

# 研究活動

北海道大学電子科学研究所

平成28年度  
— 点検評価報告書 —

Research Activities

Research Institute for Electronic Science  
Hokkaido University  
2016 - 2017

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<sup>1</sup>  
TEL(011)706-9102 FAX(011)706-9110

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

平成29年11月発行

## 卷頭言

H28 年度の研究活動をお届けいたします。H28 年度は、西井教授が所長を努めておりましたが、H29 年度より北海道大学理事・副学長（研究担当）に抜擢され、それに伴い所長が交代いたしました。

H28 年度には、第 2 期中期目標期間（H22～H27 年度）に対する最終評価結果（国立大学法人評価委員会による第 2 期中期目標期間に係る業務の実績に関する評価結果）が公開されました。本学全体としては、「教育研究等の質の向上の状況」において「中期目標の達成状況が良好である」との好評価を受けました。「学部・研究科等の現況分析」は、「水準」と「質の向上度」について実施され、電子科学研究所は、研究組織であるため研究の水準と質の向上度が評価されました。「研究の水準」の分析項目 I「研究活動の状況」で「期待される水準を上回る」という評価を、また、分析項目 II「研究成果の状況」で最高評価「期待される水準を大きく上回る」という評価を、さらに「質の向上」でも最高評価「高い質を維持している」との評価をいただきました。全国立大学の研究組織総数 598 のうち、「水準」「質の向上度」のどちらかの項目で最高評価を受けたのは、「水準」項目では 35 組織（5.9%）、「質の向上度」項目では 155 組織（25.9%）でした。このような評価をいただけたのは、所員一人一人のたゆみない努力の積み重ねはもとより、多方面において関係各位から頂いたご支援の賜物であります。改めて感謝の意を表したいと思います。とともに、これからもご支援をいただけるような組織であり続けるために努力を続けてまいります。

H28 年度は第 3 期中期目標期間の初年度にあたり、次なる目標に向かって進んでまいりました。全学的な 2 大事業であるスーパーグローバル大学創成支援事業（Hokkaido ユニバーサルキャンパス・イニシアチブ）と研究大学強化促進事業が推し進められている中、本所の事業もこれら全学の動きに同調させながら、本所の目指す複合領域ナノサイエンスの開拓研究を展開する必要があります。

本所の柱であるナノテクプラットフォーム事業は、基礎研究の成果はもとより、全国的な機器共用化を非常に高いレベルで成し遂げており、第 2 期中期目標期間の高評価につながりました。これには、技術部の貢献も大なるものがありました。教育面に関しては、複合領域ナノサイエンスの授業科目を大学院や学部向けに提供しております。また、一昨年に設置しました社会創造数学研究センターでは、産学連携として日立ラボの活動を活発化させるとともに、教育面でも数学教室との連携で応用数理科学科目を本学や海外で開講しました。文科省が先導する全国的な数学協働プログラムにも参画しております。

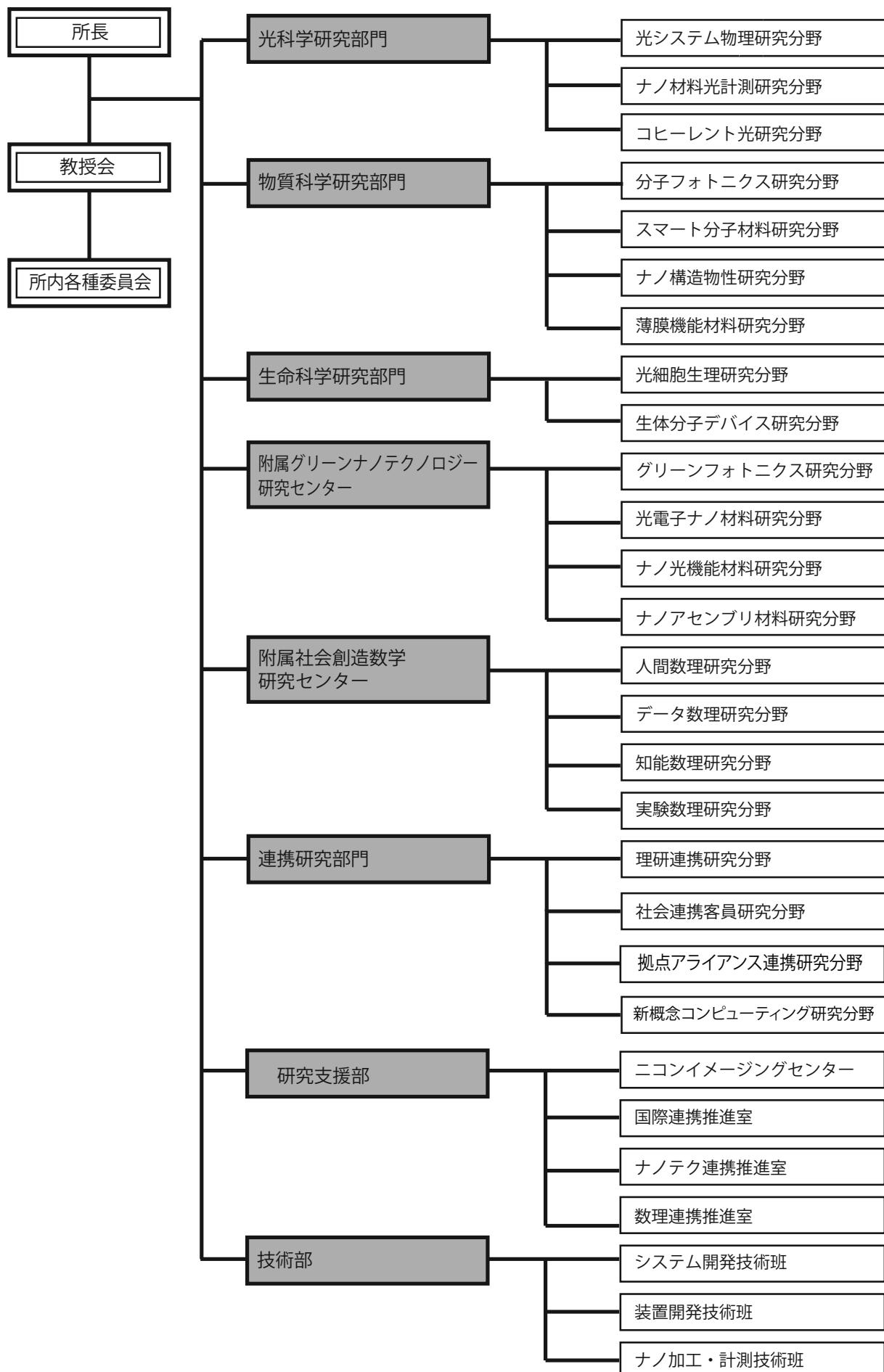
また、国際化に関しては、これまでに海外教育研究機関と 13 の交流協定を結んでおりますが、これらを次の段階に引き上げるための選択と集中を検討し始めました。その一つである台湾国立交通大学理学院とは、例年の国際ジョイントシンポジウムがついに 8 回目を数え、相互の人事交流も積み重ね、4 研究室にも及ぶ共同研究が軌道に乗るなど、極めて密な連携関係が構築されています。この実績を踏まえ、新たな予算申請を構想する必要があります。

共同研究拠点活動では、H22 年度より開始した物質・デバイス領域共同研究拠点が、日本列島を縦断する 5 つの研究所（北海道大学電子科学研究所、東北大学多元物質科学研究所、東京工業大学科学技術創成研究院化学生命科学研究所（旧資源化学研究所）、大阪大学産業科学研究所、九州大学先導物質化学研究所）の連携によるネットワーク型拠点として認定され、新しい共同研究拠点のあり方を示す鏡矢となりました。それにより、第 2 期中期目標期間の期末評価では、最高評価「S」をいただきました。H28 年度からは、第 3 期中期目標期間となりネットワーク型拠点としてもリニューアルし、課題解決型アライアンスプロジェクト事業「人・環境と物質をつなぐイノベーション創出ダイナミック・アライアンス」をスタートさせました。引き続き予算削減が実施される中で、5 研究所のより密な連携関係が期待されています。

所員の意識を高めるべく、科研費申請書添削事業やプレスリリースの書き方講座等を開催しファカルティディベロップメントにも力を入れてきました。その甲斐あり、新聞やテレビなどのマスコミを通じた広報実績も増えております。また、6 月の研究所一般公開イベントには、例年通り千数百名の来場者を数え恒例の市民イベントとして定着してきました。研究成果の発信、高大接続などアウトリーチ活動の重要性はますます高まると思われます。今後も新たな工夫を取り入れて積極的に取り組んでいきたいと思います。

H28 年度の全学的なニュースといえば、人件費削減問題でした。これは、文科省予算措置の漸減傾向が続く中で起ころべくして起こったことでした。年度末には、この問題に対する本学の対応方策について全学規模の議論が巻き起こりました。大学改革の流れがより一層厳しさを増していく中、正にこういったときであるからこそ大学本来の理念に立ち返り、本所のより良いあり方を追求していきたいと思いますので、ご指導ご鞭撻のほど切にお願い申し上げます。

所長 中垣俊之



# 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	8
コヒーレント光研究分野	11

#### 物質科学研究部門

分子フォトニクス研究分野	18
スマート分子材料研究分野	21
ナノ構造物性研究分野	27
薄膜機能材料研究分野	34

#### 生命科学研究部門

光細胞生理研究分野	46
生体分子デバイス研究分野	54

#### 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	62
光電子ナノ材料研究分野	71
ナノ光機能材料研究分野	78
ナノアセンブリ材料研究分野	81

#### 附属社会創造数学研究センター

人間数理研究分野	88
データ数理研究分野	99
知能数理研究分野	107
実験数理研究分野（新概念コンピューティング研究分野）	113

#### 連携研究部門

理研連携研究分野	116
拠点アライアンス連携研究分野	120

#### 研究支援部

ニコンイメージングセンター	122
国際連携推進室	125
ナノテク連携推進室	127

### II. 予算

II-1. 研究成果公表に関する各種の統計表	130
II-2. 予算	131
II-3. 外国人研究者の受入状況	133
II-4. 修士学位及び博士学位の取得状況	134

III.	研究支援体制	
III-1.	技術部	138
III-2.	学術情報	139
IV.	資料	
IV-1.	沿革	142
IV-2.	建物	145
IV-3.	現員	145
IV-4.	教員の異動状況	146
IV-5.	構成員	147

# 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～）  
ボスドク Christophe Pin (University of Bourgogne Franche-Comte, PhD, 2016.10～)  
院 生  
博士課程 烹雪亮  
修士課程 大村竜矢、井手恆希、織田洋彰、新宅貴志、菅原翔太郎

## 1. 研究目標

本研究分野では、光テクノロジーの究極を目指して、光の量子性・波動性をフルに活用した新しい概念に基づく光情報処理、光計測制御など、新しい世代の光科学の研究に取り組んでいる。具体的には、単一光子制御デバイスや高効率レーザーの開発を目指して、微小球やランダム構造、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) THz領域での光渦から擬似プラズモンへの角運動量転写  
光がもつ角運動量に関しスピinn(円偏光)に加え軌道成分( $\ell$ )が見いだされ、新たな光制御の可能性が議論されている。光渦を用いた微粒子回転や量子情報操作などに加え、素励起や励起子、さらには束縛電子の励起制御へと研究は展開している。我々はこれまで、可視光から近赤外域での金属表面プラズモンの角運動量の制御手法を報告してきた。今回、構造が大きく波長がミリメートル程度であるため実験に向いているTHz領域において、擬似プラズモンに光渦の角運動量が転写可能であることを数値計算で明らかにしたので報告する。

金属が完全導体と見なせるTHz領域においては、波長より十分小さな構造を持つ微小金属構造体において局在モード(擬似プラズモン)が生成する。我々は金属円盤の外側に切り込みを入れたギア状構造を用い、直線偏光(x偏光)のガウスビーム( $\ell=0$ )、および光渦2種( $\ell=1, 2$ )を照射した際に生成される擬似プラズモンの解析を行った。それぞれのビームに対するギア側面での近接場スペクトルとピーク周波数での電界分布( $E_x$ )を図1に示す。 $\ell$ の増加と共に、ピークが高周

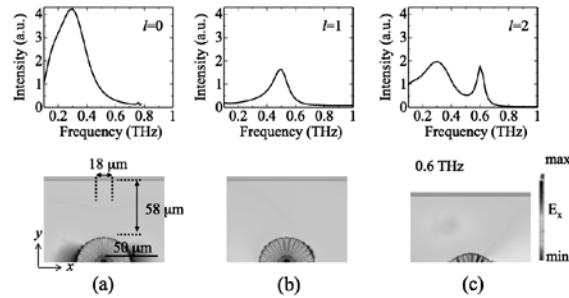


図1 軌道角運動量( $\ell$ )の異なる3種のビームを入射させた際の近接場スペクトル(上図)とギア厚(100nm)の半分の高さでの電界( $E_x$ )分布. (a)  $\ell=0$ , (b)  $\ell=1$ , (c)  $\ell=2$ .

波数側へ移動し、電界の節と腹の変化から(a)双極子、(b)四重極子、(c)六重極子モードが励起されたことが分かる。なお、 $\ell=2$ の低周波数側ピークは双極子モードである。励起された擬似プラズモンは角運動量を有するため、時間経過を観察すると電界分布はギア周囲を回転する。つまり入射光渦の角運動量が擬似プラズモンへ転写された結果となっている。

THz領域における光渦からプラズモンへの角運動量転写が実現するのであれば、実験的な検証もより現実的なものとなる。現在、共同研究先の京都大学のグループが独自に開発したTHz顕微鏡を用いて実験を行っており、近い将来、実験的な検証がなされるものと期待している。

### (b) 光局在場を用いたナノ粒子回転運動解析

集光レーザーを用いた光ピンセットは、非接触、非破壊でマイクロ粒子を操作でき、粒子の配列や單一分子に働く力の測定、光の角運動量転写による回転運動などの応用が進められている。近年、この光ピンセットをナノ粒子に適用し、回折限界以下の領域で操作するために局在表面プラズモンの利用が提案され、粒径 100 nm のナノ粒子捕捉や捕捉ポテンシャル解析などが報告されている。本研究は、図2に示す金ナノトライマー構造と回転する直線偏光・円偏光とを用いて捕捉した粒子をナノ空間で回転させ、その回転運動を解析したので報告する。

粒径 100 nm の蛍光ポリスチレンナノ粒子を分散させた水溶液を用いて実験サンプルを構築し、プラズモン励起光(1064 nm)を直線偏光に設定し、 $\square$ 2 波長を 2 rpm で回転させながら捕捉粒子の位置を測定した結果を図3(a)に示し、x軸方向の位置の時間追跡結果を図3(b)に示す。図3(b)に示すようにトライマー構造で捕捉したナノ粒子の捕捉位置が直線偏光の回転に合わせて周期的に運動することを確認し、局在プラズモンを用いた光捕捉において、ナノ領域におけるナノ粒子の回転運動誘起を実証した。

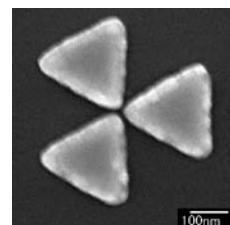


図2 波長 1064 nm に共鳴を有するナノギャップ構造(A)三量体。

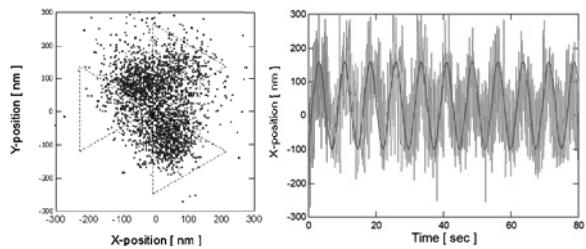


図3 (a) 捕捉ナノ粒子の2次元位置分布、(b) 捕捉粒子の位置時間追跡

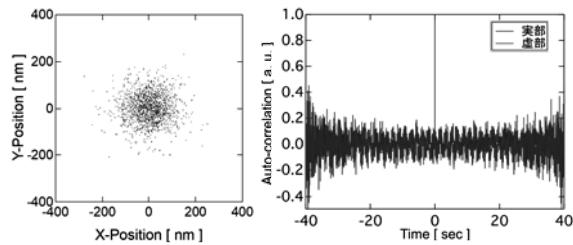


図4 捕捉ナノ粒子の回転運動解析、(a)捕捉粒子の中心位置2次元分布、(b)自己相関・相互相関波形とフィッティング

次に、左回り円偏光を用いて誘起した円偏光光局在場を用いて、ギャップ周辺に捕捉したナノ粒子の2次元位置分布を図4(a)に示す。加えて、捕捉ナノ粒子の中心位置分布の直交する2軸(x, y)における時間追跡に対する自己相関・相互相関を図4(b)にそれぞれ示す。自己・相互相関波形の周波数解析結果より、捕捉ナノ粒子が、周波数0.5 Hzで回転することを確認した。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を制御の可能性を示した。

### (c) 共鳴制御ランダムレーザーの2段階しきい値挙動

波長オーダーの不規則な屈折率分布をもつランダム構造を用いたランダムレーザーは、明確な共振器を持たないユニークなレーザー光源として注目されている。このレーザーは、簡便・安価に作製できるが、構造の不規則さのために発振特性を制御する事は困難である。これに対して我々は、球状化した酸化亜鉛(ZnO)ナノ粒子で構成されるランダム構造中に散乱体を配置しない欠陥領域を導入することで、従来のランダムレーザー発振とは異なる低しきい値かつ擬似単一モードの新規なレーザー発振が誘起される事を数値解析的・実験的に報告してきた。今年度の研究では、この新規なランダムレーザーの発振メカニズムについての検討を試み、従来とは全く異なる新規なランダムレーザー発振状態を確認した。

球状ZnOナノ粒子（中心粒径212 nm）分散溶液中に欠陥として蛍光粒子(直径900 nm)を混入し、基板上に滴下・乾燥させたものを試料として用いた。UVパルスレーザー(355nm、1 kHz、100 ps)を試料に照射し、欠陥におけるレーザー発振スペクトルの測定を行った。

