Tunable Plasmonic Device Using Nanoparticles", Japan-Taiwan Bilateral Polymer Symposium 2015, Hokkaido University (2015-09)
- 5) K. Ijiro*, J. Wei, Y. Matsuo, H. Mitomo and K. Niikura : "Gold Nanoparticle Vesicles and Those Sensing and Biological Applications Based on Plasmonic Properties", KJF International Conference on Organic Materials for Electronics and Photonics 2015 (KJF-ICOME 2015), Jeju, Korea (2015-09)
- 6) K. Ijiro* : "Hydrogel-Based Active Gap Control of Gold Nanoparticle-Assembly for Surface-Enhanced Raman Scattering Measurement of Macromolecules", 11th IUPAC International Conference on Novel Materials and their Synthesis (NMS-XI), Qinhuangdao, China (2015-10)
- 7) K. Ijiro* : "Nanoparticle self-assembly for bio applications", 2015 RIES-CIS Symposium 北海道大学電子科学研究所・台湾国立交通大学合同シンポジウム、台湾 国立交通大学, Taiwan (2015-11)
- 8) K. Ijiro* : "Self-assembly of nanoparticles: beyond the molecular scale", The 3rd International Symposium on AMBITIOUS LEADER' PROGRAM Fostering Future Leaders to Open New Frontiers in Materials Science, Hokkaido University (2015-11)
- 9) K. Ijiro* : "Self-Assembled Nanoparticles for Bio and Photonic Applications", 2015 RIES-RCAS Workshop, Research Center for Applied Sciences, Academia Sinica, Taiwan (2015-11)
- 10) 三友 秀之*、堀江 健太、魏 金建、松尾 保孝、新倉 謙一、居城 邦治 : 「金ナノ粒子の自己組織的集合化と構造制御」、附置研究所間アライアンス第三回若手研究会、九州大学 筑紫キャンパス (2015-11)
- 11) K. Ijiro*, H. Mitomo, K. Horie, Y. Matsuo and K. Niikura : "Active Gap SERS for the Sensitive Detection of Biomacromolecules with Gold Nanoparticles on Hydrogels", JOINT WORKSHOP Frontier 2015, Tohoku University (2015-11 ~ 2015-12)

- 12) K. Niikura*, H. Mitomo and K. Ijiro : "Hierarchical Assembly of Plasmonic Nanoparticles by Size Segregation", CityU/Hokkaido University Joint Workshop, Hong Kong, China (2015-12)
- 13) H. Mitomo*, K. Horie, Y. Matsuo, K. Niikura and K. Ijiro : "Surface-enhanced Raman Scattering on gold nanoparticle assembly with active gap control", 2016 IMCE International Symposium, Kyushu University (2016-01)
- 14) K. Ijiro* : "Self-Assembled Vesicles and Monolayers Prepared by Gold Nanoparticles and their SERS Applications", 1st Student Winter Workshop Maison France-Japan University de Strasbourg, Strasbourg, France (2016-03)

iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 居城 邦治* : 「タンパク質やナノ粒子の自己組織化によるナノカプセルの作製とそれらのバイオ・フォトニック応用」、第一回新しい原子分子組織化物質・材料創出に向けた光・量子ビーム応用技術調査専門委員会、名古屋大学 東山キャンパス (2015-05)
- 2) 新倉 謙一* : 「ナノ粒子を使った薬剤輸送とワクチン開発」、岐阜大学公開講演、岐阜大学 (2015-9)
- 3) 三友 秀之* : 「高分子を利用した金属ナノ構造体の作製」、第 8 回東京大学化学生命工学専攻 ChemBio ハイブリッドレクチャー、東京大学武田ホール (2015-10)

b. 一般講演

i) 学会

- 1) J. Wei*, N. Sugimura, K. Niikura, H. Mitomo and K. Ijiro : "Virus-capsid like Self-assembly of Gold Nanoparticles into Highly Symmetric Nano-architectures", 第 64 回高分子年次大会, 札幌コンベンションセンター (2015-05)
- 2) 中村 聰*、三友 秀之、鈴木 重明、松尾 保孝、新倉 謙一、居城 邦治 : 「DNA ブラシの作製と原子間力顕微鏡および超高解像蛍光顕微鏡による構造解析」、第 64 回高分子年次大会、札幌コンベンションセンター (2015-05)
- 3) 杉村 尚俊*、新倉 謙一、三友 秀之、澤 洋文、居城 邦治 : 「ウイルスカプセルを利用した RNA 分解反応場の設計とその評価」、第 64 回高分子年次大会、札幌コンベンションセンター (2015-05)
- 4) 三友 秀之*、堀江 健太、松尾 保孝、新倉 謙一、谷 武晴、納谷 昌之、居城 邦治 : 「ゲルに固定化された金属ナノ構造体の表面増強ラマン散乱基板への応用」、第 64 回高分子年次大会、札幌コンベンションセンター (2015-05)
- 5) 鈴木 重明*、三友 秀之、松尾 保孝、新倉 謙一、居城 邦治 : 「核酸アプタマーを用いた新奇細胞培養基板の作製」、第 64 回高分子年次大会、札幌コンベンションセンター (2015-05)

- ヨンセンター (2015-05)
- 6) 飯田 良*、新倉 謙一、三友 秀之、居城 邦治：「高温で凝集挙動を示す温度応答性金ナノ粒子の作製」、第 64 回高分子年次大会、札幌コンベンションセンター (2015-05)
 - 7) 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 被覆金ナノ粒子のサイズ・形状依存的アジュvant効果」、第 64 回高分子年次大会、札幌コンベンションセンター (2015-05)
 - 8) 新倉 謙一*、魏 金建、三友 秀之、居城 邦治：「粒子サイズによる相分離を利用した階層的金ナノ粒子集合体の構築」、第 66 回コロイドおよび界面化学討論会、鹿児島大学 (2015-09)
 - 9) J. Wei*, K. Niikura, H. Mitomo and K. Ijiro : "Layered Assembly of Gold Nanoparticles and their Plasmonic Properties", 第 76 回応用物理学会秋季講演会シンポジウム, 名古屋国際会議場 (2015-09)
 - 10) 三友 秀之*、堀江 健太、松尾 保孝、新倉 謙一、居城 邦治：「ゲルの体積変化を利用した金ナノ粒子集合体の動的な構造制御」、第 64 回高分子討論会、東北大学 川内キャンパス (2015-09)
 - 11) K. Niikura*, J. Wei, N. Sugimura, H. Mitomo and K. Ijiro : "Self-assembly of gold nanoparticles with a fluorinated surface", Pacificchem 2015, Hawaii Convention Center, USA (2015-12)
 - 12) T. Tazaki*, K. Niikura, T. Suzuki, Y. Ohara, S. Kobayashi, T. Nakano, Y. Orba, H. Mitomo, H. Sawa and K. Ijiro : "Enhancement of the adjuvant activity of dsRNAs by conjugation with gold nanoparticles", Pacificchem 2015, Hawaii Convention Center, USA (2015-12)
 - 13) H. Mitomo*, K. Horie, Y. Matsuo, K. Niikura, T. Tani, M. Naya and K. Ijiro : "Surface-enhanced Raman scattering measurements using a tunable plasmonic device on hydrogels", Pacificchem 2015, Hawaii Convention Center, USA (2015-12)
 - 14) J. Wei*, N. Sugimura, K. Niikura, H. Mitomo and K. Ijiro : "Self-assembly of gold nanoparticles into vesicle-like structures by the use of a carbohydrate-terminated fluorinated surface ligand", Pacificchem 2015, Hawaii Convention Center, USA (2015-12)
 - 15) R. Iida*, K. Niikura, H. Mitomo and K. Ijiro : "Induction of thermoresponsive behavior in gold nanoparticles by the display of low molecular weight surface ligands", Pacificchem 2015, Hawaii Convention Center, USA (2015-12)
 - 16) 南原 克行*、新倉 謙一、三友 秀之、鈴木 忠樹、相内 章、大原 有樹、居城 邦治：「三角形金ナノプレートの抗原タンパク質修飾とワクチン活性」、日本化学会第 96 春季年会(2016)、同志社大学 京田辺キャンパス (2016-03)
 - 17) 飯田 良*、新倉 謙一、三友 秀之、居城 邦治：「アルキルヘッドを持つ新規オリゴエチレングリコール誘導体で修飾された温度応答性金ナノ粒子」、日本化学会第 96 春季年会(2016)、同志社大学 京田辺キャンパス (2016-03)
 - 18) 鳥居 悠*、新倉 謙一、杉村 尚俊、飯田 良、三友 秀之、居城 邦治：「ウイルス様自己集合のための局所的な正電荷をもつ金ナノ粒子の作製」、日本化学会第 96 春季年会(2016)、同志社大学 京田辺キャンパス (2016-03)
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) J. Wei*, K. Niikura, H. Mitomo, T. Tani, M. Naya and K. Ijiro : "Fabrication of Gold Nanoparticle Vesicles and its Plasmonic Behavior", The 10th Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics (APNFO10), Hakodate (2015-07)
 - 2) H. Mitomo, K. Horie, Y. Matsuo, K. Niikura, T. Tani, M. Naya and K. Ijiro* : "Fabrication of Tunable Plasmonic Device using Hydrogels", The 10th Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics (APNFO10), Hakodate (2015-07)
 - 3) 飯田 良*、新倉 謙一、三友 秀之、居城 邦治：「金ナノ粒子をコアとするナノワクチンの開発」、第 25 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 (2015-07)
 - 4) 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：「金ナノロッドによる Poly(I:C)のアジュvant活性増強効果」、第 25 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 (2015-07)
 - 5) 南原 克行*、新倉 謙一、三友 秀之、鈴木 忠樹、大原 有樹、居城 邦治：「ナノワクチンのための抗原タンパク質被覆金ナノ構造体の作製」、2015 年度 北海道高分子若手研究会、定山渓グランドホテル瑞苑 (2015-08)
 - 6) 鈴木 重明*、三友 秀之、松尾 保孝、新倉 謙一、居城 邦治：「ターゲット分子との結合による核酸アプタマーの二本鎖解離挙動の観察」、2015 年度 北海道高分子若手研究会、定山渓グランドホテル瑞苑 (2015-08)
 - 7) S. Nakamura*, H. Mitomo, S. Suzuki, Y. Matsuo, K. Niikura and K. Ijiro : "Preparation and conformational analysis of DNA bursh", Japan-Taiwan Bilateral Polymer Symposium 2015, Hokkaido University (2015-09)
 - 8) T. Tazaki*, K. Niikura, T. Suzuki, Y. Ohara, S. Kobayashi, Y. Orba, H. Mitomo, H. Sawa and K. Ijiro : "Enhanced Adjuvant Activity of double-stranded RNA by the Immobilization onto Gold Nanoparticles", Japan-Taiwan Bilateral Polymer Symposium 2015, Hokkaido University (2015-09)
 - 9) H. Mitomo*, K. Horie, Y. Matsuo, K. Niikura and K.

- Ijiro : "Active gap control of gold nanoparticle–assembly for Surface–Enhanced Raman Scattering Measurements", KJF International Conference on Organic Materials for Electronics and Photonics 2015 (KJF–ICOME 2015), Jeju, Korea (2015–09)
- 10) R. Iida*, K. Niikura, H. Mitomo and K. Ijiro : "Thermoresponsive assembly of gold nanoparticles covered with oligo(ethylene glycol) derivatives", 2015 NTU–HU Joint Materials Science Workshop, National Taiwan University, Taiwan (2015–09 ~ 2015–10)
- 11) J. Wei*, K. Niikura, Y. Matsuo, H. Mitomo and K. Ijiro : "Fabrication and Plasmonic Study of Gold Nanoparticle Vesicles", 11th IUPAC International Conference on Novel Materials and their Synthesis (NMS–XI), Qinhuaodao, China (2015–10)
- 12) 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 : 「Poly(I:C)被覆金ナノ粒子のアジュバント活性における金ナノ粒子のサイズ・形状依存性評価」、第5回CSJ化学フェスタ2015、タワーホール船堀 (2015–10)
- 13) R. Iida*, K. Niikura, H. Mitomo and K. Ijiro : "Thermoresponsive self–assembly of gold nanoparticles induced by dehydration of the surface ligands", The 16th RIES–HOKUDAI International Symposium "術", Sapporo (2015–11)
- 14) R. Iida*, K. Niikura, H. Mitomo and K. Ijiro : "Thermoresponsive gold nanoparticles covered by oligo (ethylene glycol) derivatives with an alkyl head", Hokkaido University - University of California, Berkeley Joint Symposium on Chemical Sciences and Engineering, Hokkaido University (2016–01)
- 15) J. Wei*, K. Niikura, H. Mitomo, Y. Matsuo and K. Ijiro : "Fabrication and Plasmonic Behavior of Gold Nanoparticle Vesicle–Like Assembly in Solution", The 4th Frontier Chemistry Center International Symposium, Hokkaido University (2016–02)
- 16) T. Tazaki*, K. Niikura, T. Suzuki, A. Ainai, Y. Ohara, S. Kobayashi, Y. Orba, H. Mitomo, H. Sawa and K. Ijiro : "Adjuvant Activity Enhancement of Poly(I:C) by Conjugation with Gold Nanoparticles", The 4th Frontier Chemistry Center International Symposium, Hokkaido University (2016–02)
- 17) R. Iida*, K. Niikura, H. Mitomo and K. Ijiro : "New surface ligand design to control the thermoresponsive assembly of gold nanoparticles", 1st Student Winter WorkshopMaison France–Japan University de Strasbourg, Strasbourg, France (2016–03)

iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 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修飾金ナノ粒子の粒径に依存した温度応答性凝集挙動」、第33回関西界面科学セミナー—界面科学・分散技術の基礎と最先端研究—、大阪工業大学大阪センター (2015–07)

4.5 特許

なし

4.6 共同研究

a. 海外機関との共同研究

- 1) K. Ijiro (Newcastle University) : "Development of Conducting DNA", 2007年度~, Newcastle University, UK : 「Development of Conducting DNA」(2007年–)
- 2) K. Ijiro (University of California, Riverside, USA) : "Study on Self–assembling of Nanoparticles", 2013年度~, University of California, Riverside, USA : 「Study on Self–assembling of Nanoparticles」(2013年–)
- 3) K. Ijiro (National Chiao Tung University, Taiwan) : "Development of Nanoparticle Devices", 2013年度~, National Chiao Tung University, Taiwan, ROC : 「Development of Nanoparticle Devices」(2013年–)
- 4) K. Ijiro (Newcastle University) : "Enzymatic fabrication of conductive materials", 2015年度, Andrew Pike

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年度~、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
- 2) 居城 邦治(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」、2012~2015年度、佐野健一
- 3) 居城 邦治(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」、2014~2015年度、渡邊真次
- 4) 居城 邦治(千歳科学技術大学) : 「慢性腎臓病に伴う骨・ミネラル代謝異常(CKD-MBD)評価法の開発」、2015年度、木村・須田 廣美
- 5) 居城 邦治(関西大学) : 「非天然DNAアナログを用いたナノ構造体の基板上構築」、2015年度、葛谷明紀

c. 民間等との共同研究

- 1) 居城 邦治(富士フイルム株式会社) : 「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」、2014~2015年度、納谷 昌之
- 2) 新倉謙一(協和発酵バイオ株式会社) : 「金ナノ粒子–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：富士フィルム株式会社「金属微細構造による光制御に関する基礎検討」、2015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(萌芽研究)：ウイルスを模倣した核酸内包金ナノプレート多面体構造の構築、2015～2016年度
- 4) 新倉 謙一(キャノン財団)：高活性ワクチンアジュvantのためのハイブリッドナノ粒子開発、2014～2015年度
- 5) 三友 秀之(カシオ科学振興財団)：表面増強ラマン散乱による生体高分子の高感度検出を目指した柔軟に構造制御可能な金ナノ構造体の創製、2015.12～2016.12

4.8 受賞

- 1) 杉村 尚俊、新倉 謙一、三友 秀之、澤 洋文、居城 邦治：優秀ポスター賞 「ウイルスカプセルを利用した RNA 分解反応場の設計とその評価」 (第 64 回高分子年次大会) 2015 年 05 月
- 2) J. Wei, K. Niikura, H. Mitomo, T. Tani, M. Naya and K. Ijiro : Best Poster Award "Fabrication of Gold Nanoparticle Vesicles and its Plasmonic Behavior" (The 10th Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics (AP-NFO10)) 2015 年 07 月
- 3) 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：優秀ポスター賞 「Poly(I:C)被覆金ナノ粒子のアジュvant活性における金ナノ粒子のサイズ・形状依存性評価」 (第 5 回 CSJ 化学フェスタ 2015) 2015 年 10 月
- 4) J. Wei, K. Niikura, Y. Matsuo, H. Mitomo and K. Ijiro : Poster Prize "Fabrication and Plasmonic Study of Gold Nanoparticle Vesicles" (11th IUPAC International Conference on Novel Materials and their Synthesis (NMS-XI)) 2015 年 10 月
- 5) 居城 邦治：平成 27 年度教育総長賞 (北海道大学) 2016 年 02 月
- 6) 新倉 謙一：平成 27 年度研究総長賞 (北海道大学) 2016 年 02 月
- 7) 三友 秀之：2015 年度「貴金属に関わる研究助成金」シルバー賞「可動型銀ナノ構造体を用いた生体分子の高感度検出法の開発」(田中貴金属記念財団) 2016 年 03 月

4.9 社会教育活動

a. 国内外の学会の役職

- 1) 居城 邦治：公益社団法人 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)

- 2) 居城 邦治：公益社団法人 高分子学会 北海道支部幹事 (2004 年 04 月 01 日～現在)
- 3) 居城 邦治：Asian Conference on Nanoscience & Nanotechnology (AsiaNANO 2016), Steering Committee (2004年04月01日～現在)
- 4) 居城 邦治：第 64 回高分子学会年次大会運営委員 (2014 年 07 月 31 日～2015 年 05 月 31 日)
- 5) 居城 邦治：一般社団法人電気学会「新しい原子分子組織化物質・材料創出に向けた 光・量子ビーム応用技術調査専門委員会 委員 (2015 年 05 月 01 日～2017 年 04 月 30 日)
- 6) 居城 邦治：日本化学会 生体機能関連化学・バイオテクノロジーディビジョン 幹事 (2016年03月01日～2018年03月01日)
- 7) 居城 邦治：日本化学会 生体機能関連化学部会 幹事 (2016年03月01日～2017年02月28日)
- 8) 新倉 謙一：特別研究員等審査会専門委員及び国際事業委員会書面審査員・書面評価員 (2014年08月1日～2015年7月31日)
- 9) 三友 秀之：公益社団法 高分子学会 北海道支部 若手会幹事 (2012年06月01日～現在)
- 10) 三友 秀之：公益社団法 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. 併任・兼任

- 1) 居城 邦治：独立行政法人 理化学研究所 伊藤ナノ医工学研究室 客員主管研究員 (2007年12月01日～2017年03月31日)
- 2) 居城 邦治：ISO/TC266バイオミメティクス国内審議委員会 委員 (2012年10月01日～現在)
- 3) 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)
- 4) 居城 邦治：特定非営利活動法人バイオミメティクス推進協議会 理事 (2014年07月01日～現在)

c. 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、2015年04月01日～2015年09月30日
- 2) 理学部、超分子化学、居城邦治、2015年04月01日～2015年09月30日
- 3) 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、2015年04月01日～2015年09月30日
- 4) 全学教育、自然科学実験(化学)、三友秀之、2015年04月01日～2015年09月30日
- 5) 全学教育、一般教育演習(フレッシュマンセミナー)、「最先端☆材料科学 -革新的固体材料から躍動する生物まで-」三友秀之、2015年04月01日～2015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 、三

友秀之、2015年04月01日～2015年09月30日

- 7) 総合化学院、Materials Chemistry (Chemistry of Molecular Assembly)、居城 邦治、2015年04月01日～2016年03月31日
- 8) 総合化学院、総合化学特論I(Modern Trends in Physical and Material Chemistry)オムニバス講義、新倉 謙一、2015年06月01日
- 9) 総合化学院、物質化学(分子組織化学)、新倉謙一・居城邦治、2015年12月01日～2016年02月02日
- 10) 総合化学院、総合化学実験指導法、居城 邦治、2015年04月01日～2016年03月31日
- 11) 総合化学院、総合化学実験研究法、居城 邦治、2015年04月01日～2016年03月31日
- 12) 総合化学院、総合化学特別研究、居城 邦治、2015年04月01日～2016年03月31日
- 13) 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
- 14) 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
- 15) 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
- 16) 総合化学院、物質化学(分子組織化学)、居城 邦治、2015年10月01日～2016年03月31日

d. ポスドク・客員研究員など

e. 修士学位及び博士学位の取得状況

修士学位（2名）

- 1) 田崎 太悠:「金ナノロッドによる核酸アジュバントの活性増強」
- 2) 中村 聰:「DNAブラシを用いた金ナノロッドの異方的固定化に関する研究」

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、有機的な产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

中村圭佑、増永梨合花、澤柳博輝、楊曉龍

1. 研究目標

近年、二酸化炭素の排出量の増加や原子力発電の撤廃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、光触媒や色素増感太陽電池など、光をエネルギー源・駆動源とする光化学の研究は一段とそ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、新たにプラズモニック化学研究会を立ち上げ、金属ナノ構造が示すプラズモン共鳴に基づく光アンテナ効果を太陽電池や人工光合成など種々の光エネルギー変換系に適用し、多数の研究者との共同による高効率な光エネルギー変換デバイスの創製とプラズモニック化学研究を産業界に広く浸透させる啓蒙活動を行っている。

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エネルギー変換に関する研究を推進している。平成26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・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。また、白金助触媒の代わ

りにルテニウムを助触媒として用いると空中窒素を還元し、アンモニアが合成されることを明らかにした。

これまでの研究成果に基づき、平成27年度は、プラズモンによる光アンテナ効果を利用して、長時間安定した光電変換を実現する全固体プラズモン太陽電池の開発と時間分解電子顕微鏡を用いて比較的長い時間光を閉じ込める金属ナノ構造の設計と時間分解計測に関する研究を推進した。

2. 研究成果

(i) 全固体プラズモン太陽電池の構築

これまでに当研究分野で行ってきたプラズモン誘起電荷分離に基づく光電変換は水溶液中での酸化還元反応を伴うものであり、電子やホールの振る舞いを観測するには向きであった。また、太陽電池として考えた際には液漏れや耐久性などの問題が指摘されていた。そこで本研究では、n型半導体である酸化チタン (TiO_2) とp型半導体である酸化ニッケル(NiO)からなるpn接合に、プラズモン共鳴を示す金ナノ粒子(Au-NPs)を組み合わせることで全固体プラズモン太陽電池の構築を試みた。

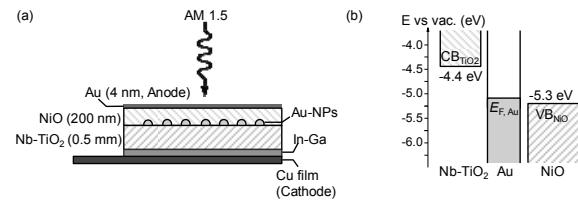


図1 全固体プラズモン太陽電池の模式図(a)とエネルギーダイアグラム(b)

単結晶酸化チタン基板 ((001)、0.05wt%ニオブドープ) 上に金をスパッタリングしてアニールすることで金ナノ粒子を作製した。次いで、原子層堆積法 (ALD) を用いて酸化ニッケルを200 nm成膜し、pn接合を形成した。反応前駆体にはニッケルアセチルアセトナート及びオゾンを用いた。電極として、陽極に金薄膜をスパッタリング、陰極にインジウム-ガリウム合金を介して銅箔を貼付した。NiOの結晶構造及び TiO_2 /Au-NPs/NiO構造が光電変換特性に与える影響について調査するため、NiO成膜後に500°Cでアニールしたサンプルとの比較を行った。

走査型透過電子顕微鏡 (STEM) 測定によって得られた断面像から、アニール前のNiOは柱状となっていることが分かった。これは、金がNiO成長に対して触媒的に働くことと、金とNiOの格子の整合性が高いことに由来していると考えられる。アニール後のNiO柱はさらに配向して整列し、熱処理による結晶性及び配向性が示唆された。同様に、X線結晶構造解析の結果からも、アニールによる結晶性及び配向性の向上が示された。しかしながら、 TiO_2 /Au-NPs/NiOの拡大像をみると、Au-NPがNiO内部に埋まっていることが分かった。これは加熱中に金が移動し、より格子整合性の良いNiO中に埋没した為であると考えら

れる。

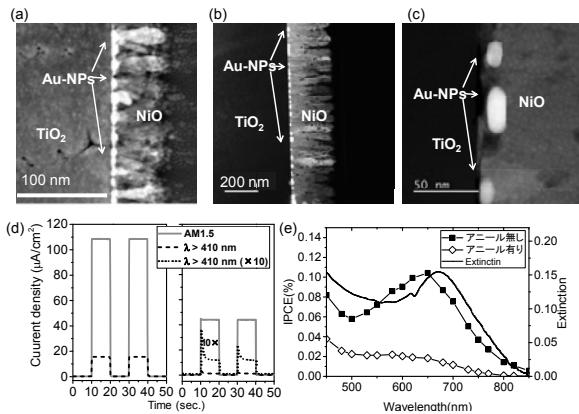


図2 全固体プラズモン太陽電池の構造と電池特性。(a) アニール前のNiOの断面HAADF-STEM像、(b) アニール後のNiOの断面HAADF-STEM像、(d) 電流一時間特性(左:アニール前、右:アニール後)、(e)IPCEの作用スペクトル。

次いで、作製したプラズモン太陽電池に擬似太陽光(AM1.5)を照射して電池特性を計測した。アニール後の光電流は顕著に減少し、特に可視光領域では極めて小さな光電流しか観測されなかった。アニール後の光電流の減少は、結晶成長に伴う粒界の増大による直列抵抗の増加に由来するものと考えられる。さらに、可視光応答は強い時間依存性を示し、キャリアの輸送が制限されている様子が観測された。STEM測定と併せて考えると、金がNiO中に埋没したために金からTiO₂への電子移動が抑制されたものと考えられる。

また、入射光-電流変換効率(IPCE)の作用スペクトルはプラズモン共鳴スペクトルと良い一致を示し、プラズモン誘起電荷分離により可視光応答が付与されたことが確認された。さらに、作製した太陽電池は3日間擬似太陽光を照射しても太陽電池特性に変化が見られず、高い耐久性を有していることが明らかとなった。

(ii) 時間分解光電子顕微鏡による四重極子プラズモン共鳴モードの位相緩和ダイナミクス

プラズモン共鳴を示す金属ナノ構造の光電場増強効果は、光アンテナ効果により、光電場がナノメートルの空間に局在すること、そして光が金属ナノ構造を通り過ぎた後も構造表面において電子の集団運動がしばらくの時間継続することに起因する。つまり、金属ナノ構造への空間、および時間的な光の閉じ込めに基づく。電子の集団運動は、位相が揃った状態で約フェムト秒の時間継続するが、電子-電子散乱や光散乱などによりエネルギーを失い、位相がバラバラの状態に緩和する、いわゆる位相緩和が起こる。無輻射過程である電子-電子散乱は吸収損失であり、金属特有のものであるため、金属の種類に依存する。一方、輻射過程である光散乱は、放射損失であり構造の設計次第で

は減少させることができる。

金や銀などの金属ナノ構造に光を入射すると局在表面プラズモン共鳴が誘起され、呈色を示す。通常、金属ナノ構造は、前述のとおり光を吸収するだけではなく、外部に光を放射する。それは、金属ナノ微粒子表面に電子の集団運動によって電気的な双極子が形成され、それが電磁波(光)を放射するためである。しかし、もし四重極子と呼ばれる、1つの金属ナノ構造内において電子の集団運動により形成される電荷の偏りが逆向きのものが接近して並べば、それぞれ打ち消し合い、外部への放射が抑制される。したがって、四重極子は高い光閉じ込め効果を示すと考えられる。しかし、外部に放射されないモードであるため、通常観測することはできない。金属ナノ微粒子に対して近接場顕微鏡のプローブを近接させたり、ナノギャップを形成して構造間で近接場相互作用を誘起することにより四重極子は励起できるが、形成した四重極子を光で観測した時点で損失に繋がり、正しく四重極子を観測していることにならない。したがって、共鳴スペクトルの幅から位相緩和時間を議論することはできず、これまで数値シミュレーションにより見積る方法しかなかった。

本研究では、金属ナノ構造から放射される光電子による四重極子プラズモン共鳴の観測を提案する。金属ナノ構造にフェムト秒レーザーを照射するとプラズモン増強場で多光子吸収を介した電子遷移が起こり、金の仕事関数を超えて真空場に電子が放出される。光電子顕微鏡は、金属ナノ構造から放出される光電子を高い空間分解能でイメージできる装置である。したがって、フェムト秒レーザーで励起した場合、プラズモン増強場だけが可視化される。本研究では、四重極子は、図3(a)に示すように、金属ナノブロック構造($200 \times 200 \times 30 \text{ nm}^3$)に対して、光を斜めから入射して電荷の偏りを増大させることにより誘起した(s偏光)。なお、比較のために双極子プラズモン共鳴はp偏光を入射することにより誘起した(図3(b)参照)。

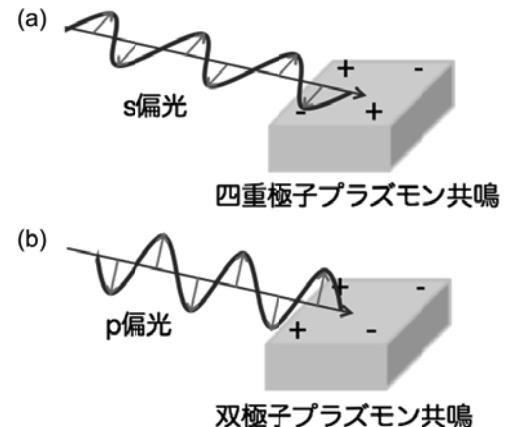


図3 入射光の偏光によって誘起される四重極子プラズモン共鳴と双極子プラズモン共鳴の略図；(a) s偏光(TE偏光)、(b) p偏光(TM偏光)

まず、波長可変のフェムト秒レーザー(TSUNAMI,

Spectra Physics) ビームを用いて光電子強度のアクションスペクトルを計測したところ、p偏光照射では波長860 nm付近に、s偏光照射では波長760 nm付近にそれぞれピークを有するスペクトルが観測され、時間領域差分法による電磁場シミュレーションから、それぞれ双極子、および四重極子プラズモン共鳴に由来するスペクトルであることが明らかになった。重要な点は、多光子励起過程であるため定性的な議論ではあるが、スペクトル幅が四重極子の方が、双極子に比べて狭いことが明らかになった。つまり、四重極子プラズモン共鳴の方が双極子共鳴に比べて位相緩和時間が長いことが期待される。そこで、既報のポンプ&プローブ干渉計測系（時間分解光電子顕微鏡）を用いて位相緩和時間を比較してみたところ、図4の光電子強度のプローブ光の遅延時間依存性に示すように、双極子の場合は5フェムト秒、四重極子の場合は9フェムト秒と位相緩和時間が異なることを実験的に明らかにすることに成功した。これにより、四重極子を選択的に誘起すれば、より高い光閉じ込め効率を示すことが明らかになり、光アンテナ構造の設計指針として重要な研究成果が得られた。

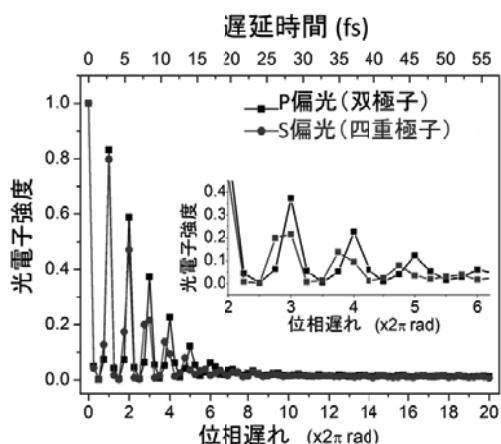


図4 双極子、および四重極子プラズモン共鳴における光電子強度のプローブ光の遅延時間依存性

3. 今後の研究の展望

平成27年度は、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ALDにより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、その光電変換特性を明らかにするとともに、時間分解光電子顕微鏡を用いて四重極子プラズモン共鳴の位相緩和とダイナミクスを追跡し、光アンテナ構造の設計指針を導出するために本計測法の有用性を明らかにした。

今後は、引き続きプラズモン共鳴を示す光アンテナ構造を用いて、太陽電池や人工光合成系を構築し、高い太陽エネルギー変換効率を目指す。酸化や還元助触媒を最適化して反応の選択性を向上させることによりエネルギー変換効率を増大させるとともに、半導体基板の3次元化による比界面積の増加やショットキー障壁高さの制御による電荷分離効率の向上を図り、高効率なプラズモン太陽電池や人工光

合成系を構築する。また、光電子顕微鏡計測や過渡吸収分光計測などにより、プラズモンやプラズモンエキシトンハイブリッドシステムのダイナミクスを追跡し、高い光閉じ込め効率を示す光アンテナ構造の設計を明らかにするとともに、最適化された構造設計に基づいてプラズモン誘起光－エネルギー変換系や化学反応系に展開する。

4. 資料

4.1 学術論文

- 1) Y. Zhong, K. Ueno, Y. Mori, T. Oshikiri, H. Misawa: "Co-catalyst Effects on Hydrogen Evolution in a Plasmon-induced Water-splitting System", *J. Phys. Chem. C*, 119, 16, 8889–8897 (2015).
- 2) K. Ueno, T. Oshikiri, Y. Zhong, X. Shi, and H. Misawa: "Plasmon-induced Artificial Photosynthesis", *Interface Focus*, 5, 3, 20140082 (2015).
- 3) K. Ueno, T. Oshikiri, K. Murakoshi, H. Inoue, H. Misawa: "Plasmon-enhanced light energy conversion using gold nanostructured oxide semiconductor photoelectrodes", *Pure Appl. Chem.*, 87, 547–555 (2015).
- 4) K. Ueno, S. Nozawa, H. Misawa: "Surface-enhanced terahertz spectroscopy using gold rod structures resonant with terahertz waves", *Opt. Express*, 23, 22, 28584–28592 (2015).
- 5) K. Ueno, T. Oshikiri, H. Misawa: "Plasmon-induced water splitting using metallic nanoparticle-loaded photocatalysts and photoelectrodes", *ChemPhysChem*, 17, 199–215 (2016).
- 6) T. Oshikiri, K. Ueno, H. Misawa: "Selective dinitrogen conversion to ammonia using water and visible light via plasmon-induced charge separation", *Angew. Chem. Int. Ed.*, 55, 3942–3946 (2016).
- 7) Q. Sun, H. Yu, K. Ueno, A. Kubo, Y. Matsuo, H. Misawa: "Dissecting the few-femtosecond dephasing time of dipole and quadrupole modes in gold nanoparticles using polarized photoemission electron microscopy", *ACS Nano*, 10, 3835–3842 (2016).
- 8) K. Nakamura, T. Oshikiri, K. Ueno, Y. Wang, Y. Kamata, Y. Kotake, H. Misawa: "Properties of Plasmon-Induced Photoelectric Conversion on a TiO₂/NiO p-n Junction with Au Nanoparticles", *J. Phys. Chem. Lett.*, 7, 1004–1009 (2016).

4.2 総説・解説・評論等

- 1) 押切友也、上野貢生、三澤弘明：「可視光を用いた空中窒素固定によるアンモニア合成」、月刊ファインケミカル、特集 アンモニア合成の最新動向（シーエムシー出版）、45巻、3号、41–46 (2016)。

4.4 著書

- 1) 押切友也、上野貢生、三澤 弘明：「可視光を用いた空気中の窒素からの人工光合成によるアンモニア合成」、アン

- モニアを用いた水素エネルギー・システム、分担執筆(シーエムシー出版 監修 小島由継)、102-111 (2015).
- 2) 三澤弘明、上野 貢生、押切友也:「近赤外捕集アンテナ技術の開発と太陽電池への応用」、近赤外・紫外線-波長変換と光吸収増大による太陽電池の高効率化技術」、分担執筆(S&T 出版)、第 2 章、第 4 節、130-141 (2015).