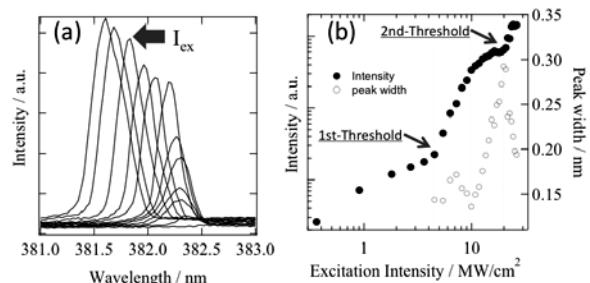


図5 共鳴制御ランダムレーザーの(a)発振スペクトルと(b)ピーク強度(●)および半値全幅(○)の強度依存性。

図5(a)に提案ランダム構造中における励起光強度の変化に対するレーザー発振スペクトルを示す。また、この際のレーザー発振ピーク強度及び発振ピーク半値幅の励起光強度依存性を図5(b)に示す。通常のランダムレーザー発振とは異なり、励起光強度の増大に伴うレーザー発振波長のブルーシフトや発振ピーク半値幅の変化、さらに、発振ピーク強度の励起光強度依存性からは2段階しきい値が確認できる。これら挙動は、一般的な高Q値の微小共振器構造中で観測される励起子-光子強結合状態に起因するポラリトンレーザーの特徴と類似しており、本構造において局在モードとZnOの励起子間の強結合状態を示唆する結果であると考えている。つまり、ランダム構造の共鳴特性を制御した結果、不規則な構造中においても微小共振器同様の高Q値の光局在場を実現可能である事を示し、ZnOとの強い相互作用の結果、初めて励起子由来の新規な現象が誘起されたと考えられる。

## 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) テーパファイバ結合微小球・トロイド構造を用いた光子制御デバイスの開発、(b) 辐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エ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（査読あり）

- 1) 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” APL Photonics, 2, 036101/1–7 (2017)
- 2) H. Fujiwara, T. Suzuki, R. Niyuki and K. Sasaki : “ZnO nanorod array random lasers fabricated by a laser-induced hydrothermal growth”, New J. Phys., 8 : 103046 (2016)
- 3) K. Sakai, K. Nomura, T. Yamamoto, T. Omura and K. Sasaki : “Quadrupole lattice resonances in plasmonic crystal excited by cylindrical vector beams”, Sci. Rep., 6 : 34967 (2016)
- 4) H. Takata, H. Naiki, L. Wang, H. Fujiwara, K. Sasaki, N. Tamai and S. Masuo : “Detailed Observation of Multiphoton Emission Enhancement from a Single Colloidal Quantum Dot Using a Silver-Coated AFM Tip”, Nano Lett., 16(9) : 5770–5778 (2016)

### 4.3 総説・解説・評論等

- 1) 笹木 敬司 : 「光の形」、光学、46 : 79(2017)
- 2) 酒井 恭輔、笹木 敬司 : 「多重極子プラズモン場の光渦による励振」、光学、46 : 80–83 (2016)

### 4.6 講演

#### a. 招待講演（国際学会）

- 1) K. Sakai\* and K. Sasaki : “Angular momentum transfer from photons to plasmons”, JSPS-EPSRC symposium , Ball Room, The Royal Society, UK, UK (2017-01)
- 2) K. Sasaki\* : 「Plasmonic Antenna for Confining Optical Vortex into Nano-Space」、OSJ-OSA Joint Symposia、筑波大学 (2016-10)
- 3) S. Morimoto\*, K. Arikawa, F. Blanchard, K. Sakai, K. Sasaki and K. Tanaka : “Observation and Control of Spoof Localized Surface Plasmons Using Terahertz Near-field Microscope Region”, 41st International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Wave (IRMMW-THz 2016), Copenhagen, Denmark (2016-09)
- 4) K. Sasaki\*, M. Ide, S. Ishida and K. Sakai : “Shaping of Plasmonic Nano-Vortex fields ”, JSAP-OSA Joint Symposia, 朱鷺メッセ (2016-09)
- 5) K. Sasaki\* : “Interference of nano-vortex fields formed by plasmonic cavities”, META’16, the 7th International Conference on Metamaterials, Photonic Crystals and Plasmonics, Convention & Exhibition Centre, Torremolinos (Malaga), Spain (2016-07)
- 6) H. Fujiwara\* and K. Sasaki : “ Resonance-controlled Random Lasers and Their Possible Applications”, The

6th International Multidiscipline Conference on Opto-fluidics, Beijing, China (2016-07)

- 7) K. Sasaki\* : “Photon Nano-Shaping and Its Application to Photochemistry”, Seminar in Department of Applied Chemistry, Hsinchu, 台湾 (2016-04)

#### b. 招待講演（国内学会）

- 1) 笹木 敬司\* : 「プラズモン共鳴；光による力学操作」、新分野創成センター新分野探査勉強会、大学共同利用機関法人自然科学研究機構 (2016-12)

#### c. 一般講演（国際学会）

- 1) H. Fujiwara\*, T. Suzuki, R. Niyuki and K. Sasaki : “Realization of Low Threshold ZnO Nanorod Array Random Lasers Using a Laser-Induced Hydrothermal Synthesis”, Photonics and Fiber Technology Congress (Nonlinear Photonics), SMC Conference & Function Centre, Sydney, Australia (2016-09)

- 2) R. Niyuki\*, H. Fujiwara and K. Sasaki : “ White Light Induced Mode Switching in a Graphene Flake Mixed ZnO Random Laser ”, Photonics and Fiber Technology Congress (Nonlinear Photonics), SMC Conference & Function Centre, Sydney, Australia (2016-09)

#### d. 一般講演（国内学会）

- 1) 森本 祥平\*、有川 敬、ブランチャード フランコス、酒井 恭輔、笹木 敬司、田中 耕一郎 : 「テラヘルツ光渦による疑似局在表面プラズモンの励起モード制御」、日本物理学会 第 72 回年次大会、大阪大学（豊中キャンパス） (2017-03)
- 2) 酒井 恭輔\*、渡邊 真太郎、笹木 敬司、森本 祥平、有川 敬、田中 耕一郎 : 「THz 領域での光渦から擬似プラズモンへの角運動量転写」、2017 年第 64 回応用物理学会春季学術講演会、パシフィコ横浜 (2017-03)
- 3) 笹木 敬司\* : 「低しきい値 ZnO ナノロッドアレイランダムレーザーの実現」、2017 年第 64 回応用物理学学会春季学術講演会、パシフィコ横浜 (2017-03)
- 4) 藤原 英樹\*、笹木 敬司 : 「低しきい値 ZnO ナノロッドアレイランダムレーザーの実現」、アライアンス「エレクトロニクス 物質・デバイスグループ (G1)」分科会、かんぽの宿柳川、福岡 (2016-11)
- 5) 織田 洋章\*、藤原 英樹、酒井 恭輔、石田 周太郎、笹木 敬司 : 「白色光全反射照明による高次プラズモンモード干渉効果の観測」、2016 年第 77 回応用物理学学会秋季学術講演会、朱鷺メッセ (2016-09)
- 6) 井手 桀希\*、酒井 恭輔、笹木 敬司 : 「プラズモニックナノ渦場と擬似分子の相互作用」、2016 年第 77 回応用物理学学会秋季学術講演会、朱鷺メッセ (2016-09)
- 7) 大村 竜矢\*、酒井 恭輔、菅原 肇太郎、笹木 敬司 : 「金ナノディスク・プラズモニック結晶の特性解析 - 入射ビーム依存性-」、2016 年第 77 回応用物理学学会秋

- 季学術講演会、朱鷺メッセ (2016-09)
- 8) 石田 周太郎\*、笹木 敬司：「金属ナノトライマーを用いたナノ粒子光捕捉と運動解析」、2016年第77回応用物理学会秋季学術講演会、朱鷺メッセ (2016-09)

#### 4.7 シンポジウムの開催

- 1) K. Sasaki : "International Workshop on Quantum and Nanoscale Photonics", 20人, Research Institute for Electronic Science,Hokkaido University (Sapporo) (2017年03月30日)

#### 4.8 共同研究

##### d. 國際共同研究

- 1) 台湾交通大学応用化学科 副教授杉山輝樹

#### 4.9 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、新学術領域研究 研究領域提案型、光圧を極める：分子操作の極限化と光制御によるマクロ化、2016～2020 年度
- 2) 笹木 敬司、萌芽研究、単一分子キラリティーセンシング、2016～2017 年度
- 3) 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

##### b. 大型プロジェクト・受託研究

- 1) 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、2015～2016 年度
- 2) 藤原英樹、公益社団法人 天田財団、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、2015～2017 年度

#### 4.11 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 (2016年06月20日～2017年03月31日)
- 2) 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～2017年03月31日)
- 3) 藤原 英樹：日本学術振興会特別研究員等審査会専門委員及び国際事業委員会書面審査員・書面評価員 (2015年08月01日～2016年07月31日)

##### b. 国内外の学会の役職

- 1) 藤原 英樹：電気学会「ナノ材料作製のための最先端レーザプロセッシング技術調査専門委員会委員 (2016年05月01日～2018年04月30日)
- 2) 藤原 英樹：日本光学会 北海道支部運営委員 (2015年01月05日～2017年03月31日)

##### 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～2017年03月31日)

##### d. 外国人研究者の招聘

- 1) Oliver Benson, Germany, (2017年03月30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、電子情報工学演習II、笹木 敬司、2016年10月01日～2017年03月31日
- 2) 情報科学研究科、光情報システム学特論、笹木 敬司、2016年10月01日～2017年03月31日
- 3) 工学部、電磁気学、藤原 英樹、2016年10月01日～2017年03月31日
- 4) 全学共通、平成28年度全学教育科目「環境と人間：ナノって何なの？最先端 光・ナノテク概論」、笹木 敬司、2016年04月01日～2016年09月30日
- 5) 工学部、光工学、笹木 敬司、2016年04月01日～2016年09月30日
- 6) 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、2016年04月01日～2017年03月31日
- 7) 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、2016年04月01日～2017年03月31日
- 8) 工学部、光エレクトロニクス、笹木 敬司、2016年04月01日～2016年09月30日
- 9) 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、2016年04月01日～2017年03月31日
- 10) 全学共通、物理学I、藤原 英樹、2016年04月01日～2016年09月30日

##### f. ポスドク・客員研究員など

- 1) PIN CHRISTOPHE LOUIS MARIE (電子科学研究所非常勤研究員)
- 2) PIN CHRISTOPHE LOUIS MARIE (電子科学研究所学術研究員)

##### g. 修士学位及び博士学位の取得状況

修士学位 (1名) :

- 1) 大村 竜矢：金ナノディスク周期構造における四重極子プラズモンの格子共鳴

博士学位 (1名) :

- 1) 烹雪 亮:ランダムレーザーの発振モード制御に関する研究

## ナノ材料光計測研究分野

教 授 雲林院 宏（東北大学大学院理学研究科化学専攻、博士（理学）、2015年7月～）

助 教 猪瀬 朋子（大阪大学大学院理学研究科化学専攻、博士（理学）、2015年10月～）

### 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

プラズモニクスとは、ナノ回路中における光の伝搬やナノ空間への光の閉じ込めを「プラズモン」によって行う新しい科学技術である。ナノサイズの貴金属構造体は、可視・（近）赤外光との相互作用の結果、表面電荷の集団運動と光が結合した表面プラズモンポラリトン（SPP）という量子状態をつくる。このSPPを効率よく利用するには、ナノレベルでの正確な構造制御が鍵である。その観点から、化学合成などのボトムアップ法で作製された貴金属微粒子はプラズモニクスにおける重要な素材である。特に、一次元構造体である貴金属ナノワイヤは、伝搬SPP励起により光を回折限界以下の領域に閉じ込め、それを効率よく伝搬できる性質を示す。のことから、次世代の光集積回路や高感度なセンシング分野への応用が期待されている。

探針増強ラマン散乱（TERS）顕微鏡法は、数ナノメートルの空間分解能で試料表面の形態情報と分光情報を同時に取得できる顕微分光法である。貴金属を素材とした探針（先鋭化した金属針）先端にレーザー光を照射することでLSP共鳴を誘起し、探針直下の分子のラマン散乱確率を選択的に向上させ回折限界を超える分解能を得る。

現在のTERS顕微鏡法の抱える最大の問題点は探針の作製法にある。通常TERS測定は、貴金属線の電解研磨や貴金

属の真空蒸着により行われるが、ラマン増強度や空間分解能にかなりのばらつきが出る。これは、探針形状（特に先端）の再現性の悪さに起因するものである。

著者らはこの問題を解決すべく、液相合成ナノワイヤの形状再現性の高さに着目し、この貴金属ナノワイヤを探針として使用することを提案した。図1aに作製した銀ナノワイヤ探針のSEM像を示す。ナノワイヤは誘電泳動法を用いて、あらかじめ先鋭化させたタンゲステン線に付着させた。図1bにナノワイヤ探針を用いて取得したグラファイトの原子像を示す（STM一定高さモード）。作製した探針のうちおよそ30%のもので原子像を取得可能であった。また作製したナノワイヤ探針は、ほぼ100%の確率でTERS活性が確認された（直接励起）。これらは化学合成ナノワイヤの高い結晶性と化学的安定性によるものであり、化学合成ナノワイヤは走査プローブ顕微鏡およびTERS探針として極めて有用な素材であることを示している。

さらに著者らはTERS顕微鏡法の高感度化を目的とし、リモート励起TERS顕微鏡法を開癡した。図1cに概念図を示す。通常のTERS顕微鏡法では、レーザー光を探針先端に集光し、同じ点からのTERS信号を取得する。一方、リモート励起TERS顕微鏡法では、ナノワイヤ上にあらかじめ作製した光カップリング箇所にレーザー光を照射した状態で、ナノワイヤ先端からのTERS信号を取得する。先端でのラマン散乱の励起は、伝搬したSPPがナノワイヤの先端で局在化したLSPで行う。実際に著者らは、ナノワイヤの先端から数 $\mu\text{m}$ 離れた場所に金微粒子の凝集体を固定した探針を開癡した。図6dに、金微粒子の凝集体に633 nmの定常光レーザーを集光した場合に得られるレイリー散乱像を示す。金微粒子が光カップリング箇所として働き、ナノワイヤ先端から光が

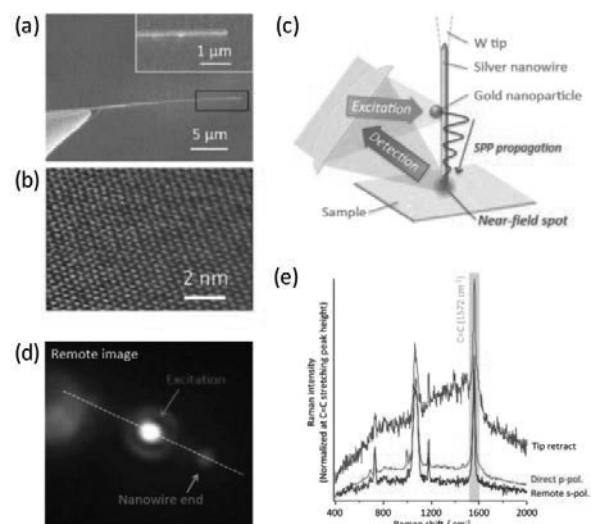


図1 (a) SEM image of a silver nanowire tip. (b) Atomic image of graphite obtained by the silver nanowire tip under STM feedback. (c) Schematic illustration of “Remote excitation-TERS”. (d) Rayleigh scattering image of a remote excitation-TERS tip. (e) TERS spectra obtained with direct p-polarization (red) and remote excitation (blue) and SERS spectrum (black) on thiophenol-functionalized Au(111) substrate. All the spectra are normalized at 1572  $\text{cm}^{-1}$  Raman peak for easier comparison of background intensities.

取り出されていることがわかる。図1eにリモート励起によって得られた金上有機分子（チオフェノール）のTERSスペクトルを示す。リモート励起の場合には、直接励起と比較して信号強度がおよそ20倍小さくなるものの、背景光の強度はおよそ30%抑えられることが分かった（なお、図1eは $1572\text{ cm}^{-1}$ のラマンピーク強度で規格化してある）。これは、伝搬SPP励起により、遠隔場信号に含まれる背景光の寄与が小さくなつたことに由来すると考えられる。このように、リモート励起はTERS顕微鏡法のような高感度表面分光法にも有用である。

### 3. 今後の研究の展望

金属ナノワイヤの光閉じ込め効果を利用した新たな顕微分光法を紹介した。リモート励起は、単に励起光源のサイズを回折限界以下の空間に閉じ込める手段であることから、原理的にはパルスレーザーを用いた超高速分光など、現存の分光法の高感度化・高分解能化に利用できる可能性がある。もしこれが実現すれば、これまで空間分解能や感度の問題で観測が難しかつた科学現象を解明できるかもしれない。著者らは、分光学の立場から今後も新規手法を提案し続け、産学のあらゆる分野の研究者と協力しながら世界の科学技術の発展に貢献していく。

## 4. 資料

### 4.1 学術論文（査読あり）

- 1) Zhi Li, Hans Van Gorp, Peter Walke, Thanh Hai Phan, Yasuhiko Fujita, John Greenwood, Oleksandr Ivasenko, Kazukuni Tahara, Yoshito Tobe, Hiroshi Uji-i, Stijn F. L. Mertens, Steven De Feyte, “Area-selective passivation of sp(2) carbon surfaces by supramolecular self-assembly”, *Nanoscale*, 2017, 9, 5188–5193.
- 2) Roald Phillipson, César J. Lockhart de la Rosa, Joan Teyssandier, Peter Walke, Deepali Waghray, Yasuhiko Fujita, Jinne Adisoejoso, Kunal S. Mali, Inge Asselberghs, Cedric Huyghebaert, Hiroshi Uji-i, Stefan De Gendt, Steven De Feyter, “Tunable doping of graphene by using physisorbed self-assembled networks”, *Nanoscale*, 2016, 8, 20017–20026.
- 3) B. Kenens, M. Chamtouri, R. Aubert, K. Miyakawa, Y. Hayasaka, Naiki, H. Watanabe, T. Inose, Y. Fujita, G. Lu, A. Masuhara, H. Uji-i, “Solvent-induced improvement of Au Photo-deposition and resulting Photo-catalytic efficiency of Au/TiO<sub>2</sub>”, *RSC Advances*, 2016, 6, 97464–97468.
- 4) R. Sola-Llano, V. Martínez-Martínez, Y. Fujita, L. Gómez-Hortigüela, A. Alfayate, H. Uji-i, E. Fron, J. Pérez-Pariente, I. López-Arbeloa, “Formation of a Non-linear Optical Host-Guest Hybrid Material by Tight

Confinement of LDS 722 into Aluminophosphate 1D Nanochannels” *Chem. Eur. J.* 2016, 22, 1–13.

- 5) Damiano Genovese, Alessandro Aliprandi, Eko A. Prasetyanto, Matteo Mauro, Michael Hirtz, Harald Fuchs, Yasuhiko Fujita, Hiroshi Uji-i, Sergei Lebedkin, Manfred Kappes, and Luisa De Cola, “Mechano- and Photochromism from Bulk to Nanoscale: Data Storage on Individual Self-Assembled Ribbons”, *Adv. Funct. Mater.* 2016, 26, 5271–5278.
- 6) Yasuhiko Fujita, Peter Walke, Gang Lu, Maha Chamtouri, Steven De Feyter, Hiroshi Uji-i, “Surface plasmon-assisted Site-specific Cutting of Silver nanowires using femtosecond laser”, *Adv. Mater. Technol.* 2016, DOI: 10.1002/admt.201600014.
- 7) 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.* 2016, 16 (5), 3173–3178.
- 8) Y. Fujita, P. Walke, S. De Feyter, H. Uji-i, “Remote excitation-tip-enhanced Raman scattering microscopy using silver nanowire”, *Jpn. J. Appl. Phys.* 2016, 55, 08NB03.
- 9) Y. Fujita, P. Walke, S. De Feyter, H. Uji-i, “Tip-enhanced Raman scattering microscopy: Recent advance in tip production”, *Jpn. J. Appl. Phys.* 2016, 55, 08NB02.