4.7 講演

i) 学会

- 1) K. Ueno*, "Chemical applications of plasmonics using precisely controlled metallic nanostructures" (Invited), The 7th International Conference on Surface Plasmon Photonics (SPP7), the Ramada Hotel, Jerusalem, Israel (2015-06).
- 2) H. Misawa*, Y. Zhong, Y. Mori, K. Ueno, T. Oshikiri: Improvement of Plasmon-Induced Water splitting by a Co-Catalyst for Hydrogen Evolution, The 7th International Conference on Surface Plasmon Photonics (SPP7), Ramada Jerusalem Hotel, Jerusalem, Israel (2015-06).
- 3) Q. Sun*, H. Yu, K. Ueno, A. Kubo, Y. Matsuo, H. Misawa: "Near-Field Plasmon Coupling in Gold Nanochains Revealed by Photoemission Electron Microscopy", The 7th International Conference on Surface Plasmon Photonics (SPP7), Ramada Jerusalem Hotel, Jerusalem, Israel (2015-06).
- 4) H. Misawa*: "Plasmon-induced Artificial Photosynthesis" (Invited), 27th International Conference on Photochemistry (ICP2015), ICC JEJU, Jeju Island, Korea (2015-06).
- 5) T. Oshikiri*, K. Ueno, H. Misawa: "Nitrogen Conversion to Ammonia via Plasmon-induced Charge Separation", 27th International Conference on Photochemistry (ICP2015), ICC JEJU, Jeju Island, Korea (2015-06).
- 6) X. Shi*, K. Ueno, T. Oshikiri, H. Misawa: Improvement of Plasmon-Enhanced Photocurrent Generation by Interference of Titanium Dioxide Thin-film", 27th International Conference on Photochemistry (ICP2015), ICC JEJU, Jeju Island, Korea (2015-06).
- 7) K. Ueno*, S. Nozawa, H. Misawa: "Surface-enhanced Terahertz Spectroscopy of Amino Acid Molecules on Gold Nanostructured Terahertz Antennae", 27th International Conference on Photochemistry (ICP2015), ICC JEJU, Jeju Island, Korea (2015-06).
- 8) H. Yu*, Q. Sun, K. Ueno, A. Kubo, Y. Matsuo, H. Misawa, "Higher-order Localized Surface Plasmon Resonances on Gold Nanostructures Probed by Photoemission Electron Microscopy", 27th International Conference on Photochemistry (ICP2015), ICC JEJU, Jeju Island, Korea (2015-06).
- 9) Q. Sun*, H. Yu, K. Ueno, A. Kubo, Y. Matsuo, H. Misawa: "Time-resolved Photoemission Electron Microscopy: A Versatile Tool for Accessing the Near Field and Dynamics of Plasmonic Antennae", 27th International Conference on Photochemistry (ICP2015), ICC JEJU, Jeju Island, Korea (2015-06).
- 10) H. Mizobata*, K. Ueno, H. Misawa, H. Okamoto, K. Imura: "Near-field spectra of complementary metal nanostructures", The 10th Memorial of Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics (APNFO10), Hakodate Research Center for Fisheries and Oceans, Hakodate (2015-07).
- 11) 中村圭佑*、片瀬貴義、押切友也、上野貢生、太田裕道、三澤弘明:「ナノ構造を制御した薄膜プラズモン太陽電池の作製」、2015年光化学討論会、大阪市立大学 (2015-09).
- 12) 押切友也*、上野貢生、三澤弘明:「水を電子源とした窒素還元によるアンモニア光合成」、2015年光化学討論会、大阪市立大学 (2015-09).
- 13) 上野貢生*、野澤 翔、三澤弘明:「表面増強テラヘルツ分光による化学反応の追跡」、2015年光化学討論会、大阪市立大学 (2015-09).
- 14) 増永 梨合花*、押切友也、上野貢生、三澤弘明:「金ナノ構造担持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」、2015年光化学討論会、大阪市立大学 (2015-09).
- 15) 澤柳博輝*、中村圭佑、押切友也、上野貢生、三澤弘明:「酸化ニッケル/金ナノ構造/チタン酸ストロンチウムを用いた全固体プラズモン太陽電池の構築」、2015年光化学討論会、大阪市立大学 (2015-09).
- 16) J. Guo*, K. Ueno, T. Oshikiri, H. Misawa: 「In situ measurement of biotin-streptavidin association using plasmon-induced photocurrent generation」、2015年光化学討論会、大阪市立大学 (2015-09).
- 17) 上野 貢生*、押切 友也、三澤 弘明:(招待講演)、「金属ナノ微粒子を用いたプラズモン誘起光化学反応」、第5回化学フェスタ2015、タワーホール船堀(2015-10).
- 18) T. Oshikiri*, K. Ueno, H. Misawa: "Selective nitrogen fixation to ammonia via plasmon-induced charge separation", The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (PACHIFICHEM) 2015, Honolulu, USA(2015-12).
- 19) Q. Sun*, H. Yu, K. Ueno, A. Kubo, Y. Matsuo, H. Misawa: "Exploring plasmonic hot spots and their dynamics by photoemission electron microscopy", The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (PACHIFICHEM) 2015, Honolulu, USA(2015-12).
- 20) H. Yu*, Q. Sun, K. Ueno, A. Kubo, Y. Matsuo, H. Misawa: "Fano resonances on gold nano dolmen structures probed by photoemission electron microscopy", The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (PACHIFICHEM) 2015, Honolulu, USA(2015-12).
- 21) H. Uehara*, J. Li, T. Oshikiri, Q. Chen, K. Ueno, H. Sun,

- H. Misawa: "Spectral properties and dynamics of exciton-plasmon coupling states between J-aggregate and metal hybrid nanostructure", The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (PACHIFICHEM) 2015, Honolulu, USA(2015-12).
- 22) J. Li*, H. Uehara, T. Oshikiri, K. Ueno, H. Misawa: "Spectral properties of plasmon-molecule hybrid states under strong coupling and its dynamics", The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (PACHIFICHEM) 2015, Honolulu, USA(2015-12).
- 23) X. Shi*, K. Ueno, T. Oshikiri, H. Misawa: "Observation of charge separation between gold nanoparticles and titanium dioxide using surface plasmon spectroscopy", The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (PACHIFICHEM) 2015, Honolulu, USA(2015-12).
- 24) J. Guo*, K. Ueno, T. Oshikiri, H. Misawa: "Biosensor fabricated by biomolecule-modified Au nanoislands decorated TiO₂ photoelectrode", The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (PACHIFICHEM) 2015, Honolulu, USA(2015-12).
- 25) K. Nakamura*, T. Katase, T. Oshikiri, K. Ueno, H. Ohta, H. Misawa: "Precise control of carrier density and thickness of thin film plasmonic solar cell", The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (PACHIFICHEM) 2015, Honolulu, USA(2015-12).
- 26) R. Masunaga*, T. Oshikiri, K. Ueno, H. Misawa: "Plasmon-induced photoelectric conversion system using gallium nitride substrate", The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (PACHIFICHEM) 2015, Honolulu, USA(2015-12).
- 27) K. Ueno*, S. Nozawa, H. Misawa: Surface-plasmon enhanced terahertz spectroscopy using gold nanostructured terahertz antennae, The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (PACHIFICHEM) 2015, Honolulu, USA(2015-12).
- 28) H. Misawa*, Y. Zhong, T. Oshikiri, Y. Mori, K. Ueno: "Plasmon-induced artificial photosynthesis using gold nanostructured oxide semiconductor photoelectrodes", The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (PACHIFICHEM) 2015, Honolulu, USA(2015-12).
- 29) T. Oshikiri*: "Visible-light Driven Ammonia Synthesis from N₂ via plasmon-induced charge separation" (Invited), "Renewable Energy: Solar Fuels" Gordon Research Conference, Lucca, Italy(2016-2).
- 30) K. Ueno*: "Plasmon-enhanced photochemistry using nano-engineered gold particles" (Invited), The 9th International Conference on Nanophotonics (ICNP 2016), Academia Sinica, Taipei, Taiwan, March (2016).
- 31) H. Misawa*: "Photochemical Reaction Field Created by Metal Nanostructures and Its Application to Energy Conversion Systems" (CSJ Award Presentation), 日本化学会第96春季年会, 同志社大学京田辺キャンパス, 京田辺(2016-03).
- 32) T. Oshikiri*: "Plasmon-induced ammonia synthesis from dinitrogen, water and visible light" (Invited), Asian International Symposium -photochemistry- at 96th Annual Meeting of Chemical Society of Japan, Kyoto, Japan(2016-3).
- 33) 高倉 稔平*、押切 友也、上野 貢生、H. Wu, E.Daiu、近藤 敏彰、益田 秀樹、三澤 弘明:「金ナノ粒子を担持した酸化チタンナノチューブにおけるプラズモン誘起光電変換特性」、日本化学会第96春季年会、同志社大学京田辺キャンパス、京田辺(2016-03).
- 34) 中村 圭佑*、片瀬 貴義、押切 友也、上野 貢生、太田 裕道、三澤 弘明:「薄膜プラズモン太陽電池の高性能化に向けた酸化チタンの電気特性の評価」、日本化学会第96春季年会、同志社大学京田辺キャンパス、京田辺(2016-03).
- 35) 澤柳 博輝*、中村 圭佑、押切 友也、上野 貢生、三澤 弘明:「界面構造制御によるプラズモン太陽電池の構築と光電変換特性評価」、日本化学会第96春季年会、同志社大学京田辺キャンパス、京田辺(2016-03).
- 36) A. E. Shalan*, H. Sawayanagi, K. Nakamura, T. Oshikiri, K. Ueno, H. Wu, E. Diau, H. Misawa: "Plasmon-enhanced photocurrent generation with a controlled semiconductor thin film for perovskite solar cells" 日本化学会第96春季年会, 同志社大学京田辺キャンパス、京田辺(2016-03).
- 37) J. Li*, H. Uehara, T. Oshikiri, K. Ueno, Q. Chen, H. Son, H. Misawa: "Spectral properties of plasmon-molecule hybrid states under strong coupling and its dynamics" 日本化学会第96春季年会, 同志社大学京田辺キャンパス、京田辺(2016-03).
- 38) H. Yu*, S. Quan, T. Oshikiri, K. Ueno, A. Kubo, Y. Matsuo, H. Misawa: "Spectral response and spatial evolution of plasmonic near field in coupled gold nanostructures" 日本化学会第96春季年会, 同志社大学京田辺キャンパス、京田辺(2016-03).

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) H. Misawa*: "Plasmon-induced Artificial Photosynthesis" (Keynote Lecture), CFP/NIM Workshop on Functional Photonics and Nanosystems, City University of Hong Kong, Hong Kong, China (2015-05).
- 2) 三澤弘明*:「プラズモニック化学の新展開 一プラズモンによる物理過程の増強から化学過程の増強に向けてー(チュートリアル)、第8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(2014-06).
- 3) 上野貢生*:「プラズモンナノ材料による化学センサーの開発 一近赤外光からテラヘルツ波技術へー」(招待講演)、第1回レーザー学会「レーザーバイオ医療」技術専門委員

- 会、千歳科学技術大学 (2015-06).
- 4) H. Misawa*: "Plasmon-induced artificial photosynthesis systems" (Plenary Talk), Tsukuba nano MA 2015 (Satellite symposium of NIMS conference), Tsukuba International Congress Center, Epochal, Tsukuba (2015-07).
 - 5) H. Misawa*: "Plasmon-Induced Artificial Photosynthesis" (Invited), 2015 CRL Forum International jointed with the 5th International Symposium of Nano-Macro Materials, Devices, and System Research Alliance Project, Tokyo Tech Front, Tokyo Institute of Technology, Tokyo (2015-10).
 - 6) K. Ueno*, "Plasmon-induced photochemical reactions using nanoengineered gold particles" (Invited), The Seventh RIES-CIS Symposium, National Chia Tung University, Taiwan (2015-11).
 - 7) 三澤弘明*:「局在プラズモンを用いた人工光合成の構築と光電子顕微鏡による緩和過程の追跡」(招待講演)、応用物理学会 有機分子・バイオエレクトロニクス分科会講習会「次世代太陽エネルギー変換デバイスの研究開発を支える先端計測」(招待講演)、電気通信大学付属図書館、東京都調布市(2015-11).
 - 8) H. Misawa*: "Plasmon-induced Photoenergy Conversion Systems" (Invited), RIES-RCAS Workshop, Academia Sinica, Taipei, Taiwan (2015-11).
 - 9) H. Misawa*: "Plasmon-induced Photoenergy Conversion Systems" (Invited), CityU/Hokkaido University Joint Workshop "Advanced Materials and Characterisation, City University of Hong Kong, Hong Kong, China (2015-12).
 - 10) K. Ueno*: "Surface-enhanced terahertz spectroscopy using plasmonic structures" (Invited), CityU/Hokkaido University Joint Workshop "Advanced Materials and Characterisation, City University of Hong Kong, Hong Kong, China (2015-12).
 - 11) H. Misawa*: "Plasmon-induced photoenergy conversion systems" (Plenary Talk), International Conference on Materials for the Millennium (MatCon2016), Cochin University of Science & Technology, Kochi, India (2016-01).
 - 12) K. Ueno*: "Fabrication and plasmonic application of nano-engineered gold particles" (Plenary Talk), International Conference on Materials for the Millennium (MATCON2016), Cochin University of Science and Technology (CUSAT), Cochin, Kerala, India (2016-01).
 - 13) 三澤弘明*:「可視・近赤外光による光アンテナ搭載完全水分解システム」、新学術領域研究「人工光合成による太陽エネルギーの物質変換:実用化に向けての異分野融合」第4回公開シンポジウム、東京理科大学、東京(2016-01).
 - 14) 三澤弘明*:「プラズモン新機能発現:高効率光エネルギー変換システム構築へ向けた挑戦」(招待講演)、多元技術融合光プロセス研究会、産総研臨海副都心センター、東京 (2016-03).
- iii) コロキウム・セミナー等・その他
- 1) H. Misawa*: "Advanced Lithography Technologies for Nano-Fabrications" (Special lecture), 國立交通大學應用化學系104年教育部「人才躍昇計畫」系列講座, Hsinchu, Taiwan (2015-09).
 - 2) H. Misawa*: "Atomic Layer by Layer Deposition Technologies for Next Generation Electronics" (Special lecture), 國立交通大學應用化學系104年教育部「人才躍昇計畫」系列講座, Hsinchu, Taiwan (2015-09).
 - 3) H. Misawa*: "Advanced Etching Technologies" (Special lecture), 國立交通大學應用化學系104年教育部「人才躍昇計畫」系列講座, Hsinchu, Taiwan (2015-10).
 - 4) H. Misawa*: "Essential instruments for measurement of nano-structure and nano-material" (Special lecture), 國立交通大學應用化學系104年教育部「人才躍昇計畫」系列講座, Hsinchu, Taiwan (2015-11).
 - 5) H. Misawa*: "Interaction between plasmonic metal nano-structures and molecules" (Special lecture), 國立交通大學應用化學系104年教育部「人才躍昇計畫」系列講座, Hsinchu, Taiwan (2015-11).
 - 6) H. Misawa*: "Plasmon-assisted energy conversion systems" (Special lecture), 國立交通大學應用化學系104年教育部「人才躍昇計畫」系列講座, Hsinchu, Taiwan (2015-11).
 - 7) K. Ueno*: "Spectral properties and dynamics of plasmon nanostructures" (Invited), XVIIIth International Krutyn Summer School 2015, Krutyn, Masurian Lake District, Poland (2015-09).
 - 8) K. Ueno*: "Surface plasmon-enhanced photochemical reactions" (Invited), XVIIIth International Krutyn Summer School 2015, Krutyn, Masurian Lake District, Poland (2015-09).
- #### 4.8 シンポジウムの開催
- 1) 三澤弘明:「第8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(2015年6月12日)
 - 2) 三澤弘明:「第9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(2015年11月20日)
 - 3) 三澤弘明:日本化学会 第96春季年会Asian International Symposium - Photochemistry -、同志社大学、京田辺(2016年3月25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」(2015年度) サステ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」(2013～2015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ン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。

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) 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・近赤外光による光アンテナ搭載完全水分解システム」(2015～2016年度)
- 3) 上野貢生、電子科学研究所、科学研究費補助金（基盤研究（C））、「金属を担持した光触媒界面反応の高分解能in-situ計測」(2015～2017年度)
- 4) 上野貢生、電子科学研究所、科学研究費補助金（新学術領域研究（公募））、「制御された金属ナノ構造による励起子ポラリトン素過程の追跡と反応場への応用」(2015～2016年度)
- 5) 押切友也、電子科学研究所、科学研究費補助金（若手研究（B））、「太陽光エネルギーを利用したプラズモン誘起アンモニア合成」(2015～2016年度)
- 6) 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)
- 7) 石 旭、電子科学研究所、科学研究費補助金（若手研究（B））、「Plasmon-enhanced photoelectrochemical energy conversion on Au nanoparticles loaded titanium dioxide thin film」(2015～2016年度)

4.11 受賞

- 1) 三澤弘明：平成27年度 文部科学大臣表彰科学技術賞（研究部門）(2015年4月15日)
- 2) 三澤弘明：平成27年度 第68回日本化学会賞(2016年3月26日)

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：日本学術振興会先端科学（FoS）シンポジウム事業委員会事業委員（2010年4月1日～2016年3月31日）
- 3) 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）
- 4) 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）

- 5) 三澤弘明：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)
- 6) 三澤弘明：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～)
- 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「光の極限制御・積極利用と新分野開拓」領域アドバイザー（2015年7月1日～2017年3月31日）
- 8) 上野貢生：日本学術振興会科学研究費委員会専門委員(2015年12月～2016年11月)
- 9) b. 国内外の学会の役職
- 1) 三澤弘明：日本化学会 学術研究活性化委員会 委員(2010.4.30～現在)
- 2) 三澤弘明：Nanotechnology Innovation Center for Environment & Ecosystem, Harbin Institute of Technology, Academic Committee(2012年7月31日～2017年12月31日)
- 3) 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)
- 4) 上野貢生：The 10th Memorial of Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics (APNFO10), Local Committee Member (2013年3月～2016年3月)
- 5) 三澤弘明：Asian Nanoscience and Nanotechnology Association, President (2013年5月～)
- 6) 上野貢生：応用物理学会極限ナノ造形・構造物性研究会運営委員（2013年11月～）
- 7) 上野貢生：電気学会メタマテリアル・プラズモニクスの光・電子デバイス応用調査専門委員会（2013年12月～2016年3月）
- 8) 三澤弘明：光化学協会 会長（2014年1月1日～2015年12月31日）
- 9) 三澤弘明：ACS Photonics, Editorial Advisory Board (2014年1月1日～現在)
- 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 CommitteeMember (2015年2月～2017年3月)
- 13) 三澤弘明：The 7th International Conference on Surface Plasmon Photonics (SPP7), Scientific and Technical Program Committee Member (2015年)
- 14) 三澤弘明：日本化学会第96春季年会講演企画小委員会 部門幹事(2015年6月5日～2016年3月31日)
- 15) 三澤弘明：公益社団法人新化学技術推進協会 GSC賞一次選考委員（2015年10月13日～2016年6月30日）
- 16) 上野貢生：日本分析化学会日本分析化学会第65年会実

- 行委員（2015年10月～）
- 17) 三澤弘明、上野貢生：日本化学会第96春季年会プログラム編成委員（2015年12月8日）
- c. 併任・兼任
- 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～2015年5月31日）、顧問（2015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7月31日）、講座教授（2015年8月1日～）
- e. 新聞・テレビ等の報道
- ・新聞
 - 1) 三澤弘明：2015.8.4、北海道新聞、「最先端技術面白さ実感北大高校生に特別講義」
 - 2) 押切友也、上野貢生、三澤弘明：2016.3.7、日本経済新聞、「人工光合成技術でアンモニアを製造」
 - ・その他
 - 1) 押切友也、上野貢生、三澤弘明：2016.3.2、環境展望台：国立環境研究所環境情報メディア、「北海道大、可視光・水・空中窒素からのアンモニアの合成に成功」
 - 2) 中村圭佑、押切友也、上野貢生、王 永明、鎌田義臣、小竹勇己、三澤弘明：2016.3.18、環境展望台：国立環境研究所環境情報メディア、「北海道大、金ナノ粒子の光アンテナを搭載した全固体太陽電池を開発」
- f. 外国人研究者の招聘（氏名、国名、期間）
- 1) Dr. Wei-Shun Chang, Man-Nung Su、米国（2015年6月17日）
 - 2) Prof. Xing Zhu、中国（2015年7月6日）
 - 3) Prof. Shean-jen Chen他18名、台湾（2015年8月4日）
 - 4) Prof. Jenn-Ming Song、台湾（2015年9月28日）
 - 5) Prof. Micha Asscher、イスラエル（2015年10月5日）
 - 6) Prof. Shuyan Gao、中国（2015年9月7日～2016年3月31日）
 - 7) Prof. Luca Razzari、カナダ（2016年1月7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（2015年4月1日～2015年9月30日）
 - 2) 工学部「電気回路」、上野貢生（2015年4月1日～2015年9月30日）
 - 3) 全学教育科目「化学I」、上野貢生（2015年4月1日～2015年9月30日）
 - 4) 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（2015年10月1日～2016年3月31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（2015年6月19日）
 - 6) 工学部、生体工学概論・生体医工学基礎、上野貢生（2015年10月7日）、三澤弘明（責任教員、2015年10月1日～2016年3月31日）
 - 7) 大学院共通講義「ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論II」、上野貢生（2015年11月25日）
 - 8) 工学部、情報エレクトロニクス演習、押切友也（2015年4月1日～2015年9月30日）
- 9) 工学部、生体情報工学実験1、押切友也（2015年4月1日～2015年9月30日）
- 10) 全学教育科目、一般教育演習：グループワークで学ぶ光科学の最前線、押切友也（2015年4月1日～2015年9月30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、2011.4.1～2016.3.31）（研究室所属は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、2012.4.1～2016.3.31）
 - 3) 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、2014.4.1～2016.3.31）
 - 4) 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、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、2011.9.1～）
 - 5) ChanonTeeraseranee（外国人協力研究員、2015.6.1～2015.7.24）
 - 6) Debapam Bose（外国人協力研究員、2015.6.1～2015.8.15）
 - 7) Kuang-Li Lee（外国人協力研究員、2015.9.28～2015.11.30）
 - 8) Wei Cui（外国人協力研究員、2015.10.6～2016.9.27）
 - 9) Jinghuan Yang（外国人協力研究員、2015.12.10～2016.11.30）
- j. 修士学位及び博士学位の取得状況
- ・博士後期課程(1名)
 - 1) 钟玉磬:Plasmon-Induced Water Splitting under Visible Light Irradiation using Gold Nanostructured Strontium Titanate Single Crystal Substrate（2015年9月）
 - ・修士課程(1名)
 - 1) 中村圭佑: 半導体薄膜を用いたプラズモン太陽電池の開発(Development of plasmonic solar cell using semiconductor thin film)（2016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～）
准教授 佐藤 譲（東大院、博士（学術）、2015.10～）
助教 藤岡正弥（慶大院、理博、2015.4～）
大学院生 三澤貴浩（総合化学院D2）
宮崎 篤（総合化学院M2）
森 澄人（総合化学院M2）
木下拓也（総合化学院M1）
学部生 久保直紀（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「スピニン」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

現在、電解質と作動温度によって様々な燃料電池が商用化されており、固体高分子やリン酸を用いた低温域（室温～200°C）と、溶融炭酸塩や固体酸化物を用いた高温域（500°C～1000°C）の二つに分類される。一方、作動温度が250°C～500°Cの中温域燃料電池は、CO被毒によるPt触媒の劣化が抑制でき、メタノールを燃料に用いることができるところから、その実用化が期待されている。しかしながら、この温度域で実用レベルのプロトン伝導度（>10⁻² S/cm）を長期間に渡って安定に示す固体電解質は存在しない。

本研究では、中温域燃料電池に必要なプロトン伝導材料の開発を目指して、リン酸塩ガラス中のアルカリ金属イオンをプロトンに置換するプロセス（アルカリープロトン置換）の開発と、得られた材料の評価に取り組んだ。

a)コロナ放電処理(CDT)法

処理装置の概略を図1(a)に示す。溶融急冷法によって作製したリン酸塩ガラスを10 mm^φ×0.3 mm^tの円盤状に加工し、H₂雰囲気中で加熱された溶融Snカソードステージ上に

固定した。次に、アノード側の針状電極に4.5 kVのDC電圧を印加しながら処理を行った。

b)接触電極処理(APS)法

処理装置の概略を図1(b)に示す。15 mm^φ×1 mm^tの円盤状に加工したリン酸塩ガラスの片面にPd膜（膜厚500 nm）をスパッタ成膜した。Pdを成膜していない面を、H₂雰囲気中で300～350°Cに加熱された溶融Snに接触させ、カソードステージ上に固定した。その後、Pd膜に+5～+10 VのDC電圧を印加しながら処理を行った。なお、この方法は大阪大学小俣研究室と共同開発によるものであり、アルカリープロトン置換を略してAPS法と命名した。

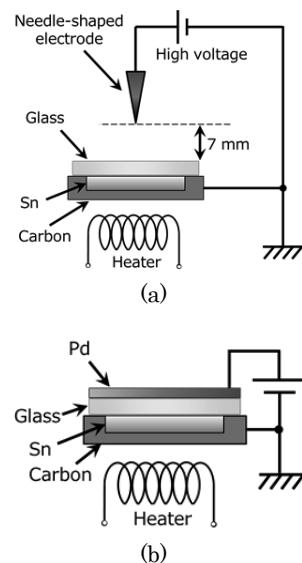


Fig. 1 Experimental setup for (a) corona discharge treatment and (b) contact electrode treatment.

本研究に用いたガラスは35NaO_{1/2}·5Gd₂O_{3/2}·5GeO₂·2MgO·53PO_{5/2} (mol%)である。このガラスは、レーザー母材や蛍光材料などへの応用を目的として過去に検討されたNaO_{1/2}·LaO_{3/2}·PO_{5/2}系ガラスにおいて、電圧印加中の結晶化を抑制するために組成改良したものである。CDT法およびAPS法によるこのガラスの処理条件を表1にまとめた。

表1 CDT法およびAPS法での処理条件

Treatment method	CDT	APS
Temperature	360–310°C	310–290°C
Applied voltage	4.5kV	5–10V
Treatment time	48h	12h
Atmosphere	100% H ₂	100% H ₂

処理後に得られたガラスは、いずれも無色透明であり、結晶の析出も見られなかった。図2(a)はCDT法およびAPS法で処理したガラスのEDS分析結果である。未処理ガラス中のNa⁺濃度は9.2×10²¹ cm⁻³であり、CDT処理後のガラスではNa⁺が残存しており、Na⁺からH⁺への置換率80%と見積もられた。一方、APS処理後のガラスではNa⁺のピークが明確には確認できなかった。一方、図2(b)に示す様に、

CDT、APSによって 2800cm^{-1} 付近の赤外吸収ピークの強度が著しく増加していることがわかる。このピークは周囲の酸素と強く水素結合したOH基に帰属され、既報の吸収係数 $\varepsilon_{\text{OH}}(110\text{ L/mol}\cdot\text{cm}, \text{J. Mater. Sci. Lett. } 9 (1990) 244-245)$ を用いてその濃度を見積もると、CDT法では $4.5\times 10^{21}\text{cm}^{-3}$ 、APS法では $8.3\times 10^{21}\text{cm}^{-3}$ であった。この値を未処理ガラス中の Na^+ 濃度と比較すると、CDT法では約50%以上、APS法では約90%以上の Na^+ イオンが H^+ に置換されたことになる。なお、処理時間を延長しても置換率に顕著な変化が見られなかったことから、ガラス中にはDC電圧勾配下で移動しにくい Na^+ が存在していると推察される。

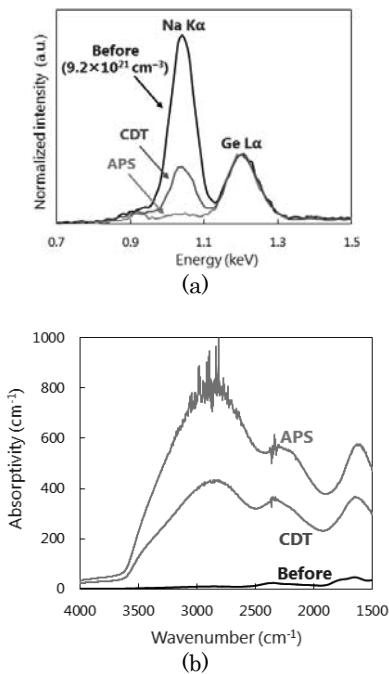


Fig. 2(a) EDS spectra and (b) IR absorption spectra of glasses before and after treatment using CDT method and APS method.

次に、処理前後のガラスのラマン散乱スペクトルを測定した結果を図3に示す。CDT、APS処理によって、 $\nu_s(\text{POP})$ および $\nu_s\text{Q}^2$ に帰属される全対象伸縮振動ピークの半値幅が広くなり、全体的にブルーシフトしているが、 PO_4 四面体構造は維持されていた。一方、図4に示す処理前後の熱膨張曲線より、CDT、APS処理によってガラス転移点(T_g)は大幅に低下したことがわかる。これは、 PO_4 四面体鎖状構造をイオン結合によって繋ぎ止めていた Na^+ の消失が T_g 低下の原因であると推察され、置換率が50%から90%に向上升ることで T_g に55°Cもの差が生じた。このような大幅な T_g の低下の一方で、結晶化に対する熱的安定性にはそれほど大きな差が見られなかった。図5はCDT、APS処理後のガラスの熱重量曲線である。両者共に440~450°C付近でオルトリリン酸の蒸発と思われる重量減少が始まっており、同時に結晶化が始まっている。X線回折で同定された主たる析出結晶は、CDTでは $\text{NaGdP}_4\text{O}_{12}$ 、APSでは $\text{GdP}_5\text{O}_{14}$ であった。

APS処理ガラスの方が重量減少開始温度がやや高いことから、残存 Na^+ が結晶化(重量減少)開始温度に影響を与えると推察される。したがって、移動しにくい Na^+ が存在する要因の解明や、CDTおよびAPSの処理条件の改善は、今後解決すべき重要な課題である。

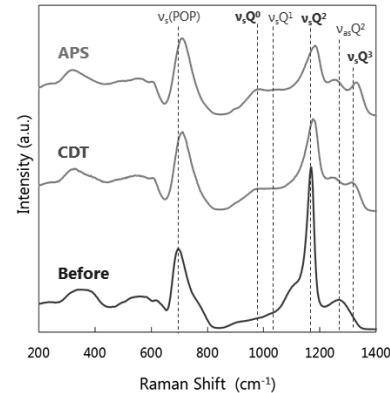


Fig. 3 Raman scattering spectra of glasses before and after treatment using CDT method and APS method.

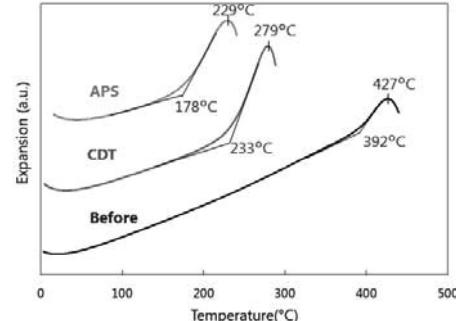


Fig. 4 TMA curves of glasses before and after treatment using CDT method and APS method.

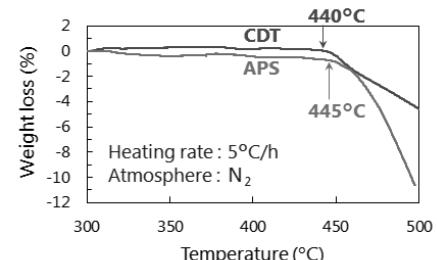


Fig. 5 TG curves of glasses after treatment using CDT method and APS method.

CDT、APS処理によって得られたガラスを0.2~0.3mm厚に研磨し、両面に500nmのPd薄膜をスパッタ成膜した後に、温度300°Cにおける直流分極特性、プロトン輸率を評価した。図6には、代表例としてCDT処理によって得られたガラスの結果を示す。DC電圧100mVを印加して直流分極特性を評価したところ、処理前には直流分極による急激な電流の低下が見られたが、処理後のガラスの場合は一定電流が流れ続けた(図6a)。また、濃淡電池を構成して起電力を求め、ネルンスト式を用いてプロトン輸率を見積もったところ、両者共に輸率=1であった(図6b)。これら2つの結果

より、処理後のガラス中のキャリヤーはH⁺であることが明らかになった。APS処理後のガラスも同様な結果であった。

次に、交流インピーダンス法によって処理前後のガラスのイオン伝導度を図7に示す。処理前のガラスのキャリヤーはNa⁺である。CDTおよびAPS処理後のガラスにおいては、未処理ガラスよりも約1桁高い伝導度を示し、前者は360°Cで1.5×10⁻³ S/cm、後者は370°Cで3.0×10⁻³ S/cmであった。その後、結晶化と思われる伝導度の変化が見られ、CDT処理ガラスにおいては、おそらくオルトリン酸の析出によって一時的に上昇し、その後の揮発に伴って低下したと推察される。また、CDT処理後のガラスには数十%のNa⁺が残留していたが、少なくとも350°Cまでは直流分極が見られなかったため、CDT処理、APS処理共に、プロトン伝導を示していると考えられる。

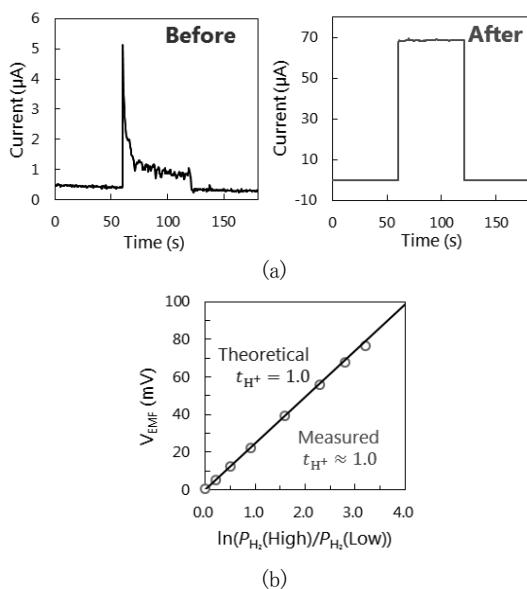


Fig. 6(a) DC polarization characteristics for glasses before and after CDT, and (b) proton transport number after CDT at 300°C.

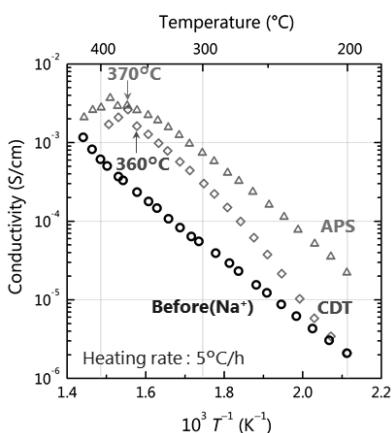


Fig. 7 Ion conductivity for glasses before and after CDT and APS.

図8はAPS法で作製したプロトン伝導ガラス(0.28mm厚)を用いた燃料電池特性である。両電極にはパラジウム

(500nm)を用いた。最大出力は0.16mW/cm² (350°C)であり、開放電圧が理論値の約1/2と低いことから、伝導度、キャリヤー濃度の向上と電極界面の接触抵抗の低減など、さらなる改善が必要である。

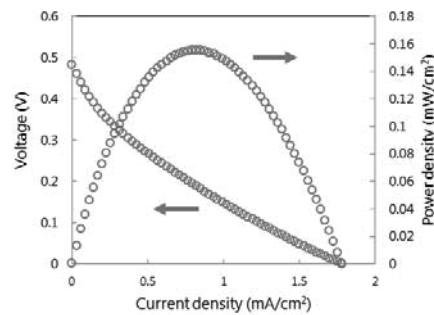


Fig. 8 Fuel cell performance for APS treated glass.

3. 今後の研究の展望

DMFCに応用可能な250°C～500°Cの中温域で実用レベルの伝導度(>10⁻² S/cm)を示すプロトン伝導材料は1990年代から重要視されながら、未だ開発されていない(Solid State Ionics, 125 (1999) 1-11)。これまでには、MP₂O₇結晶系(M=Sn,In,Ta,Fe)やペロブスカイト型結晶系が報告されてきたが、耐熱性も含めて実用レベルには至っていない。本研究で開発中のアルカリープロトン置換技術を多量のアルカリイオンを含有するリン酸塩ガラスに適用することで、熱的・化学的安定性を維持しつつ高いキャリヤー密度を実現できる可能性がある。今後は、ガラス組成開発に加えて、伝導体の薄膜化や電極材料の開発を並行して実施する予定である。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) T. Ishiyama, T. Yamaguchi, J. Nishii, T. Yamashita, H. Kawazoe, N. Kuwata, J. Kawamura and T. Omata : "Structural change of NaO_{1/2}-WO₃-NbO_{5/2}-LaO_{3/2}-PO_{5/2} glass induced by electrochemical substitution of sodium ions with protons", Physical Chemistry Chemical Physics, 17: 13640-13646 (2015)
- 2) T. Yamaguchi, T. Ishiyama, K. Sakuragi, J. Nishii, T. Yamashita, H. Kawazoe and T. Omata : "Improving thermal stability and its effects on proton mobility in proton-conducting phosphate glasses prepared by the electrochemical substitution of sodium ions with protons", Solid State Ionics, 275 : 62-65 (2015)
- 3) 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) M. Fujioka, R. Matsumoto, T. Yamaki, S. J. Denholme, M. Tanaka, H. Takeya, T. Yamaguchi, H. Takahashi and Y. Takano : “Observation of a Pressure-Induced Phase Transition for Single Crystalline $\text{LaO}_{0.5}\text{F}_{0.5}\text{BiSeS}$ Using a Diamond Anvil Cell”, Journal of the Physical Society of Japan, 84 : 095001-1-095001-2 (2015)
 - 5) K. Kawaguchi, T. Yamaguchi, T. Omata, T. Yamashita, H. Kawazoe and J. Nishii : “Phase separation and crystallization in sodium lanthanum phosphate glasses induced by electrochemical substitution of sodium ions with protons”, Physical Chemistry Chemical Physics, Royal Society of Chemistry, 17 : 22855-22861 (2015)
 - 6) H. Kaiju, M. Takei, T. Misawa, T. Nagahama, J. Nishii and G. Xiao : “Large magnetocapacitance effect in magnetic tunnel junctions based on Debye-Fröhlich model”, Applied Physics Letters, 107 : 132405-1-132405-5 (2015)
 - 7) K. Suzuki, M. Tanaka, S. J. Denholme, M. Fujioka, T. Yamaguchi, H. Takeya and Y. Takano : “Pressure-Induced Superconductivity in BiS_2 -Based EuFBiS_2 ”, Journal of the Physical Society of Japan, 84 : 115003-1-115003-2 (2015)
 - 8) Y. Sato : “Robust pattern construction in two-dimensional neural field”, Proceedings of AFCA, CANDAR : 1-5 (2015)
 - 9) S. Demura, M. Tanaka, A. Yamashita, S. J. Denholme, H. Okazaki, M. Fujioka, T. Yamaguchi, H. Takeya, K. Iida, B. Holzapfel, H. Sakata and Y. Takano : “Electrochemical Deposition of FeSe on RABiTS Tapes”, Journal of the Physical Society of Japan , 85 : 015001-1-015001-2 (2015)
 - 10) Y. Sato, D. Faranda, N. Moloney, G. Masato, F. Daviaud, B. Dubrulle and P. Yiou : “The switching between zonal and blocked mid-latitude atmospheric circulation: a dynamical system perspective”, Climate Dynamics, Springer (2015)
 - 11) S. Hirai, S. Yagi, A. Seno, M. Fujioka, T. Ohno and T. Matsuda : “Enhancement of the oxygen evolution reaction in Mn^{3+} -based electrocatalysts: correlation between Jahn-Teller distortion and catalytic activity”, RSC Advances, 6 : 2019-2023 (2015)
 - 12) T. Yamaguchi, T. Ishiyama, K. Sakuragi, J. Nishii, T. Yamashita, H. Kawazoe, N. Kuwata, J. Kawamura and T. Omata : “Relationship between structure and mobility of proton carriers injected by electrochemical substitution of sodium ions with protons in $35\text{NaO}_{1/2}\text{-}1\text{WO}_3\text{-}8\text{NbO}_{5/2}\text{-}5\text{LaO}_{3/2}\text{-}51\text{PO}_{5/2}$ -based glasses”, Solid State Ionics, Elsevier, 284 (2016)
 - 13) K. Tawa, C. Sasakawa, T. Fujita, K. Kiyosue, C. Hosokawa, J. Nishii, M. Oike and N. Kakinuma : “Fluorescence microscopy imaging of cells with a plasmonic dish integrally molded”, Japanese Journal of Applied Physics, Publication Center for Pure and Applied Physics, PCPAP, 55 : 03DF12-1-03DF12-5 (2016)
 - 14) F. Caglieris, A. Sala, M. Fujioka, F. Hummel, I. Pallecchi, G. Lamura, D. Johrendt, Y. Takano, S. Ishida, A. Iyo, H. Eisaki, H. Ogino, H. Yakita, J. Shimoyama and M. Putti : “Research Update: Structural and transport properties of $(\text{Ca},\text{La})\text{FeAs}_2$ single crystal”, Applied Physics Letters Materials, 4 : 020702-1-020702-7 (2016)
 - 15) M. Tanaka, Y. Yanagisawa, S. J. Denholme, M. Fujioka, F. Shiro, Y. Matsushita, I. Nobuo, T. Yamaguchi, H. Takeya and Y. Takano : “Origin of the Higher-T_c Physe in the $\text{KxFe}_{2-y}\text{Se}_2$ System”, Journal of the Physical Society of Japan , 85 : 044710-1-044710-5 (2016)
- #### 4.2 講演
- a . 招請講演
 - i) 学会
 - 1) M. Fujioka*, S. J. Denholme, M. Tanaka, K. Suzuki, H. Hara, T. Yamaki, A. Yamashita, T. Yamaguchi, H. Takeya and Y. Takano : “Crystal growth of $\text{SmFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ with a high-fluorine concentration”, EMN Phuket Meeting 2015, Phuket, Thailand (2015-05)
 - 2) H. Kaiju* and J. Nishii : “Nanoscale junctions utilizing magnetic thin-film edges”, International Conference and Exhibition on Mesoscopic & Condensed Matter Physics, Newton, USA (2015-06)
 - 3) H. Kaiju* and J. Nishii : “Fabrication of ferromagnetic-metal/molecule/ferromagnetic-metal nanoscale junctions utilizing thin-film edges and their structural and electrical properties”, 4th International Symposium on Energy Challenges and Mechanics, Hilton Aberdeen Treetops, Aberdeen, Scotland, UK (2015-08)
 - 4) J. Nishii* : “Periodic Structured Devices for Optical Imaging and Plasmon-enhanced Fluorescence Microscopy”, 國立交通大學應用化學系104學年度第一學期專題演講, 国立交通大学, 台湾 (2015-09)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 佐藤謙* : 「Random strange attractors and stochastic chaos」、非局所性と不確実性に着目した現象数理モデリングと解析---アリの集団行動からバランス制御まで--、 MIMS, Meiji University, Tokyo (2015-10)
- 2) J. Nishii* : "Proton conductivity of alkali-proton substituted phosphate glass using corona discharge treatment", 2015 RIES-CIS Symposium, 国立交通大学, 台湾 (2015-11)
- 3) 佐藤謙* : 「Robust pattern construction in neural field」、ヒトの脳の形態形成から行動生成に至る発達のダイナミクス、 Kyoto University, Kyoto (2015-11)
- 4) Y. Sato* : "Robust computation in neural field", AFCA, CANDAR, Sapporo (2015-12)
- 5) J. Nishii* : "Recent progress of intermediate temperature fuel cell (DMFC)", CityU/Hokkaido University Joint Workshop "Advanced Materials and Characterisation", City University of Hong Kong , China (2015-12)
- 6) 海住英生*、西井準治 : 「交流スピントロニクスの最前線」、第8回物質探索・設計セミナー、慶應義塾大学矢上キャンパス (2016-02)

iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) Y. Sato* : "Neural field dynamics for growing brains", Integration of neuroscience and mathematics to elucidate our mental activities from aggressive behaviors to financial decisions, AAAS, Marriot hotel, Washington DC, USA (2016-02)

b. 一般講演

i) 学会

- 1) 木下拓也*、宮崎篤、海住英生、西井準治、山口拓哉、小俣孝久 : 「コロナ放電によるリン酸塩ガラスへのプロトン導入」、日本化学会北海道支部2015年夏季研究発表会、北海道教育大学函館校 (2015-07)
- 2) T. Kinoshita*, K. Kawaguchi, A. Miyazaki, H. Kaiju, J. Nishii, T. Yamaguchi and T. Omata : "Evaluation of Proton Conductivities and Physical Properties of $\text{Na}^+ \cdot \text{H}^+$ Substituted $\text{Na}_2\text{O} \cdot \text{La}_2\text{O}_3 \cdot \text{P}_2\text{O}_5 \cdot \text{GeO}_2$ Glasses", The 11th Pacific Rim Conference of Ceramic Societies, 済州島, Korea (2015-08)
- 3) 酒井大輔*、原田建治、原悠一郎、西井準治 : 「コロナ放電により選択的に堆積される SiO_2 の特性」、第76回応用物理学会秋季学術講演会、名古屋国際会議場 (2015-09)
- 4) 海住英生*、阿部太郎、石丸学、久保耕司、西井準治 : 「PEN有機膜上の多結晶・アモルファスCo, Fe磁性薄膜」、第39回日本磁気学会学術講演会、名古屋大学 (2015-09)
- 5) 本庄周作*、横野示寛、有田正志、福地厚、海住英生、

西井準治、高橋庸夫 : 「単層 $\text{Fe} \cdot \text{MgF}_2$ グラニュラー膜の微細構造と磁気特性」、第39回日本磁気学会学術講演会、名古屋大学 (2015-09)

- 6) 山口拓哉*、西井準治、山下俊晴、川副博司、小俣孝久 : 「電気化学的アルカリ-プロトン置換により作製した新規プロトン伝導性リン酸塩ガラス」、2015年電気化学会秋季大会、埼玉工業大学 (2015-09)
- 7) 三澤貴浩*、森澄人、笠晴也、中村晃輔、藤岡正弥、海住英生、西井準治 : 「低融点ガラス間 $\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}$ 薄膜エッジを利用したスピノ注入デバイスの創製」、第76回応用物理学会秋季学術講演会、名古屋国際会議場 (2015-09)
- 8) 森澄人*、三澤貴浩、笠晴也、中村晃輔、海住英生、西井準治 : 「スピノ量子十字デバイスの創製に向けた $\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}$ 薄膜の磁気特性と Alq_3 を介したナノスケール伝導の評価」、第76回応用物理学会秋季学術講演会、名古屋国際会議場 (2015-09)
- 9) 西浦憲*、徳富淳一郎、藤岡正弥、田中将嗣、高野義彦 : 「直径、結晶性に依存したカーボンナノチューブの電気伝導特性」、第76回応用物理学会秋季学術講演会、名古屋国際会議場 (2015-09)
- 10) 松本凌*、笹間陽介、藤岡正弥、山口尚秀、竹屋浩幸、高野義彦 : 「金属ダイヤモンドを電極とした新しいDACの開発」、第76回応用物理学会秋季学術講演会、名古屋国際会議場 (2015-09)
- 11) 高野義彦*、鈴木皓司、田中将嗣、Saleem James Denholme、藤岡正弥、原裕、山下愛智、岩崎秀、小木曾理、笹間陽介、松本凌、柳沢佑典、山口尚秀、竹屋浩幸 : 「 EuFBiS_2 の圧力下絶縁体-金属転移と超伝導」、日本物理学会2015年秋季大会、関西大学 (2015-09)
- 12) 木下拓也*、宮崎篤、海住英生、西井準治、山口拓哉、小俣孝久 : 「コロナ放電によってアルカリ-プロトン置換したリン酸塩ガラスの構造と伝導度評価」、日本セラミックス協会第28回秋季シンポジウム、富山大学五福キャンパス (2015-09)
- 13) 高野義彦*、山下愛智、出村郷志、田中将嗣、原裕、鈴木皓司、Saleem James Denholme、岡崎宏之、藤岡正弥、竹屋浩幸、山口尚秀 : 「電気化学的手法による鉄カルコゲナイト化合物の超伝導発現」、日本物理学会2015年秋季大会、関西大学 (2015-09)
- 14) 木下拓也*、宮崎篤、藤岡正弥、海住英生、山口拓哉、小俣孝久、西井準治 : 「コロナ放電処理によるケイ酸塩およびリン酸塩ガラスへのプロトン導入」、第56回ガラスおよびフォトニクス材料討論会、愛知県産業労働センター"ウインクあいち" (2015-11)
- 15) T. Kinoshita*, A. Miyazaki, H. Kaiju, M. Fujioka, T. Yamaguchi, T. Omata and J. Nishii : "Structure change and proton conductivity of alkali-proton substituted phosphate glass using corona discharge

- treatment”, JK-Ceramics 32, Hotel New Otani Nagaoka (2015-11)
- 16) 宮崎篤*、山口拓哉、海住英生、小俣孝久、西井準治：「ランタノイド酸化物添加リン酸塩ガラスのプロトン伝導特性」、第41回固体イオニクス討論会、北海道大学フロンティア応用科学研究棟 (2015-11)
 - 17) 木下拓也*、宮崎篤、藤岡正弥、海住英生、山口拓哉、小俣孝久、西井準治：「水素雰囲気コロナ放電処理によるプロトン伝導体の作製」、第41回固体イオニクス討論会、北海道大学フロンティア応用科学研究棟 (2015-11)
 - 18) 森澄人*、三澤貴浩、笠晴也、中村晃輔、藤岡正弥、海住英生、西井準治：「低融点ガラスに挟まれた Ni₇₈Fe₂₂薄膜の磁気特性とAlq₃を介したナノスケール電気伝導の観測」、第51回応用物理学会北海道支部/第12回日本光学会北海道支部合同学術講演会、北海道大学 (2016-01)
 - 19) 本庄周作*、横野示寛、有田正志、福地厚、海住英生、西井準治、高橋庸夫：「MgF₂/Fe/MgF₂グラニュラー膜の磁気抵抗効果と微細構造」、第51回応用物理学会北海道支部/第12回日本光学会北海道支部合同学術講演会、北海道大学 (2016-01)
 - 20) H. Kaiju*, M. Takei, T. Misawa, T. Nagahama, J. Nishii and G. Xiao : “Large magnetocapacitance effect in magnetic tunnel junctions based on Debye-Fröhlich model”, 13th Joint MMM-Intermag Conference, San Diego, USA (2016-01)
 - 21) T. Misawa*, S. Mori, H. Kasa, K. Nakamura, M. Fujioka, H. Kaiju and J. Nishii : “Structural and magnetic properties of Ni₇₈Fe₂₂ thin films sandwiched between low-melting-point glasses”, 13th Joint MMM-Intermag Conference, San Diego, USA (2016-01)
 - 22) 宮崎篤*、山口拓哉、海住英生、小俣孝久、西井準治：「ランタノイド含有リン酸塩ガラスのアルカリ-プロトン置換による中温域プロトン伝導体の作製」、化学系学協会北海道支部2016年冬季研究発表会、北海道大学 (2016-01)
 - 23) S. Mori*, T. Misawa, H. Kasa, K. Nakamura, H. Kaiju and J. Nishii : “Magnetic properties of Ni₇₈Fe₂₂ thin films sandwiched between glasses and nanoscale electronic conduction through Alq₃ in spin quantum cross devices”, The 4th Frontier Chemistry Center International Symposium, Sapporo (2016-02)
 - 24) 木下拓也*、宮崎篤、藤岡正弥、海住英生、西井準治、山口拓哉、小俣孝久：「アルカリ-プロトン置換したリン酸塩ガラスの伝導特性と熱的特性」、日本セラミックス協会2016年年会、早稲田大学 (2016-03)
 - 25) 松本裕介*、的場正憲、海住英生、西井準治、Simon R. Hall、神原陽一：「生体材料鋳型によるYBa₂Cu₃O_{7-δ}マイクロ/ナノワイヤの合成と評価」、第63回応用物理学会春季学術講演会、東京工業大学 (2016-03)
 - 26) 海住英生*、森澄人、三澤貴浩、小峰啓史、中村晃輔、藤岡正弥、西井準治：「漏洩磁場を利用したスピニ子十字デバイスの構造・磁気特性」、第63回応用物理学会春季学術講演会、東京工業大学 (2016-03)
 - 27) H. Kaiju*, M. Takei, T. Misawa, T. Nagahama, J. Nishii and G. Xiao : “Large magnetocapacitance effect at room temperature in magnetic tunnel junctions”, 第63回応用物理学会春季学術講演会、東京工業大学 (2016-03)
 - 28) T. Misawa*, S. Mori, H. Kasa, M. Fujioka, H. Kaiju and J. Nishii : “Magnetic and structural properties of Ni₇₈Fe₂₂ thin films sandwiched between borate glasses”, 第63回応用物理学会春季学術講演会、東京工業大学 (2016-03)
 - 29) 藤岡正弥*、石丸学、渋谷泰蔵、神原陽一、田畠千紘、網塚浩、田中将嗣、高野義彦、海住英生、西井準治：「新規プラチナ系超電導体の特異な結晶構造と超電導特性」、日本物理学会第71回年次大会、東北学院大学 (2016-03)
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) 山口拓哉*、西井準治、山下俊晴、川副博司、小俣孝久：「電気化学的アルカリ-プロトン置換により作製した新規プロトン伝導性リン酸塩ガラス」、第11回固体イオニクスセミナー、静岡県伊豆熱川温泉熱川ハイツ (2015-08 ~ 2015-09)
 - 2) H. Kaiju*, S. Mori, T. Misawa, H. Kasa, K. Nakamura and J. Nishii : “Nanoscale Junctions Utilizing Magnetic Thin-Film Edges”, 2015 CRL Forum International jointed with the 5th international symposium of Nano-Macro Materials, Devices and System Research Alliance Project, Tokyo Institute of Technology (2015-10)
 - 3) M. Fujioka*, H. Kaiju, J. Nishii and Y. Takano : “Single crystal of SmFeAsO_{1-x}F_x with high superconducting transition temperature and low anisotropy”, The 16th RIES-Hokudai International Symposium, Sapporo (2015-11)
 - 4) S. Mori*, T. Misawa, H. Kasa, K. Nakamura, H. Kaiju and J. Nishii : “Magnetic properties of Ni₇₈Fe₂₂ thin films and nanoscale electronic transport through Alq₃ in spin quantum cross devices”, The 16th RIES-Hokudai International Symposium, Sapporo (2015-11)
 - 5) T. Misawa*, S. Mori, H. Kasa, K. Nakamura, M. Fujioka, H. Kaiju and J. Nishii : “Fabrication of spin injection devices using Ni₇₈Fe₂₂ thin-film edge between low-melting-point glasses”, The 16th

RIES-Hokudai International Symposium, Sapporo
(2015-11)

- 6) Y. Sato* and T. Doan : "Stochastic bifurcation in random dynamical systems", Idea seminar workshop, Hokkaido University, Sapporo (2016-01)

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、萌芽研究、電圧印加ナノインプリントを用いたガラス表面組成パターニングと機能性付与、2015～2016年度
- 2) 海住英生、基盤研究(B)、強磁性ナノ接合を用いた巨大磁気キャッシュアンドリリース効果素子の創製、2015～2017年度
- 3) 海住英生、萌芽研究、磁気ナノ構造体における室温スキルミオンの発現とその低電流密度駆動、2015～2016年度
- 4) 佐藤謙、基盤研究(C)、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、2014～2017年度
- 5) 佐藤謙、特別研究員奨励費、低次元の確率分岐の研究、2015～2017年度
- 6) 藤岡正弥、若手研究(B)、電界効果型ダイヤモンドアンビルセルの開発による未知領域の物性探索、2015～2017年度

b. 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、2013～2015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、2012～2015年度

c. 受託研究

- 1) 海住英生、村田学術振興財団、薄膜エッジを利用した強磁性金属/分子/強磁性金属ナノスケール接合の作製とその構造・電気特性、2015年度
- 2) 西井準治、NEDO、多孔性材料と金属触媒との革新的複合化技術による高性能水素貯蔵材料の研究、2015～2016年度

4.4 受賞

- 1) H. Kaiju and J. Nishii : Phenomenal and Worthy Presentation Award "Nanoscale junctions utilizing magnetic thin-film edges" (International Conference and Exhibition on Mesoscopic & Condensed Matter Physics) 2015年06月
- 2) 海住英生 : 平成26年度エクセレント・ティーチャーズ(北海道大学) 2015年07月
- 3) 宮崎篤、山口拓哉、海住英生、小俣孝久、西井準治 : 優秀講演賞(口頭部門) 「ランタノイド含有リン酸塩ガラスのアルカリープロトン置換による中温域プロトン伝導体の作製」(科学系学協会北海道支部) 2016年01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24日～2017年3月31日)

- 2) 佐藤謙 : 日本応用数理学会 JSIAM Letters 編集委員 (2015年4月1日～2016年3月31日)

b. 国内外の学会の役職

- 1) 海住英生 : 第51回応用物理学会北海道支部／第12回日本光学会北海道地区合同学術講演会 A-I 座長 (2016年01月09日～2016年01月10日)

- 2) 佐藤謙 : 日本応用数理学会代表会員 (2015年4月1日～2016年3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) 総合化学院、物質化学III、西井準治、2015年6月1日～2015年8月6日
- 2) 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』「スピントロニクスが切り拓く次世代省エネデバイス」、海住英生、2015年07月03日～2015年07月31日

d. 修士学位及び博士学位の取得状況

・修士課程(2名)

- 1) 森澄人:「低融点ガラスに挟まれたNi₇₈Fe₂₂薄膜の構造・磁気・電気特性とAlq₃を介したナノスケール伝導の観測」
- 2) 宮崎篤:「ランタノイド含有リン酸塩ガラスのアルカリープロトン置換による中温域プロトン伝導体の作製」

ナノ光機能材料研究分野

准教授 熊野英和（北大院、工博、1997.4～）
博士研究員
中島秀朗
院 生
Sinthia S. Mou

1. 研究目標

モノのインターネット(IoT)時代の到来により、情報通信の大容量化や高信頼性の確保が強く要請されている。従来の光子集団をキャリアとする通信に代わり、単一光量子およびその間の強い量子的相関を利用した情報通信の実現に向けた研究が国内外で盛んに行われているのも、光通信関連デバイスの大幅な機能向上を目指す流れの中にある。本研究分野では、量子情報通信の基盤技術である量子光源の研究開発に関連し、(I)光機能材料としての単一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による電子状態と光子状態の制御、(III)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) 高Q値金属埋め込み共振器構造の設計

光を微小空間に閉じ込める光共振器構造は、光電相互作用の増強による高速化やオンチップ導波型デバイスとの高効率結合等、今後の量子情報処理・通信システムをより高度化する上で欠かせない基幹要素技術である。従来の誘電体を利用した共振器構造は光閉じ込めが弱く、クロストークを防ぐため近接して並べることができず、デバイスサイズの小型化に向けて課題となっていた。一方、金属共振器構造は光場のリークを強く抑制し、小型化に寄与するが、これまでの報告ではQ値が500程度に留まっており、この改善が大きな課題であった。我々は、円筒座標系での電磁場を記述するHelmholtz方程式が、有効ポテンシャルの下でのシュレディンガーファンクションで良好に近似できることを見いだし、電子系のトンネル現象と対比させながら、共振器Q値を最大化すべく共振器の構造パラメータの最適化を簡便かつ直感的に行う手法の開発・提案を行った。

今回検討した共振器構造は、GaAsマイクロディスクをSiO₂スペーサー、さらに銀でカバーした構造である（図1挿入図）。GaAsディスクの埋め込み深さ、およびSiO₂スペーサーの厚さを変えながら光閉じ込めの強さを有限要素法により計算した結果を図1に示す。2つの重要な特徴が見られる。1つは輻射損失を抑えるためには、マイクロディスクをある程度深く埋め込む必要がある点（図1a）、もう一つはあるSiO₂スペーサー厚に対してQ値が極大値を

とる点である（図1b）。これらの有限要素法に基づく解析によって得られた傾向をより法則性を持って理解するため、円筒形の共振器内の電磁場を支配するベクトルHelmholtz方程式に関し、横波を仮定しマイクロディスクの長手方向を無限とする近似の下で等価変形を進めた結果、形式的に有効ポテンシャルを持つ場の下でのシュレディンガーファンクションと同型の方程式となることを見いだし、共振器ダイナミクスを理解する上でより直感的な描像を得ることに成功した。

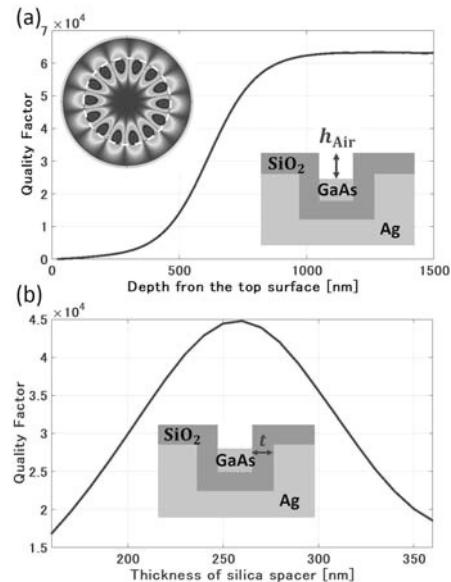


図1 マイクロディスク共振器構造の(a)埋め込み深さと(b)シリカスペーサー層厚のQ値依存性の有限要素法による計算結果。図1(a)の左上挿入図は共振モードの電場強度分布。計算パラメータを含む構造模式図も併せて示す。

ここで得られた描像を用いて検討を進めた結果、GaAs/SiO₂界面、およびSiO₂/Ag界面にそれぞれ光束縛状態が形成されることが判った。SiO₂/Ag界面近傍の光局在は、金属層への滲みだしが大きいことから損失（Q値低下）の原因となる。特にSiO₂/Ag界面の束縛状態はトンネル効果に基づいており、これを抑止するように構造パラメータを設計することで高Q値化を実現する設計指針が得られた。GaAs/SiO₂界面に局在する光のAg層への滲みだしを低減するためには中間のSiO₂スペーサーを厚くすれば良いが、これにより有効ポテンシャルが光のエネルギー準位を下回るため、SiO₂/Ag界面へのトンネリングが誘発されるようになる。すなわち、最適のSiO₂スペーサー厚が存在することが判明した。この最適点は、有効ポテンシャルが光のエネルギー準位と交わる点であり、このようにSiO₂スペーサー厚を設定することで最大Q値が得られることとなる。図2に、最適化された金属共振器構造の概要図(a)と断面図(b)、またこの最適化後の共振器内の電場分布(c, d)を示す。金属層への滲みだしが強く抑制された極めて高いQ値1,700,000を持つ周回モード（whispering gallery mode）が得られることが示された。

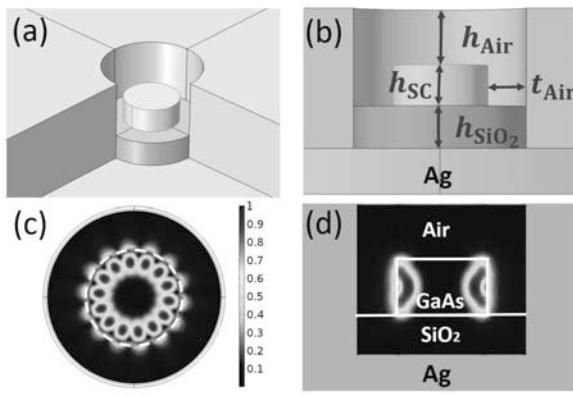


図2 構造最適化された(a)金属共振器構造概要図と(b)断面図。この最適化により、Q値と極めて高いQ値1,700,000が得られた。下段の図は、共振器内電場分布の(c)上面図および(d)断面図。

(b) 長期安定な単一光子光源の実現

単一光子は、究極的な高速性、安全性を追求する量子情報科学分野における基本的な情報媒介であり、この状態を安定的に生成できる光源開発が急務である。通常、単一光子状態は、減衰コヒーレント光か非線形光学効果を用いて擬似的に生成されるが、いずれも確率過程であるため、実現する機能に制限がある。これに対して、単一の量子ドット構造を用いた単一光子光源は、原理的に一度にただ1つの光子を生成する真の単一光子源であり、これを安定的に実現することが応用に向けて重要である。量子ドット単一光子光源は、通常20K程度以下に冷却して使用するため、冷凍機の振動や環境変動による試料位置のドリフトや光学系のズレが避けられず、短時間の積算毎にこのようなズレを補正する必要がある。基礎研究の範囲ではマシンビジョンによる自動追尾を行う等の回避策を取り得るが、常に均一の単一光子生成レートが要求される実用光源としては厳しい。そこで、励起・集光光学系、量子ドット試料、位置制御のためのアクチュエーターを一体化したハウジングを設計し、これを冷媒であるヘリウムのベッセル内に浸す構造とした。図3にその概略図を示す。

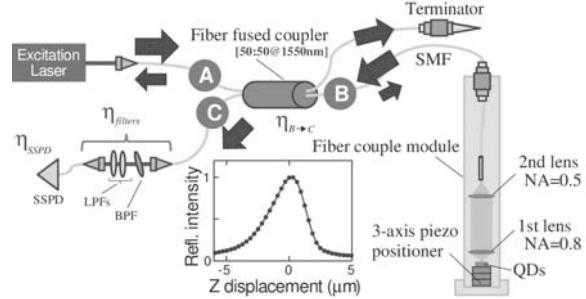


図3 長期安定な単一光子生成が可能な光学系・量子ドット試料一体型構造およびその周辺ファイバ光学系の模式図。右の筒状構造全体を冷媒であるヘリウムの容器に沈めることで、機械的振動や温・湿度変動による結合効率の時間的変動のない、安定した輝度の単一光子生成が可能となる。

右下の量子ドット(QD)光源からの単一光子を、高NAの光学系で受け、ファイバー光学系への高い結合効率を実現するとともに、機械的振動や環境変動を著しく低減することができ、数時間に渡る輝度が安定した単一光子状態を生成可能であることが実証された(図4)。

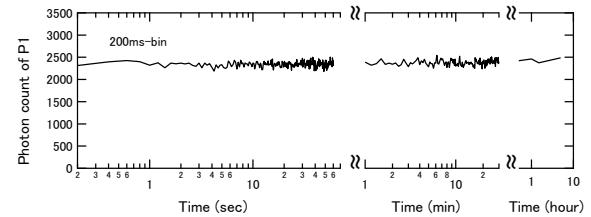


図4 単一光子生成レートの実時間依存性。数時間に渡り、安定的なレートが実現できていることが分かる。

このセットアップでは、従来行っているように試料表面画像をモニターしながら焦点合わせを行うことができない。そこで、今回は、参照光をファイバーから試料表面に照射し、その反射光の強度をモニターすることにより、焦点合わせを行う手法を探った(図3挿入図)。焦点は、一度合わせると、長時間メンテナンスフリーで保持できることも実験的に確認した。また、単一量子ドットからファイバー系への単一光子結合効率を、光子相関測定を用いて偶発的多光子発生を考慮し詳細に検討したところ、量子ドット外部に放出された単一光子の45%程度をファイバーに集光することが示され、高輝度と高安定を両立した単一光子光源の実現に至った。

3. 今後の研究の展望

IoT時代の幕は既に上がっており、多種多様なセンサーやアクチュエーターを通じて実空間とネット空間が接続されつつある。一方でサイバー攻撃等のリスクは増大していると言え、社会の持続的発展のためには強固なセキュリティを持つ通信網の確立が不可欠である。量子情報通信技術がこの観点から注目を浴びており、絶対的安全性が安定して得られるシステム開発が不可欠である。本稿で紹介した確定的光子放出が可能な量子ドット光源は、擬似的な単一光子光源のような確率過程を本質的に含まないために、応用上重要な役割を果たすと期待されている。現状で参照光を導入することで撮像素子等を必要とする像観察を行わずに結合光学系の焦点位置を検出する手法を確立し、簡便で安定動作可能な高輝度単一光子光源の実現への見通しが立ちつつある。このような量子光源は、量子鍵配達に代表される量子情報科学の基幹デバイスである一方で、単一光子の伝送距離の拡張や鍵配達のネットワーク化など、その機能を拡張するためには今回構造の最適化を議論した光共振器構造との結合や、更に量子もつれ状態の生成や識別できない光子の発生等が要求される。今回得られた成果をベースとして、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着実に研究を展開していく計画である。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) H. Kumano, T. Harada, I. Suemune, H. Nakajima, T. Kuroda, T. Mano, K. Sakoda, S. Odashima, and H. Sasakura: "Stable and efficient collection of single photons emitted from a semiconductor quantum dot into a single-mode optical fiber", *Appl. Phys. Express* **9**, 032801-1-4 (22 February 2016).
- 2) H. Kurosawa, H. Kumano, and I. Suemune: "Ultra-high Quality Factor in a Metal-embedded Semiconductor Microdisk Cavity", *Opt. Lett.* **40**, 5766-5769 (10 December 2015).
- 3) H. Sasakura, S. Muto, and H. Kumano: "Single photon interference between bidirectionally extracted photons originating from semiconductor quantum dots", *Appl. Phys. Express* **8**, 112002 (22 October 2015).
- 4) S. S. Mou, H. Irie, Y. Asano, K. Akahane, H. Nakajima, H. Kumano, M. Sasaki, A. Murayama, and I. Suemune: "Time-resolved measurements of Cooper-pair radiative recombination in InAs quantum dots", *J. Appl. Phys.* **118**, 073102 (21 August 2015).
- 5) H. Kumano, H. Nakajima, T. Kuroda, T. Mano, K. Sakoda, and I. Suemune: "Nonlocal biphoton generation in Werner state from a single semiconductor quantum dot", *Phys. Rev. B* **91**, 205437-1-6 (26 May 2015).
- 6) S. S. Mou, H. Irie, Y. Asano, K. Akahane, H. Nakajima, H. Kumano, M. Sasaki, A. Murayama, and I. Suemune: "Optical observation of superconducting density of states in luminescence spectra of InAs quantum dots", *Phys. Rev. B* **92**, 035308-1-9 (27 July 2015).
- 7) 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), 1-11 (March-April 2015) **【Invited paper】**

4.2 総説・解説・評論等

4.3 特許

4.4 講演

a. 招待講演

- 1) H. Kumano, H. Nakajima, S. Odashima, X. Liu, T. Kuroda, T. Mano, K. Sakoda, and I. Suemune: "Semiconductor quantum-dot-based quantum photon sources", *Physical Science Symposia-2015-Boston*, September 21-22, 2015, Cambridge, MA, USA.
- 2) H. Kumano: "Effect of exciton dephasing on the generated entangled biphoton states from a single quantum dot", Japan, Vietnam, Bulgaria and Taiwan Joint Workshop, July 17-20, 2015, National Chiao Tung University (NCTU), Taiwan.
- 3) H. Kumano, H. Nakajima, T. Kuroda, T. Mano, H. Kuroda, S. Odashima, R. Takemoto, X. Liu, K. Sakoda, and I. Suemune: "Single and entangled biphoton generation from semiconductor quantum dot for secure cryptographic telecommunication", Collaborative Conference on 3D & Materials Research (CC3DMR), June 15-19, 2015, BEXCO, Busan, South Korea.
- 4) H. Kumano, H. Nakajima, T. Kuroda, T. Mano, K. Sakoda, and I. Suemune: "Entangled and nonlocal biphoton generation from a semiconductor quantum dot", Energy Materials Nanotechnology (EMN Phuket Meeting 2015), May 4-7, 2015, Phuket, Thailand.

b. 一般講演

i) 学会

- 1) H. Nakajima, X. Liu, N. Ha, R. Takemoto, H. Kurosawa, T. Mano, T. Kuroda, K. Sakoda, I. Suemune, and H. Kumano: "Tolerance of Photon Entanglement in a Droplet Epitaxial Quantum Dot Grown on (111)A Surface", 2015 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2015), September 27-30, 2015, Sapporo, Japan.
- 2) H. Kumano, H. Nakajima, T. Kuroda, T. Mano, K. Sakoda, and I. Suemune: "Quantum tomographic analysis of the time-evolved nonlocal biphoton states from a semiconductor quantum dot", The 17th International Conference on Modulated Semiconductor Structures (MSS17), July 27-31, 2015, Sendai, Japan.
- 3) 村上大輔, 小田島聰, 中島秀朗, 熊野英和, 笹倉弘理:「ピラー型微細形状を有する QDinF を用いた高純度単一光子状態の生成」2016年(平成28年)春季第63回応用物理学関係連合講演会(平成28年3月19-22日、東工大大岡山キャンパス) .
- 4) 熊野英和:「量子情報通信応用に向けた半導体ナノ構造による単一光子および量子もつれ光源の研究開発」, 附置研究所間アライアンス「次世代エレクトロニクス」グループ(G1)分科会, 高知大学(高知市)(2015-11).
- 5) 中島秀朗、劉祥明、ハヌル、竹本亮、黒澤裕之、間野高明、黒田隆、迫田和彰、末宗幾夫、熊野英和:「微細構造分裂の抑制された量子ドット中性励起子状態を介した単一スピニの読み出し」, 第76回応用物理学学会秋期学術講演会、名古屋国際会議場(名古屋市)(2015-09).

- 6) 熊野英和、中島秀朗、末宗幾夫:「量子情報応用に向けた半導体量子ナノ構造物性と生成光子状態の評価」, 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・システム創成戦略プロジェクト 平成26年度成果報告会, 九州大学伊都キャンパス (2015-04).