### 4.2 学術論文（査読なし）

該当なし

### 4.3 総説・解説・評論等

- 1) 猪瀬朋子、藤田康彦、雲林院宏：「プラズモン導波路ナノ光源を用いた単一細胞内局所分光技術」、生物物理、生物物理学会、56(6) : 327–329 (2016)

### 4.4 著書

該当なし

### 4.5 特許（発明者：特許番号、特許名、出願年月日）

該当なし

### 4.6 講演

#### a. 招待講演（国際学会）

- 1) “Plasminic Remote Single-molecule Fluorescence and Raman Spectroscopy: Toward single cell interrogation”, Hiroshi Uji-i, 12<sup>th</sup> International Conference on Cellular and Molecular Biology, Biophysics and Bioengineering, Aug. 19, 2016, (Mallorca, Spain)

2) "Super-resolution Single-molecule Fluorescence Microscopy on Plasmonic Structures", Hiroshi Uji-i, 9<sup>th</sup> Asian Photochemistry Conferences, Dec., 4, 2016, (Singapore)

b. 招待講演（国内学会）

1) 該当なし

c. 一般講演（国際学会）

1) 該当なし

d. 一般講演（国内学会）

1) "Plasmonic remote excitation of single molecule fluorescence microscopy", Hiroshi Uji-i, Tomoko Inose, L. Su, Yasuhiko Fujita, 2016 年光化学討論会, Sep., 6, 2016, (東京)

2) "Environmentally friendly method to prepare flexible SERS substrates on PDMS", Tomoko Inose, Beatrice Fortuni, Hiroshi Uji-i, 2016 年光化学討論会, Sep., 6, 2016, (東京)

3) "Diazonium Chemistry for Tunable Grafting and Nano-manipulation", John Greenwood, Tomoko Inose, Yasuhiko Fujita, Oleksandr Ivasenko, Yoshito Tobe, Steven De Feyter, Hiroshi Uji-i, 第 51 回フラーレン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム, Sep., 9, 2016, (札幌市)

4) "プラズモン導波路を用いた新規ナノ顕微鏡法", 藤田康彦、猪瀬朋子、雲林院宏、第 77 回応用物理学会秋季学術講演会, Sep., 16, 2016, (新潟市)

5) "Plasmonic remote excitation of surface enhanced raman scattering: toward single cell interrogations", Yasuhiko Fujita, Tomoko Inose, Hiroshi Uji-i, 日本化学会第 97 春季年会, Mar., 16, 2017, (横浜市)

6) "Layer by layer surface modification for active targeting drug delivery system", Tomoko Inose, Beatrice Fortuni, Natsuki Hori, Kiri Watanabe, Yasuhiko Fujita, Hiroshi Uji-i, 日本化学会第 97 春季年会, Mar., 16, 2017, (横浜市)

e. 研究会・シンポジウム・ワークショップなど（学会以外）

1) "プラズモン増強効果を用いた好感度 miRNA 癌マーカーの開発", 猪瀬朋子、雲林院宏、TOBIRA 第 5 回研究交流フォーラム、May, 23, 2016, (東京)

4.7 シンポジウムの開催

該当なし

4.8 共同研究

a. 所内共同研究

該当なし

b. 民間等との共同研究

該当なし

c. 委託研究

該当なし

d. 国際共同研究

- 1) Prof. Steven De Feyter, KU Leuven, Belgium
- 2) Dr. James A. Hutchison and Prof. Thomas Ebbesen, University of Strasbourg, France
- 3) Prof. Virginia Martínez-Martínez, Universidad del País Vasco, Spain.
- 4) Prof. Lusiale, University of Strasbourg, France
- 5) Prof. Loredana Latterini, University of Perugia, Italy
- 6) Prof. Maurilio Sampaolesi, KU Leuven, Belgium
- 7) Prof. Paolo Samoli, University of Strasbourg, France
- 8) Prof. Jacek Waluk, Polish Academy of Sciences, Poland
- 9) Prof. Gang Lu, Nanjing Tech University, China
- 10) Prof. Hua Zhang, Nanyang Technological University, Singapore

4.9 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

該当なし

b. 大型プロジェクト・受託研究

該当なし

4.10 受賞

該当なし

4.11 社会教育活動

a. 公的機関の委員

該当なし

b. 国内外の学会の役職

該当なし

c. 兼任・兼業

雲林院 宏 : KU Leuven 研究教授 (2016 年 4 月 ~ 2017 年 3 月)

d. 外国人研究者の招聘

1) Johan Hofkens, Belgium, (2016 年 5 月 ~ 2016 年 9 月)

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、雲林院宏、「応用工学物性」

2) 情報科学研究科、雲林院宏、「ナノマテリアル概論」

f. 北大以外での非常勤講師（対象、講義名、担当者、期間）

該当なし

g. 新聞・テレビ等の報道

該当なし

h. ポスドク・客員研究員など

該当なし

i. 修士学位及び博士学位の取得状況

修士学位 (0)

博士学位 (0)

## 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～）  
鈴木明大（阪大院、工博、2016.4～）  
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～）  
技術補助員 新井田雅学（2015.12～）  
西岡晶子（2016.5～）  
事務補助員 山崎涼子（2014.7～）  
院生 Krishna Khakurel (DC4)、後藤遼平 (MC2)、  
丸岡篤史 (MC2)、坂口慧 (MC2)、谷 直哉 (MC1)

### 1. 研究目標

X線回折は、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、X線回折に基づく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(PCXSS)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。PCXSS測定において溶液試料を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

を利用した。

平成28年度は、PCXSS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に温度・湿度制御インクジェット対応自動チップアライメント装置を導入するなどの技術開発を行った。

また、開発中の集光光学系によるフルエンスの向上したX線自由電子レーザーを利用して、3次元イメージングを行うことを目指した技術開発を行った。この目的のため、様々な入射角でのコヒーレントX線回折測定が行えるよう、斜入射用環境セルアレイチップを作製した。また、作製した環境セルアレイチップの窒化ケイ素薄膜上に、直径200nm、高さ30nmの円柱型Auナノ構造体を、オープンファシリティの電子線リソグラフィ装置を用いて作製した。作製した円筒形テストパターンに対して、SACLAを用いて、様々な入射角でシングルショットX線レーザー回折パターンを計測し、各入射角での試料の再構成像を得ることに成功した。図1に測定したシングルショットX線レーザー回折パターンの例を示す。

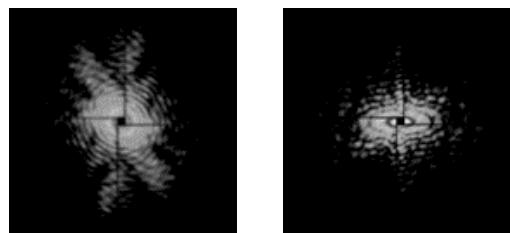


図1 円筒形テストパターンからのシングルショットX線レーザー回折パターン。(左) 入射角0° (右) 入射角70°

さらに、SACLAを用いた産業応用研究も推し進めた。理化学研究所は、SACLAの産業利用を促進するため、平成26年度より「SACLA産学連携プログラム」を開始した。平成28年度からは、当プログラムは、「SACLA産業利用推進プログラム」へと発展した。我々は、平成26年度より、これらプログラムにトヨタ自動車(株)と共同で申請し、共同研究を進めている。平成28年度は、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」が採択され、SACLAを用いた自動車用ナノマテリアルのイメージング実験を行った。

#### (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

XFEL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PCXSS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

オトリシスなどの手法の検討を進めた。

同調培養に関しては、PCXSS 測定に適する Microbacterium 菌の細胞分裂周期の特定の段階にある細胞を調製し、XFEL 施設 SACL A を用いた PCXSS 測定により細胞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、試料温度制御装置を開発・立ち上げ調整を行い、SACL A を用いた PCXSS 測定において試用した。図 2 に開発した試料温度制御装置の写真を示す。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、PCXSS 測定において細胞を封入するマイクロ液体封入アレイ (MLEA) チップ内に観察試料とケージドプロトンを導入し、紫外線を事前に照射した場合と、照射しない場合に対して、溶液中の試料画像を得ることに成功した。

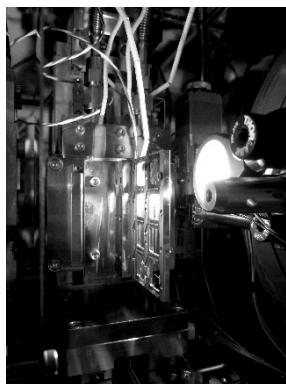


図 2 SACL A の MAXIC (汎用コヒーレントイメージング装置) 内に設置した試料温度制御装置。

また、細胞のダイナミクスを XFEL 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を用いて Microbacterium 菌の観察を行った。さらに、細胞試料に関しては、Thermus 属細菌細胞の大きさが変化する新規現象を発見した。

#### (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 ミラー光学系を用いる。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。

平成 28 年度は、構築した 2 段のアダプティブ KB ミラー光学系を用いて、Spring-8 BL29XU において、実際に集光実験を行った。X 線全反射ミラーは色収差がないため、本システムは様々な X 線波長に対応できるが、実験では、波長 1.24 Å (光子エネルギー : 10 keV) の X 線を用いた。鏡

の形状をモニターしながら誤差 2 nm で変形を制御することで、開口数を変更し、回折限界下の集光スポットサイズを制御した。集光ビームを評価したところ、形成した最小集光スポットサイズは 108 nm × 165 nm (横 × 縦) であり、最大集光スポットサイズは 560 nm × 1434 nm (横 × 縦) であった。いずれも、各配置における回折限界集光スポットサイズに非常に近いことを確認した。この成果を論文発表し、プレス発表を行った。

2 段のアダプティブ KB ミラー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。開癃した 2 段のアダプティブ KB ミラー光学系を用いた非走査型のアポダイズ照明コヒーレント回折イメージング法により、X 線集光スポットサイズよりも大きな試料の像再構成に成功し (図 3)、論文発表を行った。

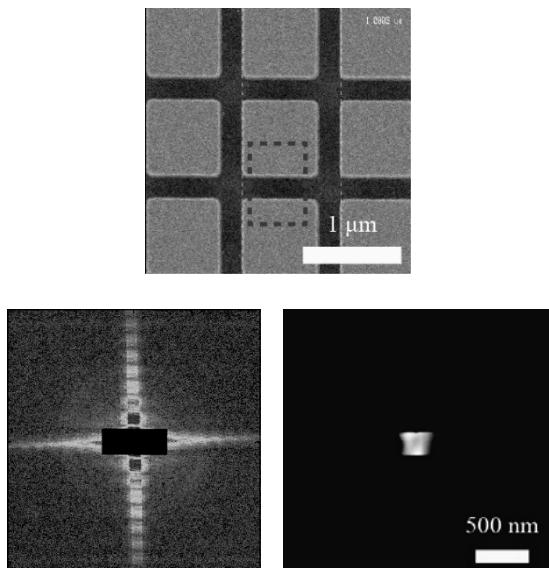


図 3 アポダイズ照明コヒーレント回折イメージング実験の結果。(上)試料として用いたタンタル製テストチャート (NTT-AT 製 XRESO-50HC) の 1 μm グリッドパターン部分の走査電子顕微鏡像。破線の長方形は、X 線照射領域を示す。(下左)コヒーレント回折パターン。(下右)再構成像。

### 3. 今後の研究の展望

日本のXFEL施設SACL 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、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（査読あり）

- 1) K. P. Khakurel, T. Kimura, H. Nakamori, T. Goto, S. Matsuyama, T. Sasaki, M. Takei, Y. Kohmura, T. Ishikawa, K. Yamauchi and Y. Nishino : "Generation of apodized X-ray illumination and its application to scanning and diffraction microscopy", Journal of Synchrotron Radiation, 24(1) : 142–149 (2017)
- 2) A. Suzuki, K. Shimomura, M. Hirose, N. Burdet and Y. Takahashi : "Dark-field X-ray ptychography: Towards high-resolution imaging of thick and unstained biological specimens", Scientific Reports, 6 : 35060 (2016)
- 3) S. Matsuyama, H. Nakamori, T. Goto, T. Kimura, K. P. Khakurel, Y. Kohmura, Y. Sano, M. Yabashi, T. Ishikawa, Y. Nishino and K. Yamauchi : "Nearly diffraction-limited X-ray focusing with variable-numerical-aperture focusing optical system based on four deformable mirrors", Scientific Reports, 6 : 24801 (2016)

### 4.2 学術論文（査読なし）

該当なし

### 4.3 総説・解説・評論等

- 1) 西野 吉則、木村 隆志、鈴木 明大、城地 保昌、別所 義隆 : 「SACLA を用いたコヒーレントイメージング」、日本結晶学会誌、59(1) : 18–23 (2017)
- 2) 木村隆志:「X線自由電子レーザーによる溶液環境コヒーレント回折イメージング法の開発」、放射光、30(2) : 98–101 (2017)
- 3) 谷 直哉、木村 隆志、鈴木 明大、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のための脂質二重膜マイクロチャンバーの開発」、放射光、30(2) : 90–91 (2017)

### 4.4 著書

該当なし

### 4.5 特許（発明者：特許番号、特許名、出願年月日）

該当なし

### 4.6 講演

#### a. 招待講演（国際学会）

- 1) Y. Nishino\*, T. Kimura, A. Suzuki, Y. Joti, T. Oshima and Y. Bessho : "Controlled Environment Nano-Imaging Free From Radiation Damage by X-ray Laser Diffraction", 1st UNIST XFEL Science Workshop, Ulsan, Korea (2016-09)
- 2) Y. Nishino\* : "Controlled environment nano-imaging free from radiation damage by X-ray laser diffraction", UK Bio-XFEL single particle imaging workshop, Didcot, Oxfordshire, UK (2016-06)

#### b. 招待講演（国内学会）

- 1) 西野 吉則\*、木村 隆志、鈴木 明大、城地 保昌、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」、日本顕微鏡学会「マルチディメンジョンナルモグラフィ研究会」、東北大学片平キャンパス (2017-02)
- 2) 西野 吉則\*:「XFEL による環境制御ナノイメージング：細胞ダイナミクスから自動車用ナノ材料まで」、第 30 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、神戸芸術センター (2017-01)
- 3) 木村 隆志\* : 「X線自由電子レーザーによる溶液環境コヒーレント回折イメージング法の開発」、第 30 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、神戸芸術センター (2017-01)
- 4) 西野 吉則\* : 「X線レーザーで観た、生きた細胞」、「国民との科学・技術対話推進事業」、札幌第一高等学校 (2016-12)
- 5) 西野 吉則\* : 「X線レーザーで観た、生きた細胞」、日本物理学会大阪支部 2016 年度公開シンポジウム、大阪府立大学 I-site なんば (2016-11)
- 6) 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 (2016-11)
- 7) 西野 吉則\*、木村 隆志、鈴木 明大、大島 泰郎、城地 保昌、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 65 回高分子討論会、神奈川大学横浜キャンパス (2016-09)
- 8) 西野 吉則\*、木村 隆志、鈴木 明大、城地 保昌、大島 泰郎、別所 義隆 : 「X線レーザーで生きた細胞を観る」、第 25 回日本バイオイメージング学会、名古屋市立大学 (2016-09)
- 9) 西野 吉則\* : 「X線自由電子レーザーによる環境制御ナノイメージング—細胞ダイナミクスから自動車用ナノ材料まで—」、革新的研究開発推進プログラム (ImPACT) 伊藤プログラム 2016 年度第 3 回班会議、小樽市公会堂 (2016-07)

#### c. 一般講演（国際学会）

- 1) R. Goto\*, T. Kimura, A. Suzuki, Y. Yang, Y. Joti, T. Oshima, Y. Bessho and Y. Nishino : "Imaging Living Bacteria Cell-Cycle Using X-ray Free-Electron Lasers",