4.5 共同研究

- 1) 篠耕司, 熊野英和, 横田晃伸, 富士原巧: 物質・デバイス領域共同研究拠点:「増感色素を用いたチタン系熱電半導体デバイスの探索」
- 2) 小田島聰, 熊野英和, 物質・デバイス領域共同研究拠点:「半導体量子ドットによるファイバー接触型単一光子発生源の開発」

4.6 予算獲得状況

- 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 (総務省SCOPE): 「光ファイバー量子ビットデバイスを用いた量子シミュレータの基盤技術開発」 (2016-2017年度)

4.7 受賞

- 1) Sinthia Shabnam Mou 平成27年度 北海道大学大塚賞

4.8 社会教育活動

- a. 公的機関の委員
- b. 国内外の学会の主要役職
- 1) 熊野英和: (公社) 日本応用物理学会北海道支部人材育成委員 (2014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、応用数学II、熊野 英和、2015年04月01日～2015年09月30日
 - 2) 工学部、統計力学、熊野 英和、2015年10月01日～2016年03月31日
 - 3) 工学部、電気電子工学実験基礎、熊野 英和、2015年10月01日～2016年03月31日
 - 4) 情報科学研究科、光電子物性学特論、熊野 英和、2015年04月01日～2015年09月30日
 - 5) 大学院共通講義、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論 II、熊野 英和、2015年11月25日～27日

i. ポスドク・客員研究員など

中島秀朗

j. 修士学位及び博士学位の取得状況

・博士学位

- 1) Mou Sinthia Shabnam: Optical Study on Proximity Effect and Cooper Pair Recombination in Semiconductor Quantum Dots (March 2016)

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～）
院生 吉竹理（DC3）、熊俊（DC3）、大島雄（DC2）、西出
大輔（MC1）、鄭鑫（MC1）

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、单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/強磁性錯体複合化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、 $\text{Cs}_2([18]\text{crown}-6)_3[\text{Ni}(\text{dmit})_2]_2$ や (anilinium) ($[18]\text{crown}-6$) $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]$ 結晶における、 $[18]\text{crown}-6$ 分子の回転運動や、anilinium (ani^+) カチオンあるいは m -fluoroanilinium ($m\text{-Fani}^+$) 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。例えれば既に報告した ($m\text{-Fani}^+$) $(\text{dibenzo}[18]\text{crown}-6)[\text{Ni}(\text{dmit})_2]$ 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によって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。わざわざ

れは以前、上述のフリップーフロップ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($\text{H}_2\text{PPD}^{2+}$)を含む超分子カチオンとマンガン-クロムオキザレート錯体($[\text{Mn}^{\text{II}}\text{Cr}^{\text{III}}(\text{oxalate})_3]$)から構築される結晶、 $(\text{H}_2\text{PPD}^{2+})(\text{benzo}[18]\text{crown}-6)_2[\text{MnCr}(\text{oxalate})_3]-(\text{CH}_3\text{OH})(\text{CH}_3\text{CN})_2$ (1) と、比較対象として一価のカチオンを有する結晶($\sigma\text{-FAni}^+$) $[\text{DCH}[18]\text{crown}-6]_2[\text{Mn}(\text{CH}_3\text{OH})\text{Cr}^{\text{III}}(\text{oxalate})_3][\text{MnCr}(\text{oxalate})_3](\text{CH}_3\text{OH})$ (2) ($\sigma\text{-FAni}^+ = m\text{-fluoroanilinium}$, $\text{DCH}[18]\text{crown}-6 = \text{dicyclohexano}[18]\text{crown}-6$) を合成し、マルチフェロイクス材料の構築に向けた設計指針を確立した。一般的にオキザレート架橋錯体は、 $(\Lambda-\Delta)$ 型の立体配置をもつマンガニイオンとクロムイオンが交互に配列することにより二次元ハニカム構造を構築する。しかし結晶1および2は、金属イオン周りの立体配置に $(\Lambda-\Lambda)$ と $(\Lambda-\Delta)$ など複数の組み合わせが現れ、特異な3次元構造を構築する。このような立体配置の組み合わせによるオキザレート錯体の構造変化、対カチオンのサイズならびに価数に大きく依存する。このようなオキザレート錯体の構造変化は、発現する磁気挙動に大きく影響するため、結晶内における分子運動と磁気挙動を融合させた新たな複合機能材料開発が可能となる。そこで本研究では、2,5-ジアミノトルエンの二プロトン化体 ($\text{DAT}-2\text{H}^{2+}$) とジシクロヘキサンオ [18] クラウン-6($\text{DCH}[18]\text{crown}-6$) から構築される超分子カチオンと $[\text{Mn}^{\text{II}}\text{Cr}^{\text{III}}(\text{oxalate})_3]^-$ からなる単結晶 ($\text{DAT}-2\text{H}^{2+})(\text{DCH}[18]\text{crown}-6)_2[\text{Mn}^{\text{II}}(\text{CH}_3\text{OH})\text{Cr}^{\text{III}}(\text{oxalate})_3]_{2-}(\text{CH}_3\text{OH})_3$ (3) を作成し、その構造と磁気挙動について検討を行った。さらに、球形構造を持ち、結晶内で複数の価数をとることができるDABCO (1,4-diazabicyclo[2.2.2]octane) のプロトン化体と $[\text{Mn}^{\text{II}}\text{Cr}^{\text{III}}(\text{oxalate})_3]^-$ 錯体を複合化した結晶 ($\text{DABCOH}^+)_2(\text{DABCO}-2\text{H}^{2+})[\text{Mn}^{\text{II}}(\text{CH}_3\text{OH})(\text{Cl}^-)\text{Cr}^{\text{III}}(\text{oxalate})_3]_{2-}(\text{CH}_3\text{OH})$ (4) も作成し、カチオンの分子形状と価数が $[\text{Mn}^{\text{II}}\text{Cr}^{\text{III}}(\text{oxalate})_3]^-$ の構造に及ぼす影響をさらに精査した。

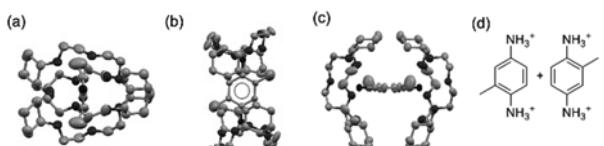


図1 結晶3における超分子カチオンの構造

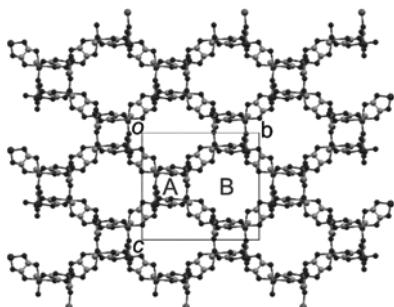


図2 結晶3における $[\text{Mn}^{\text{II}}\text{Cr}^{\text{III}}(\text{oxalate})_3]^-$ 錯体アニオンの構造

結晶3に存在するDAT- $2H^{2+}$ 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、回転軸に対し二つの水素結合部位を導入したカチオンであるが、 H_2PPD^{2+} を用いた結晶1とは異なり、メチル基には静的なディスオーダーが見られたものの、回転分子となるDAT- $2H^{2+}$ カチオン周りに分子回転に有利な広い空隙は形成されていなかった。このような嵩高いサンドイッチ型構造の超分子カチオンは、 $[Mn^{II}Cr^{II}(oxalate)_3]$ アニオン錯体の構造に大きく影響する。図2に、結晶3の a 軸方向から見たアニオン構造を示す。二次元的な層状構造を構築しているが、金属イオン周りに $[Mn(\Lambda)Cr(\Delta)(oxalate)_3]$ 型の配向をもつ $[Mn^{II}Cr^{II}(oxalate)_3]$ 錯体にみられる一般的な二次元ハニカム構造とは大きく異なる。結晶3に存在する結晶学的に独立なユニット $[Mn^{II}(\Lambda)(CH_3OH)Cr^{III}(\Lambda)(oxalate)_3]^{2-}$ は、金属イオン周りの配向が二次元ハニカム構造と異なり、さらにマンガンイオンにメタノール1分子が直接配位していることから、新規な2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4のオギザレート部位は結晶3とは異なる1次元構造を構築する(図3)。この結晶は、原料にDABCOの1プロトン化体を用いているにもかかわらず、結晶内では1プロトン化体と2プロトン化体に不均化し、それぞれが二次元のカチオン相を形成した複雑な構造を構築する。アニオン部位は、マンガンイオンにメタノール1分子と塩化物イオンがそれぞれ直接配位したユニット $[Mn^{II}(CH_3OH)(Cl^-)Cr^{III}(oxalate)_3]^{2-}$ をもち、この独立ユニットが一次元的に配列した構造を構築している。さらに、この一次元錯体とDABCOカチオン相が水素結合ネットワークを介し、交互積層構造を構築することが分かった。結晶3の2次元構造は、オギザレート錯体ではほとんど例がないスピinnキャンティングを発現する。結晶1で用いた超分子カチオンの改良により分子回転が実現できれば、様々な機能性アニオンとイオン性結晶を構築による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。フリップー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、結晶2のような水素結合ネットワーク系では、プロトン移動による機能発現も期待でき、機能性アニオンとの複合化によりマルチフェロイクス材料を代表とする新たな複合機能発現材料などへの展開が期待できる。

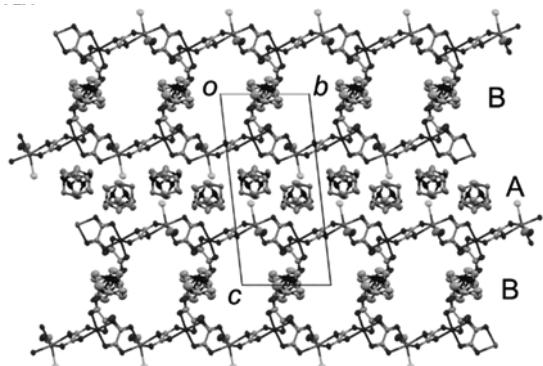


図3 結晶4の a 軸方向から見た構造

(b) 超分子ローター構造—ポリオキソメタレートハイブリッド錯体への展開

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。Keggin型のPOMは、 $[SMo_{12}O_40^{2-}]$ 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、 $[(m-XAni^+)(B-[18]crown-6)]_2[SMo_{12}O_40^{2-}]$ (Ani^+ = anilinium; $B[18]crown-6$ = benzo[18]crown-6; X = F (5), Cl (6), Br (7), I (8)), $[(4-MeAni^+)(B[18]crown-6)]_2[SMo_{12}O_40^{2-}] \cdot CH_3CN$ (9), $[(4-MeAni^+)(DB[18]crown-6)]_2[SMo_{12}O_40^{2-}] \cdot 2CH_3CN$ (10), $[(3-F-4-MeAni^+)(DB[18]crown-6)]_2[SMo_{12}O_40^{2-}] \cdot 2CH_3CN$ (11), $[(3-F-4-MeAni^+)_2(DB[30]crown-10)][SMo_{12}O_40^{2-}] \cdot 2CH_3CN$ (12) ($4-MeAni^+$ = 4-methylanilinium; $DB[18]crown-6$ = dibenzo[18]crown-6; $3-F-4-MeAni^+$ = 3-fluoro-4-methylanilinium; $DB[30]crown-10$ = dibenzo[30]crown-10)を合成し、超分子カチオンのサイズおよび価数がPOMの空隙形成に及ぼす影響を検討した。いずれの結晶もアニリニウム誘導体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。結晶5-8の超分子カチオンは結晶内において $\pi-\pi$ 相互作用を介してサンドイッチ型の二量体を形成し(図4a)、結晶12と同様に二価の超分子カチオンとして機能する。結晶5-8および12の超分子カチオンとKeggin型POMは、1:1の組成比で結晶を構築する。結晶9-11でも、隣接する超分子カチオン間にp-p相互作用がみられるが二量体は形成せず、Keggin型POMとの組成比は1:2となる。このような超分子カチオンの構造変化により、前者は矩形構造(図4)、後者は六方晶系の結晶を構築する。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超分子カチオンと様々な結晶を構築することが分かった。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、フリップー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。

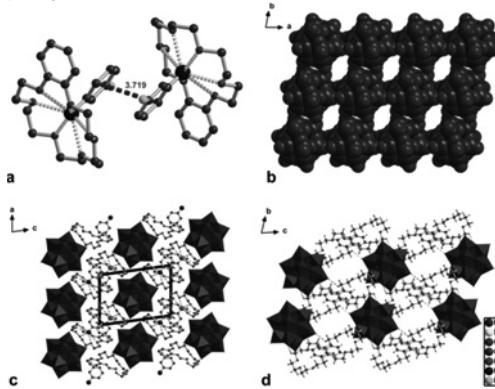


図4. 結晶3の構造

(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イオン液体中によく含まれる含フッ素アニオンに着目し、これらを骨格中に導入した新奇多孔性材料の合成とそのガス分離特性評価を行った。

含フッ素アニオンはフッ素原子の(1)強い電子吸引性に由来した電荷非局在性と(2)小さな電子分極率を示すことから、柔らかい多孔性金属錯体の構築部品として有用である。我々は含フッ素アニオンを導入することにより柔らかい金属錯体を狙って作製することに成功した。単結晶X線構造解析から、得られた結晶 $[(\text{Cu}(\text{BF}_4)_2(\text{bpp})_2] \cdot 2\text{butanone}]_n$ (**13**) $\supset 2\text{butanone}$; bpp = 1,3-bis(4-pyridyl)propane), $\{[\text{Cu}(\text{bpp})_2] \cdot 2\text{PF}_6 \cdot 2\text{acetone}\}_n$ (**14**) $\supset 2\text{acetone}$ はbpp配位子がCuイオンを架橋した一次元二重鎖構造を形成していることが明らかとなった(図5左)。脱溶媒後の微結晶の各種ガス吸着測定を行ったところ、構造変化を伴った吸着(ゲート吸着)に特徴的な等温線が観測された(図5右)。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6)。結晶**14**においては、水の共存下においても CO_2/CH_4 混合ガス分離能力が保持されることを明らかにした。以上の結果から、両結晶は吸着分離材料への応用が強く期待できる。

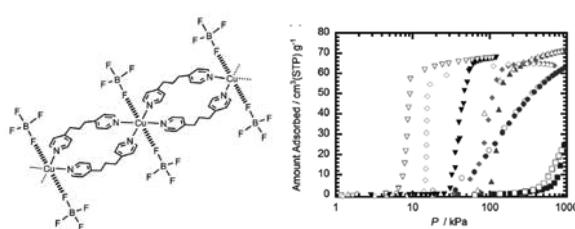


図5. 結晶**13**の構造と298Kにおけるガス吸着特性

(○ : CO_2 、□ : CH_4 、△ : C_2H_6 、◇ : C_3H_8 、▽ : $n\text{-C}_4\text{H}_{10}$)

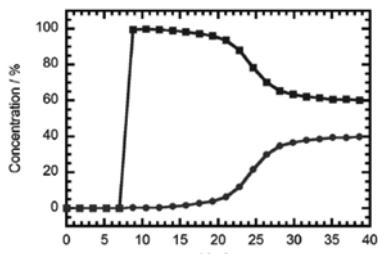


図6. 結晶**13**の298Kにおける CO_2/CH_4 混合ガス分離特性

(○ : CO_2 、□ : CH_4)

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) T. Takeda, J. Tsutsumi, T. Hasegawa, S. Noro, T. Nakamura and T. Akutagawa*, “Electron-deficient acene-based liquid crystals: dialkoxydicyanopyrazinoquinoxalines”, *J. Mater. Chem. C*, **3**, 3016–3022 (2015).
- 2) Y. Yoshii, K. Sakai, N. Hoshino, T. Takeda, S. Noro, T. Nakamura, T. Akutagawa*, “Crystal-to-crystal structural transformation of hydrogen-bonding molecular crystals of (imidazolium)(3-hydroxy-2-quinoxalinecarboxylate) through H_2O adsorption-desorption”, *CrystEngComm*, **17**, 5962–5969 (2015).
- 3) K. Takahashi, N. Hoshino, T. Takeda, S. Noro, T. Nakamura, S. Takeda, T. Akutagawa*, “Structural Flexibilities and Gas Adsorption Properties of One-Dimensional Copper(II) Polymers with Paddle-Wheel Units by Modification of Benzoate Ligands”, *Inorg. Chem.*, **54**, 9423–9431 (2015).
- 4) S. Noro*, R. Ochi, Y. Inubushi, K. Kubo, T. Nakamura*, “ CH_4/CO_2 and $\text{CH}_4/\text{C}_2\text{H}_6$ gas separation using a flexible one-dimensional copper(II) porous coordination polymer”, *Microporous Mesoporous Mater.*, **216**, 92–96 (2015).
- 5) Q. Zhang, T. Takeda, N. Hoshino, S. Noro, T. Nakamura, T. Akutagawa*, “Liquid Crystalline Phase Induced by Molecular Rotator and Dipole Fluctuation”, *Cryst. Growth & Des.*, **15**, 5705–5711 (2015).
- 6) M. Yoshitake, K. Kubo*, T. Endo, S. Noro, T. Akutagawa, T. Nakamura*, “Structural Design of Coordination Polymers Based on Manganese and Chromium Ions Bridged by Oxalate Ligands”, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, **89**, 354–360 (2016).
- 7) J. Xiong, K. Kubo*, S. Noro, T. Akutagawa, T. Nakamura*, “Self-assembled Structure of Inorganic-Organic Hybrid Crystals Based on Keggin Polyoxometallates $[\text{SMo}_{12}\text{O}_{40}^{2-}]$ and Supramolecular Cations”, *Cryst. Growth Des.*, **16**, 800–807 (2016).
- 8) K. Takahashi, N. Hoshino, T. Takeda, K. Satomi, Y. Suzuki, S. Noro, T. Nakamura, J. Kawamata*, “The crystal design of polar one-dimensional hydrogen-bonded copper coordination complexes”, *Dalton Trans.*, **45**, 3398–3406 (2016).
- 9) S. Noro*, R. Matsuda, Y. Hijikata, Y. Inubushi, S. Takeda, S. Kitagawa, Y. Takahashi, M. Yoshitake, K. Kubo, T. Nakamura*, “High CO_2/CH_4 selectivity under humidity conditions in flexible copper(II) porous co-ordination polymer”, *ChemPlusChem*, **80**, 1517–1524 (2015).

4.2 講演

招待講演

i) 国際学会

- 1) T. Nakamura*: "Functional Materials based on Ferromagnetic Coordination Polymer of Mn-Cr Oxalate", 14th Pacific Polymer Conference (PPC-14), Kauai, Hawaii, USA (2015-12)
- 2) K. Kubo*: "Molecular Motions Causing Exotic Dielectric Phenomena in The Solid State", World Congress and Expo on Materials Science & Polymer Engineering, ドバイ, UAE, (2015-11).

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) T. Nakamura*: "Molecular and ionic motions in the solid state", Core-to-Core/Leverhulme Trust Joint Workshop, Moscow 2015 "Organic Electronics of Highly-Correlated Molecular Systems", Moscow, Russia (2015-10)
- 2) 中村 貴義*、久保 和也、野呂 真一郎、芥川 智行 : 「分子回転を利用した強誘電性分子性材料の開拓」、電気情報通信学会 有機エレクトロニクス研究会(OME)、東京 (2015-11)
- 3) S. Noro* and T. Nakamura : "Functional Porous Materials Based on Metal Complexes with Ionic Coordination Bonds", 2015 RIES-RCAS Workshop, Taiwan, Taiwan (2015-11).

iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) T. Nakamura*: "Molecular Rotation in the Crystalline State", UK-Japan Joint Seminar on the Devices of Molecular Electronic Materials, 東小金井 (2015-11)

一般講演

i) 学会

- 1) R. Ochi*, S. Noro, Y. Kamiya, K. Kubo and T. Nakamura : "Flexible two-dimensional Mg(II) porous coordination polymer with isonicotinate N-oxide ligand capable of H₂O/alcohol vapor separation", International Symposium on Zeolite and Microporous Crystal 2015 (ZMPC2015), 札幌 (2015-06~07).
- 2) S. Noro*, R. Ochi, K. Kubo and T. Nakamura : "Development of Functional Light Metal Porous Coordination Polymers Using Pyridine-N-Oxide Type Ligands", 5th Asian Conference on Coordination Chemistry (ACCC5), Hong Kong, China (2015-07).
- 3) 熊俊*、久保和也、野呂真一郎、中村貴義 : "Self-assembled structure of inorganic-organic hybrid crystals based on Keggin polyoxometallates [SMo₁₂O₄₀²⁻] and supramolecular cations"、日本化学会北海道支部2015年夏季研究発表会、函館 (2015-07).
- 4) 大島雄*、久保和也、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義 : "(3-Fluoroadamantylammonium)([18]crown-6 誘導体)[Ni(dmit)₂]超分子結晶における分子運動"、日本化学会北海道支部2015年夏季研究発表会、函館 (2015-07).
- 5) 久保和也*、巖寅男、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義 : "Structure and Dielectric Properties of

- (naphthalene-1-aminium⁺) (dibenzo[18]crown-6)[Ni(dmit)₂] showing pendulum motions"、ISCOM2015、Bad Gögging, Germany (2015-09).
- 6) 高橋由紀子*、野呂真一郎、杉本邦久、久保和也、中村貴義 : "金属錯体単結晶を用いたフッ素系アニオングースト分子間相互作用の可視化"、第66回コロイドおよび界面化学討論会、鹿児島 (2015-09).
 - 7) B. Wu*, S. Takaishi, M. Yamashitao, S. Noro, M. Kawano, H. Ohtsu, T. Kojima, N. Yasuda : "Selective Gas Adsorption of Hydrogen by an Aperture Flexible Metal-Organic Frameworks", 錯体化学会第65回討論会、奈良 (2015-09).
 - 8) S. Noro*, Y. Takahashi, S. Kitagawa, K. Kubo and T. Nakamura : "Systematic Control of Hydrocarbon Adsorption/Separation Properties Using Solid Solution Type One-Dimensional Cu(II) Coordination Polymers", 錯体化学会第65回討論会、奈良 (2015-09).
 - 9) R. Ochi*, S. Noro, N. Uotani, Y. Takahashi, K. Kubo and T. Nakamura : "Synthesis of Oligosaccharides from Unprotected Monosaccharides Using Porous Coordination Polymers", 錯体化学会第65回討論会、奈良 (2015-09).
 - 10) 高橋仁徳*、星野哲久、野呂真一郎、中村貴義、芥川智行 : "水素結合鎖を持つ擬一次元Cu錯体の配位子間相互作用の制御と相転移挙動"、錯体化学会第65回討論会、奈良 (2015-09).
 - 11) 大島雄*、久保和也、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義: "ダブルデッカー型超分子カチオン(p-phenylenediamine)2(H⁺)₃(dicyclohexano[18]crown-6)3結晶の動的構造"、第9回分子科学討論会2015、東京 (2015-09).
 - 12) 兼頭寛光*、野呂真一郎、久保和也、中村貴義、綱島亮 : "アキシャル位にCH₃BF₃⁻を持つ[Cu(A)₂(py)₄]型錯体の合成と構造"、第9回分子科学討論会2015、東京 (2015-09).
 - 13) R. Ochi*, S. Noro, Y. Kamiya, K. Kubo and T. Nakamura : "Water/alcohol vapor separation using flexible two-dimensional Mg(II) coordination polymer with isonicotinic acid N-oxide ligand", The 2015 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (PacificChem2015), Hawaii Convention Center, Honolulu, Hawaii, USA (2015-12).
 - 14) M. Yoshitake*, K. Kubo, S. Nishihara, K. Inoue, T. Akutagawa, S. Noro and T. Nakamura: "Structure and physical properties of chiral [MnCr(oxalate)₃]⁻ crystals with supramolecular cations", The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies 2015(PacificChem2015), Hawaii, USA (2015-12).

- 1 5) J. Xiong*, K. Kubo, S. Noro and T. Nakamura : “Design of POMs-based self-assembled chiral crystals by induced crown ether supramolecular cations”, The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies 2015(Pacificchem2015), Hawaii, USA (2015-12).
- 1 6) Y. Ohshima*, K. Kubo, S. Noro, T. Akutagawa and T. Nakamura : “Crystal structure and physical properties of (p-phenylenediamine)₂(H⁺)₃(DCH[18]crown-6)₃ double-decker type supramolecular cation in [Ni(dmit)₂] salt”, The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies 2015(Pacificchem2015), Hawaii, USA (2015-12).
- 1 7) 西出 大輔*、久保 和也、野呂 真一郎、中村 貴義 : 「欠損型ポリオキソメタレートでサンドイッチされた三核ラントニド錯体の合成」、化学系学協会北海道支部 2016年冬季研究発表会、札幌 (2016-01)
- 1 8) R. Ochi*, S. Noro, K. Kubo and T. Nakamura : “Synthesis and structures of light metal coordination polymers using 4-(methylsulfonyl) benzoate”, 日本化学会第96春季年会, 京都 (2016-03).
- 1 9) 大島 雄*、久保 和也、野呂 真一郎、芥川 智行、中村 貴義 : “アダマンチル骨格を有する超分子ローターカチオン結晶の動的構造と誘電性”、日本化学会第96春季年会、京都 (2016-03).
- 2 0) 西出 大輔*、久保 和也、野呂 真一郎、中村 貴義: 「欠損型ポリオキソメタレートでサンドイッチされた三核ラントニド錯体の結晶構造および磁気の挙動」、日本化学会第96春季年会、京都 (2016-03)
- 2 1) X. Zheng*, S. Noro, K. Kubo and T. Nakamura : “Crystal structure and physical properties of a flexible one-dimensional porous copper complex with bulky fluorinated anions”, 日本化学会第96春季年会, 京都 (2016-03).
- 2 2) 高橋 由紀子*、野呂 真一郎、久保 和也、中村 貴義 : “細孔内部にフッ素系アニオンをとりこんだ多孔性銅錯体の構造と吸着特性”、日本化学会第96春季年会、京都 (2016-03).
- 2 3) 武田 貴志*、野呂 真一郎、川俣 純、中村 貴義、芥川 智行 : 「スルホンアミド基を有するアントラキノンの電子物性、結晶構造と溶媒吸着挙動」、日本化学会第96春季年会、京都 (2016-03).
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) 中村 貴義* : “2次元層状強磁性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界面階層制御」A03班会議、大阪 (2015-07).
 - 2) K. Kubo* and T. Nakamura : “Novel functional crystals of supramolecular cations and two-dimensional ferromagnetic metal-oxalate anion”, Core-to-Core/Leverhulme Trust Joint Workshop, Moscow 2015 “Organic Electronics of Highly-Correlated Molecular Systems”, Moscow, Russia (2015-10).
 - 3) Y. Ohshima*, Y. Yan, K. Kubo, S. Noro, T. Akutagawa and T. Nakamura : “Molecular motion in the supramolecular crystals of (3-fluoroadamantylammonium)(18-crown-6 derivatives)[Ni(dmit)₂]”, Core-to-Core/Leverhulme Trust Joint Workshop, Moscow 2015 “Organic Electronics of Highly-Correlated Molecular Systems”, Moscow, Russia (2015-10)
 - 4) D. Nishide*, K. Kubo, S. Noro and T. Nakamura : “Structure and magnetic properties of sandwich-type lanthanide polyoxometalates”, Core-to-Core/Leverhulme Trust Joint Workshop, Moscow 2015 “Organic Electronics of Highly-Correlated Molecular Systems”, Moscow, Russia (2015-10)
 - 5) 中村 貴義* : “2次元強磁性錯体を用いた機能性分子システムの開拓”、附置研究所間アライアンス「次世代エレクトロニクス」グループ (G1) 分科会 高知大学 ジョイントシンポジウム、高知 (2015-11).
 - 6) D. Nishide*, K. Kubo, S. Noro and T. Nakamura : “Crystal Structures of Sandwich-Type Lanthanide-Polyoxometalates”, The 16th RIES-Hokudai International Symposium 術, 札幌 (2015-11).
 - 7) X. Zheng*, K. Fukuhara, Y. Takahashi, K. Kubo, S. Noro and T. Nakamura : “Carbon dioxide adsorption property of a flexible one-dimensional porous coordination polymer with bulky fluorinated anions”, The 16th RIES-Hokudai International Symposium 術, 札幌 (2015-11).
 - 8) 野呂 真一郎*、中村 貴義 : “含フッ素アニオンを利用した柔らかい多孔性金属錯体の合成とその機能”、第15回東北大多元物質科学研究所研究発表会、仙台 (2015-12).
 - 9) 吉井 祐弥*、坂井 賢一、星野 哲久、武田 貴志、野呂 真一郎、中村 貴義、芥川 智行 : “キノキサリン誘導体アニオンとイミダゾリウムから成る分子集合体の水吸脱着に伴う結晶一結晶転移”、第15回東北大多元物質科学研究所研究発表会、仙台 (2015-12).
- iii) コロキウム・セミナー等・その他
- 1) 西出 大輔*、久保 和也、野呂 真一郎、中村 貴義 : 「サンドウィッチ型ラントニド-ポリオキソメタレートの結晶構造及び磁気挙動」、2015年度錯体化学若手の会北海道支部第4回勉強会、札幌 (2015-11)
 - 2) X. Zheng*, K. Fukuhara, Y. Takahashi, K. Kubo, S. Noro and T. Nakamura : “Carbon dioxide adsorption property of a flexible one-dimensional porous coordination polymer with bulky fluorinated anions”, 2015年度錯体化学若手の会北海道支部第4回勉強会、札幌 (2015-11).

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 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、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
- 2) 中村 貴義、新学術領域研究 研究領域提案型、超分子構造を包含する元素ブロック高分子の階層化と機能開拓、2015～2016年度
- 3) 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）

4.6 社会教育活動

g. 北大での担当授業（対象、講義名、担当者、期間）

- 1) 環境科学院、光電子科学特論II、中村貴義、野呂真一郎、2015年04月01日～2015年09月30日
- 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、2015年04月01日～2016年03月31日
- 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、2015年04月01日～2016年03月31日
- 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、2015年04月01日～2016年03月31日
- 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、2015年04月01日～2016年03月31日
- 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、2015年04月01日～2016年03月31日
- 7) 環境科学院、分子環境学特論III、中村貴義、野呂真一郎、2015年10月01日～2016年03月31日
- 8) 全学教育、化学II、中村貴義、2015年10月01日～2016年03月31日
- 9) 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」、中村 貴義、2015年04月24日
- 10) 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、2015年04月01日～2015年09月30日
- 11) 全学共通、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論 II、中村 貴義、2015年11月25日～2015年11月27日

i. 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）

・修士課程（2名）

- 1) 西出大輔
- 2) 鄭鑑

・博士後期課程（3名）

- 1) 吉竹理
- 2) 熊俊
- 3) 大島雄

修士学位及び博士学位の取得状況

・博士論文

- 1) 吉竹理：超分子カチオンの導入による $[\text{MnCr}(\text{oxalate})_3]^-$ -錯体結晶の複合物性開拓
- 2) 熊俊：Structural investigation of polyoxometalates self-assembled architectures induced by crown ether supramolecular cations

附属社会創造数学研究センター

研究目的

諸科学の「合意言語」である数学は、その特質から分野を問わない応用が可能するために、理論的にはあらゆる学問分野を横断する機能を持っています。本センターでは、数学・数理科学の持つ社会の難問を解決し社会を本質的に変革する潜在力を生かして、大学や企業で活躍する研究者と連携して、数学・数理科学による課題解決研究に取り組みます。具体的には、客観的に抽出される知見と仮説先行型の理論科学を融合させ、新しい研究手法の枠組みの中で実験事実に即した概念の創出を目指します。

人間数理研究分野

教 授 長山雅晴(東大院、博士(数理科学)、2012.4~)
准教授青沼仁志(北大院、博士(理学)、2015.4~)
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~)
助 教 西野浩史(岡山大院、博士(理学)、2015.4~)
技術補佐員 出羽真樹子 (2013.4~)
院生
博士課程 太田智史
修士課程 安芸勇人、南佳晃、石橋宏朗、金子美奈、
岡本守、蓑毛崇章、片山歩

1. 研究目標

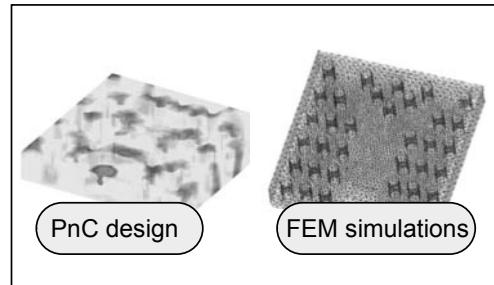
(1) 生命現象の数理解析

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、無脊椎動物などのロコモーション様式、人間や複雑な環境に適応した動物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では、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。我々はこの一連のプロセスを単に数理の範疇だけで行うのではなく、実験系研究者と緊密に連携を取りながら、生命現象に潜むメカニズムを解明していくことが目標である。

(2) フォノニック結晶における多相形状最適化

本研究の目標は多相フォノニック結晶(PnC)の性質を表現し、設計およびコントロールするための数学的なフレームワークを開発する事である。主に目指しているのは、実験を通して多相 PnC の「Band-gap」を調査し、PnC の性質を計算上で実現するためのアルゴリズム開発である。これは形状最適化により、シミュレーションにおける指定されたアクースティック性質の PnC の作成が可能になるとを考えている。数学的な観点からは、PnC の位相的、および多相形状解析、それに伴う数値解法の開発を行う。ここでは該当する形状最適化問題における適切な評価汎関数の構成を重視し、compactness を得るために形状最適

化手法に対する評価汎関数の合成挙動を理解することが重要である。計算機上で設計した PnC の性質のシミュレーションを行い、これを実験結果と比較することにより数学の理論の発展を導き出す計画である。



2. 研究成果

(1) 表皮構造の数理解析

今年度は、真皮形状変形を伴う表皮構造モデルの構築を行った。真皮形状は弾性体と仮定して離断弾性体モデルを構築した。この数値計算から、真皮が変形したときに表皮幹細胞は真皮の凸部分の頂点近くにある結果が得られた。この結果から分裂能の高い細胞(基底膜と強く接着している細胞)は真皮乳頭層の頂点近くにあることが示唆された。また、異常細胞分裂、異常分化を起こすと、数理モデルからは真皮が凹んで、角層が表皮部分に侵入する「鶏眼」の再現に成功した。さらに、分裂分裂速度だけが速い場合には、乾癬に見られる表皮が正常表皮よりも分厚くなる現象が数値計算から得られた。

真皮乳頭層の凹凸に対して角層は比較的フラットに保たれていることが知られているが、その要因を示すために連続モデルを構築し、その解析を行った。その結果、細胞外 Ca^{2+} 濃度変化に依存して分化が進む割合よりも、細胞内 Ca^{2+} 濃度変化に依存して分化が進む割合が高いことが重要であることがわかった。この結果を真皮変形を伴う表皮構造モデルに適応すると細胞内 Ca^{2+} 濃度変化による分化の割合を高くした場合に、真皮の変形に比べ、角層がフラットに保たれることがわかった。

(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。すでに、現象を再現する数理モデルの基盤は構築しているため、得られた数理モデルから本現象の普遍性を抜き出すために、昨年度に引き続き数学解析を行っている。数理モデルは4変数モデルとそれを縮約した1変数モデルからなる。すでに1変数モデルの1次元上における解析では、適切な境界条件を設定することで、回転解が安定になることを証明している。しかしながら、平面内細胞極性は2次元における現象であるため、本解析だけでは不十分である。そこで、本年度は1変数モデルの2次元系における数学解析に重点をおいて研究を行った。解析は細胞数を徐々に増やしながら解の構成し、その安定性を計算機による固有値解析で評価するという方法である。その結果、細胞数の増加に伴って、系的最大固有値が正数の範囲で小さくなるというものであった。これは本系が very slow 系であることを示唆する重要な結果である。その一方で系が本当に very slow 系であるならば、計算機による方法では最大固有値の計算限界をすぐに超えてしまうため、この手法だけでは危険である。そこで、無限多倍長システムをもつ計算機ソフトにおいて、本問題を再解析した。その結果、1000 行という非常に大きい行数における解析において、ある細胞数より大きな細胞数では、最大固有値が負数となることがわかった。のことから本系は安定なモードをもつ系であることが、非常に高い確度でわかった。

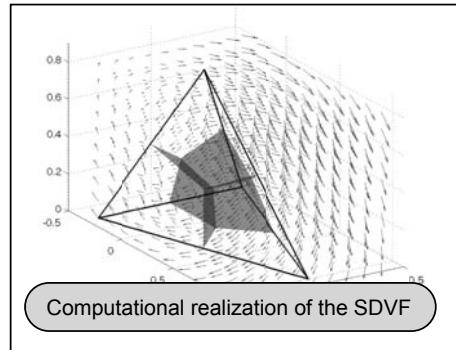
(3) 液滴運動モデルの数理解析

化学反応を伴う液滴運動を記述する数理モデルを膜弹性体の方程式に体積保存条件を加えた形で構築した。この数理モデルは液滴の分裂や融合再現できる点で、他の数理モデルにはない利点を持っている。この数理モデルを用いてペントナール液滴の変形を伴う並進運動、分裂現象、反射現象、融合現象の再現に成功した。また、この数理モデルはエネルギーフォームで書かれているため、その数値計算に離散勾配流法を用いた。

(4) 動く界面の数理解析

フォノニック結晶における多相形状最適化

平成27年度は、PnCを数理的に表現するためのフレームワークを作成することを進めた。これまでの研究により、本研究の signed distance vector field(SDVF)により、多相領域の形状を指定することが出来ると分かった。これはPnCのシミュレーションを行うための基盤であるので3次元SDVFを計算上で作成することができた。



(5) 適応的な行動発現の制御構造とその設計原理

ダイナミックに変化する環境の中で適応的な行動を実時間で実現する脳の設計原理を理解するため、クロコオロギ、クロコヤマアリ、クモヒトデなどを実験材料として使い、動物に普遍的にみられるロコモーションや攻撃行動などが外場（個体を取り巻く環境や他者が存在する社会環境）の変化に応じて変容するメカニズムを研究した。攻撃行動の発現機構では、攻撃の動機付けにかかる脳内の神経修飾機構の時間発展について調べ、その結果をもとに、個体が社会環境の変化に応じて行動を変容させる神経生理機構の動的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から、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社会環境における行動の実時間適応には重要であることが明らかになった。一方、ロコモーションの発現では、身体と場との相互作用によって生み出される適応的な運動を理解するため、X線マイクロCTを用いた身体の無破壊観察を取り入れた。得られた3次限構造をもとにロボットを設計し、実際の生物の制御機構を調べるプラットホームの開発を進めている。

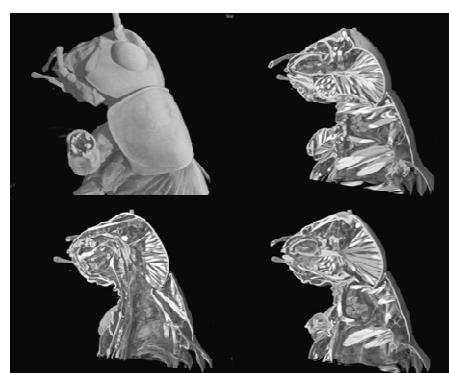


図1:X線マイクロCTを用いて無破壊で昆虫の神経・筋・骨格系の構造を観察した。

(6) 昆虫を用いた感覚情報処理の実験解析

人間よりも比較的単純な神経系を持つ昆虫をモデルとした感覚情報処理についての研究も進めている。注目しているのが、嗅覚情報処理および聴覚情報処理である。地上性昆虫の多くは空気揺らぎの少ない状況下において正確に匂い源定位できる。まず、ゴキブリのフェロモン応答性介在神

経が触角（匂いセンサー）と直交する異なる方向からの刺激に対して異なる時間的パターンを持つスパイク応答を示すことを発見した。この応答は匂いセンサーである触角内の嗅覚細胞が場所に応じて脳の異なる領域に情報を伝送することに起因する（Nishino et al., 2015）。また、コオロギにおける音の周波数弁別が、1. 鼓膜での音検出、2. 気管による音圧増幅、3. 周波数依存的な流体の移動、からなり、哺乳類の蝸牛での周波数弁別の仕組みと類似していることを発見した。

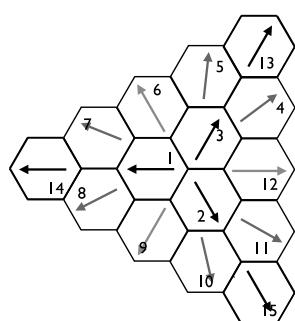
3. 今後の研究の展望

(1) 表皮構造の数理モデル

今年度は真皮の変形を伴う数理モデルを構築したが、来年以降は、真皮変形を伴う角層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とを考えていく。真皮の形状がない場合の指標が有効であるか、あるいはもっと普遍的な指標があるか調べていく。また、皮膚の老化現象を角層バリア機能の視点から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、皮膚疾患の中で角化症に焦点を合わせ、臨床皮膚科医との共同研究によって病態再現を行いたい。これによって、発症要因の不明な皮膚疾患（例えば、乾癬）について、発症要因解明の一手段として数理科学的手法が使える可能性を示したい。

(2) 細胞極性の数理

本系が非常に高い確度で安定な系を持つことが示されたが、これをもってしても、厳密な証明になっているわけではない。そこで、次年度は本問題を数学的に証明することを主目標とする。無限多倍長演算において安定性を示す様な比較的小さいの細胞数であれば、区間演算を用いた精度保証計算システムを用いることで、最大固有値を厳密に評価できるはずである。そこで、精度保証計算のエキスパートである早稲田大学の大石研究室の高安氏と共に共同研究を行い、本問題を肯定的に解決するねらいがある。予備的な調査から、精度保証付き数値計算法を用いた固有値解析アルゴリズムが存在することがわかつている。従って、本問題の真の解を含むような狭い区間幅を見つけることができれば、本問題は解決可能であると考えている。



上図は不安定な毛のパターンを示す。この細胞数よりも大きな

細胞数では、パターンが安定化することを示したい。

(3) 液滴運動モデルの数理解析

来年度は液滴運動を体積保存条件付きの Phase-Field 方程式で表現した数理モデルに対して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したい。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、あるいは異なる分岐構造をとるのか詳細に調べる。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) フォノニック結晶における多相形状最適化

評価汎関数の領域撮動におけるenergy landscapeを理解することは形状解析では困難であるため、Traction法などからの形状解析理論を導入することにより、当理論を発展したいと考えている。同時に、globalとlocalのoptimizerにおける存在性と一意性を確立する条件の解明を目指す。ここでは適切な初期条件の設定は不可欠であるため、数理的な公式を使わず3次元スキャニングや画像処理を重視している。さらに、sonic cloakingのディバイス等を作成するため、センサーの設計および acoustic metamaterialsを研究し、これらの数理構造を表現する計画である。また、3相のPnC「band structure」を形状最適化問題として着目し研究を手がけたい。これについてはSDVFを使用し、相のtopologyを制御することにより取り組む予定である。また、実験の設定に沿うような、適切なモデル方程式についても研究したい。

(5) 身体と脳と環境の相互作用によって生まれる適応行動の解析

X線マイクロCTを使ったイメージングでは、空間分解能が $10 \mu\text{m}$ ほどで詳細な身体や神経系の構造をデジタルデータとして取得できる。このデジタルデータをもとに、実際の動物の構造を、硬さを連続的に変えて出力できる3Dプリンターで印刷し、運動解析のプラットフォームの構築を目指す。そのためには、骨格や筋肉や神経系などを分けるセグメンテーションの作業が必要である。ところが、異なる組織が隣り合う領域の境界面は、目視ではわかりやすいが、計算機に自動で処理させようと思うと非常に困難である。そこで、このセグメンテーションの作業を自動化し、効率よく様々な動物の神経・筋・骨格系の3dデジタルデータを取得し、そのデータベースを構築することを目指す。

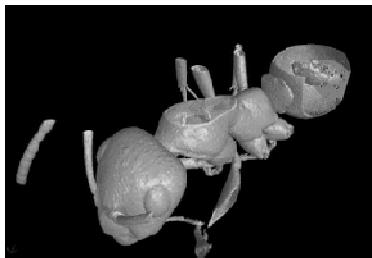


図2:X線マイクロCT像から骨格の3Dデータを抜き取り外骨格を3Dプリンターで再構築する。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) K. Nagai, K. Tachibana, Y. Tobe, M. Kazama, H. Kitahata, S. Omata and M. Nagayama, "Mathematical model for self-propelled droplets driven by interfacial tension, to appear in Journal of Chemical Physics, 144, 114707 (2016).
- 2) Y. Kobayashi, Y. Sawabu, H. Kitahata, M. Denda, M. Nagayama, "Mathematical model for calcium-assisted epidermal homeostasis", Journal of Theoretical Biology.
- 3) K. Takei, S. Denda, M. Nagayama, M. Denda, "Role of STIM1-Orail system in intracellular calcium elevation induced by ATP in cultured human keratinocytes", Ex-pDermatol (2016), DOI: 10.1111/exd.12928.
- 4) J. Kumamoto, M. Tsutsumi, M. Goto, M. Nagayama and M. Denda, "Japanese Cedar (*Cryptomeria japonica*) pollen allergen induces elevation of intracellular calcium in human keratinocytes and impairs epidermal barrier function of human skin ex vivo", Arch Dermatol Res, (2015), DOI: 10.1007/s00403-015-1602-y.
- 5) Y. Kobayashi, H. Kitahata, and M. Nagayama, "Model for calcium-mediated reduction of structural fluctuations in epidermis", Physical Review E 92(2015), 022709.
- 6) T. Mori, K. Kuto, M. Nagayama, T. Tsujikawa, S. Yotsutani, "Global bifurcation sheet and diagrams of wave-pinning in a reaction-diffusion model for cell polarization", Dynamical Systems, Differential Equations and Applications AIMS Proceedings, (2015), 861- 877.
- 7) J. Kumamoto, H. Kitahata, M. Goto, M. Nagayama and M. Denda, "Effects of medium flow on axon growth with or without nerve growth factor", Biochemical and Biophysical Research Communications, DOI:10.1016/j.bbrc.2015.07.104.
- 8) K. Nishi, T. Ueda, M. Yoshii, Y. S. Ikura, H. Nishimori, S. Nakata and M. Nagayama, "Bifurcation phenomena of two self-propelled camphor disks on an annular field depending on system length", Phys.Rev.E 92(2015), 022910.
- 9) M. Tsutsumi, H. Kitahata, M. Fukuda, J. Kumamoto, M. Goto, S. Denda, K. Yamasaki, S. Aiba, M. Nagayama and M. Denda, "Numerical and comparative three-dimensional structural analysis of peripheral nerve fibers in epidermis of atopic dermatitis patients", British Journal of Dermatology, (2015), DOI: 10.1111/bjd.13974.
- 10) M. Tsutsumi, M. Fukuda, J. Kumamoto, M. Goto, S. Denda, K. Yamasaki, S. Aiba, M. Nagayama and M. Denda, "Abnormal Morphology of Blood Vessels in Erythematous Skin From Atopic Dermatitis Patients", The American journal of dermatopathology, (2015), DOI: 10.1097/DAD.0000000000000373.
- 11) S.-I. Ei, K. Ikeda, M. Nagayama and A. Tomoeda, "Reduced model from a reaction-diffusion system of collective motion of camphor boats", Discrete and Continuous Dynamical Systems Series-S, 8(5)(2015), 847-856.
- 12) 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.
- 13) Ohkawara, K. and Aonuma H. (2016) Changes in the levels of biogenic amines associated with aggressive behavior of queen in the social parasite ant *Vollenhovianipponica*. Insectes Sociaux. doi:10.1007/s00040-016-0461-7. (published online first)
- 14) Newland P.L., al Ghadri M., Sharkh S., Aonuma H. and Jackson C.W. (2015) Exposure to static electric fields leads to changes in biogenic amine levels in the brains of *Drosophila*. Proc. Roy. Soc. B., doi: 10.1098/rspb.2015.1198.
- 15) 高橋悟, 奥田泰丈, 川端邦明, 青沼仁志, 佐藤雄隆, 岩田健司 (2016) クロコオロギの行動解析に向けた動画像計測手法 (英語表題: Method of dynamic image measurement for analyzing of cricket behavior). J. Signal Processing「信号処理」. 20 (2): 65-74.
- 16) 小林充, 片岡崇, 青沼仁志, 柴田洋一 (2015) ヨトウガの性フェロモンに対する触角電位応答. (英語表題: Response of the bioelectric potential within antenna of *MamestraBrassicae* against sex pheromone). 農業食料学会誌, 77(3): 179-185.
- 17) E. Ginder, K. Svadlenka. "Wave-type threshold dynamics and the hyperbolic mean curvature flow." Submitted, (2016).
- 18) E. Ginder. "On an approximation scheme for oscillatory interfacial motions." Proceedings of the 40th Sapporo Symposium on Partial Differential Equations, (2015).
- 19) E. Ginder, K. Svadlenka. "On an approximation method for hyperbolic mean curvature flow." RIMS Kokyuroku, (2016).

- 20) H. Nishino, H. Watanabe, I. Kamimura, F. Yokohari, 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.

4.2 総説・解説・評論等

- 1) 長山雅晴, 小林康明, 澤武祐輔, 久保実沙貴, 傳田光洋, 中田聰, 北畠裕之, "表皮構造の数理モデル", 京都大学数理解析研究所講究録", 1957(2015)155–168.
- 2) 長山雅晴, 小林康明, 澤武裕輔, 久保実沙貴, 傳田光洋, 北畠裕之, 中田聰, "真皮形状を考慮した皮膚構造の数理モデリング", 計算工学講演会論文集, 20(2015),
- 3) 小林康明, 北畠裕之, 長山雅晴, "表皮の連続体モデルによる真皮形状と角層形状についての解析", 計算工学講演会論文集, 20(2015)
- 4) 西野浩史, 渡邊英博, "振動・聴覚受容器のかたちとはたらき", 昆虫と自然, 669(10) : 4–8 (2015)

4.3 國際会議議事録等に掲載された論文

- 1) 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, Mathematics for Industry 18(H.Ochiai, K. Anjyo Eds.) , 119–124(2015), Springer.
- 2) 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, Mathematics for Industry 11(R.S. Anderssen et al. Eds.), 121–126(2015), Springer.
- 3) Aonuma H., Goda M., Kuroda S., Kano T., Owaki D. and Ishiguro A. (2015) Cricket switches locomotion patterns from walking to swimming by evaluating reaction forces from the environment. *The 7th Int. Symp. on Adaptive Motion in Animals and Machines.*

4.4 講演

a. 招待講演

i) 学会

- 1) M. Nagayama, Y. Sawabu, Y. Kobayashi, J. Kumamoto, M. Denda, S. Nakata and H. Kitahata, Mathematical modeling for the barrier function of the stratum corneum, The 6th Annual Congress of Pan Asian-Pacific Skin Barrier Research Society, Okayama Convention center (Okayama, Japan), December 13th, 2015

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 2) 非線形科学研究の動向(自走粒子運動について), 非線

形科学と時間学の交流ワークショップ, 山口大学(常磐キャンパス)(山口県・宇部市), 2016年3月25~26日

- 3) 長山雅晴, 小林康明, 澤武裕輔, 傳田光洋, 北畠裕之, 中田聰、皮膚科学に対する数理科学的アプローチ, 非線形現象の数値シミュレーションと解析2016, 北海道大学(北海道・札幌市), 2016年3月7日~8日
- 4) 長山雅晴、体積保存反応拡散系に現れるスポット運動, アクティブマター研究会, 九州大学(福岡県・博多市), 2016年1月22日~23日.
- 5) M. Nagayama, Y. Sawabu, Y. Kobayashi, J. Kumamoto, M. Denda, S. Nakata and H. Kitahata, Mathematical modeling for the barrier function of the stratum corneum, Second joint workshop of China-Japan-Korea A3 foresight program, Universitas Amoensis (Xiamen, China), November 27th–28th, 2015.
- 6) M. Nagayama, The collective motion of camphor papers in a annular water channel, Tongji University (Shanghai, China), October 26th– 27th, 2015.
- 7) 青沼 仁志 :「昆虫の個体間相互作用による攻撃性の変容メカニズムの理解」、計測自動制御学会・分子ロボティクス研究会定例会「分子ロボットの知能～ロジカルなシステムをいかに構築するか～」、北海道大学理学部7号館 2015年5月23日
- 8) 青沼 仁志 :「昆虫の社会行動にみられる自己と他者の非分離性」、計測自動制御学会 第28回自律分散シンポジウム OS:コトロジー創成、広島大学 2016年1月22日
- 9) M. Akiyama, T. Ayukawa, M. Yamazaki, A Mathematical Model of Planar Cell Polarity、Mini-workshop on “A crossroad of biology and mathematics –Model and Computation–”、北海道大学、2015年4月30日–5月1日
- 10) 秋山正和、手老篤史、小林亮、卵割の数理モデル、細胞運動系研究交流セミナー、北海道・大滝セミナーハウス、2015年7月4日–7月5日
- 11) 秋山正和、鮎川友紀、山崎正和、平面内細胞極性の数理モデル、京都駅前セミナー、キャンパスプラザ京都、2015年4月24日
- 12) 秋山正和、鮎川友紀、山崎正和、平面内細胞極性の数理モデル、共同利用・共同研究拠点 MIMS 現象数理学拠点共同研究集会「自然、社会に現れる複雑現象の数理」、明治大学、2015年10月5日–10月7日
- 13) 秋山正和、鮎川友紀、山崎正和、平面内細胞極性の数理モデル、基生研研究会「物理学は生物現象の謎を解けるか」、基礎生物学研究所、2016年1月5日–1月6日
- 14) Elliott Ginder. 2016 NCTS Workshop on Applied Mathematics at Tainan. "On a vector field embedding of multiphase geometries" 2016年3月28日
- 15) Elliott Ginder. Symposium on "Spatio-temporal Pattern Formation under Nonequilibrium Conditions." "A mathematical approach to the modeling of interfacial ac-

- tive matter” 2016年2月22日
- 16) Elliott Ginder. RIMS研究集会:現象解明に向けた数值解析の新発展.“On an approximation method for hyperbolic mean curvature flow” 2015年11月20日
 - 17) Elliott Ginder. Tongji University Workshop on Applied Mathematics. “A line mass approach to the modeling of some interfacial active matter” 2016年10月27日
 - 18) Elliott Ginder. The 40th Sapporo Symposium on PDE. “On an approximation scheme for oscillatory interfacial motions” 2015年8月20日
 - 19) Elliott Ginder. 数学と現象 in 伊豆大島.「On the use of minimizing movements in applications」2015年7月30日
 - 20) Elliott Ginder. Hokkaido University PDE Seminar. “A minimizing movement approach to constrained distributed parameter systems” 2015年4月20日
- iii) コロキウム・セミナー等・その他
- 1) 長山雅晴, 小林康明, 傳田光洋, 北畠裕之, 中田聰、表皮構造の数理モデリング～病態再現を目指して～, 北大皮膚科特別講演(北海道・札幌市), 2016年2月24日
 - 2) 長山雅晴, 小林康明, 西慧, 井倉弓彦, 中田聰、樟脳粒子の集団運動に対する数理解析, 岐阜数理科学セミナー, 岐阜大学(岐阜県・岐阜市), 2015年7月15日
 - 3) 長山雅晴, 小林康明, 南佳晃, 澤武裕輔, 傳田光洋, 北畠裕之, 中田聰、表皮構造の数理モデリング～表皮パリア機能の恒常性維持について～, 談話会, 徳島大学(徳島県・徳島市), 5月22日
 - 4) 秋山正和、数学のメガネで生物を見てみよう！、サイエンス・カフェ、札幌市(駅前紀伊國屋書店1F)、2015年11月19日
 - 5) 秋山正和、鮎川友紀、山崎正和、平面内細胞極性の数理モデル、N.L.P.M. コロキウム、広島大学、2015年5月22日
- b. 一般講演
- i) 学会
- 1) 安芸勇人, 小林康明, 中川淳一, 長山雅晴、鉄鉱石焼結の空隙形成に対する数理科学的アプローチ, 応用数学合同研究集会, 龍谷大学(滋賀県・大津市), 12月17日～19日
 - 2) 南佳晃, 佐藤純, 三浦岳, 長山雅晴、Proneural waveの数理モデリング, 応用数学合同研究集会, 龍谷大学(滋賀県・大津市), 12月17日～19日
 - 3) 小林康明, 北畠裕之, 長山雅晴、長距離結合を持つ弱興奮系における振動ダイナミクス, 応用数学合同研究集会, 龍谷大学(滋賀県・大津市), 12月17日～19日
 - 4) 小林康明, 北畠裕之, 長山雅晴、表皮幹細胞ダイナミクスと真皮形状の関係, 日本応用数理学会年会, 金沢大学角間キャンパス(石川県・金沢市), 9月9日～11日
 - 5) 西慧, 若井健, 上田知明, 吉井美優, 井倉弓彦, 西森拓, 中田聰, 長山雅晴、円環水路上の2個の樟脳ろ紙がみせる運動の数理解析, 日本応用数理学会年会, 金沢大学角間キャンパス(石川県・金沢市), 9月9日～11日
 - 6) 中田聰(広島大学), 田中晋平, 長山雅晴、自己駆動系で作るリズムと秩序, 日本応用数理学会年会, 金沢大学角間キャンパス(石川県・金沢市), 9月9日～11日
 - 7) 傳田光洋(資生堂), 長山雅晴、表皮恒常性維持機構におけるカルシウムイオンの役割, 日本応用数理学会年会, 金沢大学角間キャンパス(石川県・金沢市), 9月9日～11日
 - 8) M. Nagayama, K. Wakai, K. Nishi, Y. Kobayashi, Y. Ikura, S. Nakata, The collective motion of camphor papers in an annular water channel, ICIAM 2015, Beijing (China), August 10th-14th, 2015,
 - 9) 長山雅晴, 小林康明, 久保実沙貴, 澤武裕輔, 傳田光洋, 北畠裕之, 中田聰、真皮形状を考慮した表皮構造の数理モデリング, 計算工学講演会, つくば国際会議場(茨城県・つくば市), 6月8日～10日
 - 10) 小林康明, 北畠裕之, 長山雅晴、表皮の連続体モデルによる真皮形状と角層形状についての解析, 計算工学講演会, つくば国際会議場(茨城県・つくば市), 6月8日～10日
 - 11) F. Kimura, H. Aonuma, T. Sato and M. Sakura : “Change in biogenic amine levels in the narrow-winged mantis Tenoderaangustipennis caused by the parasitic horsehair worm Chordodes sp.”, 第40回日本比較内分泌学会・第37回日本比較生理生化学会 合同大会(CompBiol 2015 広島大会), 広島市JMSアステールプラザ 2015年12月11-13日
 - 12) R. Okada, H. Ikeno, T. Kimura, M. Ohashi, H. Aonuma and E. Ito : “Behavioral pattern of a follower bee during the honeybee dance communication”, 第40回日本比較内分泌学会・第37回日本比較生理生化学会 合同大会(CompBiol 2015広島大会), 広島市JMSアステールプラザ 2015年12月11-13日
 - 13) R. Matsuo, M. Tanaka, R. Fukata, S. Kobayashi, H. Aonuma and Y. Matsuo : “Octopaminergic system in the brain of the terrestrial slug Limax”, 第40回日本比較内分泌学会・第37回日本比較生理生化学会 合同大会(CompBiol 2015広島大会), 広島市JMSアステールプラザ 2015年12月11-13日
 - 14) 渡邊 崇之、宇賀神 篤、青沼 仁志 : 「原始的な不完全昆虫脳で発現する最初期遺伝子の探索」、日本動物学会第86回大会、新潟コンベンションセンター 朱鷺メッセ 2015年9月17-19日
 - 15) T. Ono, T. Kano, H. Aonuma and A. Ishiguro : “Intra-limb Coordination Mechanism of Ophiuroid Locomotion”, Joint meeting of the 5th China-Japan-Korea Colloquium on Mathematical Biology and the 25th Annual Meeting of the

- Japanese Society for Mathematical Biology, 同志社大学
今出川キャンパス 2015年8月26-29日
- 16) T. Watanabe, U. Atsushi and H. Aonuma : "Neurogenetics in the field cricket *Gryllusbimaculatus* - a novel experimental approach to understand neural/molecular bases of instinctive behaviors of basal insects", 13th ISIN Symposium on the Neurobiology of Invertebrates, Tihany, Hungary 2015年8月26-30日
 - 17) T. Watanabe and H. Aonuma : "Sex-determination genes in the cricket brain - identification, expression and molecular evolution", 13th ISIN Symposium on the Neurobiology of Invertebrates, Tihany, Hungary 2015年8月26-30日
 - 18) 渡邊 崇之、青沼 仁志 :「不完全変態昆虫脳で発現する性決定因子の解析」、日本進化学会第17回東京大会、中央大学後楽園キャンパス 2015年8月20-23日
 - 19) R. Sakai, M. Shimizu, H. Aonuma and K. Hosoda : "Visualizing wakes in swimming locomotion of *Xenopus*-noid by using PIV", The 4th International Conference on Biomimetic and Biohybrid Systems, Living Machines 2015, La Pedrera Barcelona, Spain 2015年7月28-31日
 - 20) H. Aonuma, M. Goda, S. Kuroda, T. Kano, D. Owaki and A. Ishiguro : "Cricket switches locomotion patterns from walking to swimming by evaluating reaction forces from the environment", The 7th International Symposium on Adaptive Motion of Animals and Machines (AMAM2015), MIT, USA 2015年6月21-25日
 - 21) 小野 達也、加納 剛史、青沼 仁志、松坂 義哉、石黒 章夫 :「環境からの手応えを活用するクモヒトデのロコモーションに内在する自律分散制御則」、ロボティクス・メカトロニクス講演会、京都市勧業館「みやこめっせ」 2015年5月17-19日
 - 22) M. Akiyama, T. Ayukawa, M. Yamazaki, A Mathematical Model of Planar Cell Polarity、国際学会ICIAM2015、北京、2014年8月9日-8月15日
 - 23) 秋山正和、鮎川友紀、山崎正和、平面内細胞極性の数理モデル、応用数理学会、金沢大学、2015年9月9日-9月11日
 - 24) 秋山正和、鮎川友紀、山崎正和、平面内細胞極性の数理モデル、応用数学合同研究集会、龍谷大学、2015年12月17日-12月19日
 - 25) 岡本守、長山雅晴、小林康明、金子美奈、秋山正和、樟脳の自律運動に対する対流の影響、応用数学合同研究集会、龍谷大学、2015年12月17日-12月19日
 - 26) 石橋宏朗、乾ちひろ、岸本光司、船山典子、秋山正和、カイメンの骨格形成に対する数理モデルの構築、応用数学合同研究集会、龍谷大学、2015年12月17日-12月19日
 - 27) Elliott Ginder. 日本応用数理学会 2015 年度年会、「Patterns in some string and rod-like active matter systems」 2015年9月11日
 - 28) 高橋 直美、加藤 巧、渡邊 英博、水波 誠、西野 浩史、Complete identification of four types of calycal giant interneurons in an insect brain、CompBiol 2015 広島大会、JMS アステールプラザ、2015年12月11日-12月13日
 - 29) 加藤 巧、岩崎 正純、水波 誠、西野 浩史、Dormitory effect in cockroaches: synchronization of assexualootheca production in females」、CompBiol 2015 広島大会、JMS アステールプラザ、2015年12月11日-12月13日
 - 30) 西野 浩史、Traditional insect hearing organ revisited: key anatomical feature for frequency discrimination」、CompBiol 2015 広島大会、JMS アステールプラザ、2015年12月11日-12月13日
 - 31) 西野 浩史、岩崎 正純、加藤 巧、高橋 直美、单一ニューロンによる匂いの方向検出、日本動物学会第86回大会、朱鷺メッセ(新潟市)、2015年9月17日-9月19日
 - 32) 渡邊 英博、西野 浩史、高梨 琢磨、横張 文男、マツノマダラカミキリ弦音器官がもつセロトニン免疫陽性の細胞内微細構造、日本動物学会第86回大会、朱鷺メッセ(新潟市)、2015年9月17日-9月19日
 - 33) T. Takanashi, M. Fukaya and H. Nishino, Substrate vibrations mediate behavioral responses via leg chordotonal organ in the Japanese pine sawyerbeetle", 15th International Meeting on Invertebrate Sound & Vibration, Lord Elgin Hotel, Ottawa, Ontario, Canada、2015年7月13日-7月17日
 - 34) H. Mukai, H. Nishino and T. Takanashi, Vibratory signals detected by leg chordotonal organs enhance mating success in a jewel bug", 15th International Meeting on Invertebrate Sound & Vibration, Lord Elgin Hotel, Ottawa, Ontario, Canada、2015年7月13日-7月17日
 - 35) 加藤 巧、岩崎 正純、水波 誠、西野 浩史、ゴキブリのグループ効果:单為生殖における卵鞘形成同調、日本昆虫学会第76回大会・第60回日本応用動物昆虫学会・合同大会、大阪府立大学、2015年3月26日-3月29日
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) 長山雅晴、現象の数理モデリングと反応拡散系、阿波セミナー2016「非線形現象の数理解析」、徳島大学(徳島県・徳島市), 2016年3月9日
 - 2) 長山雅晴、真皮形状変形の数理モデルについて、第4回皮膚の会、淡路夢舞台国際会議場(兵庫県・淡路市), 2016年3月5日~6日
 - 3) 岡本守、秋山正和、樟脳の自律運動に対する対流の影響、第 9 回応用数理研究会、休暇村能登千里浜、2015年8月19日-8月21日
 - 4) 石橋宏朗、秋山正和、船山典子、海綿の数理モデルについて、第 9 回応用数理研究会、休暇村能登千里浜、2015年8月19日-8月21日
 - 5) 秋山正和、腸捻転問題について、細胞移動とパターン形

- 成について、1次元形態形成モデルに関する、新学術領域研究(研究領域提案型)「生物の3D形態を構築するロジック」班会議、大阪府・ホテルコスモスクエア国際交流センター、2015年10月30日-10月31日
- 6) 秋山正和、皺の問題についての研究紹介、第19回折り紙の科学・数学・教育 研究集会、金沢市、2015年11月7日
 - 7) 石橋宏朗、秋山正和、海綿の数理モデルについて、京都大学・船山研究室、2015年6月17日-6月19日
 - 8) M. Akiyama, T. Ayukawa, M. Yamazaki, A Mathematical Model of Planar Cell Polarity、Mini-workshop on Collaborative study with mathematics and biology for dermatology、北海道大学、2015年9月25日-9月26日
 - 9) 石橋宏朗、秋山正和、カイメンの数理モデル、京都大学船山研究室、2016年3月4日
 - 10) Elliott Ginder. 北陸応用数理研究会2016.“On a vector field embedding of multiphase geometries” 2016年2月19日
 - 11) Elliott Ginder. 数理科学分野横断若手連携セミナー.“On a vector field embedding of multiphase geometries” 2016年2月12日
 - 12) Elliott Ginder. Workshop on new trends in patterns and waves. “On the motion of line masses in some active matter motions” 2015年8月18日

iii) コロキウム・セミナー等・その他

なし

4.5 特許

- 1) T. Takanashi, W. Ohmura, E. Ohya, Y. Kuboshima, T. Mori, T. Koike, H. Nishino. Method for controlling insect pest by vibration. US9107399B2、2015年4月20日登録
- 2) T. Takanashi, W. Ohmura, E. Ohya, Y. Kuboshima, T. Mori, T. Koike, H. Nishino. Method for controlling insect pest by vibration. Method for controlling insect pest by vibration. AU2010293497、2015年8月18日登録
- 3) 高梨琢磨、大村和香子、大谷英児、久保島吉貴、森輝夫、小池卓二、西野浩史、特許5867813号、2016年1月15日登録

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、2014年度～2015年度
- 2) 長山雅晴、株式会社資生堂、表皮構造モデルの構築、2015年度
- 3) 長山雅晴、中田聰（広島大）、北畠裕之（千葉大）、自走粒子運動の数理解析、2012年度～2015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～2015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、2012～2015年度
- 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）、テラヒメナの容器記憶現象に対する数理モデルに関する研究、2012～2015年度
- 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、2012～2015年度
- 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、2013～2015年度
- 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、2013～2015年度
- 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、2014～2015年度
- 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、2013～2015年度
- 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、2013～2015年度
- 13) 秋山正和、大澤志津江（京都大学）、折りたたみの細胞シートから構築される昆虫外骨格の3D形態に関する数理的研究、2013～2015年度
- 14) Ya-na Di (ICMSEC), Elliott Ginder, Karel Svadlenka(京都大学), Xianmin Xu (ICMSEC) : 「Wetting of rough and chemically patterned surfaces」
- 15) Elliott Ginder, SeiroOmata (金沢大学) : 「Analysis of a hyperbolic free boundary problem with volume constraint」
- 16) Elliott Ginder, Satoshi Nakata (広島大学) : 「The interfacial and free-boundary dynamics of active matter」
- 17) Hideyuki Azegami (名古屋大学), Elliott Ginder, Oliver Wright (北海道大学) : 「Multiphase shape optimization in phononic crystal design」
- 18) Elliott Ginder, Nakano Naoto (JST) : 「Enveloping in empirical mode decomposition」
- 19) 西野浩史、東日本高速道路（株）、高速道路の飛来虫対策に関する研究、2015年度～2017年度

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（分担）、科学研究費補助金、基盤研究（A）、散逸系における空間局在解の階層構造と頑健性の起源の解明、2014年度～2017年度
- 2) 長山雅晴（分担）、科学研究費補助金、基盤研究（C）、動的システムの分岐過程への数値誤差の依存性解析

- と新規解適合スキームの開発、2015年度～2017年度
- 3) 長山雅晴（分担）、科学研究費補助金、基盤研究（C）特設分野、生体内の不均一な場における反応拡散波の伝播機構の解明、2015年度～2017年度
 - 4) 青沼 仁志（研究代表）、科学研究費補助金、特別研究員奨励費、マルチモーダルな刺激に対する雌コオロギの応答を修飾する生体アミンの役割、2016年度
 - 5) 青沼 仁志（研究代表）、科学研究費補助金、挑戦的萌芽研究、雌コオロギの配偶者選択行動を司る脳機能の解明2014年度～2015年度
 - 6) 青沼 仁志（分担）、科学研究費補助金、挑戦的萌芽研究、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、2015年度～2017年度
 - 7) 青沼 仁志（分担）、科学研究費補助金、基盤研究（A）特異な対称構造を持つクモヒトデから探る振る舞いの多様性の発現機序、2012年度～2015年度
 - 8) 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年度～2015年度
 - 9) 秋山正和（研究代表者）、文部科学省科学研究費補助金、若手研究（B）、平面内細胞極性に関する統一的数理モデルの構築。2015年度～2018年度
 - 10) 秋山正和（研究代表者）、文部科学省科学研究費補助金、新学術領域研究（研究領域提案型）、計画班、3次元形態を表現する数学的基盤の構築3次元形態を表現する数学的基盤の構築。2015年度～2019年度
 - 11) 秋山正和（分担研究者）、文部科学省科学研究費補助金、新学術領域研究（研究領域提案型）、総括班、生物の3D形態を構築するロジック。2015年度～2019年度
 - 12) 秋山正和（分担研究者）、文部科学省科学研究費補助金、国際共同研究加速基金（国際活動支援班）、総括班、3D形態ロジックの国際共同研究を加速するバーチャル研究所。2015年度～2019年度
 - 13) Elliott Ginder, JSPS Grant-in-Aid for Young Scientists (B), 变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
 - 14) Elliott Ginder, JSPS Grant-in-Aid for Specially Promoted Research (C), 「The interfacial and free-boundary dynamics of active matter」, 2015年度～2020年度
 - 15) 西野浩史（分担研究者）、文部科学省科学研究費補助金、新学術領域研究（研究領域提案型）、計画班、昆虫の聴覚器規範設計の解明、2013年度～2016年度
 - 16) 西野浩史（研究代表者）、文部科学省科学研究費補助金、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年度～2016年度

b. 受託研究等

- 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) 長山雅晴、JST CREST、数理モデリングを基盤とした数理皮膚科学の創成、2015年度～2020年度
- 4) 青沼仁志（研究代表者）包括脳ネットワークによる支援、昆虫の行動スイッチングにともなう脳活動の変容、2012年度～2017年度
- 5) 青沼仁志、JST, CREST, 環境を友とする制御法の創成、リアルタイム運動制御を実現する神経-筋骨格系の生理機構の実験的解明（グループリーダー）2014年度～2019年度
- 6) 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
- 7) Elliott Ginder, JST さきがけ、「Multiphase shape optimization in phononic crystal design」2015年度～2019年度

4.8 社会教育活動

a. 公的機関の委員

- 1) 長山雅晴、文科省技術政策研究所専門調査委員

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) 青沼仁志、計測自動制御学会自律分散システム部会、運営委員 2016年～2017年
- 5) 青沼仁志、日本比較生理化学会、評議委員、2016年～2017年：
- 6) 青沼仁志、日本動物学会北海道支部、役員（庶務）会計幹事 2014年～2016年
- 7) 青沼仁志 SWARM2015 プログラム委員会委員、2014年～2015年
- 8) 青沼仁志、日本動物学会国際交流委員、2013年～2016年：
- 9) 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
- 10) 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
- 11) 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）
- 12) 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
- 13) 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
- 14) 秋山正和、応用物理学会リフレッシュ理科教室(2013. 10. 12)にて「樟脳舟を科学しよう！！」
- 15) 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.
- 1 6) Elliott Ginder, 日本応用数理学会 2015 年度年会
実行委員会.
 - 1 7) 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.
 - 1 8) Elliott Ginder, 日本数学会、「数学」編集委員.
 - 1 9) Elliott Ginder, The 16th RIES-Hokudai International Symposium, 委員会.
 - 2 0) 西野浩史、日本比較生理生化学会、評議員
 - 2 1) 西野浩史、日本比較生理生化学会、編集委員
 - 2 2) 西野浩史、日本比較生理生化学会、原富之賞選考委員長
 - 2 3) 西野浩史、日本比較生理生化学会、原富之賞選考委員長

c. 新聞・テレビ等の報道

- 1) 長山雅晴, 2015 年: 北海道新聞夕刊, 山陽新聞, 四國新聞, 静岡新聞, 岐阜新聞

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、2015 年後期)
- (2) 青沼仁志, 一般教育演習(フレッシュマンセミナー)
「生物の設計-分子から個体行動までの構成論的理解」
(2015 年度前期)
- (3) 青沼仁志, 生命システム科学基礎論(2015年度2学期)
秋山正和(学部3、4年、数理科学演習、秋山正和、2015 年後期)
- (4) 秋山正和(北大・東北大等合同セミナー、秋山正和、2015 年9月4日～9月7日)
- (5) Elliott Ginder(理学部 2 年生, コンピュータ, Elliott Ginder, 2015 年後期)
- (6) Elliott Ginder(全学, 数理系における基礎英語, Elliott Ginder, 2015 年前期)
- (7) Elliott Ginder(国際交流科目, Introductory English for the mathematical sciences, Elliott Ginder, 2015 年前期)
- (8) Elliott Ginder(数理科学物質 iii, Elliott Ginder, 2015 年後期)
- (9) 西野浩史(大学院、ナノテクノロジーナノサイエンス
概論 1、分担、2015 年前期)

e. ポスドク・客員研究員など

ポスドク: 小林康明, 熊本淳一, 武井兼太郎, 渡邊崇之,
Nicholas P. DiRienzo

f. 修士学位および博士学位の取得状況

修士学位

安芸勇人(理学院・数学)「焼結過程に見られる空隙形成の
数理解析」

石橋宏朗(理学院・数学)「カイメンの骨格形成に対する数
理モデルの構築」
南佳晃(理学院・数学)「Proneural Waveの数理モデリング」

データ数理研究分野

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～)
津川暁（早大、博士（理学）、2015.9～）
博士研究員 古川大介（2012.4～2015.10）
Kernel Enrique Prieto Moreno (2015. 8～)

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）
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）
Khalifa Mohammad Helal (生命科学院 生命融合科学コース)

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、階層を超えた「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、階層を超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) 植物の多様な細胞成長から導く正確な器官成長の制御

器官が正しいサイズに到達したことをどのように細胞は「知る」のか、この問題の難易度が非常に高いと考えられている理由は、器官内の細胞のランダムな挙動のためである。例えば、隣り合う植物細胞は多くの場合、全体的なパターンとは異なる仕方で成長および分裂をする。ヒューマン・フロンティア・サイエンス・プログラムの支援の下、我々は植物学者、コンピューター科学者、生物物理学者らと国際共同研究を行い、モデルシステムとしてシロイヌナズナの萼片を調べ、細胞の成長率などの時空間多様性（およびその時間平均化）が正しいサイズに到達する上で必要であるという重要かつ反直感的な結果を導いた。加えて、活性酸素が細胞のランダム性と器官のサイズを制御していることを新規に発見した。

我々はAAA-ATPaseとメタロプロテアーゼ(活性中心に金属イオンが配座しているタンパク質分解酵素)をもつ膜たんぱく質プロテアーゼのひとつであるFtsH4 というたんぱく質に変異導入したftsh4 変異体がシロイヌナズナの器官サイズを変化させることを見出した（図 1a参照）。萼片の計算モデルとして、萼片を“風船”に見立てて、萼片の場所場所に依存して異なる弾性率をランダムに与えて（ちょうど、大小様々な細胞の配置が規則的ではないことに相当）、ある細胞内圧下、平衡に到達するまで膨らませて、“萼片”がどういう形状に到達するかを評価するモデルを構築した。このモデルでは、弾性率を時間空間に渡って均一に与える場合には、“萼片”は均一な形状に到達するが、初期時刻においてランダムに弾性率を与えたモデルでは、いびつな“変異体もどき”的な形状に到達し、弾性率の初期空間分布に応じた多様な形状を取る。しかしながら、成長経過とともに非一様な弾性率をランダムに振り直した計算モデルでは、“萼片”は均一な形状に到達し得ることが判明した。このことは、成長時のランダム性の時空間平均化が正常な器官を形成するうえで重要であることを示唆している。実際、ftsh4 変異体は時空間平均化において欠陥がある一方で、野生型の萼片はノイズの多い細胞成長の時空間平均化を経ており、それらをライブイメージングや定量的成長解析を用いて検証した。