- The 17th RIES-Hokudai International Symposium on 柔, Châteraisé Gateaux Kingdom Sapporo (2016-12) JAPAN (2016-05)
- 2) T. Kimura\*, Y. Joti, Y. Bessho and Y. Nishino : "Imaging of Self-Assembled Au Nanoparticle Structure in Solution by Femtosecond X-ray Laser", The 17th RIES-Hokudai International symposium on 柔, Châteraisé Gateaux Kingdom Sapporo (2016-12)
- 3) A. Suzuki\*, T. Tachibana, N. Tani, Y. Joti, Y. Bessho, T. Kimura and Y. Nishino : "Novel Design of Environmental Cells: Towards 3D Imaging in Solution by X-ray Laser Diffraction", The 17th RIES-Hokudai International symposium on 柔, Châteraisé Gateaux Kingdom Sapporo (2016-12)
- 4) T. Kimura\*, A. Suzuki, Y. Joti, Y. Bessho and Y. Nishino : "X-ray Free-electron Laser Diffraction Imaging of Solution Sample Using Micro-Liquid Enclosure Array", 14th Conference of the Asian Crystallographic Association (AsCA 2016), Hanoi, Vietnam (2016-12)
- 5) T. Kimura\*, Y. Joti, Y. Bessho, Y. Nishino : "Imaging Gold Nanoparticle Assembly in Solution by Femtosecond X-ray Laser", HOKUDAI-NCTU Joint Symposium on Nano, Photo and Bio Sciences, Hokkaido University (2016-10)
- 6) A. Suzuki\*, T. Tachibana, N. Tani, T. Kimura, Y. Joti, Y. Bessho and Y. Nishino : "New design of environmental cells for 3D X-ray laser diffraction imaging insolution", HOKUDAI-NCTU Joint Symposium on Nano, Photo and Bio Sciences, Hokkaido University (2016-10)
- 7) Y. Nishino\*, T. Kimura, A. Suzuki, Y. Joti, T. Oshima and Y. Bessho : "Controlled Environment Nano-Imaging Free From Radiation Damage by X-ray Laser Diffraction", 12th International Conference on Biology and Synchrotron Radiation (BSR16), Menlo Park, California, USA (2016-08)
- 8) T. Kimura\*, Y. Joti, Y. Bessho and Y. Nishino : "Coherent Diffractive Imaging for Solution Samples by Femtosecond X-ray Laser", International Conference on X-ray Microscopy, University of Oxford, UK (2016-08)
- 9) T. Kimura\*, Y. Joti, Y. Bessho and Y. Nishino : "X-ray Laser Diffraction Imaging of Samples in Solution Using Micro-Liquid Enclosure Array", International Conference on X-ray optics, detectors, sources, and their applications 2016, Pacifico Yokohama, Yokohama city, Kanagawa prefecture, JAPAN. (2016-05)
- 10) K. P. Khakurel\*, T. Kimura, H. Nakamori, T. Goto, S. Matsuyama, K. Yamauchi and Y. Nishino : "Coherent diffraction imaging of non-isolated objects with apodized illumination", International Conference on X-ray optics, detectors, sources, and their applications 2016 (XOPT16), Pacifico Yokohama, Yokohama city, Kanagawa prefecture,
- d. 一般講演（国内学会）**
- 1) 谷 直哉\*、木村 隆志、鈴木 明大、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のための脂質膜マイクロチャンバーの開発」、第 30 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、神戸芸術センター (2017-01)
  - 2) 鈴木 明大\*、橘 健朗、谷 直哉、城地 保昌、別所 義隆、木村 隆志、西野 吉則 : 「パルス状コヒーレント X 線溶液散乱法による 3 次元イメージングに向けて」、第 30 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、神戸芸術センター (2017-01)
  - 3) 楊 影\*、森屋 利幸、吉井 貴宏、西野 吉則、大島 泰郎 : 「高温好気型堆肥から高度好熱性細菌 Thermus thermophilus の分離」、第 17 回極限環境生物学会年会、東京工業大学すずかけ台キャンパス (2016-11)
- e. 研究会・シンポジウム・ワークショップなど（学会以外）**
- 1) 木村 隆志\*、後藤 邽平、丸岡 篤史、城地 保昌、大島 泰郎、別所 義隆、西野 吉則 : 「液中試料ダイナミクスのフェムト秒 X 線レーザーによる計測の試み」、第 4 回アライアンス若手研究交流会、北海道大学 (2016-11)
  - 2) 鈴木 明大\*、橘 健朗、谷 直哉、城地 保昌、別所 義隆、木村 隆志、西野 吉則 : 「X 線レーザー回折を用いた溶液中 3 次元イメージングに向けた新規環境セル開発」、第 4 回アライアンス若手研究交流会、北海道大学 (2016-11)
- 4.7 シンポジウムの開催**
- 1) The 17th RIES-Hokudai International symposium on 柔, Châteraisé Gateaux Kingdom Sapporo (2016-12)
- 4.8 共同研究**
- a. 所内共同研究**
- 1) 居城 邦治 (生体分子デバイス研究分野)
  - 2) 新倉 謙一 (生体分子デバイス研究分野)
  - 3) 三友 秀之 (生体分子デバイス研究分野)
- b. 民間等との共同研究**
- 1) トヨタ自動車株式会社 : 平成 28 年度 SACLA 産業利用推進プログラム「XFEL を用いた自動車用ナノマテリアルの形態や状態の把握」、2016 年度
- c. 委託研究**
- 該当なし
- d. 国際共同研究**

- 1) 別所 義隆 (Academia Sinica)

#### 4.9 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) 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 A、破壊計測用マイクロ流路による液中反応X線レーザーイメージング、2016～2019 年度
- 3) 鈴木 明大、研究活動スタート支援、X線ナノイメージング技術を応用したシングルショット波面計測、2016～2017 年度

##### b. 大型プロジェクト・受託研究

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

#### 4.10 受賞

- 1) 木村 隆志：第21回放射光学会奨励賞 2017年01月07日
- 2) 西野 吉則：第30回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム学生発表賞 2017年01月07日
- 3) 西野 吉則：北海道大学研究総長賞奨励賞（北海道大学） 2017年01月31日
- 4) 木村 隆志：北海道大学研究総長賞奨励賞（北海道大学） 2017年01月31日

#### 4.11 社会教育活動

##### a. 公的機関の委員

- 1) 西野 吉則：（公財）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：科学技術振興機構 CREST・さきがけ複合領域「計測技術と高度情報処理の融合によるインテリジェント計測・解析手法の開発と応用」領域アドバイザー（2016年04月01日～現在）
- 3) 西野 吉則：文部科学省科学技術政策研究所科学技術動向研究センター専門調査員（2013年06月27日～現在）

##### b. 国内外の学会の役職

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

##### c. 兼任・兼業

- 1) 西野 吉則：理化学研究所客員研究員（2010年04月01日～現在）
- 2) 木村 隆志：理化学研究所客員研究員（2011年06月～現在）

- 3) 鈴木 明大：理化学研究所客員研究員（2016年06月～現在）

##### d. 外国人研究者の招聘

該当なし

##### 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、生体工学概論・生体医工学基礎、西野 吉則、2015年12月06日
- 2) 情報科学研究科、ナノイメージング特論、西野 吉則、2016年12月02日～2017年02月08日
- 3) 情報科学研究科、ナノイメージング特論、木村 隆志、2016年12月02日～2017年02月08日
- 4) 情報科学研究科、ナノイメージング特論、鈴木 明大、2016年12月02日～2017年02月08日
- 5) 工学部、応用光学II・ナノ工学基礎、西野 吉則、2016年12月02日～2017年02月08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、2016年04月22日
- 7) 工学部、情報エレクトロニクス演習、木村 隆志、2016年04月01日～2016年09月30日
- 8) 工学部、生体情報工学実験1、木村 隆志、2016年04月05日～2017年08月04日
- 9) 工学部、生体情報工学実験2、鈴木明大、2016年10月03日～2017年02月08日
- 10) 全学共通、フレッシュマンセミナー、木村 隆志、2016年04月05日～2016年08月04日
- 11) 工学部、科学技術英語演習、西野 吉則、2016年04月01日～2017年03月31日

##### f. 北大以外での非常勤講師（対象、講義名、担当者、期間）

- 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、2016年11月10日

##### g. 新聞・テレビ等の報道

- 1) 2016年4月22日 マイナビニュース 「阪大など、X線ナノビームの集光スポットサイズを自在に制御することに成功」
- 2) 2016年4月25日 日経テクノロジーonline 「X線ナノビームの集光制御に成功 大阪大学など、多機能型X線顕微鏡の実現へ」
- 3) 2016年4月25日 OPTRONICS online 「阪大ら、X線の集光スポット制御に成功」
- 4) 2016年4月25日 大学ジャーナル 「世界初、ビームサイズを自由に制御できる X 線ナノビーム開発 大阪大学」

##### h. ポスドク・客員研究員など

1) 楊 影 (博士研究員)

i. 修士学位及び博士学位の取得状況

修士学位 (2名) :

- 1) 後藤 遼平 : X線自由電子レーザーによる生きたバクテリアの細胞分裂過程イメージング
- 2) 丸岡 篤史 : 溶液中反応解析に向けたX線自由電子レーザー制御式高集積破壊型流路の開発

博士学位 (1名) :

- 1) Krishna Khakurel: Apodized illumination coherent diffraction microscopy for imaging non-isolated objects

# 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、フォトニクスのための光機能性分子とナノ材料の創製、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、新規な太陽電池システムの物理学とクリーン系およびスピントロニクスへの物性理論を用いた基礎物理の解明、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。

## 分子フォトニクス研究分野

教 授 BIJU Vasdevan Pillai (Kerala University、PhD、2016年2月～)  
助 教 柚山 健一 (大阪大学、博士(工学)、2016年10月～)

### 1. 研究目標

本研究分野は、分子および量子ドットにおける新規光学特性と量子効果を利用した有機・無機フォトニクス材料の開発と、それらを利用したレーザー光学的技術の開発および細胞工学的応用利用技術の開発を目標としている。

周辺環境や周辺分子の状態によって発光性を変化させる分子は、環境中の有毒物質や、生体内中において生命活動へ影響を与える分子の分布状況や状態を検知することが可能である。また同様の性質を有する半導体性ナノ粒子（ナノ結晶ともいわれる）は、高い安定性と発光性を有することが知られていおり、上記のような検知のためや、ナノスケールでの光学素子開発に向けて盛んに研究が行われているフォトニクス材料である。

### 2. 研究成果

2016年度は当研究グループにとって、学生や助教が加入して本格始動を開始した年度となった。これに伴い幾つかの目に見える研究成果が現れはじめた。例えば新奇半導体性ナノ粒子としてユニークな発光特性を有する材料を発見し、その1粒子挙動について直接顕微鏡観察することによって新しい基礎物性を明らかにした(4.1.1:Nanoscale誌報告、4.1.4: Phys. Chem. Chem. Phys.誌報告、4.1.6: Anal. Sci.誌報告)。

これらの半導体性ナノ粒子が、各種分子との相互作用によって発光性を変化させることを利用して、環境中のオゾン検知や(4.1.2:Microchim. Acta誌報告)、病原性バクテリアの検知を可能とするナノ粒子センサーの開発に成功した(4.1.3:RCS Avd.誌報告)。

また、太陽電池の高性能化に向けて近年非常に盛んに研究が行われているペロブスカイト太陽電池に関して、その素子となる量子ドットについて有機材料フラー・レンとの複合体形成に成功し、複合材料中における光励起挙動の詳細な解明を可能とする研究成果を報告した(4.1.5:Angew. Chem. Int. Ed.誌報告)。

一方、レーザートラッピング技術を利用して、光異性化を起こす分子の分子集積化挙動のon/off切り替えに成功した(4.1.7:Langmuir誌報告)。この技術を応用することで、新たなアプローチによるナノデバイスの作成や、分子スケールでのツール制御が可能になることが期待できる。

以上のように、半導体性ナノ粒子からなる量子ドットをベースとした研究遂行によって、新たな材料開発、機能性解明、および生物学的な応用における重要な知見の発見を行った。

### 3. 今後の研究の展望

今後は、引き続き半導体性ナノ粒子についての基礎物性解明から応用利用についての包括的研究の遂行を行う。併せて、細胞内環境の活性酸素量の検知や酸化還元反応的人為制御への利用を目指して現在開発中の分子プローブ群を完成させる。これにより、分子生物学的および細胞工学的に利用可能な革新的光学分子材料の開発を行う。

### 4. 資料

#### 4.1 学術論文（査読あり）

- 1) Sharma, D. K.; Hirata, S.; Bujak, L.; Biju, V.; Kameyama, T.; Kishi, M.; Torimoto, T.; Vacha, M. Single-Particle Spectroscopy of I-III-VI Semiconductor Nanocrystals: Spectral Diffusion and Suppression of Blinking by Two-Color Excitation. *Nanoscale* **2016**, *8*, 13687–13694.
- 2) Ando, M.; Kamimura, T.; Uegaki, K.; Biju, V.; Shigeri, Y. Sensing of Ozone Based on Its Quenching Effect on the Photoluminescence of CdSe-Based Core–Shell Quantum Dots. *Microchim. Acta* **2016**, *183*, 3019–3024.
- 3) Arshad, E.; Anas, A.; Asok, A.; Jasmin, C.; Pai, S. S.; Singh, I. S. B.; Mohandas, A.; Biju, V.. Fluorescence Detection of the Pathogenic Bacteria Vibrio Harveyi in Solution and Animal Cells Using Semiconductor Quantum Dots. *RSC Adv.* **2016**, *6*, 15686–15693.
- 4) Sharma, D. K.; Hirata, S.; Bujak, L.; Biju, V.; Kameyama, T.; Kishi, M.; Torimoto, T.; Vacha, M. Influence of Zn on the Photoluminescence of Colloidal (Agin)(X)Zn<sub>2</sub>(1-X) S<sub>2</sub> Nanocrystals. *Phys. Chem. Chem. Phys.* **2017**, *19*, 3963–3969.
- 5) Nair, V. C.; Muthu, C.; Rogach, A. L.; Kohara, R.; Biju, V.. Channeling Exciton Migration into Electron Transfer in Formamidinium Lead Bromide Perovskite Nanocrystal/Fullerene Composites. *Angew. Chem. Int. Ed.* **2017**, *56*, 1214–1218.
- 6) Pillavi, S. S.; Yukawa, H.; Onoshima, D.; Biju, V.; Baba, Y. Förster Resonance Energy Transfer Mediated Photoluminescence Quenching in Stoichiometrically Assembled Cdse/Zns Quantum Dot–Peptide Labeled Black Hole Quencher Conjugates for Matrix Metalloproteinase–2 Sensing. *Anal. Sci.* **2017**, *33*, 137–142.
- 7) Yuyama, K.; Marcelis, L.; Su, P. M.; Chung, W. S.; Masuhara, H. Photocontrolled Supramolecular Assembling of Azobenzene-Based Biscalix[4]Arenes Upon

Starting and Stopping Laser Trapping. *Langmuir* **2017**, *33*, 755–763.

#### 4.2 学術論文（査読なし）

該当なし

#### 4.3 総説・解説・評論等

該当なし

#### 4.4 著書

該当なし

#### 4.5 特許（発明者：特許番号、特許名、出願年月日）

該当なし

#### 4.6 講演

##### a. 招待講演（国際学会）

- 1) V. P. Biju\* : "Incessant and Intermittent Photoluminescence of Quantum Dots in Single Molecule Detections", AsiaNANO2016, 札幌コンベンションセンター, 日本 (2016-10)
- 2) V. P. Biju\* : "Impeding Oxidation and Blinking in Single Semiconductor Quantum Dots", Department of Applied Chemistry Seminar, 台湾, 中国 (2016-11)
- 3) V. P. Biju\* : "Blinking and Bleaching Quantum Dots in Single-molecule Detections", Asian Photochemistry Conference 2016, Nanyang Technological University, Singapore (2016-12)
- 4) V. P. Biju\* : "Luminescent Semiconductor Nanocrystals: Challenges and Prospects", International Symposium on "New Trends in Applied Chemistry" (NTAC2017), Kochi, India (2017-02)

##### b. 招待講演（国内学会）

該当なし

##### c. 一般講演（国際学会）

- 1) R. KOHARA\* and V. P. Biju : "Utilization of Quantum Dots for Controlled Photoreactions", 2016 Annual Meeting of Japanese Photochemistry Association, The University of Tokyo, Japan (2016-09)
- 2) V. P. Biju\* and R. KOHARA : "Harvesting energy of quantum dots by photoreactions", 2016 Annual Meeting of Japanese Photochemistry Association, The University of Tokyo, Japan (2016-09)

##### d. 一般講演（国内学会）

- 1) S. K. Dharmendar\*, S. Hirata, B. Lukasz, V. P. Biju, T. Kameyama, M. Kishi, T. Torimoto and V. Martin : "Single particle spectroscopy of (AgIn)<sub>x</sub>Zn<sub>2(1-x)</sub>S<sub>2</sub> (ZAIS) semiconductors: Blinking modulation with two color excitation ", 2016 年光化学討論会, 東京大学駒場キャンパス (2016-09)

2) 柚山 健一\*、陳 睿凱、Vasudevan Pillai Biju、杉山 輝樹、増原 宏 : 「気液界面への連続発振レーザー集光照射によるマイクロバブル発生と L-フェニルアラニン結晶化」、日本化学会 第 97 春季年会 (2017)、慶應義塾大学 日吉キャンパス (2017-03)

3) R. Kohara\* and V. P. Biju : "A fluorescence sensor for real-time monitoring of singlet oxygen", 日本化学会第 97 回春季年会 (2017) , 慶應義塾大学日吉キャンパス (2017-03)

##### e. 研究会・シンポジウム・ワークショップなど（学会以外）

- 1) V. P. Biju\* : "Efficient Utilization of the Excitation Energy of Highly-excited Quantum Dots for Photoreactions", 1st International Symposium on Photosynergetics, 大阪大学, 大阪 (2016-06)
- 2) V. P. Biju\* : "Blinking and bleaching semiconductor quantum dots for bioimaging", Seminar of National Institute of Interdisciplinary Science and Technology (NIIST), NIIST, Trivandrum, India (2016-08)
- 3) V. P. Biju\* : "Single semiconductor quantum dots beyond blinking", Seminar of Department of Applied Chemistry, 名古屋大学、名古屋 (2016-09)
- 4) V. P. Biju\* : "Semiconductor quantum dots for single-molecule detection", University Seminar, 大阪市立大学, 大阪 (2016-09)
- 5) V. P. Biju\* : "Single-molecule Detection using Quantum Dot Labels: Challenges and Prospects", HO-KUDAI-NCTU Joint Symposium on Nano, Photo and Bio Sciences in 2016, 北海道大学、北海道 (2016-10)

#### 4.7 シンポジウムの開催

該当なし

#### 4.8 共同研究

##### a. 所内共同研究

該当なし

##### b. 民間等との共同研究

該当なし

##### c. 委託研究

該当なし

##### d. 國際共同研究

- 1) Prof. Raju Francis, School of Chemical Science, Mahatma Gandhi University, India, "Polymer-quantum dot conjugate for stable light emitting materials and applications"
- 2) Dr. Vijayakumar Nair Chakkoth, National Institute of Interdisciplinary Science and Technology (NIIST), India, "Perovskite nanocrystals and optimization of their electron transfer properties"

- 3) Prof. Andrey Rogach, City University of Hong Kong, PRS China, "An investigation of charge carrier dynamics in perovskite nanocrystals"
- 4) Prof. Hiroshi Masuhara, Laser Bio/Nano Science Laboratory, 台湾国立交通大学, "光捕捉によるアミノ酸の結晶化"
- 4.9 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) Vasudevan Pillai Biju、新学術領域研究 研究領域提案型、Efficient utilization of the excitation energy of highly-excited quantum dots for photoreactions、2015～2016年度
- b. 大型プロジェクト・受託研究  
該当なし
- 4.10 受賞**  
該当なし
- 4.11 社会教育活動**
- a. 公的機関の委員  
該当なし
- b. 国内外の学会の役職
- 1) Vasudevan Pillai Biju: 王立化学会 フェロー (2011年12月1日～)
- c. 兼任・兼業
- 1) Vasudevan Pillai Biju: 名古屋大学応用化学科 客員教授 (2016年1月2日～)
  - 2) Vasudevan Pillai Biju: NPG Asia Materials 共同編集者 (2015年～)
  - 3) Vasudevan Pillai Biju: Journal of Photochemistry Photobiology C 共同編集者 (2013年～)
  - 4) Vasudevan Pillai Biju: Journal of Bioengineering Biomedicine 編集局員 (2016年～)
  - 5) Vasudevan Pillai Biju: Advanced Physical Chemistry 編集局員 (2016年～)
- d. 外国人研究者の招聘
- 1) Elizabeth Mariam Thomas、インド、(2016年10月16日～2016年12月10日)
  - 2) Vijayakumar C. Nair、インド、(2016年07月09日～2016年08月06日)
- e. 北大での担当授業科目（対象、講義名、担当者、期間）
- 1) 地球環境科学研究科、光電子科学特論 I (光分子化学特論)、Vasudevan Pillai Biju、2016年10月01日～2017年03月31日
  - 2) 地球環境科学研究科、環境物質科学基礎論 II、Vasudevan Pillai Biju、2016年10月01日～2017年03月31日
  - 3) 地球環境科学研究科、分子環境学特論 II、Vasudevan Pillai Biju、2016年12月22日
- 4) 地球環境科学研究科、分子環境学特論 II、柚山 健一、2016年10月27日
- f. 北大以外での非常勤講師（対象、講義名、担当者、期間）
- 1) Vasudevan Pillai Biju、大阪市立大学大学院理学部、分子制御化学特別講義 2、2016年09月12日～2016年09月13日
  - 2) Vasudevan Pillai Biju、名古屋大学大学院工学部、Single Semiconductor Quantum Dots Beyond Blinking、2016年09月09日
- g. 新聞・テレビ等の報道  
該当なし
- h. ポスドク・客員研究員など  
該当なし
- i. 修士学位及び博士学位の取得状況  
修士学位 (0)  
博士学位 (0)

## 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 田山紘子  
学 生  
博士課程  
Halley M M, Islam MD Jahirul, Amrutha A S, Viswanatha H M,  
Noushaba Nusrat Mafy  
学部生 芦野史弥 山下和希

### 1. 研究目標

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

### 2. 研究成果

#### (a) 単一微小管の運動の光制御

これまでに生体機能を人為的に制御する目的で様々なケージド化合物が合成され、用いられてきた。ケージド化合物とは、生理活性物質の重要な官能基に保護基を導入して活性が低下した状態にしておき、生理活性を発現したい場所やタイミングで保護基を外して生理活性物質としての働きをさせるものである。保護基としては光化学反応によって脱離するニトロベンジル基などがよく用いられてきた。ケージド化合物の例としては、ケージドATPやケージドグルタミン酸などが挙げられる。これらは、適当なタイミングで紫外線を照射することで保護基が外れ、ATPやグルタミン酸が放出され、高エネルギー物質として、もしくは、神経伝達物質として働く。しかし、これらの従来のケージド化合物には課題が存在した。それは、望みのタイミングで生理活性物質を放出することは可能であるが、放出され

た生理活性物質を逆に望みのタイミングで消し去ることができないということである。また、局所的に光を当てて部分的に生理活性物質を放出させたとしても、物質の速やかな拡散により、望まぬ周辺にまで生理活性が及んでしまうという点である。われわれは、上記の課題を解決するためには、生理活性物質の活性を2つの波長の光で可逆的にON-OFFさせるスイッチ部を分子内に導入することが有効であると考えた。すなわち、2つの波長から選択して光を当てることで、生理活性を発現することも直ちに消し去ることも可能であれば、生理活性物質を放出したい場所では、活性を出す波長の光を当て、それ以外の場所では、生理活性を消す波長の光を当てることで、生理活性物質が周辺に拡散すると直ちに光反応により不活性型へと変化して、目的の場所だけで、生体の制御が可能となる。また、生理活性物質の効果がいらなくなれば、全体を不活性化する光を照射することで、目的が達成できるであろう。今年度は、このような光で可逆的に働く生理活性を変化させる光スイッチ付きの生理活性物質が、局所的な生体機能制御に有効であるかを検証するために、モータータンパク質キネシ－微小管を用いてその運動を局所的にスイッチすることを試みた。

キネシンを表面に物理吸着させたガラス基板上にバッファ－液を満たしたフローセルを構築し、そこに微小管とATPと合成したアゾベンゼンゼンペチド型の光応答性阻害剤を添加して、蛍光顕微鏡によりキネシンの運動によるキネシンの滑走速度を調べた。その際、レンズを介して局所的（最小直径5ミクロンまたは20ミクロン）に近紫外光（365nm）を当てられ、かつ、その照射位置を顕微鏡の視野内で自由に移動できる装置（図1）を構築した。また、試料全体には、青色光（510nm）を照射できるようにした。近紫外光は光応答性阻害剤を活性がない状態（すなわちキネシンが働く状態）に、青色光は光応答性阻害剤を活性がある状態（すなわちキネシンが働く状態）にする。2つの光の強度を調整して局所的に紫外光を試料全体に青色光を照射すると、近紫外光を照射した部分の微小管のみがキネシンの運動により滑走した。一方で、試料全体の青色光を使わない場合には、局所的な紫外光照射によるその地点での微小管の滑走に続いて直ちに顕微鏡視野内の他の微小管が滑走をはじめた。これは、紫外光照射部で活性がOFFになった阻害剤が周辺部に拡散していき、周辺部での活性な阻害剤の相対濃度が下がったとして説明できる。ケージドATPを用いたときと同様の現象である。次に、光応答性の高エネルギー化合物であるAzoTPを用いた場合、試料全体を近紫外光で照射し、対物レンズを通して局所的に青色光を照射することで、青色光を照射した場所のみで速い微小管の滑走が起こった。以上の結果は、2つの波長で、生理活性をON状態からOFF状態へ、もしくはOFF状態からON状態へ可逆的に変化させることをできる光スイッチ付きの生理活性物質と適切な光照射方法を組み合わせることで、拡散によって効果が広がらない理想的な生体機能の時空間制御が可能

になることを示すものである。

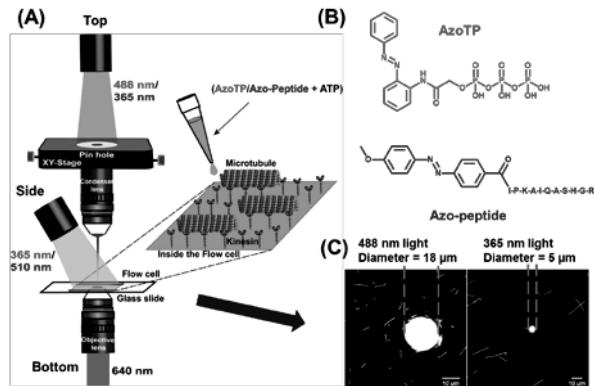


図1 (a) モータータンパク質のモティリティアッセイ系に対して局的に光照射する装置の模式図、(b) 光応答性高エネルギー分子（上）と光応答性阻害剤（下）の分子構造、(c) 蛍光顕微鏡の視野内に導入された光の様子。ピンホールの大きさにより、照射光のサイズは変えられる。また、X-Yステージを調整することで照射光の位置を変えられる。

本微小領域照射装置とアゾベンゼンペプチド型阻害剤を用いて、微小管の運動を局的に阻害することで、任意の場所で微小管の濃縮を起こすことが可能となる。図2のように、試料全体を365nm光で照射し、直径20ミクロン程度の領域のみを488nm光で照射すると、365nm光で照射されている部分では、阻害剤が不活性となり、キネシンの働きにより微小管が滑走する。微小管が、488nm光の領域に入ると、そこでは阻害剤が活性となっており、キネシンが働かず、結果として微小管の滑走が止まる。この状態を維持すると、しばらくした後には488nm光の領域の微小管の濃度が大幅に高まった。

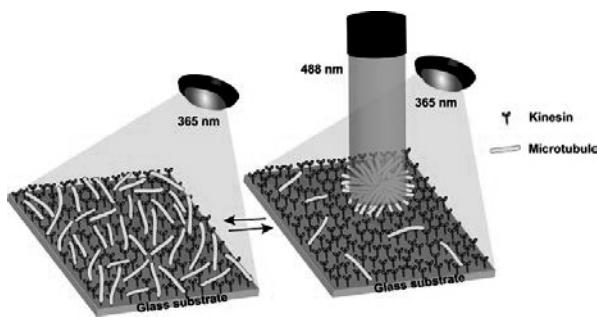


図2 全体を、光応答性阻害剤を不活性状態（キネシンは働く）にする365nm光で照射し、部分的に光応答性阻害剤を活性状態（キネシンは働かない）にする488nm光で照射することで、微小管は488nm光を照射した部分に集まった。

さらに、本微小領域照射装置と光応答性阻害剤の組み合わせを用いることで、1本の微小管のみを選択して滑走させることも可能であった。すなわち、試料全体を510nm光で照射して微小管の滑走を止めて、局的に直径5ミクロ

ンのサイズの365nm光で1本の微小管を照射することで、照射された微小管のみを動かすことができた（図3）。

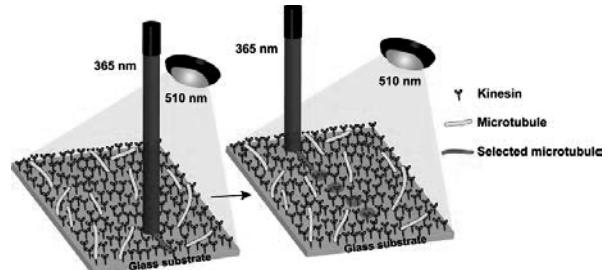


図3 全体への510nm光照射と5ミクロン領域への365nm照射を組み合わせることによる1本の微小管の滑走実験の様子。365nm光の位置は、狙った微小管の滑走に追随して移動させる。

さらに、同様の実験系を用いて、1本の微小管を変形させたり、切断したりすることにも成功した。すなわち、微小管の後方部を5ミクロンサイズの365nm光で照射すると（全体は510nm光で照射）、後方部のみがその下のキネシンの作用で滑走しようとするが、前方部が止まっているため全体で滑走することができず、結果的に中央部が湾曲した。それを続けると結局微小管の中央部が歪みに耐えきれずに折れることが観察できた。この結果は、一本の微小管を狙って取扱ったり切断したりすることが可能であることを示した初めての例である（図4）。

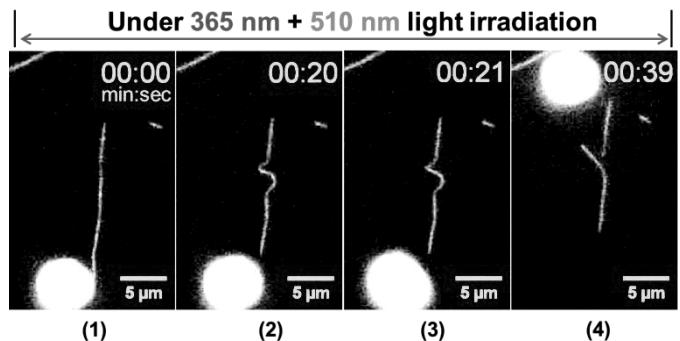


図4 狙った1本の微小管の変形と切断の様子。全体を510nm光で照射し、狙った1本の微小管の後方部を365nm光で照射する。

#### (b) ヘリセン型光応答性キラル添加剤

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、これまでに光応答性キラル化合物として用いられてきた光反応性部位としてはエチレン誘導体とアゾベンゼン誘導体等に限定され、それ以外の光反応性部位が有効であるかに関心が持たれている。また、ミクロンサイズの物体のより大きな回転を誘起できる光応答性キラル添加剤も望まれている。そこで今年度は、パリ サクレー大学の Michel Frigoli 博士と共同で、ヘリセン型光応答性キラル添加剤の光異性化反応の液晶に対する効果を調べた。

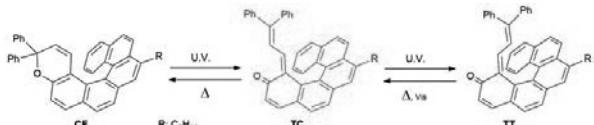


図5 ヘリセン型光応答性キラル添加剤の構造と光異性化挙動

本研究に用いたヘリセン型光応答性キラル添加剤の構造と光異性化挙動を図5に示す。光照射前では[6]ペンタセンの構造を示し、紫外線照射後には、ピラン環中のC-O結合が開裂してオルト置換の[5]ヘリセン構造に変化する。閉環状態の[5]ヘリセンは光又は熱で変換しうる2つの異性体を示す。[5]ヘリセンは熱的に安定であるが、長時間かけて熱的により安定な[6]ヘリセン構造に戻る。この間、ヘリセン構造がラセミ化することはない。

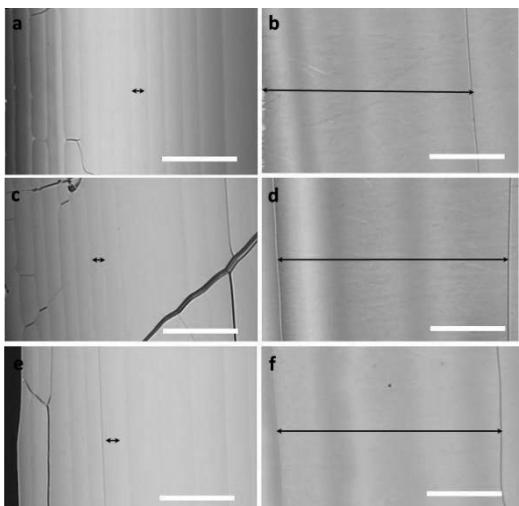


図6 [6]ヘリセン化合物CFを添加したネマティック液晶のウェッジセル中の偏光顕微鏡像。a, bはフッ素系ネマティック液晶JC-1014XX中(1.0wt%)、c,dはE7中(1.0wt%)、e,fは5CB中(1.2wt%)。a, c, eは光照射前、b, d, fは紫外線照射後。スケールバーは500μm。

図6にはウェッジセル中のネマティック液晶と[6]ヘリセン化合物CFの混合物の偏光顕微鏡像を示す。ウェッジセル中で観察される欠陥線間の距離から各ネマティック液晶ホスト中の添加物のねじり力の大きさを見積もること

ができる。本実験の結果は、CFのねじり力の大きさは、いずれのネマティック液晶においても初期は非常に大きく、紫外線照射後には大幅に減少することがわかる。この結果は、[6]ヘリセン構造では螺旋構造が剛直に保たれるが[5]ヘリセン構造になると螺旋はラセミ化することはないがかなり柔軟な構造であるとして、そのねじり力変化を説明することができる。

図7には、一方の表界面を空気としたCFを0.2wt%含有したE7液晶薄膜の紫外線照射中におけるテクスチャーの変化を示す。紫外線照射に伴いフィンガープリントテクスチャーの線が反時計回りに回転した(a-h)。光を止めると、長い時間をかけて逆方向へ回転した。この液晶テクスチャーの回転に伴い、液晶膜上に置いたミクロンサイズのガラスロッドが回転した。この現象は、添加した[6]ヘリセンの光異性化反応に伴うねじり力の変化で、液晶分子の再配列が起こり、その結果ミクロンサイズの物体の回転運動を誘起していることを示す。本現象は Feringa によって報告されているものであるが、今回、新しい[6]ヘリセン型の光応答性キラル添加剤でも同様の現象を起こすことを明らかにできた。また、ミクロンサイズの物体の回転の角度も1260°と従来から報告されている中で最も大きな値となった。

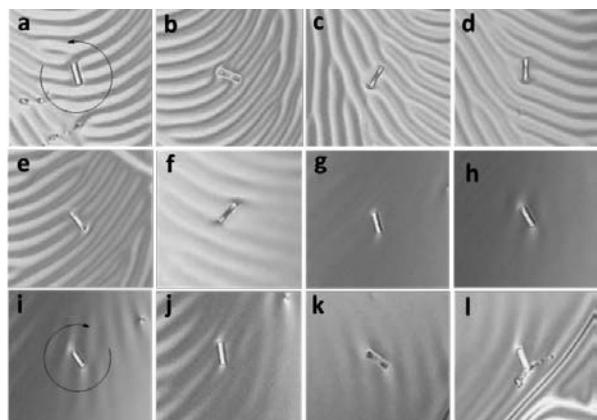


図7 一方の表界面を空気とした CF を0.2wt%含有した E7液晶薄膜の紫外線照射中におけるテクスチャーの変化。a-h は紫外線照射による変化、i-l は熱的な変化。

### 3. 今後の研究の展望

アゾベンゼンペプチドのキネシントーションモーターの運動に対する光応答性阻害機能に関しては、微小領域に選択的に1つの波長の光を、また、全体に別の波長の光を照射する光学装置と、キネシンに対して高い親和性を示しあつ可逆的光応答性に優れた阻害剤または高エネルギー化合物を組み合わせることで、添加した化合物の拡散が起こるにも関わらず、1微小管を選択して運動制御、変形、切断を光で行うこと成功した。現在は、2つの波長の光を組み合わせているが、もとの異性体の状態に高速で戻る光応答性阻害剤を開発することで、単一波長で同様な操作ができると考えられる。また、生体分子に悪影響を

与えうると考えられる紫外線ではなく可視光のみで制御できる光応答性阻害剤が望まれる。さらに、今後は、分子レベルの制御だけでなく筋繊維などのより大きなスケールの物体の運動を光で制御できるかを確認したい。

液晶用光応答性キラル添加剤に関しては、今回、ヘリセン型の非常に大きなねじり力を示す添加剤を開発し、3回転以上の一方向回転を達成した。今後は、一定の照射条件下で真に連続的な回転運動を示す光応答性液晶系を実現する予定である。

## 4. 資料

### 4.1 学術論文（査読あり）

- 1) Ammathnadu S. Amrutha, K. R. Sunil Kumar, Kazuya Matsuo and Nobuyuki Tamaoki: "Structure–property relationships of photoresponsive inhibitors of the kinesin motor", *Org. Biomol. Chem.*, 2016, 14, 7202–7210
- 2) Yoshimitsu Sagara, Christoph Weder and Nobuyuki Tamaoki: "Tuning the Thermo- and Mechanoresponsive Behavior of Luminescent Cyclophanes", *RSC Advances*, 2016, 6, 80408–80414
- 3) Reji Thomas and Nobuyuki Tamaoki: "Determination of the absolute stereostructure of a cyclic azobenzene from the crystal structure of the precursor containing a heavy element", *Beilstein J. Org. Chem.*, 2016, 12, 2211–2215
- 4) K. R. Sunil Kumar, Ammathnadu S. Amrutha and Nobuyuki Tamaoki: "Spatiotemporal control of kinesin motor protein by photoswitches enabling selective single microtubule regulations", *Lab Chip*, 2016, 16, 4702–4709
- 5) Yuna Kim, Michel Frigoli, Nicolas Vanthuyne and Nobuyuki Tamaoki: "Helical naphthopyran dopant for photoresponsive cholesteric liquid crystal", *Chem. Commun.*, 2017, 53, 200–203
- 6) Yoshimitsu Sagara, Kazuya Kubo, Takayoshi Nakamura, Nobuyuki Tamaoki and Christoph Weder: "Temperature-Dependent Mechanochromic Behavior of Mechanoresponsive Luminescent Compounds", *Chemistry of Materials*, 2017, 29, 1273–1278 (電子科学研究所 中村研究室との共著)

### 4.2 学術論文（査読なし）

該当なし

### 4.3 総説・解説・評論等

- 1) Kazuya Matsuo, Itaru Hamachi : "Ligand-Directed Tosyl and Acyl Imidazole Chemistry"、*Chemoselective and Bioorthogonal Ligation Reactions: Concepts and Applications*, Chapter 6, 147–164 (2017)