更に、我々は細胞成長が時間的にも空間的にも 12 時間間隔で多様であることを見いだした。対照的に、48 時間間隔で細胞とその娘細胞の累積成長方向を観察すると、野生型

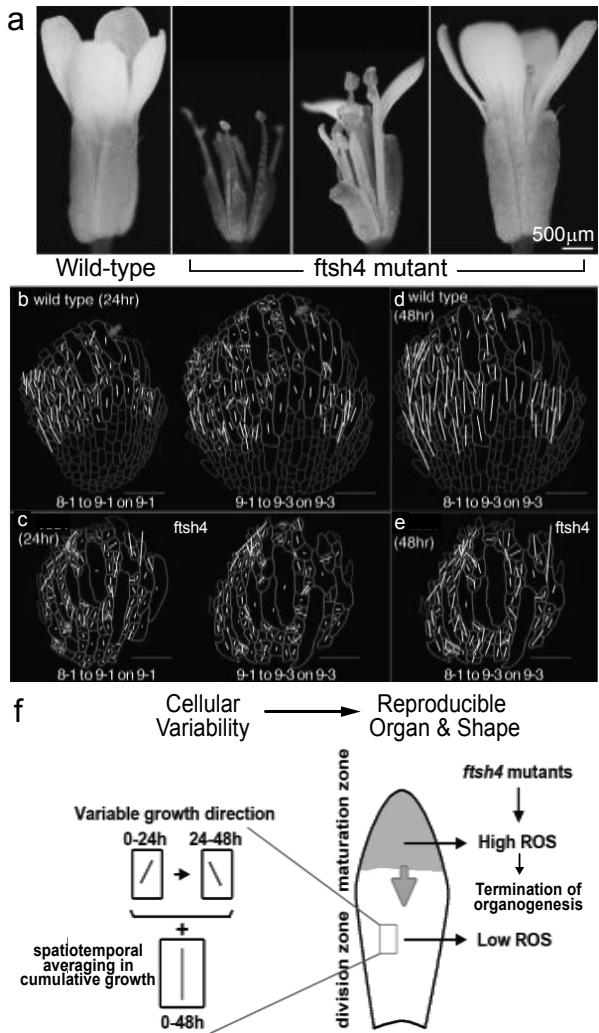


図1：(a) 開花前（左）と成熟後（左）の野生型およびftsh4。ftsh4の花は同じ花序のものだが、その萼片のサイズは多様である。(b)–(c) 主成長方向における空間的変動。野生型の主成長方向(PDG; 白線)(b)と24時間間隔での成長を計算したftsh4(c)の萼片細胞(下段)。萼片細胞が示す24時間の成長間隔での最大成長方向における時空間変動(矢印)。白線の方向は最大成長の方向を示している。白線の長さはその方向における成長の規模を示している。解析では成長線(白線)が表示された細胞のみを用いた。(d)–(e) 48時間にわたる時間平均化。0~48時間の累積成長のPDGを計算した。野生型の萼片細胞の48時間の最大成長方向(d)は24時間の最大成長方向(b)における積算結果であり、より協調的である。ftsh4の萼片細胞(e)は、48時間で統合されたPDGが平行になっていない中で、野生型よりも時間平均化の変動性が少ない。(f) 細胞成長は変動性が高く、時間によって変化する。例えば、細胞の24時間ごとのPDGは左に傾いた後、右に傾くかもしれない。時間および空間による変化は細胞変動を平均的にするため、例えば48時間による累積成長では均一な器官を非常に規則的に作り出す。ROS(右図の萼片上部)が細胞の成熟、細胞分裂の縮小、および成長の停止を促進する。成熟した細胞において、ROSの蓄積は先端部から底に向かって降下していく(右図の萼片内部の矢印)。ftsh4変異体が原因で、より遅くかつ変動性の少ない細胞成長、細胞分裂の縮小、成長の時空間平均化の抑制、および萼片サイズにおける頑健性の喪失をもたらすROSの増加、変動、早期の蓄積が起こっている。

の萼片の成長方向は萼片細胞の主な成長方向とほぼ均一に平行になった。一方で、変異体の萼片は平均化プロセスで

欠陥が生じていることが確認された。変異体の細胞は野生型よりも小さな時空間変動を示すが、48時間間隔の累積主成長方向は非常に多様であり、なおかつ萼片の主な成長方向と平行にはなっていない(図1b–e参照)。

数値計算モデルと細胞壁弹性測定実験の結果は、野生型では細胞成長の多様性が高く、ftsh4変異体では細胞成長の多様性が低い可能性を示唆している。そこで、我々は隣接細胞群の空間的な成長多様性を量化する手法を開発し、実際に野生型の方が変異体よりも空間的な細胞成長の多様性が高いことを明らかにした。また、野生型とftsh4変異体の器官の形状を比較するためにFourier解析による形状多様性の定量解析を行い、ftsh4変異体は野生型と比べ萼片のサイズと形の両方で著しく変動性が高いことを明らかにした。

時空間の細胞成長の多様性とその平均化が萼片の形状、成長方向を決めるうえで重要であることが判明したが、一方で、細胞はいつどのように成長を止めるタイミングを知るのか、また、ftsh4変異体に見られるサイズおよび形状の高い変動性の原因は何か、といった問い合わせに対しても考察した。

FtsH4たんぱく質の変異体は活性酸素種(Reactive Oxygen Species, ROS)を増加し、葉の形態異常を起こすことがすでに知られている。そこで、ROSが萼片の成長段階でどのように分布しているかを野生型およびftsh4変異体で評価した。その結果、野生型では萼片の成長とともに、ROS分布が萼片の先端部(tip)から底部(base)へ優位にシフトしている反面、ftsh4変異体ではそのようなROS分布の段階的なシフトは顕著に認められず、早期の成長段階ですでに(相対的に)過剰発現し、ROSの分布も萼片に渡って不均一に分布していることを突き止めた。また、対照実験として、ある酵素を用いてROSを減少させることで、ftsh4変異体の萼片のサイズ・形状が均一化されること、ならびに野生型でROSを減少させると、通常の植物で発見されたものよりも大きな(形状均一な)萼片が生産されることを見出した。

これらの知見を総合して、我々は、ftsh4変異体の萼片のサイズ均一性が崩れる原因がROSの増加と非一様な空間分布であること、ならびにROSは萼片の成熟と成長の停止を促す内生的成長制御であることを提唱した(投稿中)。ROSが環境条件に成長を適応させたり自身の大きさを調整させたりする応力シグナルおよび発達シグナルの指標となっている可能性があり、今後の研究が期待される。

(2) トポロジカル絶縁体の表面状態の制御理論

トポロジカル絶縁体とはバルクでは絶縁体であるが表面では伝導性を示すという、一見、絶縁体が表面だけメッキされたような物性を示す。バンド理論によると、物質の価電子帯と伝導帯の間に熱励起エネルギーよりも大きなギャップが開いていると絶縁体となるので、トポロジカル絶縁体はバルクではバンドギャップがあり、表面では閉じて

いる。そのようなギャップが閉じている点は、ディラック方程式の質量がゼロの自由粒子と同じエネルギーと運動量の分散関係を示すので、ディラック点と呼ばれており、質量ゼロの粒子のように振る舞うために、省エネルギー・ランジスター等への応用が期待されている。また、その近傍では、電子の運動量と電子のスピンの方向がロックされており、上向きのスピンをもつ電子は右側に、下向きのスピンをもつ電子は左向きに動く、というようになっている。それを用いると特定のスピンの方向を持った電流を取り出すことができ、スピントロニクスへの応用も可能である。このトポロジカル絶縁体、特にそのカギとなるディラック点近傍のハミルトニアンの一般的な表式を広く分解を用いて得た。また、その一般的な表式の下、ディラック点近傍のバンドの構造がどのようになるのか、それを応用特異点論の観点から分類するとどのようなバンド交差が可能であるのか、そのディラック点を物質に外場等を加えることでどのように制御できるのか、ということを解明するための数学的理論を応用特異点論の専門家である北海道大学理学部数学科の泉屋周一教授、スピントロニクスの専門家である北海道大学電子科学研究所の近藤憲治准教授らと構築した。予備的な結果であるが、この理論を用いることで、これまで知られていた摂動の結果 (L. Fu, Phys. Rev. Lett. 103, 266801 (2009)) を組織的に高次まで推し進め、これまで得られていたディラック点近傍での電子スピンの期待値を2割程度も改善できることが示された。この内容は、現在、J. Math. Phys.に投稿準備中である。

How do crossings look like?:

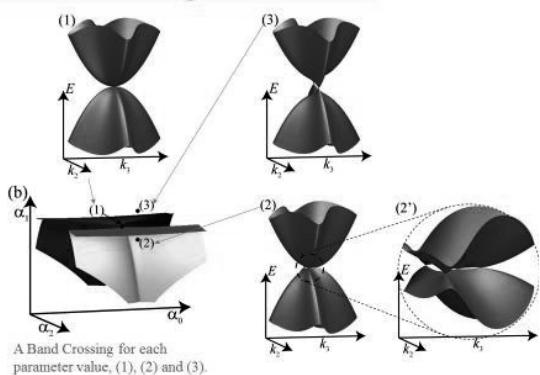


図2:(1) 応用特異点論で得られる価電子帯のバンドと伝導帯のバンドの交差の様子。このバンド近傍でハミルトニアンの一般的な振る舞いを記述するためには、 α_0 、 α_1 および α_2 の三つのパラメータだけで十分であることが普遍開折の理論より分かり、その三つのパラメータを(b)で示すようにいろいろと変化させる(外場等を介して)ことで、(1)のバンド交差間交差を(2)(2')はその拡大図)および(3)のように様々な形に分岐させることができる。

(3) 情報理論的1細胞ラマンイメージング解析手法の開発

生細胞イメージングは進歩を続ける分野で、生体を動作させる生物学的过程に関する新たな情報を明らかにしてきた。ラマン顕微鏡は生細胞のイメージングに使われており、細胞内化学微環境を非標識かつ非侵襲的に捉えることができる。

きる。生細胞のラマン顕微鏡画像は、例えば細胞膜や核などの細胞の構成要素や脂質、タンパク質、核酸などの細胞成分の構成物質といった細胞全体の情報を豊富に含んでいる。例えば、アポトーシスの直前のミトコンドリア膜からのシトクローム c の放出がラマン顕微鏡によって観測されている。このように多くの情報を明らかにしているにも関わらず、従来のラマン画像の分析手法は計測で得られる情報のほんのわずかな部分しか取り出せていない。ラマン顕微鏡による信号が本質的に微弱であるため、重要なスペクトル特徴を決定する上でバックグラウンドの混入と大きな雑音ゆらぎを縮小させることが不可欠となる。本研究では、バックグラウンドの混入と検出雑音の影響を矛盾なくかつ客観的に減少させるためのデータ駆動型手法を開発した。図 a の黒部分はバックグラウンド検出法を用いて特定したバックグラウンドのピクセルを示しており、信号を含むピクセルが白で示されている。次に、ラマンスペクトルから細胞膜や核などの細胞成分を識別するために、情報理論的 Rate-Distortion 理論を用いた。バックグラウンドのみのスペクトルを除外し、次に Rate-Distortion 理論を用いてスペクトルをクラスターに分類し、ラマン画像に含まれる化学的微環境の分類・特徴づけすることに成功した。(図 3b : 細胞質から細胞膜を分離させた画像)。

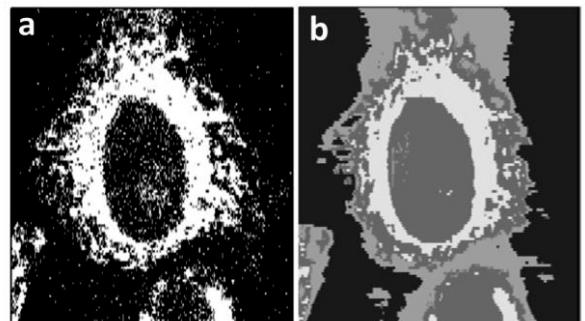


図3 a) ラマンシグナルを含むピクセル（白）からのバックグラウンドピクセル（黒）の分離。b) 細胞質（中濃灰色）及びバックグラウンド（濃灰色）からの細胞膜（明灰色）の識別。

(4) 構造異性化反応ネットワークから時間階層構造を彫りだすアルゴリズムの開発

化学反応は、フェムト秒から数時間に渡る多様な時間スケールで観測される。その反応速度定数を見積もる最も標準的な理論である遷移状態理論は素反応において成功した理論である。そのため、(多様な時間スケールと反応経路をもつ) 反応ネットワークの各素反応の見積もりに対して見積もりの良さが期待できる。他方で、実験系には固有の時空間解像度があるため、ゆっくりと進行する大きな反応に着目すると、詳細な反応が粗視化されて見えなくなってしまう。本年度、この粗視化と観測時間スケールの関係を明らかにする可視化法を開発した。

この数年の間に、第一原理計算に基づく反応経路自動探索アルゴリズム(例えばGRRM)や、MDシミュレーション

から構築するマルコフ状態モデル、タンパク質一分子計測から得られた時系列の隠れマルコフモデルを用いた解析（ε機械）によって、計算・実験両面で反応ネットワークを直接抽出する方法が開発された。しかしながら、得られたネットワークのノード数は数十から数百万あり、それらを解釈する上で問題があった。

このような課題を解決するため、永幡らは、北海道大学の前田理氏、埼玉大学の堀山貴史氏と協働で、“往来”最小となるネットワーク上の遷移状態を導入し、それに基づいてネットワークから反応時間階層の抽出法を独自に開発した。開発したアリルビニルエーテルのクライゼン転位の際の異性化反応ネットワークの解析に取り組んだ。この解析により、律速段階の速度定数や迅速平衡近似では表現できなかった、反応系でのエントロピーによる安定化を正確に表現することに成功し、得た反応時間階層が観測時間間隔を変えた場合に生じる階層関係と対応することを示した。加えて、得られた時間階層には、安定な部分構造があることを明らかにし、それがn-π共役による安定化であることを指摘した。

しかし、このネットワーク上の遷移状態を用いた解析は、計算複雑性と仮定の正当性の両面で問題があった。永幡らは観測時間間隔を変えることにより生じるマルコフ性の混合階層を効率的に直接取り出すアルゴリズムを考案した。提案法を用いれば、初期分布に依存せず、与えた基準をもとに、遷移確率が類似する時間間隔 Δt が階層的にどう生じるか表す図を効率的に得ることができる。さらに、各時間階層での粗視化されたネットワークの速度定数が Δt 不変であるかを評価することで、反応ネットワークとしての粗視化可能性を評価できる。

現在、新たな提案法を用いて、前述のアリルビニルエーテルのクライゼン転位反応の解析を終えており、1万ノード程度の大規模な異性化反応ネットワークを解析する準備をしている。

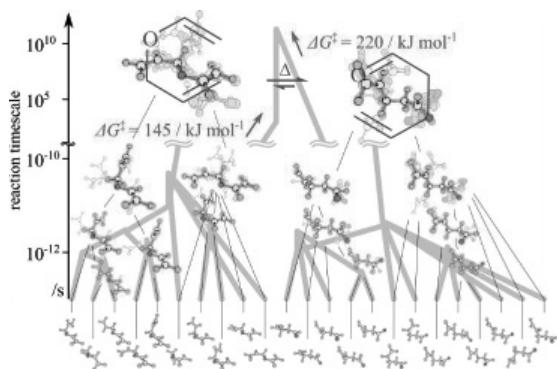


図4 取り出してきた反応時間階層と分子構造の関係

(5) F1分子モーターの回転揺らぎにおける非平衡性が反応動力学に及ぼす効果

F1-ATPaseはATPの加水分解エネルギーによって動く回転分子モーターであり、その化学-力学エネルギー間変換

効率の高さも相まって、動作機構解明に向けた研究が続けられてきた。近年の一分子計測による研究で、「軸受け」に相当する $\alpha\beta\gamma$ サブユニット上で起こる加水分解中間反応の速度が、 $\alpha\beta\gamma$ の構造変化を介して回転軸 γ サブユニットの回転角度に制御されていることが明らかになり、特に角度依存性の強いリン酸解離過程では γ が溶媒から受けた熱揺らぎをうまく反応に利用していることがわかっている。

本研究では、温度変化とともに γ サブユニットの回転角度揺らぎがどのように変化するかを調べるとともに、それによりリン酸解離、F1結合ATPの加水分解過程の反応動力学にもたらされる影響を調べた。その際、一分子計測では観測可能な温度領域が限られるほか、加水分解前後の角度揺らぎを識別することができないため、20~33°Cまでの実験データをもとに数理モデルを構築してシミュレーションを行い、主に角度揺らぎと各反応にかかる時間スケールを調べた。

$\alpha\beta\gamma$ 上で化学反応が起こるまでの間、 γ の回転は細かく揺らぎながら停止している。このことから回転角度に対する自由エネルギーポテンシャル面を化学反応とともに確率的に切り替えるモデルが従来より用いられており、さらに我々のグループは加水分解後に20°程度の小回転が生じることを明らかにし、加水分解待ちとリン酸解離待ちを別々のポテンシャル内の運動として組み込んだ。今回は、温度の異なる時系列データから得た各反応の時間スケールを元に活性化自由エネルギーを求め、これをポテンシャル切り替え率に取り入れることで温度を変えたシミュレーションを可能にした。

計算の結果、温度上昇に伴い回転角度揺らぎがポテンシャルから想定される局所熱平衡分布から外れていき、非平衡性が大きくなっていくことがわかった。これは、溶媒粘性の低下に伴う γ サブユニットの易動度上昇をはるかに上回るペースで化学反応速度が上昇することで、局所平衡緩和しきる前に次のポテンシャルへの切り替わりが起こってしまうためである。このことは、角度揺らぎの記憶が消失することなく次の反応待ち過程へ移行することを意味し、それにより連続する加水分解待ち時間とリン酸解離待ち時間の間に相関が生じることも明らかになった。従来、加水分解とリン酸解離の2つのステップは独立なポアソン過程として考えられ、それらの反応速度定数は回転角度停止時間の分布を二重指数関数でフィットすることにより見積もられていた。しかし今回の結果は、平衡から大きく外れた状況ではこの仮定が成立せず正しく反応速度定数を見積もることができない可能性を示唆している。実際に、70°C以上でのシミュレーションでは回転停止時間分布が二重指数関数でフィットすることができなかつた。このほかにも、リン酸解離過程では温度上昇につれ反応待ち時間中の回転角度分布が反応活性化自由エネルギー障壁の高い領域に局在していくことにより、回転停止時間分布から得られる見かけ上の反応速度定数が温度上昇とともに抑制され、

non-Arrheniusな温度依存性が現れることも分かっている。

以上から、本研究では、平衡から外れた生体分子系ではArrhenius則から外れた温度依存性とnon-Markovianな反応動力学が生じることが示唆された。しかしながら、今回のモデル設定では、本来、多自由度で記述されるはずの分子モーターの運動を無理やり1自由度に落としたうえで、さらに分子の柔らかさに相当するポテンシャル幅も温度によらず一定と仮定して計算を行っている。今後は隠れた自由度の効果が実効摩擦係数やポテンシャル幅にどのような形で取り入れられるかを調べ、タンパク質の粘弾性を考慮したより正確なモデル化の提案を目指すとともに、回転運動時の α 3 β 3サブユニット内の熱散逸についても議論したいと考えている。

(6) 機械受容イオンチャネル(MscL)の複数コンダクタンスレベルの動力学

機械受容イオンチャネルは非常に重要なイオンチャネルの一つで、触感、聴覚、バランス感覚等の多くの器官のセ

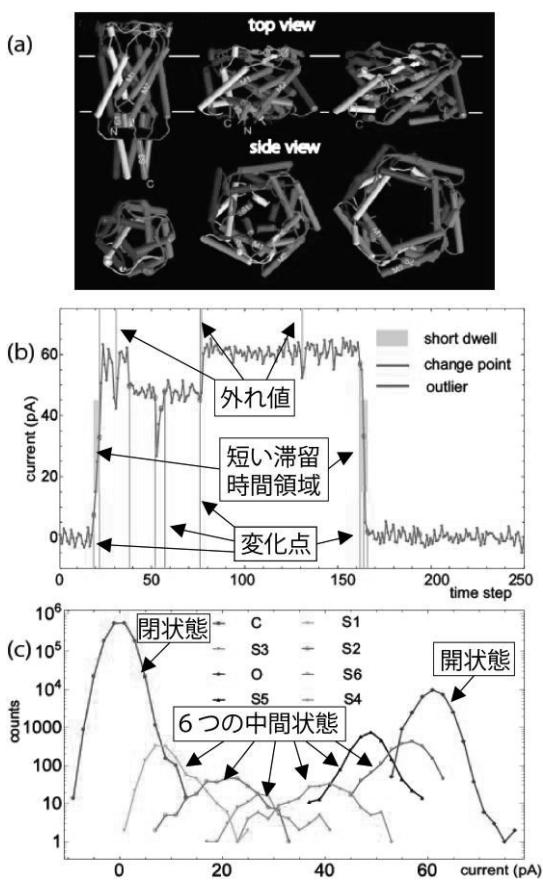


図5 (a) EcoMscl 蛋白質骨格の分子模型。閉鎖立体配座(図左)から開放立体配座(図右)までのチャネルの配座遷移を示している。Sukharev et al. Nature 409, 720-724, 2001. (b) 野生型の電流時系列と変化点、外れ値、短い滞留時間領域を示している。(c) 野生型イオンチャネル電流のクラスタリング分類後の閉状態、開状態、その間の6つの中間状態のヒストグラムを示している。

ンサーであると同時に浸透圧恒常性のセンサーであると考えられている。チャネルの開閉は脂質二重層を通して送られる機械的力が引き金となって行われ、チャネル開閉のタイミングはコンダクタンスレベルによって測定することができる。そのコンダクタンスレベルの中には、例えば、低い信号対雑音比の場合、突然の開閉が起こる場合、測定誤差が大きい場合には、いくつかの中間レベルが隠れていると考えられている。

近年では、変化点検出方法が発展しており、平均における変化、分散、およびプロセスの相互関係を見つけ出すために用いられている。我々の研究では電流の時系列を直接変化点およびクラスタリング分析に応用することで、コンダクタンスレベルの数を客観的に決定している。多くのダイナミクス情報は、状態間ネットワークもしくは各コンダクタンスレベルにおける待機時間の電流および残存確率の分布などから得られている。さらに、ダイナミクスが異なるMscLイオンチャネルの2つの変異型を分析することで開閉ダイナミクスにどの分布範囲が影響を与えるのかを特定することを目指している。

図5aはイオンチャネルであるEcoMscl蛋白質骨格の分子模型を示しており、このたんぱく質が機械感受的に応答することでチャネルの開閉が行われている。図5bは野生型の電流時系列に対して変化点解析を行った結果を示しており、変化点と統計に含めない外れ値の同定結果を示している。変化点解析後の時系列にクラスタリング解析を行うことで閉状態及び開状態とその間の6つの中間状態に分類することができる。

(7) 光子検出システムを用いた生体組織の散乱光ゆらぎ測定の研究

組織レベルでの散乱光ゆらぎ計測の定量化を行うために、生体組織模擬試料の多重散乱光ゆらぎ計測とTime-of-Flight(TOF)計測とを同時に測定するシステムを構築し、解析を行った。

生体組織に入射した光は、組織の強い散乱の影響を受け、組織内を拡散的に透過する。可干渉性の高い光が入射した場合、組織内の散乱粒子が動きにより、光強度がゆらぐため、そのゆらぎを計測することにより組織の動的な情報を得る事ができる。通常の単散乱の時と異なり、多重に光は散乱され、また散乱回数は確率的に分布する。この分布は光路長分布に比例することから、もし光路長分布がわかれれば、散乱体の動き（平均2乗変位）を評価することができる。生体組織の場合、均一と近似したとしても組織の光学定数が未知であるため、同時にそれらを知る必要がある。そのため光学定数は、ピコ秒の短パルス光入射に対する時間応答関数を測定し光路長分布を直接得ることできる、TOF法を用い、それと同時に散乱光のゆらぎを光子相関法で計測する。短パルス光は、可干渉性が低いため、そのままでは散乱光のゆらぎを計測するのは難しいため、可干渉性の高い单一縦モードレーザーの光を同時に入射し、全く同

じ光学系で同時に両者を測定できるようにシステムを構築した。

組織模擬試料として脂質粒子(イントラリピッド)の懸濁液を用いそこで光子相関測定とTOF測定を行った。図6にその結果を示した。図6(a)は光子相関関数を示し、入射検出間距離(ρ)を変え、また単一縦モード(CW)レーザーのみの入射とピコ秒パルスレーザーとの同時入射の結果を示している。CWレーザーのみの入射の場合に比べパルスレーザー入射の場合は振幅が減少するとともに、パルス光の繰り返し周期に対応する振動が見られる。距離が増加すると散乱回数が増加するため相関関数の減衰は速くなっている。パルス光を入射した場合でも、相関関数の減衰はCWのみの入射と一致することから、光子相関計測にパルスレーザー光が影響していないことが示されている。一方、同時に計測した時間応答特性は図6(b)に示されている。半無限媒体と考えたときの解析解を合わせることにより、イントラリピッド溶液の光学定数を決定することが出来た。これを相関関数の解に入れデータに当てはめることにより、光路長の影響を取り除いた減衰時間を得る事ができた。この減衰時間は、十分薄め單散乱条件下で得られた減衰時間と比較することができ、ほぼ値が一致した。このことから同時測定により多重散乱の影響を取り除き相関関数を解析できることが示されている。

実際の生体組織では、吸収が大きく変化する。そのため、光路長は同一組織でも変化した個体間の差も大きい。そのため、多重散乱の影響を排すことができることは極めて有用であると結論できる。この手法を用い生体組織の散乱体の動的な性質の解析へと応用して行く予定である。

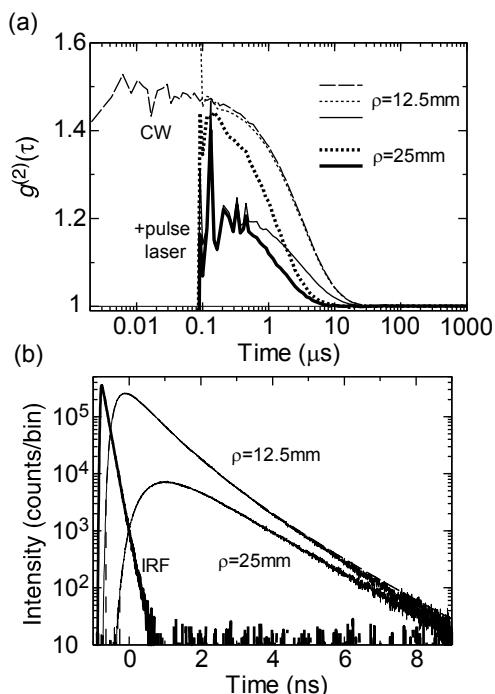


図6 多重散乱光の光子相関関数と時間応答関数の例

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($\sim kBT$)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く、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) C. Li, H. Ueno, R. Watanabe, H. Noji and T. Komatsuzaki : “ATP hydrolysis assists phosphate release and promotes reaction ordering in F1-ATPase”, Nature Communications, 6(10223) : 1-9 (2015)
- 2) Y. Nagahata, S. Maeda, H. Teramoto, T. Horiyama, T. Taketsugu and T. Komatsuzaki : “Deciphering Time Scale Hierarchy in Reaction Networks”, The Journal of Physical Chemistry B, ACS Publications (2015)
- 3) Y. Sumiya, Y. Nagahata, T. Komatsuzaki, T. Taketsugu and S. Maeda : “Kinetic Analysis for the Multistep Profiles of Organic Reactions: Significance of the Conformational Entropy on the Rate Constants of the Claisen Rearrangement”, The Journal of Physical

- Chemistry A, ACS Publications, 119(49) : 11641-11649 (2015)
- 4) G.Nishimura “Design of a full photon-timing recorder down to 1-ns resolution for fluorescence fluctuation measurements”, Review of Scientific Instruments, 86 : 106108 (2015)
 - 5) H. Teramoto, M. Toda, M. Takahashi, H. Kono and T. Komatsuzaki : “Mechanism and Experimental Observability of Global Switching Between Reactive and Nonreactive Coordinates at High Total Energies”, Physical Review Letter, 115(093003) (2015)
 - 6) H. Teramoto, M. Toda and T. Komatsuzaki : “Breakdown mechanisms of normally hyperbolic invariant manifolds in terms of unstable periodic orbits and homoclinic/heteroclinic orbits in Hamiltonian systems”, Nonlinearity, 28(2677) (2015)

4.2 総説・解説・評論等

- 1) 西村 吾朗 ”生体組織イメージング蛍光画像再構成のその方法と課題”, 光アライアンス 27:6-11 (2016).

4.3 国際会議議事録等に掲載された論文

- 1) 寺本 央、戸田 幹人、小松崎 民樹 : 「Understandings of chemical reaction dynamics in terms of dynamical systems theory」、AIP Conference Proceedings , 1702(90042) : 1-4 (2015)

4.4 講演

a. 招待講演

i) 学会

- 1) C. Li* : “From single molecule time series to networks and dynamics: approaches from information theory”, Conference on the Time in Biological Systems and Beyond, National Tsing Hua University, Hsinchu, Taiwan (2016-03)
- 2) H. Teramoto*, M. Toda and T. Komatsuzaki : “Classification of Electron Energy Level Crossings in terms of the Theory of Singularities and Analysis of Non-Adiabatic Transitions around the Crossings”, Computational Chemistry (CC) Symposium in ICCMSE, Metropolitan Hotel, Greece (2016-03)
- 3) T. Komatsuzaki* : “Toward deciphering cell individuality in systems biology”, Symposium #137 Life at Small Copy Numbers (The 2015 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies), Sheraton Waikiki, Hawaii, USA (2015-12)
- 4) T. Komatsuzaki* : “Energy landscapes and con-

formation network learned from single molecule time series”, Symposium #121 Deciphering molecular complexity from protein functions to cellular network (The 2015 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies), Convention Center, Hawaii, USA (2015-12)

- 5) 小松崎 民樹* : 「Single Molecule Biophysics: How can One Dig the Underlying Network from Noisy and Short Time Series?」、International Conference on “Challenges in Data Science: a Complex Systems Perspective”, Torino, Italy (2015-10)
- 6) G.Nishimura : “Diffuse Optical Tomography - Actual Problems in Reconstruction with Time-domain Data”, The 9th ICME International Conference on Complex Medical Engineering (CME2015) , Okayama Convention Center, Okayama, Japan (2015-06)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 寺本 央* : 「Classification of Electron Energy Level Crossings in terms of the Theory of Singularities and Analysis of Non-Adiabatic Transitions around the Crossings」、偏微分方程式姫路研究会、イーグレ姫路 (2016-03)
- 2) 寺本 央*、戸田 幹人、小松崎 民樹: 「特異点論を用いた非断熱交差の安定性と分歧の解析」、統計数理研究所 数学協働プログラム ワークショップ (社会創造数学研究センターとの共同開催)、大自由度分子系における化学反応機序の理解と制御、北海道大学理学部3号館 (2015-10 ~ 2015-11)
- 3) 小松崎 民樹* : 「1分子時系列データから解読するエネルギー地形とネットワーク」、「データ駆動科学の新展開」ミニ研究会、北海道大学 百年記念会館 大会議室 (2015-09)
- 4) 小松崎 民樹* : 「少数系から複雑反応ネットワークを含む遷移状態概念の深化と制御」、特設分野「遷移状態制御」研究代表者交流会、日本学術振興会 (2015-09)
- 5) C. Li* : “The Key and Unlock Mechanisms in F1-ATPase Unveiled by Single Molecule Time Series Analysis”, the 4th Workshop on Molecular & Chemical Kinetics, Berlin, Germany (2015-09)
- 6) 寺本 央* : 「Identifying Different Reaction Processes in terms of Graph Laplacian」、ランダム力学系理論とその応用 (2015)、京都大学数理解析研究所 111号室 (2015-09)
- 7) T. Komatsuzaki* : “Transition States from Gas Phase, Condensed Phase to Complex Networks”, Telluride summer workshop “Geometry of Chemical Reaction Dynamics”, Telluride Elementary School, USA (2015-07)
- 8) C. Li* : “Searching for New Mathematical

- Frameworks to Understand Complex Systems in the Real World”, Cross-border Forum of “Money problems, Job market, and Chaos: mathematical and economical perspective on distribution of value from a viewpoint of Italy’s and Japan’s Economy”, Hokkaido Univ. (2015-07)
- 9) H. Teramoto* : “A Global Dynamical Switching of a Reaction Coordinate and its Experimental Observability”, Telluride summer workshop “Geometry of Chemical Reaction Dynamics”, Telluride, USA (2015-07 ~ 2015-08)
 - 10) T. Komatsuzaki* : “A kinetic disconnectivity graph to decode timescale hierarchy buried in reaction networks”, Chemistry & Dynamics in Complex Environments, Telluride Elementary School, USA (2015-06)
 - 11) T. Komatsuzaki* : “How can we define a transition state over a network?”, R. Stephen Berry Tribune Symposium, Telluride Elementary School, USA (2015-06)
 - 12) T. Komatsuzaki* : “Energy Landscapes learned from Single-Molecule Time-Series: Dimensionality and Disconnectivity Graph”, The Complexity of Dynamics and Kinetics from Single Molecules to Cells, Telluride Elementary School, USA (2015-06)
 - 13) C. Li* : “The Roles of ATP Hydrolysis Revealed by Single Molecule Time Series Analysis of Rotary Fluctuations in F1-ATPase”, Telluride Workshop on “The Complexity of Dynamics and Kinetics from Single Molecules to Cells”, Telluride, USA (2015-06)
 - 14) H. Teramoto* : “Identifying different reaction processes in terms of graph laplacian”, Il-Luminyating 2015, Instituto de Ciencias Matemáticas, Universidad Autónoma de Madrid, Spain (2015-05)
 - 15) 津川 晓*、李 振風、小松崎 民樹：「蛍光画像から微小管配向構造の抽出」、早稲田大学相澤研究室研究会、早稲田大学西早稲田キャンパス (2015-04)
- iii) コロキウム・セミナー等・その他
- 1) T. Komatsuzaki* : “Molecular Data Science Perspectives for Individuality Covering from Molecules to Cells”, 統合生命医科学研究センター疾患生物学セミナー, 理化学研究所横浜キャンパス (2016-03)
 - 2) C. Li* : “Time Series, Networks and Dynamics: Constructing Hidden Markov Model from Information Theory”, Department Seminar in Department of Chemistry, Computational Biophysical Chemistry, Hong Kong University, Hong Kong University, Hong Kong, China (2016-02)
 - 3) T. Komatsuzaki* : “Phase Space geometry and Chemical Reaction Dynamics: Past, Present, and Future”, Colloquium on kinetics and scattering theory for astrophysics (Nov 26-27) (in a part of the extended workshop “Theory of Gas Phase Scattering and Reactivity for Astrophysics(Nov 23-Dec 8)” along COST ‘Our chemical History’ Action CM1401), Max Planck Institute of Colloids and Interfaces, Potsdam, Germany (2015-11)
 - 4) 寺本 央* : 「“Dynamical Reaction Theory: Beyond the conventional perturbation theory”」、Colloquium on kinetics and scattering theory for astrophysics (Nov 26-27) (in a part of the extended workshop “Theory of Gas Phase Scattering and Reactivity for Astrophysics(Nov 23-Dec 8)” along COST ‘Our chemical History’ Action CM1401)、Max Planck Institute of Colloids and Interfaces、Germany (2015-11)
 - 5) 小松崎 民樹* : 「審査員の経験からみたポイント」、平成27年度 北海道大学科研費申請セミナー、医学部学友会館「フラテ」 (2015-09)
 - 6) C. Li* : “Detection of Time Dependent Causality: An Information-theoretic Approach”, Dynamical System Seminar, Math. Department, Hokkaido Univ. (2015-07)
 - 7) T. Komatsuzaki* : “ A Dynamical Switching of Reactive and Nonreactive Modes at High Energies”, Department Seminar in Department of Chemistry and Chemical Biology, Cornell University, USA (2015-05)
 - 8) T. Komatsuzaki* : “Error-based Extraction of Effective Free Energy Landscapes from Experimental Single-Molecule Time-Series”, Department Seminar in Department of Chemistry, Boston University, USA (2015-05)
 - 9) C. Li* : “Robust Construction of Dwell-Time Statistics from Experimental and Simulation Time Series”, Department talk, Potsdam, Germany (2015-04)
 - 10) C. Li* : “Time Series, Networks and Dynamics: Constructing Hidden Markov Model from Information Theory”, Department talk, Department of Mathematics, Computer Science and Bioinformatics, Free University of Berlin, Germany (2015-04)
- b. 一般講演
- i) 学会
- 1) J. N. Taylor*, A. F. Palonpon, C. Li, K. Fujita and T. Komatsuzaki : “Data-driven quantification of