### 4.4 著書

該当なし

### 4.5 特許（発明者：特許番号、特許名、出願年月日）

### 4.6 講演

#### a. 招待講演（国際学会）

- 1) Yuna Kim: "Azobenzene-based photoswitches for microscopic molecular reorganization within the helical superstructures" ICFPAM2016, Daejeon, Korea (2016-10)
- 2) Y. Kim: "Photoresponsive Chiral Liquid Crystals for Color and Mechanical Functions", The 17th RIES-HOKUDAI International Symposium, Gateaux Kingdom Hotel, Sapporo, Japan (2016-12)

#### b. 招待講演（国内学会）

- 1) 玉置信之: "モータータンパク質の運動の時空間光制御", 日本分析化学会第65年会, 北海道大学 (2016-09)
- 2) 相良剛光: "機械的刺激および熱刺激に応答して発光色が変化するシクロファン", 第26回日本MRS年次大会, 横浜市開港記念会館(2016-12)

#### c. 一般講演（国際学会）

- 1) Yoshimitsu Sagara, Yoan C. Simon, Nobuyuki Tamaoki, Christoph Weder: "Mechano- and Thermoresponsive Luminescent Cyclophanes", HOKUDAI-NCTU Joint Symposium on Nano, Photo and Bio sciences (2016-10)
- 2) Yoshimitsu Sagara, Anna Lavrenova, Aurélien Crochet, Yoan C. Simon, Katharina M. Fromm, Christoph Weder: "A Thermo- and Mechanoresponsive Cyano-Substituted Oligo(p-phenylene vinylene)Derivative with Five Emissive States", HOKUDAI-NCTU Joint Symposium on Nano, Photo and Bio sciences (2016-10)
- 3) Yoshimitsu Sagara, Anna Lavrenova, Aurélien Crochet, Yoan C. Simon, Katharina M. Fromm, Christoph Weder: "A Thermo- and Mechanoresponsive Cyano-Substituted Oligo(p-phenylene vinylene)Derivative with Five Emissive States", The 17th RIES-Hokudai International Symposium (2016-12)

#### d. 一般講演（国内学会）

- 1) 相良剛光: "水中で機械的刺激を受けて発光色が変化するミセル状分子集合体の開発", 第35回 固体・表面光化学討論会 (2016-11)
- 2) 松尾和哉、玉置信之: "可逆的に光制御できるキネシン阻害剤の開発とその応用", 日本化学会第97春季年会 (2017), 慶應義塾大学 日吉キャンパス (2017-03)
- 3) 芦野史弥、松尾和哉、玉置信之: "新規アゾベンゼン三リン酸によるキネシンの駆動と in vitro 光制御", 日本化学会第97春季年会 (2017), 慶應義塾大学 日吉キャンパス (2017-03)

- 吉キャンパス (2017-03)
- 4) 相良 剛光、玉置 信之：“ヘテロ型シクロファンが示す過冷却ネマチック相とその外部刺激応答発光特性”，日本化学会 第 97 春季年会 (2017), 慶應義塾大学 日吉キャンパス(2017-03)
  - 5) Y. Kim, M. Frigoli, N. Vanthuyne and N. Tamaoki: “A helical naphthopyran dopant for photoresponsive cho-lesteric liquid crystals” 日本化学会第 97 回春季年会(2017), 慶應義塾大学 日吉キャンパス(2017-03)
- e. 研究会・シンポジウム・ワークショップなど（学会以外）
- 1) Kazuya Matsuo, Ammathnadu S. Amrutha, K. R. Sunil Kumar and Nobuyuki Tamaoki : Structure-Activity Relationship of Photo-chromic Inhibitors for Kinesin-1, HOKUDAI-NCTU Joint Symposium on Nano, Photo and Bio Sciences in 2016, Hokkaido Univ. (2016-10)
  - 2) 相良 剛光: “柔らかなシクロファンを用いた機械的刺激応答性発光材料の開発”，新学術領域「柔らかな分子系」第四回公開シンポジウム(2016-10)
  - 3) Y. Kim and N. Tamaoki: “Photoisomerizable chiral azo-benzene dopants for macroscopic control of helical superstructure in cholesteric liquid crystals”, HOKUDAI-NCTU International Joint Symposium on Nano, Photo and Bio Sciences, Hokkaido Univ. (2016-10)
  - 4) K. R. Sunil Kumar, Ammathnadu S. Amrutha and Nobuyuki Tamaoki: “Spatiotemporal regulation of kinesin-driven microtubules by photo-switchable agents”, HOKUDAI-NCTU International Joint Symposium on Nano, Photo and Bio Sciences, Hokkaido Univ. (2016-10)
  - 5) Halley M Menezes, Nobuyuki Tamaoki: “Photoregulation of Actin-Myosin motile System at Molecular and Macrosopic level by Photoresponsive Non-nucleoside Triphosphates.”, HOKUDAI-NCTU International Joint Symposium on Nano, Photo and Bio Sciences, Hokkaido Univ. (2016-10)
  - 6) Md. Jahirul Islam and Nobuyuki Tamaoki: “Photoresponsive Azo-triphosphate Molecules As Competitive Inhibitors for Kinesin and Myosin Motors”, HOKUDAI-NCTU International Joint Symposium on Nano, Photo and Bio Sciences , Hokkaido Univ.(2016-10)
  - 7) 松尾和哉、玉置信之：“モータータンパク質キネシンの光制御型阻害剤における構造活性相関”，第 4 回アライアンス若手研究交流会，北海道大学 (2016-11)
  - 8) Md. Jahirul Islam and Nobuyuki Tamaoki: “Photo-responsive Azo-triphosphate Molecules As Competitive Inhibitors for Kinesin and Myosin Motors”, 4th International Life-Science Symposium (2016-11)
  - 9) Kazuya Matsuo and Nobuyuki Tamaoki : Rational Design of Potent Photoreversible Kinesin-1 Inhibitors, The 17th RIES-Hokudai International Symposium, Châ-teraisé Gateaux Kingdom Sapporo (2016-12)
- Gateaux Kingdom Sapporo (2016-12)
- 1 0) Halley M Menezes, Nobuyuki Tamaoki: “Photoregulation of Actin-Myosin motile System at Molecular and Macrosopic level by Photo-responsive Non-nucleoside Triphosphates.” The 17th RIES-Hokudai International Symposium, Châ-teraisé Gateaux Kingdom Sapporo (2016-12)
  - 1 1) Md. Jahirul Islam and Nobuyuki Tamaoki: “Photo-responsive Azo-triphosphate Molecules As Competitive Inhibitor for Kinesin and Myosin Motors”, The 17th RIES-Hokudai International Symposium, Châ-teraisé Gateaux Kingdom Sapporo (2016-12)
  - 1 2) 相良剛光: “機械的刺激で分子集合体の発光色をコントロールする”，新学術領域研究「柔らかな分子系」第 20 回ワークショップ, (2017-01)
- #### 4.7 シンポジウムの開催
- 1) HOKUDAI-NCTU International Joint Symposium on Nano, Photo and Bio Sciences (2016-10)
- #### 4.8 共同研究
- a. 所内共同研究
    - 1) 相良 剛光: ナノセンブリ材料研究分野の久保和也助教と機械的刺激応答性発光材料に関する共同研究を密接に行った。
  - b. 民間等との共同研究
    - 該当なし
  - c. 委託研究
    - 該当なし
  - d. 國際共同研究
    - 1) 相良 剛光: スイスの Adolph Merkle Institute の Christoph Weder 教授と機械的刺激応答性発光材料に関する共同研究を密接に行った。
- #### 4.9 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) 松尾和哉、若手研究 B、「キネシンの細胞内物質輸送における分子機構の解明を目指した化学修飾法の開発」、2016～2017 年度
    - 2) 相良剛光、若手研究 B (代表)、「水溶性の機械的刺激応答性発光材料の機能拡張と生体応用」、2016～2017 年度
    - 3) 相良剛光、新学術領域研究「柔らかな分子系」・公募班 (代表)、「柔らかなシクロファンを用いた機械的刺激応答性発光材料の開発」、2016～2017 年度
    - 4) Yuna Kim, 若手研究 B、「光・電場に応答する新規イオン性コレステリック液晶材料の創製」、2016～2017 年度
  - b. 大型プロジェクト・受託研究
    - 1) 相良剛光、旭硝子財團 (代表)、「機械的刺激に応じて

- 発光特性が変化するインターロック分子の開発」、  
2016～2017 年度
- 2) 相良剛光、野口遵研究助成金（代表）、「微小な力を検知する水溶性メカノプローブの開発と生体材料への応用展開」、2016 年度
- 3) 相良剛光、池谷科学技術振興財団（代表）、「ヘテロ型シクロファンを用いた機械的刺激応答性発光材料の開拓」、2016 年度

#### 4.10 受賞

該当なし

#### 4.11 社会教育活動

##### a. 公的機関の委員

該当なし

##### b. 国内外の学会の役職

該当なし

##### c. 兼任・兼業

該当なし

##### d. 外国人研究者の招聘

- 1) Thorakkattil Neerankuzhiyil Mohammed Musthafa, India,  
(2016 年 4 月～2016 年 12 月)

##### e. 北大での担当授業科目（対象、講義名、担当者、期間）

- 1) 理学部、生物系の熱力学、玉置信之、2016 年 4 月 7  
日～2016 年 6 月 9 日
- 2) 生命科学院、生命物質科学特論（分子組織科学）、玉  
置信之、2016 年 7 月 10 日～2016 年 8 月 7 日
- 3) 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、2016 年 5 月 25 日
- 4) 全学教育、化学 II、玉置信之、2016 年 9 月 30 日～2017  
年 2 月 3 日
- 5) 全学教育、一般教育演習（フレッシュマンセミナー）  
「数理から生物を巡る旅～最先端研究から観えるも  
の～」、松尾和哉、2016 年 4 月 1 日～9 月 30 日
- 6) 全学教育、一般教育演習（フレッシュマンセミナー）  
「物質創成のフロンティア-革新的電子・バイオ・發  
光材料開発-」、相良剛光、2016 年 4 月 1 日～9 月 30  
日
- 7) 大学院共通, Communicating Your Research, Yuna Kim,  
2016 年 4 月～9 月
- 8) 大学院共通（集中講義）, ナノテクノロジー・ナノサイ  
エンス概論 I, ナノバイオシステム論, Bio-inspired  
materials chemistry, Yuna Kim, 2016 年 8 月 3 日
- 9) 大学院共通（集中講義）, ナノテクノロジー・ナノサイ  
エンス概論 II, 液晶とナノテクノロジー, Yuna Kim,  
2016 年 11 月 18 日

##### f. 北大以外での非常勤講師（対象、講義名、担当者、期 間）

該当なし

##### g. 新聞・テレビ等の報道

該当なし

##### h. ポスドク・客員研究員など

・ポスドク（1 名）

- 1) Kanthyappa Rajanna Sunilkumar

##### i. 修士学位及び博士学位の取得状況

修士学位（0）

博士学位（1 名）：

- 1) Amrutha A S : Structure–Property Relationship Studies of  
the Photoresponsive Inhibitors of Kinesin–Microtubule  
Motor System

## 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～）  
学生 伊藤 蓮(B4)

### 1. 研究目標

視点をアトム(Atom)・ビット(Bit)・エネルギー(Energy)/環境(Environment)空間 [ABE<sup>2</sup>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。具体的には、新規な太陽電池システムの物理学、トップダウンとボトムアップをつなぐプラットフォームとしてのクリーン系、およびグリーンテクノロジーとしてのスピントロニクスへの物性理論を用いた基礎物理の解明を目標としている。

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・ナノサイエンス及びスピントロ分野で得られる新しい効果や機能を既存のSiベースのITインフラ構造と接続し相乗効果を引出しつつナノとマクロを結合することは重要である。従来の「ボトムアップとトップダウンの統合」が両者の“いいとこ取り”で、長所を各々活かしてナノ構造を作るというもの（積集合）であったのと異なり、我々は両者の相互乗り入れを可能とする（接続・統合による和集合）の観点から取組んでいる。両者の構成原理が大きく異なるため、勿論容易ではないが、もしトップダウン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製に向け、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することは極めて重要にも係らず、未だ実現されていない。

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

### Atom-Bit-Energy・Environment(ABE<sup>2</sup>)空間での次世代デバイス・システム創出の試み

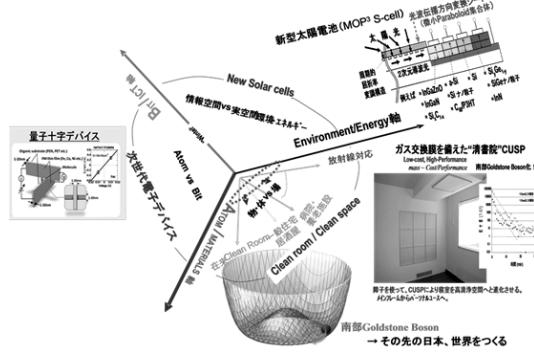


図1. ABE<sup>2</sup>空間における展開

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

(a1) 新型光電変換システム

非対称導波路を用いて、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(MOP<sup>3</sup>SC)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、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。この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高効率の光電変換デバイスシステムの実現を目指して、高効率太陽光発電システムの第一層目となる、光進行方向変換層の検討を行った。

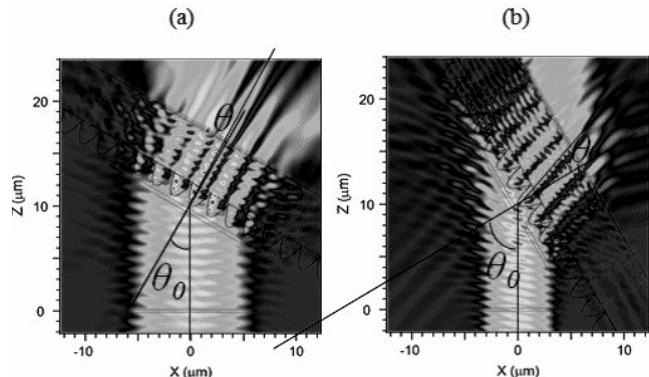


図2. 光進行方向変換層のシミュレーション結果。a)は  $\theta_0=30.0$  度、波長  $2.00\mu\text{m}$  の時の導波、b)  $\theta_0=60.0$  度、波長  $1.50\mu\text{m}$  の時の導波の様子。

厚さ  $5.0\text{ }\mu\text{m}$  の 2 次元スラブの光入射面側に幅  $w$ 、高さ  $h$  の 2 次元放物線状構造を取り付けて計算を行った。導波路の材料については透明樹脂を想定し、2 次元でのシミュレーションでは、 $y$  上記構造断面に垂直方向には併進対称性を仮定した。入射角  $\theta_0$  を 0 度～80 度の 10 度刻みで光を入射させた。入射光は平面波に設定し、波長  $0.50\text{ }\mu\text{m}$ 、 $1.00\text{ }\mu\text{m}$ 、 $1.50\text{ }\mu\text{m}$ 、 $2.00\text{ }\mu\text{m}$  の 4 種類の波長の光を入射させ、反射率と実効屈折角  $\theta$  を調べた。図 2 に  $w=h=2.00\text{ }\mu\text{m}$  の時の光進行方向変の様子を示す。構造を適宜設定することで、実効屈折角が  $\sim 0$  (2 次元スラブ構造の法線方向に進行) となるようコントロールできることが示唆された。

#### (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クリーンユニットシステムプラットフォーム (CUSP) を開発している。できるだけ既存のフレームワークを維持しつつ、居住性能向上を実現することを目指した。図 3 に、ダイキン社製の空調機を天井部に設え、新作のガス交換ユニットを備えた CUSP動作時の清浄度を示す。と全体図を示す。 $0.5\text{ }\mu\text{m}$  以上の粒子数総和は、動作開始直後は 1 立方フィート当たり 0 万個程度を示すが、スイッチオンの後、わずか数分で急減少し、クラス 100 近傍にて定常状態に達する。このガス交換ユニットを備えた CUSP システムにより、通常の部屋や教室を、US 209D クラス 100 級の清浄空間 (病院の無塵室・手術室相当の清浄度) にグレードアップすることができる。単に半導体デバイスプロセス環境としてのみならず、様々な局面で生活水準の向上、健康維持に役立つと期待される。このガス交換ユニットを備えた CUSP システムにより、通常の部屋や教室を、US 209D クラス 100 級の清浄空間 (病院の無塵室・手術室相当の清浄度) にグレードアップすることができる。環境対応力が相対的に少ない人々、高感受性の方々への福音となる。学習塾や学校の教室にも適用可能で、様々な局面で生活水準の向上に寄与すると思われる。

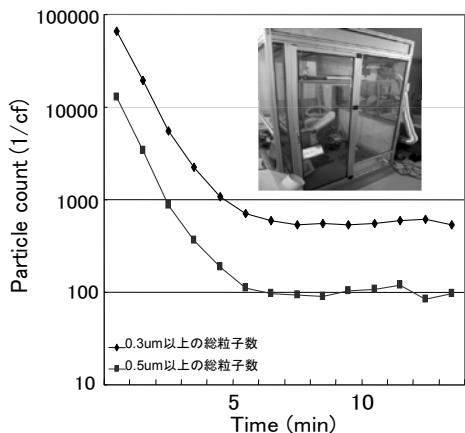


図 3. ガス交換ユニットを備えた CUSP の清浄度を時間の関数として示す。内装図は、ガス交換ユニットを備えた本 CUSP システムの写真。

(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ルデバイスの提案ならびにスピンドル軌道相互作用の非可換ゲージ場の侧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。

$\text{Bi}_2\text{Te}_3$  のようなテトラジマイトカルコゲナイトの表面の Dirac コーンは、ホスト物質の表面の点群対称性を反映して、ヘキサゴナルに歪むことが実験的に 2009 年に発見された。その直後、Fu が  $k \cdot p$  摂動を使って、この現象を説明したが、彼は 3 次までの摂動しか考えなかったが、それは我々の研究で不十分であることが判明した。彼の結果は、定性的にも大事なことが抜け落ちていることがわかった。我々は、任意の点群対称性のもとで、時間反転対称性を有するハミルトニアンを組織的に構成する方法を編み出した。数学の不变式論を援用すると、 $C_{3v}$  対称性と時間反転対称性を有する 2 準位系のハミルトニアンは、以下のように一般  $H_{\text{sym}}(\mathbf{k}) = if_1(u, v)(k_+ \sigma_- - k_- \sigma_+) + f_2(u, v)(k_+^3 + k_-^3)\sigma_z + if_3(u, v)(k_+^3 \sigma_+ - k_-^3 \sigma_-)$ , where  $u = k_+ k_-, v = k_+^6 + k_-^6, f_1, f_2, f_3 \in C^\infty$  的に書ける。ここで、 $k_\pm = kx \pm iky, \sigma_\pm = \sigma_x \pm i\sigma_y$  で、 $f_1, f_2$  と  $f_3$  は実数値を取る  $C^\infty$  級関数である。このハミルトニアンは  $C_{3v}$  対称性と時間反転対称性を満たす任意次数のハミルトニアンである。我々は、これによって、任意に近似の次数を上げていくことが出来る。

Fu の結果を改善するために、5 次と 7 次のハミルトニアンを考える。時間反転対称性から、奇数次しか許されない。図 4(a),(b),(c) は、それぞれ 3 次、5 次そして 7 次のハミルトニアンによる Dirac-Cone の歪みの計算で、図 4(f) の実験結果と比較すると 5 次と 7 次の方が定性的にも実験結果を上手く説明出来ている。図 4(d),(e) は 3 次と 7 次そして 5 次と 7 次のエネルギー差を示している。

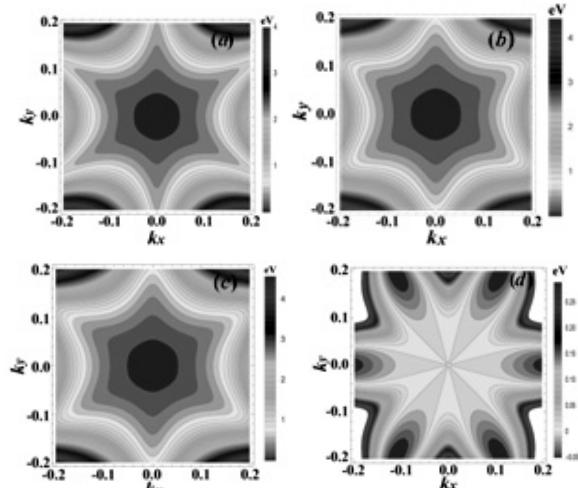


図 4: The calculated hexagonal warping energy of (a) using the 3<sup>rd</sup> order, (b) using the 5<sup>th</sup> order, and (c) the 7<sup>th</sup> order Hamiltonian. (d) The difference of energy between 3<sup>rd</sup> and 7<sup>th</sup> order.

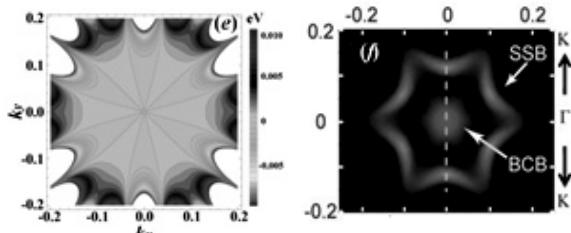


図4: (e) The difference of energy between 5<sup>th</sup> and 7<sup>th</sup> order. (f) Experimental results of the hexagonal warping.

図5(a)はスピンの $z$ 成分の運動量空間での分布を7次のハミルトニアンで計算した結果である。図5(b)はスピンの $z$ 成分の運動量空間での分布の3次と7次との差である。3次でもスピンが立ち上がることは記述出来ているが、2割程度のずれがあることがわかる。一方、3次では見られない効果として、スピンと運動量とのなす角度が、3次では図5(c)のように90°であるが、次数を上げると図5(d)のように90度から大きくずれることが判明した。

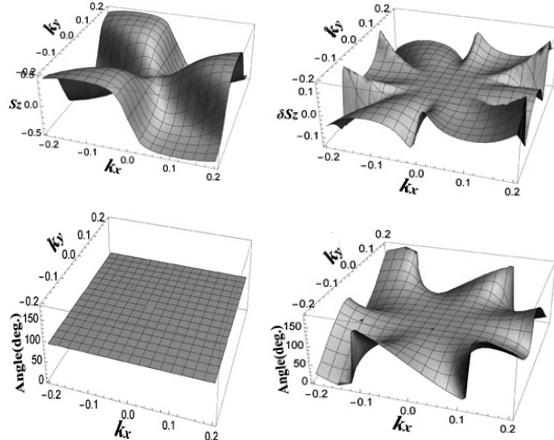


図5: (a) The distribution of  $S_z$  of electron spin up to 7<sup>th</sup> order and (b) the difference of  $S_z$  of electron spin between 7<sup>th</sup> order and 3<sup>rd</sup> order perturbation. The angle between momentum and spin under (c) 3<sup>rd</sup> order and (d) 7<sup>th</sup> order perturbation.

### 3. 今後の研究の展望

トップダウン系とボトムアップ系の接続・統合をGenerating functionとして、デバイスベース並びにプラットフォームベースのアプローチを進めていく。フォトンの進行方向とフォトキャリアの移動方向が直交した、マルチストライプ構造を有する新しい光電変換デバイスの実現を念頭に、太陽光（黒体輻射）の吸収とフォトキャリアの収集効率の最適化を両立可能とし、全太陽光スペクトルに亘って光電変換を実行することを目指す。従来の入射モードでは、光吸収量に支配されて変換効率が決まる活性層厚みの小さい領域でも、端面入射配置では高い変換効率が得られる。移動度の高い無機半導体材料を用いることで、電極間隔を広げることが可能となり、より高効率の光電変換素子を実現することができる。これを更に、導波路と結合したフォトン・フォトキャリア直交型マルチストライプ半導体太陽電池と進化させる。即ち、太陽光の伝播方向を変換する仕

組みであるリディレクション導波路の端に、エッジ入射型の太陽電池を配置する。空間伝播する太陽光を、周期的屈折率変調構造により平面導波光に変換し、この光を導波路の端に設けた複数のバンドギャップを持つマルチストライプ半導体pn接合面に沿って導くことで、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電子スペクトル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 [ABE<sup>2</sup>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”的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（査読あり）

- 1) \*A. Ishibashi, H. Kobayashi, T. Taniguchi, K. Kondo and T. Kasai : “Optical simulation for multi-striped orthogonal photon–photocarrier–propagation solar cell (MOP3SC) with redirection waveguide”, 3D Res. 7 : 33 (2016) DOI :10.1007/s13319-016-0109-4
- 2) \*A. Ishibashi, S. White, N. Kawaguchi, K. Kondo and T. Kasai, “Edge–Illumination Scheme for Multi-striped Orthogonal Photon–Photocarrier– Propagation Solar Cells”, Int. J. Eng. Tech. Res. 6(1) 115–117 (2016)

- 3) \*A. Ishibashi, M. Yasutake, N. Noguchi, T. Etoh, J. Matsuda, K. Nakaya, T. Ohsawa, Y. Satoh, N. Ohata, M. D. Rahaman, J. Alda and Y. Ohashi, "Clean Unit System Platform (CUSP) for various frontier experiments and applications", Int. J. Eng. Tech. Res. 6(3) 31–35 (2016)
- 4) \*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 3(4) : 77–83 (2016)
- 5) A. Ishibashi, "An approach for uniting bottom-up and top-down systems and its applications", Int. J. Eng. Res. Sci. 2(9) 103–114 (2016)
- 6) \* H. Teramoto, K. Kondo, S. Izumiya, M. Toda, and T. Komatsuzaki, "Classification of Hamiltonians in neighborhoods of band crossings in terms of the theory of singularities", Journal of Mathematical Physics (to be published) (2017).
- 7) K. Kondo: "A Derivation of Aharonov-Casher Phase and Another Adiabatic Approximation for Pure Gauge under General Rashba Effects", SPIN, Vol. 6, No. 2 1640006 (2016).
- 8) 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).
- 9) Z. Lin, K. Kondo, M. Yamamoto, and T. Uemura: "Transient analysis of oblique Hanle signals observed in GaAs", Jpn. J. Appl. Phys., Vol.55, 04EN03 (2016).

#### 4.2 学術論文（査読なし）

該当なし

#### 4.3 総説・解説・評論等

該当なし

#### 4.4 著書

該当なし

#### 4.5 特許（発明者：特許番号、特許名、出願年月日）

##### ・国内特許

- 1) 石橋 晃 : 特願2016-207521、建築物およびその製造方法、2016年10月24日
- 2) 石橋 晃 : PCT/JP2016/079575、光導波装置、光電変換装置、建築物、電子機器及び発光装置、2016年10月5日
- 3) A. Ishibashi and M. Yasutake: 11201604190R (Singapore), System and method using information of involuntary body movement during sleep, and sleeping state detection system and method, 2016年05月25日
- 4) 石橋 晃 : 特願 2016-093543、高清淨環境システム、2016年05月09日
- 5) A. Ishibashi and M. Yasutake: US15/032,749, System and method using information of involuntary body movement

during sleep, and sleeping state detection system and method, 2016年04月28日

#### 4.6 講演

##### a. 招待講演（国際学会）

- 1) A. Ishibashi\*, "Multi-striped Orthogonal Photon-Photo-carrier-Propagation Solar Cells (MOP3SC) with Redirection Waveguide", 2016 Collaborative Conference on 3D and Materials Research (CC3DMR), Seoul/Inchon, Korea (2016-06)

##### b. 招待講演（国内学会）

- 1) 石橋 晃\* : 「高清淨環境CUSP(クリーンユニットシステム プラットフォーム)」、北大北キャンパス・ビジネスネットワーク拡大プロジェクト2016、札幌 (2016-09)

##### c. 一般講演（国際学会）

- 1) A. Ishibashi\*, "New high-efficiency solar cells and clean unit system platform (CUSP) in "at-on-bit-energy/environment" space", HOKUDAI-NCTU International Joint Symposium, Sapporo (2016-10)
- 2) M. Yasutake\* and A. Ishibashi: "Application of Clean Unit System Platform (CUSP) for sleep diagnostics: evaluation of sleep quality by monitoring air-borne particles in an ultraclean space ", The 23rd Congress of European Sleep Research Society, Bologna, Italy (2016-09)
- 3) R. Itoh\* and K. Kondo," A Revisit of Quantum Spin Hall Effect in Graphene", The 17th RIES-HOKUDAI INTERNATIONAL SYMPOSIUM on 柔, Sapporo, Japan December 13– December 14 (2016)
- 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.
- 5) K. Kondo\* and H. Teramoto," A Warping Effect of Dirac Cone by the Perturbation up to 5th Order under the Symmetry of C3v", The 61st Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, New Orleans, USA October 31– November 04 (2016). .

##### d. 一般講演（国内学会）

- 1) 石橋 晃\*、『非対称導波路結合フォトン・フォトキャリア直交型太陽電池』、平成 28 年度物質・デバイス領域共同研究拠点事業：平成 28 年度科学研究費助成事業『次世代デバイス・システムの展望～高効率太陽電池並びに清浄環境の新展開』研究会（電子研学会講演会）、北海道大学 (2016-07)
- 2) 石橋 晃\*、澤村 信雄、近藤 憲治、河西 剛 : 「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用周期配列放物線鏡の作

- 製」、日本応用物理学会 2017年春季大会、パシフィコ横浜 (2017-03)
- 3) 大橋 美久、松田 順治、青池 淳司、石橋 晃\*: 「トレーニング・フィットネスに向けた高清淨環境C U S P (クリーンユニットシステムプラットフォーム)」、平成 28 年度北海道トライアル新商品展示会、北海道庁 (2017-01)
  - 4) 石橋 晃\*、原 史朗、大橋 美久、松田 順治、江藤 月生、野口 伸守 : 「クリーンユニットシステムプラットフォーム (CUSP)のミニマルファブ応用可能性」、ミニマルファブエグゼクティブフェア、電気ビル共創館 (福岡市中央区) (2016-11)
  - 5) 松田 順治\*、大橋 美久、石橋 晃 : 「高清淨環境C U S P (クリーンユニットシステムプラットフォーム)」、The 41st International Healthcare Engineering Exhibition HOSPEX Japan 2016、東京ビッグサイト (2016-10)
  - 6) 石橋 晃\*、河西 剛、澤村 信雄、野口 伸守、江藤 月生、松田 順治、大橋 美久 : 「ミニマルファブと新型太陽電池、高機能清淨環境 CUSP のシナジー」、平成 28 年度ファブ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) (2016-09)
  - 7) 安武 正弘\*、石橋 晃 : 「Clean Unit System Platform (CUSP)を用いた清淨環境下塵埃微粒子モニタリングによる睡眠情報検知の試み」、日本睡眠学会第 41 回定期学術集会、京王プラザホテル (東京都) (2016-07)
  - 8) 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」、PV Japan 2016、Yokohama (2016-06 ~ 2016-07)
  - 9) 石橋 晃\*、安武 正弘、松田 順治、大橋 美久 : 「フォトンフォトキャリア直交型太陽電池プロセスプラットフォーム及び民生用清淨環境としての Clean UnitSystem Platform (CUSP)の発展」、PV Japan 2016、Yokohama (2016-06 ~ 2016-07)
  - 10) 野口 伸守\*、石橋 晃 : 「ビル・マンション・一般住宅に組み込む画期的なCUSP高清淨環境」、S A G A 建設技術フェア 2016、マリトピア、佐賀市 (2016-06)
  - 11) 石橋 晃\*、河西 剛、近藤 憲治、澤村 信雄 : 「ミニマルファブで作製を想定する 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」、平成 28 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) (2016-04)
  - 12) 石橋 晃\*、野口 伸守、江藤 月生、松田 順治、大橋 美久 : 「ミニマルファブシステム設置環境としての クリーンユニットシステムプラットフォーム (CUSP) 組込み建築物の検討」、平成 28 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) (2016-04)
  - 13) 近藤憲治\*、寺本 央, “デイラックコーンのヘキサゴナルワーピングに対する任意次元のハミルトニアンの導出”, 第 21 回 半導体におけるスピニ工学の基礎と応用 PASPS-2, 北海道大学学術交流会館, 12/12-12/13 (2016).
  - 14) 伊藤 蓮\*、近藤 憲治, “グラフェンナノリボンと量子スピンドホール相”, 第 64 回応用物理学会春季学術講演会, 3/14-3/17, パシフィコ横浜(神奈川県横浜市).
  - 15) 近藤 憲治\*、寺本 央, “C\_3v\_対称性の下での5次摂動によるDirac Coneのワーピング”、2016年日本物理学会秋季大会、金沢大学 角間キャンパス、09/13-09/16 (2016).
- 16) 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”、2016年応用物理学会 2016年春季大会、東京工業大学大岡山キャンパス、03/19-03/22 (2016).
- e. 研究会・シンポジウム・ワークショップなど（学会以外）**
- 1) 石橋 晃\*、“高清淨環境C U S P 技術の早期社会浸透に向けた要素技術”、平成 28 年度物質・デバイス領域共同研究拠点事業：平成 28 年度科学研究費助成事業『次世代デバイス・システムの展望～高効率太陽電池並びに清淨環境の新展開』研究会(電子研学術講演会)、北海道大学 (2016-07)
- 4.7 シンポジウムの開催**  
該当なし
- 4.8 共同研究**
- a. 所内共同研究  
該当なし
- b. 民間等との共同研究
- 1) 石橋 晃 (飛栄建設株式会社共同研究) : 「CUSP清淨環境の高度化及びIOT展開の検討」、2016年度
  - 2) 石橋 晃 (H28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 と清淨環境C U S P 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
  - 3) 石橋 晃 (H28年度物質・デバイス領域共同研究拠点共同研究) : 「睡眠障害診断への高清淨度環境技術CUSPの応用」研究代表者日本医科大学 安武正弘
  - 4) 石橋 晃 (H28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 帝人デュポンフィルム㈱ 研究所長 久保耕司
  - 5) 石橋 晃 (H28年度物質・デバイス領域共同研究拠点共同研究) : 「清淨環境 CUSPの展開の検討」研究代表者 飛栄建設株式会社 松田順治
- c. 委託研究  
該当なし
- d. 國際共同研究  
該当なし
- 4.9 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) 研究代表者 : 石橋 晃、基盤研究 (B) 一般、16H04221 「非対称導波路結合光子・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」、2016～2018年度
- 2) 研究代表者：石橋 晃、挑戦的萌芽研究、「新清浄環境(CUSP)を用いた安否確認・睡眠分析(KSG) ビッグデータの研究」、2016～2017年度
  - 3) 研究代表者：**近藤憲治** 科学研究費助成事業（基盤研究（C））4,810千円：「スピントロニクスデバイス理論研究領域」に基づく研究とスピントロニクスへの応用」
  - 4) 研究代表者：笹倉 弘理、研究分担者：**近藤憲治** 科学研究費助成事業（基盤研究（B））18,980千円：「量子ドット内蔵光ファイバーを用いた光子を介する遠隔電子スピントロニクス」
  - 5) 研究代表者：植村 哲也、研究分担者：**近藤憲治** 科学研究費助成事業（挑戦的萌芽研究）3,900千円：「核電気共鳴を用いた全電気的核スピントロニクス制御法の確立」

#### b. 大型プロジェクト・受託研究

- 1) 石橋 晃（日産自動車株式会社共同研究）：「単色光源（赤外線あるいは近赤外光）利用の光給電システムの高効率化に関する共同研究」2016年度
- 2) 近藤憲治（Center for Spintronics Research Network(CSRN), Tohoku University）（スピントロニクスデバイス理論研究領域）：「トポロジカルな性質を持つ物質とその応用の研究」2016年度～現在。

URL: <http://www.csrn.tohoku.ac.jp/jp/research/>

#### 4.10 受賞

- 1) 石橋 晃：平成28年度北海道地方発明表彰 北海道知事賞 「高清浄部屋システムならびに建築物（特許第5329720号）」2016年10月

#### 4.11 社会教育活動

##### a. 公的機関の委員

- 1) 独立行政法人日本学術振興会科学研究費委員会専門委員（審査委員）

##### b. 国内外の学会の役職

- 1) 石橋 晃：産総研コンソーシアム ファブリックシステム研究会委員(2010-03-2017-03)
- 2) 石橋 晃：光給電検討委員会委員(2016-04-2017-03)
- 3) Kenji Kondo: Editorial Board Member for Scientific Reports (published by Nature Publishing Group) (2014-06- present)
- 4) 近藤 憲治: 第21回 半導体におけるスピントロニクスの基礎と応用 PASPS-21世話人及び座長(2016-12)

##### c. 兼任・兼業

- 1) 石橋晃: 産業技術総合研究所 客員研究員 (2010.02 - 2017.03)
- 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) (2007-04-2017-05)

##### d. 外国人研究者の招聘

該当なし

##### e. 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 II 石橋 晃、2016年10月1日～2017年3月31日
- 2) 理学院: 現代物理学(分担)、石橋 晃、2016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、2016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、2016年4月1日～2016年9月30日
- 5) 理学部、物理外国語文献講読II、近藤憲治、2016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、2016年4月1日～2017年3月31日
- 7) 理学院、物理学論文輪講、近藤憲治、2016年4月1日～2017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、2016年10月1日～2017年3月31日