- heterogeneous microenvironments in live-cell Raman microscopic images”, The Biophysical Society 2016 BPS Annual Meeting, Los Angeles Convention Center, USA (2016-02)
- 2) J. N. Taylor*, A. F. Palonpon, C. Li, K. Fujita and T. Komatsuzaki : “Data-driven quantification of heterogeneous microenvironments in live-cell Raman microscopic images”, Symposium #121 Deciphering molecular complexity from protein functions to cellular network (The 2015 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies), Convention Center, USA (2015-12)
 - 3) 古川 大介、西村 吾朗:「時間刻み補正による3次元拡散トモグラフィー法の高速化」日本光学会年次学術講演会(OPJ2015)、筑波大学東京文京校舎、文京区、東京都(2015. 10)
 - 4) 西村 吾朗:「拡散干涉計測と時間分解計測の同時測定による散乱体動態解析」日本光学会年次学術講演会(OPJ2015)、筑波大学東京文京校舎、文京区、東京都(2015. 10)
 - 5) 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解読」、第9回分子化学討論会、東京工業大学 大岡山キャンパス (2015-09)
 - 6) 田宮 裕治*、李 振風、渡邊 力也、野地 博行、小松崎 民樹 : 「非平衡効果が引き起こすF1分子モーターの非アレニウス型温度依存性」、第9回分子化学討論会、東京工業大学 大岡山キャンパス (2015-09)
 - 7) 田宮 裕治*、李 振風、渡邊 力也、野地 博行、小松崎 民樹 : 「非平衡効果が引き起こすF1分子モーターの非アレニウス型温度依存性」、第53回日本生物物理学会、金沢大学角間キャンパス自然科学本館 (2015-09)
 - 8) 津川 眩*、李 振風、小松崎 民樹 : 「植物の中の局所微小管と細胞成長の関係について」、第53回日本生物物理学会、金沢大学角間キャンパス自然科学本館 (2015-09)
 - 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 : 「複雑反応ネットワークに埋め込まれた時間階層構造の解読」、第53回日本生物物理学会、金沢大学角間キャンパス自然科学本館 (2015-09)
 - 10) C. Li* : “Single Molecule Time Series Analysis of F1-ATPase to Unravel the Role of Bound-ATP Hydrolysis ”, 第53回日本生物物理学会、金沢大学角間キャンパス自然科学本館 (2015-09)
 - 11) 寺本 央* : 「特異点論を用いた非断熱交差の安定性と分岐の解析」、日本物理学会、関西大学 (2015-09)
 - 12) 柳沼 秀幸*、河合 信之輔、田端 和仁、富山 佳祐、垣塚 彰、小松崎 民樹、岡田 康志、野地 博行、今村 博臣 : 「一細胞計測で見えてきたバクテリア細胞内ATP濃度の多様性」、第67回日本細胞生物学会大会、タワーホール船堀 (2015-06)
 - 13) H. Teramoto*, M. Toda, M. Takahashi, H. Kano and T. Komatsuzaki : “A Global Dynamical Switching of a Reaction Coordinate and its Experimental Observability”, 31st Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics, Frontier Research in Applied Sciences Bldg., Faculty of Engineering, Hokkaido University (2015-06)
 - 14) Y. Nagahata*, S. Maeda, H. Teramoto, C. Li, T. Horiyama, T. Taketsugu and T. Komatsuzaki : “Deciphering timescale hierarchy encoded in complex reaction networks”, 31st Symposium on Chemical Kinetics and Dynamics, Frontier Research in Applied Sciences Bldg., Faculty of Engineering, Hokkaido University (2015-06)
 - 15) T. Komatsuzaki*, M. Toda and H. Teramoto : “A Dynamical Switching of Reactive and Nonreactive Modes at High Energies”, 2015 SIAM Conference on Dynamical Systems, Snowbird Ski and Summer Resort, USA (2015-05)
 - 16) G. Nishimura: “Near-infrared fluorescence fluctuation measurement system - Its design and applications”, 5th Asian and Pacific Rim Symposium on Biophotonics (APBP'15), Pacifico Yokohama, Yokohama, Japan (2015-04).
 - 17) D. Furukawa and G. Nishimura: “Study on a reconstruction technique using time domain reflectance measurements data”, 5th Asian and Pacific Rim Symposium on Biophotonics (APBP'15), Pacifico Yokohama, Yokohama, Japan (2015-04)
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) 小松崎 民樹* : 「少数性生物学の新展開：分子個性から細胞個性へ」、新学術領域「少数性生物学」研究成果報告会、東京大学 伊藤謝恩ホール (2016-03)
 - 2) C. Li*, H. Ueno, R. Watanabe, H. Noji and T. Komatsuzaki : “The key and unlock mechanisms in F1-ATPase unveiled by single molecule time series analysis”，新学術領域「少数性生物学」研究成果報告会、東京大学 伊藤謝恩ホール (2016-03)
 - 3) 寺本 央* : 「Classification of Hamiltonians in neighborhoods of electron energy level crossings in terms of the theory of singularities」、理論分子科学・分子非線形科学のこれまでとこれから、東京大学駒場リサーチキャンパス (2016-03)
 - 4) 小松崎 民樹* : 「生物個性学：分子から細胞へ」、少数性生物学研究会2016～少数性生物学の未来を語る～、定山渓万世閣ホテルミリオーネ、北海道札幌市

- (2016-02)
- 5) 寺本 央*、戸田 幹人、近藤 憲治、小松崎 民樹：「特異点論によるバンド間交差の分類」、第1回「トポロジーが紡ぐ物質科学のフロンティア」領域研究会、京都大学芝蘭会館（2015-12）
 - 6) Y. Tamiya*, C. Li, R. Watanabe, H. Noji and T. Komatsuzaki : “The Onset of Non-equilibrium Effects at High Temperature in the Reaction Kinetics of F1-ATPase”, The 16th RIES-Hokudai International Symposium, Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (2015-11)
 - 7) G. Wang*, C. Li, H. Tatsumi and T. Komatsuzaki : “Kinetics of Multiple conductance levels of Mechanosensitive Ion Channel”, The 16th RIES-Hokudai International Symposium, Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (2015-11)
 - 8) Y. Nagahata*, S. Maeda, H. Teramoto, C. Li, T. Taketsugu and T. Komatsuzaki : “Developing high precision algorithm to predict observation timescale hierarchy of an isomerization reaction network”, The 16th RIES-Hokudai International Symposium, Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (2015-11)
 - 9) H. Teramoto* : “Classification and Control of electron energy level crossings in terms of the theory of singularity”, The 16th RIES-Hokudai International Symposium, Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (2015-11)
 - 10) 永幡 裕*、前田 理、寺本 央、李 振風、武次 徹也、小松崎 民樹：「マルコフ連鎖の時間階層的クラスタリング」、ERATO湊離散構造処理系プロジェクト「2015年度 秋のワークショップ」、丸駒温泉（2015-11）
 - 11) Y. Tamiya*, C. Li, R. Watanabe, H. Noji and T. Komatsuzaki : “The temperature dependence and non-equilibrium properties of the single F1-ATPase kinetics”, 「理論と実験」研究会2015、広島大学東広島キャンパス（2015-10）
 - 12) 津川 晓*、李 振風、小松崎 民樹：「細胞内レベルでの微小管配向の抽出」、「理論と実験」研究会2015、広島大学東広島キャンパス（2015-10）
 - 13) 永幡 裕*、前田 理、寺本 央、李 振風、武次 徹也、小松崎 民樹：「複合化学反応系の分子シミュレーション-第一原理シミュレーションから分子技術へ-」、化学反応経路探索のニューフロンティア、品川区立総合区民会館きゅりあん（2015-09）
 - 14) H. Teramoto* : “Classification and control of electron energy level crossings”, 北大理論化学ワークショップ、北海道大学理学部7号館7-219室（2015-09）
 - 15) 田宮 裕治*、李 振風、渡邊 力也、野地 博行、小松崎 民樹 : 「Sumi-Marcus 型ポテンシャルモデルを用いた F1分子モーターの反応速度定数の解析」、日本化学会北海道支部 2015年 夏季研究発表会、北海道教育大学函館校 (2015-07)
 - 16) 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 : 「複雑な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解読法の開発」、日本化学会北海道支部 2015年 夏季研究発表会、北海道教育大学函館校 (2015-07)
 - 17) 寺本 央*、A. Hadjighasem, D. Karrasch, G. Haller、小松崎 民樹 : 「グラフラプラシアンによる異なる反応プロセスの同定」、RIMS 研究集会『力学系とその諸分野への応用』、京都府京都市 (2015-06 ~ 2015-07)
 - 18) J. N. Taylor*, C. Li, D. F. Cooper, C. F Landes and T. Komatsuzaki: “Error-based Extraction of States and Energy Landscapes from Experimental Single-Molecule Time-Series”, The Complexity of Dynamics and Kinetics from Single Molecules to Cells, Telluride Elementary School, USA (2015-06)
 - 19) 永幡 裕*、前田 理、寺本 央、李 振風、武次 徹也、小松崎 民樹 : 「マルコフ連鎖の時間階層的クラスタリング」、ERATO湊離散構造処理系プロジェクト「2015年度 初夏のワークショップ」、北海道大学工学部 (2015-06)
 - 20) 小松崎 民樹* : 「「モデル先行の科学」から「データから彫りだす科学」へ」、「俺が考える少数性生物学の次」討論会 新学術領域「少数性生物学」第9回領域会議、万国津梁館（沖縄県名護市）(2015-06)
 - 21) 富樫 祐一*、小松崎 民樹、李 振風、寺本 央、新海 創也、中川 正基、ジェームス ニコラス ティラー、フオルガ フレッティング : 「少数分子反応ネットワーク理論の構築 (7)」、新学術領域「少数性生物学」第9回領域会議、万国津梁館（沖縄県名護市）(2015-06)
 - 22) 小松崎 民樹、戸田 幹人、寺本 央*、河野 裕彦、高橋 正彦 : 「A Global Dynamical Switching of a Reaction Coordinate and its Experimental Observability」、平成26年度アライアンス成果報告会、九州大学 伊都キャンパス (2015-04)
 - 23) 津川 晓*、李 振風、小松崎 民樹 : 「蛍光画像から微小管配向構造を抽出する方法について」、理研シンポジウム「細胞システムの動態と論理 VII」、理化学研究所 生物科学研究棟 (2015-04)
 - 24) 田宮 裕治*、李 振風、渡邊 力也、野地 博行、小松崎 民樹 : 「F1 分子モーターの温度依存性」、理研シンポジウム「細胞システムの動態と論理 VII」、理化学研究所 生物科学研究棟 (2015-04)
- iii) コロキウム・セミナー等・その他
- 1) S. Tsugawa*, C. Li and T. Komatsuzaki : “On the Relationship between Local Microtubule and Cell

- Growth in Plants” , Mathematical Sciences Evening Seminar, 北海道大学遠友学舎 (2016-02)
- 2) S. Tsugawa*, C. Li and T. Komatsuzaki: “Correlated Oscillation in Microtubule Fluctuation and Cell Growth in *Arabidopsis Sepal*”, 第132回植物科学セミナー, 北海道大学理学部5号館 (2016-01)

4.5 シンポジウムの開催

- 1) 小松崎 民樹、富樫 祐一 : 「少数性生物学研究会 2016～少数性生物学の未来を語る～」、定山渓万世閣 ホテルミリオーネ (北海道札幌市) (2016年 02月 14 日～2016年 02月 16日)
- 2) T. Komatsuzaki, J. Wu and J. Wang : “Deciphering molecular complexity from protein functions to cellular network”, Hawaii Convention Center (Hawaii, U.S. USA) (2015年 12月 15日～2015年 12月 16日)
- 3) T. Komatsuzaki : “The workshop “Theory of Gas Phase Scattering and Reactivity for Astrophysics” along COST ‘Our Astrochemical History’ Action CM1401”, MIAPP, Max Planck Institute (Garching, Germany Germany) (2015年 11月 23日～2015年 12月 08日)
- 4) T. Nemoto, T. Komatsuzaki and K. Otomo : “Top-Collaboration Support Project International Lecture also as Nikon Imaging Center at Hokkaido Univ. International Lecture”, 30人, RIES, Hokkaido University (Sapporo) (2015年 11月 19日)
- 5) 小松崎 民樹、寺本 央 : 「数学と化学の融合に関する研究集会「大自由度分子系における化学反応機序の理解と制御」」、北海道大学 (北海道札幌市) (2015年 10月 31日～2015年 11月 01日)
- 6) Berry Stephen, Keshavamurthy Srihari、寺本 央、Waalkens Holger : 「Geometry of Chemical Reaction Dynamics in Gas and Condensed Phases」、Telluride Elementary School 447 West Columbia Ave (Telluride USA) (2015年 07月 27日～2015年 08月 07日)
- 7) T. Komatsuzaki, S. Presse and R. S. Berry : “The Complexity of Dynamics and Kinetics from Single Molecules to Cells”, Telluride Elementary School (Telluride USA) (2015年 06月 14日～2015年 06月 18日)
- 8) 武次 徹也、飯森 俊文、岩佐 豪、太田 信廣、小林 正人、小松崎 民樹、佐藤 信一郎、寺本 央、中谷 直輝、中山 哲、長谷川 淳也、廣川 淳、前田 理、渡部 直樹 : 「第31回化学反応討論会」、北海道大学工学部 フロンティア応用科学研究棟 (札幌市) (2015年 06月 03日)
- 9) G. Nishimura : “5th Asian and Pacific Rim Symposium on Biophotonics (APBP' 2015)”, Pacifico Yokohama (Yokohama) (2015年 04月 22日～24日)

4.6 共同研究

a. 海外機関との共同研究

- 1) 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
- 2) 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

b. 共同研究

- 1) 西村 吾朗: 株式会社ニコン、光学的手法を用いた生体組織計測技術に関する応用研究、2015. 7～2016. 6

4.7 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) 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
- 3) 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
- 4) 小松崎 民樹、基盤研究 B 特設分野研究、少数系から複雑反応ネットワークを含む遷移状態概念の深化と制御、2015～2017年度
- 5) J. N. Taylor、若手 B、New Data-Driven Tools to Quantify Heterogeneous Microenvironments in Live Cell Images、2015～2016年度

b. 奨学寄附金

- 1) 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. Roeder (コーネル大), R. Smith (コンスタンツ大) との共同研究

c. 受託研究

- 1) 西村 吾朗 (国立研究開発法人日本医療研究開発機構) : 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 (2015年度までは独立行政法人化学技術振興機構)

4.8 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：生物物理学会理事 (H27年6月～現在)
- 4) 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)

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)

c. 受賞

- 1) 永幡 裕：第31回化学反応討論会「ベストポスター賞」
2015年6月

D. 外国人研究者の招聘（氏名、国名、期間）

1. Normann Mertig、日本、(2016年02月01日～2016年02月05日)
2. Sulimon Sattari、USA、(2016年01月30日～2016年02月15日)
3. Arezki Bouaud、France、(2015年12月05日～2015年12月11日)
4. Olivier Hamant、France、(2015年12月05日～2015年12月11日)
5. Peilin Chen、Taiwan、(2015年11月18日)
6. U. Valentin Nagerl、France、(2015年11月17日～2015年11月22日)
7. Haw Yang、USA、(2015年11月03日～2015年11月05日)
8. LU BAO LIANG、China、(2015年11月02日～2015年11月04日)
9. James P Keener、USA、(2015年11月01日～2015年11月05日)
10. Holger Waalkens、Netherland、(2015年10月29日～2015年11月05日)

d. 北大での担当授業科目

- 1) 医学部、「生化学II」、小松崎 民樹、2015年11月02日
- 2) 全学共通、物理学 I、小松崎 民樹、寺本 央、2015年04月01日～2015年09月30日
- 3) 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」「1分子システム生物学：時系列情報から読み解く生体機能」、小松崎 民樹、2015年04月01日～2015年09月30日
- 4) 生命科学院、生命融合科学概論「1分子システム生物学：時系列 情報から読み解く生体機能」、小松崎 民樹、2015年04月01日～2015年09月30日
- 5) 生命科学院、生命情報分子科学特論(1分子システム生物学 [Single Molecule Systems Biology])、小松崎 民樹、2015年04月01日～2015年09月30日
- 6) 理学院、“Introduction to Information Theory and Time Series Analysis” 数理解析学 統論/数理解析学

講義、李 振風、2015年04月01日～2015年09月30日

e. 北大以外での担当授業科目

- 1) 中央大学 物理学特別講義第三「集中講義（分子データ科学）」、小松崎 民樹、2015年09月3日

f. ポスドク・客員研究員など

- 1) 博士研究員 津川暁 (2014. 4～2015. 8)
古川大介 (2012. 4～2015. 10)
Kernel Enrique Prieto Moreno (2015. 8～)

g. 修士学位及び博士学位の取得状況

博士学位：

- 1) 永幡 裕「化学反応ネットワークに埋め込まれた時間階層構造の解読方法の開発」

知能数理研究分野

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～）

大学院生 秋田大(DC2)、大木開登(MC2)

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合わせ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、人間になじみの良い知能機械の設計応用にも期待できる。

我々は、細胞の行動を主な対象として、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、理論や実験ならびにフィールド調査を、また生命科学や数物科学および情報科学を活用する。

具体的には 8 つの研究テーマを掲げている。(1) 単細胞生物からヒトにいたる生命知の基本アルゴリズムの探求、(2) 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、(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) 這行運動の一般力学とその制御機構の解明、(6) 胚発生の形態形成における細胞集団の力学解析、(7) 生体の神経系と身体の相互作用に関する進化的検討、(8) 収縮性タンパク質のレオロジーから読み解く細胞運動。

2. 研究成果

(a) 繊毛虫ゾウリムシの学習行動における実験的評価とその動力学的機構

単細胞生物纖毛虫のゾウリムシに着目して、数分程度で起こる学習行動のメカニズムの解明を試みた。ゾウリムシは纖毛という小器官を打つことによって遊泳する。そしてその纖毛運動は、膜電位や Ca^{2+} によって制御されていることがよく調べられており、行動と生体内反応が対応付けられている。また、その膜電位の挙動が Hodgkin-Huxley タイプのモデル方程式で説明できることが知られている。このことは、学習行動のしくみが膜電位方程式に帰着できることを示唆している。したがって、ゾウリムシは学習行動のメカニズムを研究するうえで非常に良いモデル生物である。

本研究での成果は以下の 3 点である。 (1) キャピラリー空間に閉じ込められた際に生じる新規学習行動の発見。ゾウリムシは転回できないほど細いキャピラリー空間に閉じ込められると、それまで見られなかつた長期後退遊泳を示すようになった。 (2) キャピラリー空間での運動経験がもたらす新規学習行動の発見。ゾウリムシはキャピラリー空間をしばらく遊泳すると、その後、広い空間に出た後も直線的な遊泳を示すようになった。 (3) これらの実験により発見した新たな学習行動のメカニズムを解明するための数理モデルの提案。従来の膜電位方程式と纖毛打調節の関係を再検討し、新たな膜電位方程式を構成した。このモデルは、我々が発見したゾウリムシの新規の学習行動を再現した。モデルからの解析により、ゾウリムシの学習行動をもたらす機構は、繰り返し起こる壁との衝突刺激によって Ca^{2+} チャネルが遅い時間スケールで反応することが鍵であることが示唆された。より一般的にいって、短時間の学習行動が膜電位の挙動として理解できることを示した。これはゾウリムシの短期学習機構の新しい概念といえる。

(b) 真正粘菌変形体の遂巡行動の多様性

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（行動多様性と呼ぶ）。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、(1) 毒物のみならず栄養物等の複数種類の化学物質で類似の行動多様性がみられたことから、この行動多様性は特定の化学物質に限定した性質ではないこと、(2) 粘菌が化学物質帯に遭遇すると、化学物質帯の直前、途中、直後など異なる場所で立ち止まることから、さらなる行動多様性が見つかったこと、(3) 粘菌運動の数理モデリングにより、粘菌の内的揺らぎや環境のちょっとしたゆらぎにより、行動多様性が生み出される可能性があることがわかった。

(c) 適応的這行運動の力学的数理モデル

ムカデやヤスデといった脚式這行動物やナメクジやミミズといった非脚式這行動物は、ともに体軸に沿って配置された多数の身体部位を時空間的に高度に協調（“運動波”と呼ばれる）させて移動している。我々はある種の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、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を発見した。本年度は、運動波を用いた這行移動の力学的数理モデルを構成し多自由度系の自律分散式適応制御の観点から解析を行い以下の有力なシナリオを得た：(1) 各身体部位の周期的な基本運動は中枢神経系によりループに規定され、それ自体は多様な歩容を包含する。これら多様な潜在的歩容リズムは、(2) 接地による地面と体の力学的相互作

用の情報が筋肉の力学的状態を感じる自己受容性感覺神経系から中枢神経系へフィードバックされることにより単一の歩容が安定化される。(3)このフィードバック様式が状況依存性・種依存性を持つことにより状況依存的・種依存的歩容が生じる。

(d) 上皮細胞の集団運動のメカニズムの解明

多細胞生物は一つの受精卵から細胞分裂を繰り返してその形を形成していくが(形態形成)、その駆動力は胚を覆っている上皮細胞シートの折れ曲がりや伸張、移動であることが高い精度の観測によって明らかにされてきている。これまでの先行研究によって細胞シートの折れ曲がりや伸張のメカニズムは解明されてきていたが、上皮細胞シート内での細胞の集団移動のメカニズムは明らかにされていなかった。我々は上皮細胞シートのダイナミクスを適切に表現できる数理モデル(vertex model)を用いて細胞間に働く収縮力と細胞間の接着力の強さの違いがあると細胞シート内で上皮細胞は集団で一方向に動きうることを示した。またその仮説の妥当性をショウジョウバエの蛹での性器の回転運動で確認した。

3. 今後の研究の展望

(a) 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。

(b) 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つ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。

(c) 繊毛の運動の力学モデル

纖毛は真核生物のほとんどすべての細胞に生えており、細胞の感覚器官、運動器官として重要な役割を果たしている。纖毛の異常は直ちに真核生物の表現型の異常につながってしまうほど、真核細胞の最も重要な器官の一つである。纖毛は基本的には微小管の束(9本もしくは9+2本)からできており、キネシンなどの分子モーター

などの駆動力、相互作用によって複雑な動きができることが知られている(例えは推進力を生む有効打)。その力学的メカニズムは未だ明らかにされていない。微小管、分子モーター、結合分子の動力学を考え、力学的な視点からその運動のメカニズムを探る。

(d) マイクロ流路によるマイクロエソロジー研究の確立

今年度、笠晴也氏らナノ加工・計測技術班の協力によりゾウリムシ等の纖毛虫が遊泳可能なサブミリオーダーの流路をガラス基板上に自在に実現する為のノウハウの蓄積を行った。今後、これらの技術を基盤として纖毛虫の為の系統的な行動研究法を確立し、新たな研究分野を開拓することを目指す。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) Shigeru Kuroda, Seiji Takagi, Toshiyuki Nakagaki and Tetsuo Ueda: "Allometry in Physarum plasmodium during free locomotion: size versus shape, speed and rhythm", *Journal of Experimental Biology*, Vol. 218, 3729/3738 (2015). doi: 10.1242/jeb.124354
- 2) S. Kuroda, S. Takagi, T. Saigusa and T. Nakagaki : "Physical ethology of unicellular organism", in *Brain evolution by design* (Edited by S. Shigeno), Springer-Verlag, accepted on Dec 2015.
- 3) K. Sato, T. Hiraiwa, and T. Shibata: "Cell chirality induces collective cell migration in epithelial sheets", *Phys. Rev. Lett.* 115, 188102 (2015).
- 4) K. Sato and S. Shima: "Various oscillation patterns in phase models with locally attractive and globally repulsive couplings", *Phys. Rev. E* 92, 042922 (2015).
- 5) K. Sato, T. Hiraiwa, E. Maekawa, A. Isomura, T. Shibata, and E. Kuranaga: "Left-right asymmetric cell intercalation drives directional collective cell movement in epithelial morphogenesis", *Nat. Commun.* 6, 10074 (2015).

4.2 総説、解説、評論等

- 1) 中垣俊之:「物理エソロジーの道すがら」、人工知能学会誌、30(4): 525-531 (2015)
- 2) 黒田茂、田中良巳、中垣俊之:「脚式と非脚式の這行口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」、週間日本医事新報、医事新報社、(4752): 63- (2015)
- 4) 中垣俊之:「単細胞生物の物理エソロジー 一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)
- 5) 中垣俊之、黒田茂:「生命トポロジー 一位相幾何学による生命観ー」、トポロジー理工学(丹田聰、G.Volovik、松山

豊樹編集)、朝倉書店、印刷中

- 6) 石渡信一, 佐藤勝彦 : 「心筋収縮系にみる自励振動現象 SPOC」, 日本物理学会誌 第 70 卷 7 号「交流」

4.3 講演

a. 招待講演

i) 学会

- 1) T. Nakagaki : "Adaptive dynamics for shape optimization inspired by the use-and-growth rule in a simple organism of slime mold", The 9th International Conference on Bio-inspired information and Communications Technologies, Columbia University, New York, USA (2015-12). plenary talk.
- 2) T. Nakagaki : "Biomechanics of peristaltic crawling in limbless and legged organism", International Conference on Mathematical Modeling and Applications 2015 -Self-organization Modeling and Analysis-, Meiji University, Tokyo (2015-10)
- 3) T. Nakagaki : "Physical ethology of an amoeba", 4th IFAC Conference on Analysis and Control of Chaotic Systems (IFAC CHAOS 2015), 首都大学東京 (2015-08), plenary talk

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

1. R. Kobayashi and T. Nakagaki : "Mechanics of Smart Behaviors -From amoeba to robot-", International Conference on Systems Biology (ICSB2015), Biopolis, Singapore (2015-11)
2. T. Nakagaki : "Capacity of learning the shape of arena in the single celled swimmer, viewed from slow dynamics of membrane potential", International Workshop on New Frontiers in Nonlinear Sciences, Niseko, Hokkaido (2016-3-6/8)
3. T. Nakagaki : "Physical ethology of single-celled organism", The 5th International Symposium on Primatology and Wildlife Science Inuyama International Sightseeing Center, Aichi (2016-3-3/6)
4. 中垣俊之 : "物質科学から生命知の基本アルゴリズムに向かって"、北海道大学物質科学フロンティアを開拓する Ambitious リーダー育成プログラム?東北大大学マルチディメンション物質理工学リーダー養成プログラム共催合同シンポジウム、基調講演、北海道大学 (2016-03-17/18), 基調講演
5. 中垣 俊之 : 「粘菌 一その驚くべき知性一」、全国自治体病院学会、函館 (2015-10)、特別講演
6. 中垣 俊之 : 「巨大細胞粘菌がつくる輸送ネットワークの構造と機能」、高分子学会北海道支部サマースクール、札幌 (2015-08)
7. 中垣 俊之 : 「単細胞に学ぶ問題解決法」、函館市産学連携「クリエイティブネットワーク」講演会、函館市函館国

際ホテル (2015-06)

8. 中垣 俊之 : 「生き物の這う運動のバイオメカニクス」、第 75 回大阪大学機械工学系技術交流会、大阪大学吹田キャンパス (2015-05)
9. K. Sato: "Why does shear banding behave like first-order phase transitions? Derivation of a potential from a mechanical constitutive model", International Conference CoMFoS15, Kyushu University, Nishijin Plaza (2015-11)
10. 佐藤勝彦: "上皮細胞の集団運動"、基生研研究会「物理学は生物現象の謎を解けるか」、基礎生物学研究所 (NIBB) (2016-01)
11. 佐藤勝彦: "上皮細胞の集団運動"、公開シンポジウム「ソフトマターを基盤とするバイオ系の構築」、首都大学東京 南大沢キャンパス (2016-01) 招待講演
12. Kuroda,S. (2015) "Physical ethology and animal walking", CIAC 2015 Hakodate Workshop 3, Nov 8-9, 2015, Hakodate, Japan.
13. Kuroda,S. and Nakagaki,T. (2015) "Transition among possible modes in crawling lo-comotion", Mini-workshop on "A crossroad of biology and mathematics - Modeling and Computation-", Apr 30 - May 1, 2015, Sapporo, Japan.

iii) コロキウム・セミナー等・その他

1. 中垣 俊之:「織毛虫の空間学習とその膜電位機構」、新学術領域研究「ゆらぎと構造の協奏」班会議、学習院大学 (2016-03-09)
2. 中垣 俊之:海外で研究実績を持つ研究者によるリレートーク、北海道科学英語発表・交流会、札幌市青少年科学館、札幌市 (2016-03-12)
3. 中垣 俊之 : 「オックスフォードで見上げた単細胞の底力」、北海道日英協会新年会講演会、札幌グランドホテル、札幌 (2016-01)
4. 中垣 俊之 : 「粘菌がつくる交通網—イノベーションにつながる情報処理—」、北海道室蘭栄高校スーパーサイエンスハイスクール情報講演会、北海道立室蘭栄高等学校、室蘭 (2015-12)
5. 中垣 俊之 : 「粘菌 一偉大なる単細胞が人類を救う一」、日本技術士会 北海道支部講演会、札幌市 (2015-10)
6. 中垣 俊之 : 「這行運動のバイオメカニクスと行動制御」、名古屋大学情報科学研究科創発システムセミナー、名古屋大学 (2015-07)
7. 中垣 俊之 : 「単細胞生物の賢さを探る」、第6回公開セミナーサイエンスインターハイ@SOJO(崇城大学主催)、崇城大学、熊本市 (2015-07)
8. 中垣 俊之 : 「単細胞って「単細胞」? 一見方を変えると見え方がかわる一」、TEDx Sapporo -Beyond the border-、北翔大学 (2015-07)
9. 中垣 俊之 : 「粘菌一偉大なる単細胞が人類を救う一」、

- 大阪大学サーチプロジェクト 知と感性のネットワークシリーズ クロージングトーク「アート&サイエンス『ニューコロニー／アイランド』のその先へ」、京阪電車なにわ橋駅アートエリア B1、大阪 (2015-06)
10. 中垣 俊之：「単細胞生物粘菌の賢さを探る－生命情報処理の物質的基盤－」、平成 27 年度 第 1 回油化学セミナー、東京 (2015-05)

4.4 共同研究

a. 海外機関との共同研究

- 1) 米国カリフォルニア大学デービス校のロバート・ガイ教授と米国ユタ大学ジェームズ・キーナー教授とユタ大学にて共同研究の打ち合わせを行った。
- 2) 英国オックスフォード大学植物科学科マーク・フリッカー上級講師を招聘し(2015-7-5/8)、実験技術の交換をおこない共同研究の打ち合わせを行った。
- 3) 独国バイロイト大学ヘルムット・プ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、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. 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) 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 : 名古屋大情報科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 : 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

e. 外国人研究者の招聘

- 1) 英国オックスフォード大学植物科学科マーク・フリッカー上級講師(2015-7-5/8).
- 2) 独国バイロイト大学ヘルムート・プラント教授 (2015-9-8/10).
- 3) 中国上海交通大学呂宝糧教授 (2015-11-2/4).
- 4) 米国ユタ大学数学科ジェームズ・キーナー特別教授 (2015-11-1/5)

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～）

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。

近年、ナノスケールの構造を利用して、光の振る舞い／伝搬を制御する新しい技術が活発に研究されている。これは、バルク体や薄膜といった単純な物質と光との相互作用だけを取り扱っていた従来の光制御技術と異なり、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で、フォトニック結晶や微小共振器による光制御、プラズモニック・メタマテリアルといった技術がそれらを代表している。

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ことができる。

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、榎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、光子一分子間の結合を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

プラズモニック・メタマテリアル技術を用いて、金属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、そのプロトタイプの作製を行った。

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。本研究では、湾曲金ナロッドと直線金ナ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を作製して透過スペクトルを測定して評価した。これまでに固体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湾曲ロッドの弧長330nmと同じ長さを持つ直線ロッドをギャップサイズ10nmと近接させて配置したハイブリッド金ナノ構造を作製した。入射光の直線偏波を直線ロッドの短軸方向に照射した際にハイブリッド金ナノ構造は、2つの透過ディップの間である波長800nm付近に透過ピークをもつ。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。ハイブリッド構造の弧長を860nmと長くして直線ロッドもそれに対応させた場合に波長1750nmに透過ピークが現れた。弧長の長さを設計することにより近赤外域で疑似電磁誘起透明化現象の透過ピークを得られる。

本年度は、波長800nm以下の可視～紫外域にプラズモン共鳴ピーク波長を有するハイブリッド金属ナノ構造の作製を試みた。湾曲金ナノ構造の弧長を短くするとプラズモン共鳴ピーク波長は短波長シフトする。そこで弧長をさらに短くした湾曲金ナノ構造を作製して透過スペクトルを測定した。弧長170nmの時に波長600nm付近に湾曲金ナノ構造のプラズモン共鳴ピークが観測された。湾曲ロッドの弧長170nmと同じ長軸長さの直線ロッドのハイブリッド金

ナノ構造の作製に成功した。今後はハイブリッド金ナノ構造の可視域の透過スペクトル測定を行う。

また、金属として金よりも安価で広く利用されているアルミニウムは、可視から紫外域でプラズモン共鳴ピークをもつナノ構造を作製できることが知られている。そこで、ナノギャップを有する湾曲ロッドと直線ロッドのハイブリッドアルミニウムナノ構造を作製した(図1)。任意のギャップサイズを有するハイブリッドアルミニウムナノ構造の作製にも成功した。今後は光学特性を評価し、金属によるプラズモンカップリング効果について実験的に検証を進める。

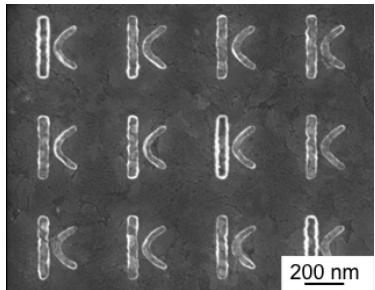


図1: 湾曲ロッドと直線ロッドのハイブリッドアルミニウムナノ構造の電子顕微鏡像。ギャップ幅は10nm。

3. 今後の研究の展望

平成27年度の研究結果をもとに、作製したハイブリッド金属ナノ構造の可視～紫外の分光計測による光学特性の評価を行う。さらに計算機を用いた電磁界計算を通して最適な構造設計を行い、高いQ値を持ったプラズモニック共振器を利用した新しい光機能デバイスの開発を目指す。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) T. Kanazawa, T. Amemiya, A. Ishikawa, V. Upadhyaya, K. Tsuruta, T. Tanaka, and Y. Miyamoto: "Few-layer HfS₂ transistors", *Sci. Rep.*, 6: 22277 (2016).
- 2) Z. Gu, T. Amemiya, A. Ishikawa, T. Hiratani, J. Suzuki, N. Nishiyama, T. Tanaka, and S. Arai: "Optical transmission between III-V chips on Si using photonic wire bonding", *Opt. Express*, 23: 22354–22403 (2015).
- 3) A. Ishikawa and T. Tanaka: "Metamaterial Absorbers for Infrared Detection of Molecular Self-Assembled Monolayers", *Sci. Rep.*, 5: 12570 (2015).
- 4) N. Nishiyama, T. Tanaka, and S. Arai: "Investigation of Optical Interconnection by using Photonic Wire Bonding", *J. of Laser Micro/Nanoengineering (JLMN)* 10: 148–153 (2015).

4.2 総説・解説・評論等

- 1) 田中拓男(協力) :「小さな「透明マント」の開発に成功」、

Newton, 2015年12月号, p.130 (2015).

- 2) 田中拓男 :「光が3倍速くなるメタマテリアル」、*バリティ*、pp.48–50 (2015).
- 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* and A. Ishikawa: "Metamaterial absorber for attomole level molecular detection", The 9th International Conference on Nanophotonics (ICNP2016), Academia Sinica, Taipei, Taiwan (2016–03).
- 2) T. Tanaka*: "Towards Isotropic Optical Metamaterials", Optics&Photonics Taiwan, International Conference (OPTIC2015), National Tsing Hua University, Hsinchu, Taiwan (2015–12).
- 3) T. Tanaka*: "Top-down and bottom-up fabrication techniques for isotropic metamaterials", The 11th Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific Rim (CLEO-PR 2015), BEXCO, Busan, Korea (2015–08).
- 4) 田中拓男*, 石川篤: “光機能性デバイスのための三次元レーザー加工技術”, 第83回レーザ加工学会講演会(大阪大学銀杏会館, 吹田, 大阪 (2015–06).

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 田中拓男* : 「3次元光メタマテリアルの加工技術」、光産業技術振興協会 多元技術融合光プロセス研究会(理研和光) (2015–11).
- 2) T. Tanaka*: "Three-dimensional metamaterials for isotropic response", International Symposium on Optical Memory 2015 (ISOM2015), Toyama International Conference Center, Toyama, Japan (2015–10).
- 3) T. Tanaka*: "Fabrication of Three-dimensional Metamaterials", The 1st International POSTECH Nanophotonics Workshop – Frontiers in Metamaterials and Plasmonics, POSCO International Center POSTECH, Korea (2015–08).
- 4) T. Tanaka*: "Fabrication of Three-dimensional Metamaterials", The 36th Progress In Electromagnetics Research Symposium, Prague, Czech Republic (2015–07).

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 (2016–02).
- 2) T. Tanaka*: "Dark Metamaterials", Seminar in Academia Sinica, Taiwan (Academia Sinica, Taipei, Taiwan (2015–12).

- 3) 田中拓男*：「光メタマテリアル」理化学研究所と親しむ会・第21回セミナー、フクラシア浜松町、東京(2015-11).
- 4) 田中拓男*：「光メタマテリアル」、理化学研究所肥山ストレンジネス核物理研究室セミナー、ホテルグランドパレス、東京(2015-10).
- 5) 田中拓男*：「3次元メタマテリアル」、第27回先端光量子アライアンスセミナー、理研和光、埼玉(2015-10).
- 6) 田中拓男*：「レーザー加工とメタマテリアル」、電気学会「持続可能な社会と先端技術を支えるレーザプロセシング技術調査専門委員会」、神田、東京(2015-10).
- 7) Y. Yokota*, Q. Sun, K. Ueno, Y. Matuo, H. Misawa, and T. Tanaka: "Visualization of Dark Plasmon Mode on Gold Curvilinear Nanorods and Straight Nanorods by Photoemission Electron Microscopy", The 5th Korea-Japan Metamaterials Forum, Seoul National University, Seoul, Korea (2015-07).
- 8) T. Tanaka*: "Fabrication of Isotropic Metamaterials", The 5th Korea-Japan Metamaterials Forum, Seoul National University, Seoul, Korea (2015-06).
- 9) T. Tanaka*: "Metamaterials", French-Japanese Seminar Emerging Materials for Optics, Embassy of France, Tokyo (2015-06).

年10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学会代議員第54期(2015年2月1日～)

b. 一般講演

- 1) Y. Yokota* and T. Tanaka: "Plasmonic Coupling of Gold Curvilinear Nanorod Dimers at Different Distances", The 9th International Conference on Nanophotonics (ICNP2016), Academia Sinica, Taipei, Taiwan (2016-03).
- 2) Y. Yokota* and T. Tanaka: "Plasmonic coupling of gold curvilinear nanorods with nanogap", SPIE Optics&Photonics 2015, SanDiego Convention Center, San Diego, USA (2015-08).
- 3) Y. Yokota* and T. Tanaka: "Plasmonic Coupling between Gold Curvilinear Nanorods and Straight Nanorods with Controlling Gap Distance", The 4th Advanced Lasers and Photon Sources (ALPS'15), Pacifico Yokohama, Kanagawa (2015-04).
- 4) 横田幸恵*、田中拓男：「金ナノロッドと湾曲金ナノロッドによる可視-近赤外領域でのプラズモン誘起透明化現象」、国際光年記念シンポジウム、東京大学、東京(2015-04).

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

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. 活動目標

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、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、平成18年にニコンインステック社からの寄附によって設立された寄附研究部門、「ニコンバイオイメージングセンター」が前身となっている。ニコンインステック社以外の多数の協賛企業各社からもカメラ、各種機器、試薬、ソフトウェア等の提供をいただいた。寄附研究部門としての運営は平成23年9月末で終了したもの、利用者から活動の継続を希望する多数の要望が寄せられた。そのため、平成24年度の所の改組に伴って、現在の名称へと変更し、研究支援部の一部門として再開した。現在は、文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム事業からの支援も受けつつ、所によって直接運営されている。

当センターの特色は、所内や学内の研究者のみならず、全国の研究者が広く設備等を利用可能な点である。特に近年では試料の委託分析も開始したこと、遠方の大学や企業の研究者の観察依頼にも対応している。専任スタッフが機器操作やソフトウェアの利用方法をつぶさに説明することによって、顕微鏡に関しては初級者の研究者であっても観察技術全般を習得でき、一方で当センターにしてみると、利用者の視点に基づく機器等の詳細な要望が寄せられる。

このようにして、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ることにより、利用者の要望を速やかに反映させた更なる技術改良や新技術開発、およびその多様な研究分野への応用を推進することを目的としている。更には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、そして国際的な交流をも視野に入れて、以下の項目に沿った活動を展開している。

- 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。

- 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。
- 研究者への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。
- 顕微鏡ユーザーのアイデアを反映した新型顕微鏡、ならびにその関連技術の開発を行う。

2. 活動成果

(a) 利用実績（平成27年4月～平成28年3月）

平成27年度の延べ利用人数・利用時間は、651人・2934時間に達した。平成24～26年度のデータ（H24: 261名・1297時間, H25: 404名・2356時間, H26: 534名・1820時間）と比較しても、着実に利用が増加していることがうかがえる（図1）。

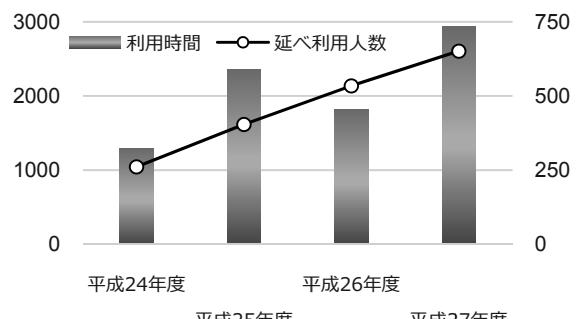


図1. 平成24年度～27年度の利用状況の推移

図2には、平成27年度に当センターを利用した研究者の所属の内訳を示す。当研究所内の利用が多いのは当然ではあるが、学内の多くの学部等からの利用があり、結果として学内利用と所内利用とは同程度となった。更に学外研究者の利用も全体の2割程度にのぼっている。他大学等の継続的利用者に加え、一般企業からも新規の利用があり、特に北海道に在住する複数の企業担当者は日常的に利用を行っている。

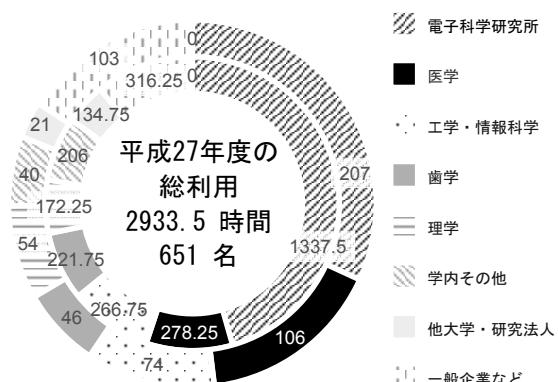


図2. 平成27年度の利用状況と利用者所属の内訳

このように当センターは所内の研究者だけには留まらず、幅広い学部等の、更には学外の研究者から多くの利用があるが、これは学内に当センターの存在が完全に浸透したこと、そして平成26年度より大規模な学会、展示会等の場で幅広く当センターの活動をアピールするようになったことが主な要因と考えられる。

また本年度は、当センターの利用者が著した10報の論文が各分野の学術誌に掲載された。

(b) イメージングに関する知識と技術の普及

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。平成27年度は、合計21件の利用問い合わせがあり、54名の研究者に操作指導を行った。

昨年度の平成26年度には、当センターで新規に開発した光学顕微技術（マルチビーム走査型2光子顕微鏡）を原著論文で発表した。本年度はこのシステムも一般の研究者が広く利用できるようにしたところ、他大学ならびに他の研究法人を含めて、延べ52件の利用があった。また平成26年度の途中から本年度までの約一年間、ニコンで開発の超解像顕微鏡のデモ機を設置して超解像顕微鏡の普及に努めたところ、109件の利用があり、大いに好評を博した。併せて平成27年度は、ブルカーアックス社の生体試料観察用の原子間力顕微鏡（AFM）のセミナーや、当センターの協賛企業のJASCO（日本分光）社の卓上タイプの走査電子顕微鏡（SEM）のデモも行った。このように当センターでは、既存の顕微鏡技術だけではなく、最新鋭の顕微鏡の技術や情報をも迅速に提供することによって、顕微鏡やその関連技術に関する知識や技術の啓蒙と普及にも尽力している。

更に新体制となってからは、ニコンインステック社などの共催で「蛍光イメージング・ミニシンポジウム」をはじめとする各種学術講演会やセミナーを積極的に開催している。ここでは関連分野の最先端研究、協賛企業による最新機器開発状況に関する講演を通じて、双方向のフィードバックができる環境を定期的に提供している。付記して本年は、学生や若手研究者の教育活動を目的とした当研究所の「トップランナーコラボレーション事業」の一環で、「Top-Collaboration Support Project International Lecture also as MIC@HU Lecture」も開催した。当センターに関する研究者では、ボルドー大学のU. Valentin Nägerl博士と、台湾アカデミアシニカのPeilin Chen博士が講演を行った。

3. 今後の活動の展望

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、光学顕微鏡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の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深化と普及に努めてゆきたい。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) 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) 根本知己、大友康平、日比輝正、一本嶋佐理：“透過型液晶デバイスを用いたレーザー走査型顕微鏡の高解像化・超解像化”実験医学別冊「超解像イメージングができる！」編集：岡田康志（羊土社、2016）印刷中。
- 2) 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 (2016).
- 3) T. Murata, K. Otomo, T. Hibi, H. Nakayama, T. Nemoto, M. Hasabe : “Two-photon spinning confocal microscopy of living cells and tissues” Plant Morphology 26 (2015): 27–32.
- 4) K. Otomo, T. Hibi, Y. Kozawa, T. Nemoto : “STED microscopy –super-resolution bio-imaging utilising a stimulated emission depletion”, Microscopy, 227–236 (2015).

4.4 受賞

- 1) K. Otomo, T. Hibi, T. Murata, H. Watanabe, R. Kawakami, H. Nakayama, M. Hasebe, T. Nemoto, Hot Article Award Analytical Science (2015-04).

4.5 講演

a. 招待講演

i) 学会

- 1) 大友康平：「Enlargement of the visible region of biological structures by novel laser-scanning fluorescence microscopy」2015 年度日本プランクトン学会若手の会、札幌 (2015-09).
- 2) K. Otomo, T. Hibi, T. Nemoto, : 「Visualization of biological nano, micro-structures by utilizing novel two-photon excitation laser scanning microscopes」The 9th ICME International Conference on Complex Medical Engineering (CME 2015),Okayama, Japan (2015-06).

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 大友康平、根本知己：「二光子励起顕微鏡の機能向上と生体内現象の詳細可視化追跡」産業技術総合研究所主催 ライフサイエンス分野講演会、札幌(2016-02).

- 2) 大友康平、根本知己：「北海道大学ニコンイメージングセンターにおける光学顕微鏡開発」理化学研究所 ライフサイエンス技術基盤研究センター 顕微鏡開発ワークショップ、神戸 (2016-01).
- 3) K. Otomo, T. Nemoto, : 「Improvement of two-photon excitation microscopy for biological specimens by utilizing novel technologies」RIES-RCAS Workshop,Taipei, Taiwan (2015-11).
- 4) 大友康平：「新規レーザー走査型顕微鏡開発による蛍光バイオイメージングの高度化」第14回北大若手研究者会、札幌 (2015-08).

iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) K. Otomo, T. Nemoto, : 「NIC@Hokkaido university and collaborative works」Nikon Imaging Center Director's Meeting,Heidelberg, Germany (2015-10).
- 2) 大友康平:「二光子顕微鏡の機能向上による蛍光バイオイメージングの高度化」、東京工業大学大学院理工学研究科物性セミナー、東京 (2015-10).

b. 一般講演

i) 学会

- 1) K. Otomo, T. Hibi, H. Watanabe, Y. Yamanaka, H. Nakayama, T. Nemoto: "High-temporal resolution 3D and 4D bio-imaging by two-photon excitation spinning disk confocal microscopy", Focus On Microscopy 2016, Taipei, Taiwan (2016-03).
- 2) T. Murata, K. Otomo, T. Hibi, H. Nakayama, T. Nemoto, M. Hasebe : "Perinuclear microtubule clusters initiate a spindle as centrosomes in tobacco cells", 2015 cell biology ascb annual meeting, San-Diego, America (2015-12).
- 3) 村田隆、大友康平、日比輝正、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共焦点顕微鏡による植物紡錘体形成の3D ライブイメージング」、第 67 回日本細胞生物学会大会、東京 (2015-06).
- 4) 日比輝正、大友康平、一本嶋佐理、大嶋祐介、今村健志、根本知己:「白色レーザー光を活用した多波長励起高速4次元イメージング」、第 67 回日本細胞生物学会大会、東京 (2015-06).

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、山中祐実、中山博史、根本知己 「Two-photon excitation spinning disk confocal microscopy by utilizing a high-peak-power 1042-nm laser」新学術領域レゾナンスバイオ第一回会議、熱海 (2016-03).
- 2) 大友康平、根本知己「二光子顕微鏡の空間、時間分解能向上」北海道大学部局横断シンポジウム、札幌 (2016-02).
- 3) 大友康平、日比輝正、村田隆、中山博史、長谷部光泰、根本知己:「マルチビーム走査型二光子顕微鏡の開発と

生体内高速現象の可視化」、CREST『光展開』公開シンポジウム、東京 (2015-12).

- 4) K. Otomo, T. Hibi, T. Murata, H. Watanabe, R. Kawakami, H. Nakayama, M. Hasebe, T. Nemoto: "3D visualization of living cells and organs by two-photon excitation spinning disk confocal microscopy utilizing a high-peak-power 1042-nm laser", 附置研究所間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26年度成果報告会、博多 (2015-04).
- 5) 村田隆、大友康平、日比輝正、中山博史、根本知己、長谷部光泰: “多点走査型2光子共焦点顕微鏡による3D ライブイメージング”, 第5回物質・デバイス領域共同研究拠点活動報告会、博多 (2015-04).

4.8 シンポジウムの開催

b. 一般のシンポジウム

- 1) 平成 27 年度北海道大学電子科学研究所ニコンイメージングセンター学術講演会、参加者45名、北海道大学 (2015-11)
- 2) Nikon Imaging Center International Lecture also as Top-Collaboration Support Project International Lecture、参加者30名、北海道大学 (2015-11)
- 3) 第四回蛍光イメージングミニシンポジウム、参加者49 名、北海道大学 (2015-8)

4.10 予算獲得状況

b. その他

- 1) 大友康平、ノーステック財団若手研究人材・ネットワーク育成補助金、多点走査型二光子顕微鏡による生体内部の高速多次元イメージング、2015 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～）
技術補助員 石田 麻衣子

1. 研究目標

電子科学研究所は、欧米の5つの研究所、アジアの7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行わ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。2015年度の申請では採択に至らなかったが、引き続き戦略的かつ組織的に外部予算の獲得を目指していく。

(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27年度トップランナーとの協働教育機会拡大支援事業「A:先導型」（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た。2015年11月の北海道大学電子科学研究所附属社会創造数学研究センターの開所式に併せてプリンストン大学（米国）の Haw Yang 教授、ユタ大学（米国）の James Kenner 教授を招聘し、講演いただいた。同年11月にはニコンイメージングセンター国際セミナーと共に開催でトップランナーコラボレーション事業 第3回学術講演会を開催し、

アカデミアシニカ（台湾）の Peilin Chen 研究員とボルドー大学の U. Valentin Nagerl 教授にご講演いただいた。また、リーディング大学院で小松崎が招聘したブルゴーニュ大学の Patrick Senet 教授にも講演を行っていただいた。



資料1. 北海道大学電子科学研究所附属社会創造数学研究センターと共に開催したトップランナーコラボレーション事業（2015年11月4日）。



資料2. ニコンイメージングセンターと共に開催でトップランナーコラボレーション事業 第3回学術講演会/ニコンイメージングセンター国際セミナーを開催（2015年11月19日）。

また、第4、5回学術講演会として、Olivier Hamant准教授、Arezki Boudaud教授にそれぞれ、Mechano-Devo: Mechanical signals in plant development、Stochasticity and robustness in growth and morphogenesisというタイトルで講演を行っていただいた。

(c) 第16回RIES-HOKUDAI国際シンポジウム「術」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壤を提供することを目的としている。2015年度は国際連携推進室の委員である太田教授が委員長を、藤原准教授が委員を担当し、本学の支援の下、the 6th International Symposium of Nano-Macro Materials, Devices, and System Research Alliance Projectとの共催により11月10・11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、国内では九州大学、情報通信研究機構、大阪大学などから、海外ではアカデミアシニカ(台湾)、成均館大学校(韓国)、西江大学校(韓国)からの総勢100人を超える院生、ポスドク、研究者などの参加者が集った。本学からは、電子科学研究所のほかに工学研究院、医学研究科、理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。国際共同研究を開拓している教授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

2015年度は電子研国際プロジェクト、トップコラボ事業、共同研究拠点事業、HFSPの予算などを利活用して、関係の深い海外の研究者を電子研に招へいした。

1. Haw Yang教授、USA、プリンストン大学(2015年11月03日～2015年11月05日)
2. James P. Keener教授、USA、ユタ大学(2015年11月01日～2015年11月05日)
3. Peilin Chen研究員、Taiwan、アカデミアシニカ(2015年11月

18日～2015年11月21日)

4. U. Valentin Nägerl教授、France、ボルドー大学(2015年11月17日～2015年11月22日)
5. Patrick Senet教授、France、ブルゴーニュ大学(2015年11月16-21日)
6. Arezki Boudaud教授、France、リヨン高等師範学校(2015年12月05日～2015年12月11日)
7. Olivier Hamant准教授、France、リヨン高等師範学校(2015年12月05日～2015年12月11日)
8. Sulimon Sattari博士課程院生、USA、カリフォルニア大学Merced校(2016年01月30日～2016年02月15日)
9. LU BAOLIANG、China、上海交通大学(2015年11月02日～2015年11月04日)
10. Holger Waalkens、Netherland、グローリングデン大学(2015年10月29日～2015年11月05日)

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 王 永明 (2012.9～)

博士研究員 アグス・スパギヨ (2015.4～)

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～)

技術補助員 秋まり以 (2015.4～)

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、超高压電子顕微鏡室）、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・スピニ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ドライエッティング装置、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、超高压透過型電子顕微鏡、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27年4月～平成28年3月）

平成27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88件、うち、30%以上が企業・他大学・公的研究機関の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90件以上、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・微細構造解析の支援課題に関する学会発表は200件以上、論文掲載が50件以上であった。加えて、本学利用実績が平成27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、nanotech2016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に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。本年度も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についての報告を行っている。この他に、高分子学会、JASIS、イノベーションジャパンなど、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) 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 一ナノインプリントによる生産技術の開発一

「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している。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。

(d) 設備運用状況

平成27年度からは収差補正電子顕微鏡の外部利用を本格化させた。本装置は、従来の汎用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。学外ユーザーからの積極的な利用が行われており、引き続き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されている。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(超高压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27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 「北海道大学微細加工PF紹介」、微細加工プラットフォーム バイオ・MEMS実践セミナー、東大 (2015-12)

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

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24年	平成25年	平成26年	年度 部門等		平成27年
光科学 研究部門	欧 文	25 (24)	21 (21)	9(7)	光科学 研究部門	欧 文	18(18)
	邦 文	0	0	5		邦 文	0
物質科学 研究部門	欧 文	17 (14)	11 (10)	23(18)	物質科学 研究部門	欧 文	14(14)
	邦 文	2 (2)	0	3		邦 文	1(1)
生命科学 研究部門	欧 文	9 (9)	5 (3)	17(17)	生命科学 研究分野	欧 文	10(10)
	邦 文	0	2	1		邦 文	1(1)
数理科学 研究部門	欧 文	20 (19)	16 (16)	14(14)※	附属社会 創造数学研究センタ ー	欧 文	28(25)
	邦 文	2 (1)	1 (1)	1		邦 文	2(1)
グリーンナノテクノロジー研究センター	欧 文	33 (33)	30 (30)	24(24)	グリーンナノテクノロジー研究センター	欧 文	39(39)
	邦 文	1	1	0		邦 文	0
計	欧 文	102 (97)	78 (75)	85(78)	計	欧 文	108(105)
	邦 文	5 (3)	4 (1)	10(2)		邦 文	4(3)

()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24年	平成25年	平成26年	年度 部門等		平成27年
光科学 研究部門	総説等	4 (1)	4	1	光科学 研究部門	総説等	8(2)
	著 書	0	0	2		著 書	0
物質科学 研究部門	総説等	4 (1)	1	2	物質科学 研究部門	総説等	2(1)
	著 書	2 (2)	2 (1)	2(1)		著 書	0
生命科学 研究部門	総説等	7 (1)	4 (1)	4(2)	生命科学 研究部門	総説等	9(3)
	著 書	0	0	1		著 書	0
数理科学 研究部門	総説等	1	1 (1)	2(1)	数理科学 研究部門	総説等	11
	著 書	0	2 (1)	1		著 書	0
グリーンナノテクノロジー 研究センター	総説等	2 (1)	3	2	グリーンナノテクノロジー 研究センター	総説等	1
	著 書	4	2	0		著 書	2
計	総説等	18 (4)	13 (2)	11(3)	計	総説等	31(6)
	著 書	6 (2)	5 (2)	6(1)		著 書	2

()内の数は欧文

※客員研究分野は除外した。

※共著に関しては、出版物の数で表示（出版物の数×研究者ではない）。したがって「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24年	平成25年	平成26年	年度 部門等		平成27年度
光科学 研究部門	国際学会	24(7)	35(14)	13(7)	光科学 研究分門	国際学会	26(8)
	国内学会	40(4)	39(6)	23(3)		国内学会	39(21)
物質科学 研究部門	国際学会	18(4)	13(6)	12(4)	物質科学 研究部門	国際学会	36(10)
	国内学会	24(1)	36(3)	25(3)		国内学会	34(6)
生命科学 研究部門	国際学会	14(3)	8(3)	13(7)	生命科学 研究部門	国際学会	23(3)
	国内学会	22(4)	19(9)	45(13)		国内学会	19(3)
数理科学 研究部門	国際学会	24(11)	22(8)	28(9)	附属社会 創造数学 研究センター	国際学会	26(20)
	国内学会	38(4)	41(6)	35(6)		国内学会	35(9)
グリーンナノテクノロジー 研究センター	国際学会	62(12)	40(10)	47(14)	グリーンナノテク ノロジー 研究センター	国際学会	46(14)
	国内学会	66(5)	45(4)	55(5)		国内学会	42(0)
計	国際学会	141(37)	114(38)	110(41)	計	国際学会	175(55)
	国内学会	187(18)	173(28)	181(30)		国内学会	169(39)

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 24 年度	平成 25 年度	平成 26 年度	平成 27 年度
業務費	165,907	137,446	128,162	155,177
科学研究費補助金	316,687(75)	269,062(61)	192,260(61)	262,325(59)
その他の補助金	10,997(5)	18,748(7)	4,396(3)	5,450(2)
寄附金	25,026(15)	22,993(16)	36,958(18)	29,877(14)
受託事業等経費	328,523(32)	329,456(31)	306,421(27)	266,215(20)
(受託研究費)	296,957(20)	291,264(18)	280,205(14)	249,835(13)
(共同研究費)	31,566(12)	38,192(13)	26,216(13)	16,380(7)
合計	847,140(127)	777,705(115)	668,197(109)	719,044(95)

() 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24年度	平成25年度	平成26年度	部門等	平成27年度
光科学 研究部門	科学研究費補助金	68,300(16)	47,457(9)	14,600(3)	光科学 研究分野	44,700(5)
	その他の補助金	0	0	0		0
	寄附金 I	880(1)	3,815(7)	3,252(5)		9,997(5)
	寄附金 II	0	0	1,000(1)		0
	受託事業等経費	102,696(4)	135,581(4)	81,090(4)		74,989(4)
	(受託研究費)	102,696(4)	135,581(4)	81,090(4)		64,950(3)
	(共同研究費)	0	0	0		10,039(1)
	小計	171,876(21)	186,853(20)	99,942(13)		129,686(14)
物質科学 研究部門	科学研究費補助金	28,800(11)	69,700(9)	30,300(7)	物質科学 研究分野	55,100(6)
	その他の補助金	7,000(1)	8,000(2)	0		0
	寄附金 I	1,000(1)	0	4,570(4)		3,200(2)
	寄附金 II	6,897(2)	1,750(4)	0		600(1)
	受託事業等経費	15,706(3)	1,000(1)	5,000(3)		0
	(受託研究費)	5,806(2)	0	0		0
	(共同研究費)	9,900(1)	1,000(1)	5,000(3)		0
	小計	59,403(18)	80,450(16)	39,870(14)		58,900(9)
生命科学 研究部門	科学研究費補助金	35,724(9)	30,200(7)	47,300(10)	生命科学 研究分野	52,400(6)
	その他の補助金	1,500(1)	400(1)	296(1)		0
	寄附金 I	0	3,000(1)	9,300(1)		1,200(2)
	寄附金 II	0	1,122(1)	0		0
	受託事業等経費	39,391(5)	36,152(8)	56,445(5)		22,162(4)
	(受託研究費)	38,480(3)	34,895(5)	55,180(2)		21,382(2)
	(共同研究費)	911(2)	1,257(3)	1,265(3)		780(2)
	小計	76,615(15)	70,874(18)	113,341(17)		75,762(12)
数理科学 研究部門	科学研究費補助金	56,496(17)	56,442(19)	35,660(25)	附属社会 創造数学 研究 センター	54,585(23)
	その他の補助金	2,097(2)	0	2,000(1)		0
	寄附金 I	9,949(3)	11,106(1)	12,191(2)		13,380(1)
	寄附金 II	700(1)	0	0		0
	受託事業等経費	52,006(2)	61,210(4)	70,463(4)		125,495(7)
	(受託研究費)	52,006(2)	58,035(2)	67,763(3)		122,885(5)
	(共同研究費)	0	3,175(2)	2,700(1)		2,610(2)
	小計	121,248(25)	128,758(24)	120,314(32)		193,460(31)

部門等	研究費	平成24年度	平成25年度	平成26年度	部門等	平成27年度
附属グリーン ナノテクノロ ジー研究 センター	科学研究費補助金	124,690(18)	58,063(13)	56,300(11)	附属グリーン ナノテクノロ ジー研究 センター	49,950(17)
	その他の補助金	0	972(1)	0		0
	寄附金I	2,100(2)	1,200(1)	2,000(1)		500(2)
	寄附金II	3,300(4)	1,000(1)	3,050(3)		1,000(1)
	受託事業等経費	118,224(17)	75,278(12)	75,192(10)		27,268(4)
	(受託研究費)	97,969(9)	43,018(6)	57,941(4)		24,317(2)
	(共同研究費)	20,255(8)	32,260(6)	17,251(6)		2,951(2)
	小計	248,314(41)	136,513(28)	136,542(25)		78,718(24)
その他	科学研究費補助金	2,677(4)	7,200(4)	8,100(5)	その他	5,590(2)
	その他の補助金	400(1)	9,376(3)	2,100(1)		5,450(2)
	寄附金I	0	0	1,595(1)		0
	寄附金II	200(1)	0	0		0
	受託事業等経費	500(1)	20,235(2)	18,231(1)		16,301(1)
	(受託研究費)	0	19,735(1)	18,231(1)		16,301(1)
	(共同研究費)	500(1)	500(1)	0		0
	小計	3,777(7)	36,811(9)	30,026(8)		27,341(5)

() 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24年度	平成25年度	平成26年度	平成26年度
光科学研究部門	6	2	1	1
物質科学研究部門	1	5	3	3
生命科学研究部門	0	0	0	0
数理科学研究部門	4	4	2	2
附属グリーンナノテクノロジー研究センター	6	9	3	3
計	17	20	9	9

年 部門等	平成27年度
光科学研究部門	2
物質科学研究部門	3
生命科学研究部門	0
附属社会創造数学研究センター	5
附属グリーンナノテクノロジー 研究センター	12
計	22

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27年度

情報科学研究科

- 小野寺 俊平：局在プラモンズ結合微小球共振器を用いた高効率二光子励起発光に関する研究
- 鈴木 健正：レーザー誘起水熱合成法を用いた酸化亜鉛ナノロッドアレイランダムレーザーの開発
- 和田 崇：金ナノトライマー構造によるナノ粒子プラモントラッピングのポテンシャル解析
- 佐々木 智也：X線レーザー解折イメージングの高度化に向けた生体試料ナノパターニング
- 高富 雄輝：グラフエン融膜環境セルアレイを用いたX線レーザー回折イメージング
- 遠藤 賢司：「二酸化バナジウム薄膜のプロトン化を利用したエレクトロミック素子に関する研究」
(三上賞受賞：北海道大学 情報科学研究科 生命人間情報科学専 功の賞)
- 大島 太矩人：(北海道大学大学院情報科学研究科)「生体適合性材料を活用したOpen skull法によるマウス生体脳イメージングの高度化」
- 北村 瞭次：(北海道大学大学院情報科学研究科)「マウス生体脳の2光イメージングにおける深部空間分解能の定量評価と改善」
- 中村 圭佑：半導体薄膜を用いたプラズモン太陽電池の開発(Development of plasmonic solar cell using semiconductor thin film) (2016年3月)

生命科学院

- 大木 開登：「単細胞生物ゾウリムシの学習行動に関する実験的評価とその動力学的機構」

総合化学院

- 田崎 太悠：「金ナノロッドによる核酸アジュバンドの活性増強」
- 中村 聰：「DNAブラシを用いた金ナノロッドの異方的固定化に関する研究」
- 森 澄人：「低融点ガラスに挟まれたNi78Fe22薄膜の構造・磁気・電気特性とAlq3を介したナノスケール伝導の観測」
- 宮崎篤：「ランタノイド含有リン酸塩ガラスのアルカリ-プロトン置換による中温域プロトン伝導体の作製」

大学院理学院 数学専攻

- 安芸 勇人：「焼結過程に見られる空隙形成の数理解析」
- 石橋 宏朗：「カイメンの骨格形成に対する数理モデルの構築」
- 南佳晃：「Proneural Waveの数理モデリング」

II-4-2) 博士学位

平成27年度

環境科学院

- 吉竹理：超分子カチオンの導入による[MnCr(oxalate)3][?]錯体結晶の複合物性開拓
- 熊俊：Structural investigation of polyoxometalates self-assembled architectures induced by crown ether supramolecular cations

情報科学研究科

- 玉磐：Plasmon-Induced Water Splitting under Visible Light Irradiation using Gold Nanostructured Strontium Titanate Single Crystal Substrate (2015年9月)
- MouSinthiaShabnam：Optical Study on Proximity Effect and Cooper Pair Recombination in Semiconductor Quantum Dots (March 2016)

生命科学院

■永幡 裕:「化学反応ネットワークに埋め込まれた時間階層構造の解読方法の開発」

II-4-3) 大学院生在籍数

研究科名	修 士			博 士		
	平成25年	平成26年	平成27年	平成25年	平成26年	平成27年
理 学 院	14	13	11	4	6	4
工 学 研 究 科	5	0	0	1	0	0
環 境 科 学 院	12	5	2	5	3	3
情 報 科 学 研 究 科	22	23	21	8	10	12
生 命 科 学 院	4	4	3	10	10	8
地球環境科学生命科	0	0	0	0	0	0
総 合 化 学 院	9	8	6	1	4	5
計	66	53	43	29	33	32

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。

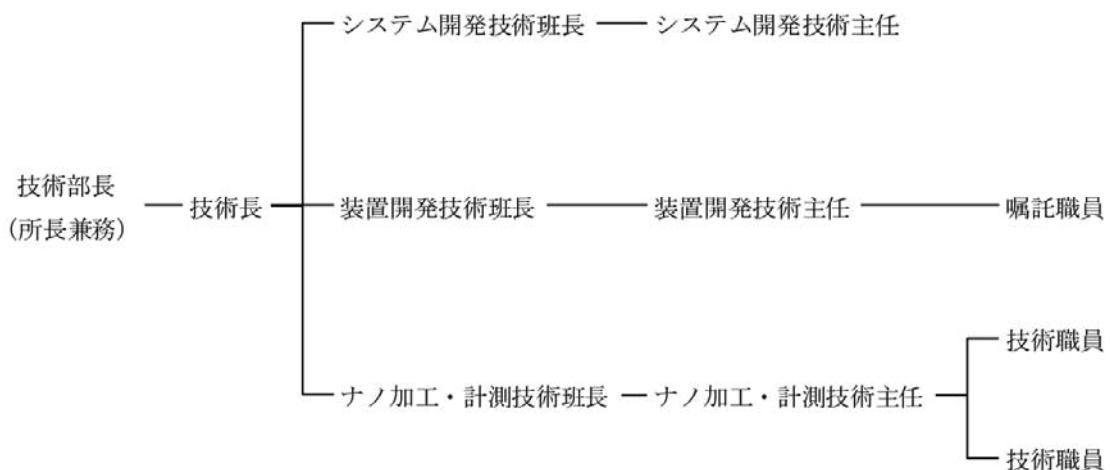
ナノ加工・計測技術班はクリーンルーム及び共用設備の維持管理、利用指導、ナノ加工計測を行っており、それに関する技術相談も受けている。また両班は研究所全体に関わる業務として行事等の技術支援や液化窒素ガス汲み出し作業従事者への講習会の支援なども行っている。

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. 藏書冊数

年 度	平成24年*	平成25年*	平成26年*	平成27年*
和 書	5,649	5,666	5,670	5,777
洋 書	17,442	17,516	17,519	17,558
計	23,091	23,182	23,189	23,335

2. 所蔵雑誌種類数

年 度	平成24年*	平成25年*	平成26年*	平成27年*
和雑誌	106	107	107	106
洋雑誌	385	387	387	388
計	491	494	494	494

3. 購入雑誌受入種類数

年 度	平成24年*	平成25年*	平成26年*	平成27年*
和雑誌	46	48	48	43
洋雑誌	6	8	6	6
計	52	56	54	49

4. 学外文献複写数

年 度	平成24年*	平成25年*	平成26年*	平成27年*
依頼	129	34	87	20
受付	77	88	137	127

* 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” “SciFinderWeb” ”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テューサ部門新設
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テューサ
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、ハルビ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
27. 4 附属社会創造数学研究センターを設置
数理科学研究部門を廃止
数理科学研究部門複雑系数理研究分野を生命科学研究部門複雑系数理研究分野に改組
研究支援部に数理連携推進室を新設
連携研究部門産研アライアンス研究分野を廃止
27. 6 中国西安交通大学との学術交流協定締結
27. 6 中国西安理工大学との学術交流協定締結
27. 12 香港城市大学との学術交流協定締結
27. 9 生命科学研究部門複雑系数理研究分野を廃止

[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 肅
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 肅
	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 植夫
	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	笛木 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) 深見 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 肅
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 植夫 下村 政嗣 伊福部 達
平成21年4月	栗城 真也
平成23年4月	上田 哲男
平成28年4月	末宗 幾夫 西浦 廉政

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 m ²	延面積 m ²	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27年度）

（3月末日現在）

職名	人數
教 授	15(5)
准 教 授	13
講 師	0
助 教	20
特任教授	0
特任准教授	1
特任講師	1
特任助教	5
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27年度）

○転入状況

所属部門	職名	氏名	採用年月日	前職
グリーンナノテクノロジー研究センター	助教	藤岡 正弥	H27. 4. 1	物質・材料研究機構研究員
物質科学研究部門	助教	松尾 和哉	H27. 6. 1	日本学術振興会海外特別研究員
光科学研究部門	教授	雲林院 宏	H27. 7. 1	Katholieke Universiteit Leuven 准教授
物質科学研究	助教	相良 剛光	H27. 7. 1	日本学術振興会海外特別研究員
光科学研究	助教	猪瀬 朋子	H27. 10. 1	大阪大学学振特別研究員
物質科学研究	教授	BIJU VASUDEVAN PILLAI	H28. 2. 1	産業技術総合研究所主任研究員
社会創造数学研究センター	助教	JUSUP MARKO	H28. 3. 1	長崎大学熱帯医学研究所特任研究員

○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	亀井 敬	H27. 4. 30	北陸大学講師
光科学研究部門	助教	吉田 力矢	H27. 8. 31	株式会社ボッシュ
生命科学研究	助教	日比 輝正	H27. 9. 30	電子科学研究所特任講師

(28. 3. 31)

IV-5. 構成員 (平成27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	
特任助教 石田 周太郎	
光量子情報研究分野	
教授 雲林院 宏	
特任准教授 辻見 裕史	
助教 猪瀬 朋子	
コヒーレント光研究分野	
教授 西野 吉則	
助教 木村 隆志	
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	
教授 BIJU VASUDEVAN PILLAI	
スマート分子材料研究分野	
教授 玉置 信之	
助教 KIM YUNA	
助教 松尾 和哉	
助教 相良 剛光	
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 山之内 路彦	
助教 片瀬 貴義	
生命科学研究部門	
光細胞生理研究分野	
教授 根本 知己	
特任講師 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	
附属社会創造数学研究センター	
センター長(兼) 小松崎 民樹	
人間数理研究分野	
教授 長山 雅晴	
准教授 青沼 仁志	
助教 秋山 正和	
助教 GINDER ELLIOTT ABRAHAM	
助教 西野 浩史	
データ数理研究分野	
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	
特任助教 津川 曜	

知能数理研究分野	教授 中垣 俊之 准教授 佐藤 彦茂 助教 黒田 茂
実験数理研究分野	助教 MARKO JUSUP
連携研究部門	
理研連携研究分野	客員教授 田中 拓男 (理化学研究所)
社会連携客員研究分野	
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)	
客員教授 河村 純一 (東北大学)	
客員教授 倉持 隆雄 (科学技術振興機構)	
客員教授 村田 隆 (自然科学研究機構)	
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) 西野 吉則	
グリーンフォトニクス研究分野	
教授 三澤 弘明	
特任教授 GAO SHUYAN	
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	
准教授 佐藤 譲	
助教 藤岡 正弥	
ナノ光機能材料研究分野	
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	遠藤礼暉
技術職員	大西 広

契約職員・短時間勤務職員

博士研究員	小林 康明
〃	武井 兼太郎
〃	石旭
〃	片山 翔太
〃	PRIETO MORENO KERNEL ENRIQUE
〃	L I J I E
〃	楊影
学術研究員	熊本 淳一
〃	森有子
〃	上原和之
〃	渡邊崇之
〃	末宗幾夫
〃	中島秀朗
非常勤研究員	KANTHYAPPARAJANNA SUNILKUMAR
〃	上原日和
研究支援推進員	坪井恵
〃	伊藤奈
事務補佐員	須々田明子
〃	山田美和子
〃	本久洋
〃	本元舞
〃	遠藤恵
技術補佐員	出羽真樹子
〃	山口由美子
〃	奥原季種
〃	北井千子
事務補助員	山崎涼子
〃	加藤まり子
〃	中岡弓子
〃	大木真理子
〃	大森素子
〃	浦田絹美
〃	吉田香織
〃	三友敦子
技術補助員	藤井麻衣子
〃	楊曉龍
〃	中村圭佑
〃	澤柳博輝
〃	増永梨花
〃	木村京子
〃	平川靜子
〃	小泉淑子
〃	片山涉

(平成28年3月末日現在)