##### f. 北大以外での非常勤講師（対象、講義名、担当者、期間）

該当なし

##### g. 新聞・テレビ等の報道

###### 新聞

- 1) 石橋 晃：日刊工業新聞 2016年09月26日 「新型高清浄度システム クリーンユニットシステムプラットフォームCUSP」
- 2) 松田 順治、石橋 晃 : SankeiBiz 2016年10月13日 「【北海道発 輝く】飛栄建設 高清浄部屋システム 化学物質過敏症に効果」
- 3) 石橋 晃、松田 順治 : 北海道大学産学・地域協働推進機構 機構長対談 2017年01月12日 「高性能なクリーン環境を形成～新しい閉鎖系清浄環境を住環境にも導入」

###### テレビ

- 1) 石橋 晃、松田 順治 : 北海道放送 (HBC) 2017年03月06日 「「どこでもクリーンルーム」の紹介。15:44-19:00放映。」

##### h. ポスドク・客員研究員など

該当なし

##### i. 修士学位及び博士学位の取得状況

修士学位（0人）

博士学位（0人）

○卒論指導（近藤憲治）

- 1) 伊藤 蓮：「グラフェンナノリボンにおける量子スピンホール効果」

○修士論文副査（近藤憲治）

- 1) 寺山 拓：「超流動量子渦の構造と1粒子励起」
- 2) 木村 卓：「Kitaev梯子模型に観る分数励起」
- 3) 千葉 大祐：「擬一次元有機導体(TMTTF)2Xにおける非線形電気伝導」
- 4) 河野 航：「Abrikosov格子状態におけるHall効果の微視的研究」

○博士論文副査（近藤憲治）

- 1) 植木 輝：「Microscopic Theory of the Flux-Flow Hall Effect in Type-II Superconductors」

## 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、2013.4～2016.3）  
ポスドク Anup Sanchela (IIT Bombay, Ph.D, 2016.7～)  
事務補助員 吉田恵美 (2015.10～2016.9)  
春日さと子 (2016.10～)  
博士課程 張 雨橋（情報科学研究科）  
修士課程 小野里尚記、坂上朗康、鈴木雄喜、魏冕（情報科学研究科）  
学部学生 神代直尚、横井直樹、小山田達郎、佐藤達典、島田巡、根津有希央、佐藤壮、佐藤晃一、小澤良輔、善正晴紀（工学部情報エレクトロニクス学科）

### 1. 研究目標

従来セラミックスとして扱われてきた機能性酸化物を素材として、原子レベルで平坦な表面を有する高品質薄膜を作製し、機能性酸化物の持つ真のポテンシャルを最大限引き出し、世の中で役に立つデバイスの開発を目指している。具体的には、「熱電変換材料」、「光・電気・磁気記憶デバイス」、「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) 热電変換材料の開発

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↔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た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た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。

#### (b) 光・電気・磁気記憶デバイスの開発

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  $\text{WO}_3$  は、そのままでは可視光に対して透明な絶縁体だが、電気化学反応を利用してプロトン化する ( $\text{H}_x\text{WO}_3$ ) 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

て酸化すると、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  $\text{SrCoO}_3$  に変化し、電気が良く流れ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、 $\text{H}^+$  イオン（プロトン）は強力な還元剤、 $\text{OH}^-$  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。

#### (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、三端子磁気トンネル接合(MTJ)が注目されている。この三端子MTJの動作では、電気的な磁化方向の検出と制御が必要である。高スピンドル極率のハーフメタルを三端子MTJに適用することにより、電気的な磁化方向検出の高感度化が期待されるが、ハーフメタルにおいては電気的な磁化方向制御に関する研究は少なく、ハーフメタルのスピントロニクス応用の可能性を調べるうえでも、さらなる研究が必要である。そこで酸化物ハーフメタルをベースとする機能性酸化物において、電気的な磁化方向制御手法として期待されているスピンドル軌道相互作用に基づく電流誘起有効磁場と電流誘起磁壁移動に関する研究を行っている。

#### (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は不可欠だが、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) 热電変換材料の開発

##### 半導体ヘテロ界面に蓄積される二次元電子ガスの熱電能電界変調

金属や半導体の熱電能 (=Seebeck 係数、 $S$  値) は、熱電変換材料の性能を決めるために必要であるとともに、試料の電子状態を反映する極めて有用な物理量である。 $S$  値の物理的な意味は、「フェルミ準位における電子状態密度のエネ

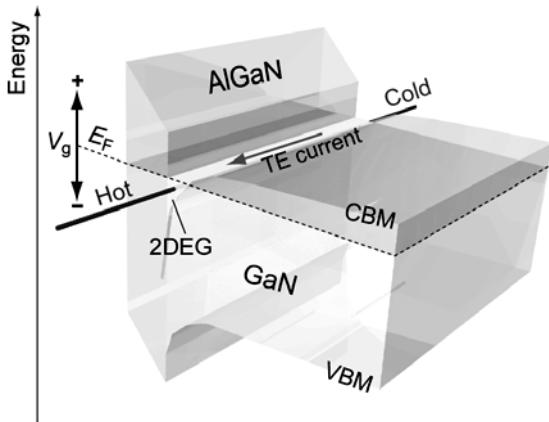


図1 MOSHEMT構造を利用したAlGaN/GaNヘテロ界面2DEGの熱電特性計測の概念図。2DEG濃度をゲート変調しながら、2DEGに温度差を付与して、熱電能を計測する。

ルギー微分」であり、そのため  $S$  値は電子状態の変化に敏感で、例えば、低次元電子ガスの  $S$  値はバルクとは全く異なるキャリア濃度依存性を示す。太田らは、2005年頃から  $\text{SrTiO}_3$  の  $S$  値に着目した網羅的な研究を行い、人工超格子や電界効果トランジスタ構造を利用した二次元電子ガス(2DEG)のユニークな  $S$  値を報告した。最近、ローム(株)のグループから AlGaN/GaN ヘテロ界面に誘起された 2DEG の興味深い  $S$  値が観測されたことから、将来  $S$  値の計測が AlGaN/GaN-高移動度トランジスタ(HEMT)の研究に役立つかもしれませんと考えた。本研究では、AlGaN/GaN-MOSHEMT の 2DEG 熱電能電界変調を試みた(図1)。半絶縁性 SiC 単結晶基板上に Ni/Au/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(30 nm) / Al<sub>0.24</sub>Ga<sub>0.76</sub>N(20 nm) / GaN(900 nm) からなる MOSHEMT 構造を作製した( $W/L = 400 \mu\text{m}/800 \mu\text{m}$ )。室温における 2DEG の Hall 移動度は  $1730 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ 、シートキャリア濃度  $n_{2D}$  は  $8.53 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$  であった。この AlGaN/GaN-MOSHEMT に一定のゲート電圧  $V_g$  を印加した状態で 2DEG に温度差( $\Delta T \sim +\pm 1 \text{ K}$ 、極細 K 熱電対により計測)を付与しながら熱起電力  $\Delta V$  を計測し、 $\Delta T - \Delta V$  プロットから  $S$  値を算出した。本研究で使用した MOSHEMT は、-8 V 附近に閾値電圧があるディプレッション型トランジスタである。 $S$  値計測は、熱起電力計測に及ぼすリーク電流の影響が無視できるほど小さい(1 nA 未満)  $V_g = -8 \sim +2 \text{ V}$  の範囲で行った( $n_{2D} : 5 \times 10^{11} \sim +1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ )。 $S$  値(符号は負)の絶対値は、 $V_g = -8 \text{ V}$  時( $n_{2D} \sim +5 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ )は  $500 \mu\text{V K}^{-1}$  であり、 $V_g$  増加に伴って減少し、+2 V 印加時( $n_{2D} \sim +1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ )は  $80 \mu\text{V K}^{-1}$  であった。この  $S$  値の変化は三次元伝導体を仮定した場合の二桁以上の体積キャリア濃度変化に相当するものだが、電界変調法では  $V_g$  印加による 2DEG のキャリア濃度・厚さの変化で説明できる。以上のように、本研究では AlGaN/GaN-MOSHEMT の 2DEG 熱電能電界変調に成功した。(論文投稿中)

### 熱電能計測による透明導電体として期待される $\text{BaSnO}_3$ の伝導帯状態密度解析

$\text{BaSnO}_3$  は、一般式  $\text{ABO}_3$  で表されるペロブスカイト型構造(室温で立方晶)を有する複合酸化物の一つで、 $\text{SrTiO}_3$ などの単結晶基板上に容易にヘテロエピタキシャル薄膜が作製できること、La や Nb の置換ドーピングによるキャリア濃度制御が容易であること、その広いバンドギャップと比較的大きなキャリア移動度が報告されたことから、酸化物半導体として最近急速に研究されるようになった物質である。特に関心が高まっているのはその移動度である。Kim らの報告によると、キャリアドープされたバルク単結晶の移動度は室温で  $300 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$  と大きいが、エピタキシャル薄膜では  $100 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$  を大きく下回る移動度しか得られない。移動度を決める因子は、物質固有の電子状態で決まるキャリア有効質量と、試料の質に依存するキャリア緩和時間であることから、試料依存しないキャリア有効質量を正しく評価し、それから試料の品質を高めるのが常套手段だが、実験的・理論的に求められたキャリア有効質量の報告値には  $0.06 m_0 - 0.6 m_0$  の幅広い分布があり、真の値が不明のままであった。本研究では、前述の熱電能電界変調法を  $\text{BaSnO}_3$ -TFT に適用し(図2)、La ドープした  $\text{BaSnO}_3$  薄膜(バルクライク)のデータと比較することで、 $\text{BaSnO}_3$  の伝導帯におけるキャリア有効質量が  $0.4 m_0$  であることを明らかにした。なお、 $\text{BaSnO}_3$  はキャリア濃度  $1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  以上で縮退半導体となる。非縮退状態、すなわちフェルミ準位が移動度端を超えていない状態では試料の質に依存すると思われる裾状態がキャリア移動に寄与することも分かった。これらの情報は  $\text{BaSnO}_3$  を用いた酸化物半導体デバイスの研究者に必要不可欠である。(論文印刷中)

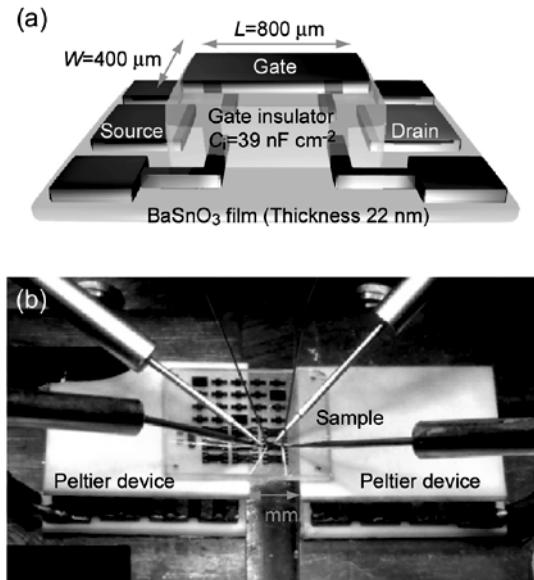


図2  $\text{BaSnO}_3$  薄膜トランジスタの熱電能計測の様子。(a) デバイス構造模式図、(b) 実際の計測時の写真

### $\text{SrTiO}_3-\text{SrNbO}_3$ 全率固溶体薄膜の作製と熱電特性

資源が豊富で毒性がなく、耐熱・化学安定性に優れた熱電変換材料として知られる Nb ドープ SrTiO<sub>3</sub> は、実は 1960 年代から導電性基板などとして使われてきた古い物質である。バルクにおける Nb の固溶限界は 10% 程度と言われており、実際に導電性基板として商品化されているものには Nb は僅か数%未満しか含まれていない。本研究では、非熱平衡プロセスであるパルスレーザー堆積法を使用して、SrTiO<sub>3</sub>-SrNbO<sub>3</sub> の全率固溶体を作製し、その熱電特性を調査した。SrTiO<sub>3</sub>-SrNbO<sub>3</sub> の導電性のオリジンは、化学量論組成の SrTiO<sub>3</sub> 中では 4+ (3d<sup>0</sup>) だった Ti イオンが、Nb を 5+ (5d<sup>0</sup>) で置換することで電荷補償のために 3+ (3d<sup>1</sup>) となり、その d 電子がキャリアとして振る舞うと考えられている。しかし、この描像は全率固溶体には当てはめることができない。SrNbO<sub>3</sub> 中の Nb イオンは 4+ (4d<sup>1</sup>) であり、この d 電子が伝導を担う。SrNbO<sub>3</sub> に Ti を部分置換すると、Ti は 4+ 状態で置換されるのか、それとも 3+ で置換され、隣の Nb イオンを 5+ に酸化するのか不明である。本研究では、これらのイオンの価数を、格子定数の厳密計測から推定し、さらに EELS スペクトル解析と電子状態計算から、SrTi<sub>1-x</sub>Nb<sub>x</sub>O<sub>3</sub> ( $0 \leq x \leq 1$ ) の  $x < 0.4$  では Ti<sup>3+</sup>/Nb<sup>5+</sup> として、 $x \sim 0.5$  では Ti<sup>4+</sup>/Nb<sup>4+</sup> に、 $x \geq 0.6$  では Ti<sup>3+</sup>/Nb<sup>5+</sup> として置換固溶が起こることを明らかにした。この置換イオンの原子価状態はキャリア緩和時間に大きく影響を及ぼすことを明らかにし、その結果として、SrTiO<sub>3</sub>-SrNbO<sub>3</sub> の全率固溶体の熱電特性には大きく 2 つの相境界があることを実験的に明らかにした（図 3）。この情報は、今後 SrTiO<sub>3</sub> 系人工超格子熱電変換材料の設計を行うために極めて有用である。ここまでの結果で論文は投稿中であり、現在は人工超格子の作製と熱電特性の計測・解析を行っている。（論文掲載済）

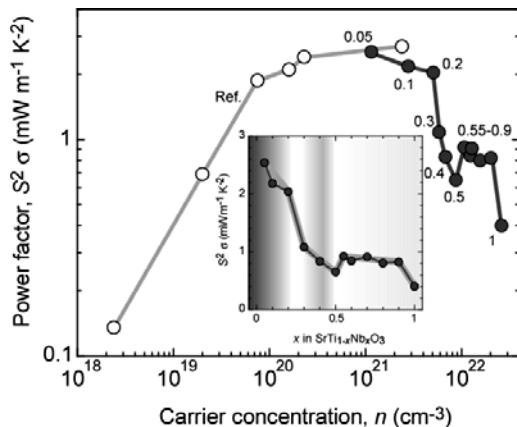


図 3 SrTiO<sub>3</sub>-SrNbO<sub>3</sub> 固溶体の熱電変換出力因子とキャリア濃度の関係（室温）

#### (b)光・電気・磁気記憶デバイスの開発

2016年度は成果の公表、特にプレスリリースに注力した。国内外で25件のメディアで紹介された。研究については(a)(c)(d)に注力したため、今年度の進展はない。

#### (c)スピントロニクスデバイスの開発

#### 酸化物ハーフメタル La<sub>0.67</sub>Sr<sub>0.33</sub>MnO<sub>3</sub> における電流誘起有効磁場の観測

スピン軌道相互作用に基づく電流誘起有効磁場は、電流誘起磁壁移動とならび三端子MTJにおける電気的磁化方向制御手法として期待されている。これまで酸化物ハーフメタルである La<sub>0.67</sub>Sr<sub>0.33</sub>MnO<sub>3</sub> (LSMO) をベースとした電流誘起磁壁移動素子の研究を行ってきた。本年度は、それと並行して LSMO をベースする積層構造における電流誘起有効磁場を調べるために、その基本構造である LSMO と SrTiO<sub>3</sub> 基板からなる構造において電流誘起有効磁場を調べた。LSMO 薄膜を SrTiO<sub>3</sub>(001) 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、薄膜をフォトリソグラフィとウェットエッチングにより、[100] 方向に沿った幅 10 μm のチャネルと 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。図 4 に示すように初期状態を用意した後、外部磁場を掃引して磁化方向をスイッチングさせた。その結果、チャネルに印加する電流の方向によってスイッチング磁場が異なることが分かった。これは印加した電流によって有効磁場が発生したためと考えられる。さらに、その有効磁場の LSMO 膜厚依存性を調べたところ、有効磁場は LSMO 中の絶縁的なデッドレイヤーの厚さを除いて計算した電流密度でスケーリングできることが分かった。この有効磁場は、電流磁場、電流誘起磁壁移動では説明できないため、LSMO 中のスピン軌道相互作用に起因していると考えている。

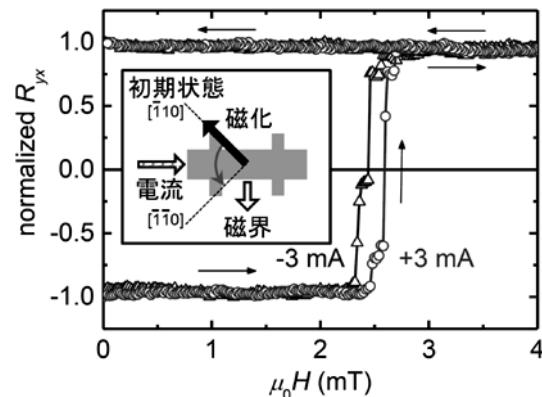


図 4 ±3 mA を印加した状態における規格化横抵抗  $R_{xy}$  の外部磁場依存性。外部磁場で [110] 方向に磁化方向をそろえた後、[111] 方向に外部磁場を掃引する（素子温度 130 K）。

#### (d)特殊なエピタキシャル薄膜成長方法の開発

#### 固相エピタキシャル成長法による Sr<sub>n</sub>Nb<sub>n</sub>O<sub>3n+2</sub> ホモガス相エピタキシャル薄膜の作製

ホモガス相 Sr<sub>n</sub>Nb<sub>n</sub>O<sub>3n+2</sub> ( $n=4, 5, \infty$ ) は、酸素含有率により、Nb イオンの価数が 5+ (Nb 4d<sup>0</sup>) から 4+ (Nb 4d<sup>1</sup>) に変化することで、絶縁体 Sr<sub>2</sub>Nb<sub>2</sub>O<sub>7</sub>、擬一次元金属 SrNbO<sub>3.4</sub>、金属 SrNbO<sub>3</sub> へと電子的性質が変化する物質として知られている。その結晶構造に着目すると、 $n=\infty$  (SrNbO<sub>3</sub>) は立方晶ペロブスカイト型構造だが、 $n=4$  (Sr<sub>2</sub>Nb<sub>2</sub>O<sub>7</sub>) は、SrNbO<sub>3</sub> <110> の 4 層の SrNbO<sub>3</sub> スラブ毎に、 $n=5$  (SrNbO<sub>3.4</sub>) は 5 層の

$\text{SrNbO}_3$ スラブ毎に酸素層が導入された層状構造と見なせる。Chenらの報告[Nano Lett. **15**, 6469 (2015)]によると、 $n=5$ の $\text{SrNbO}_{3.4}$ に強力なナノプローブ電子線を照射することで、酸素配位数を原子レベルで制御し、照射部分のみを $n=\infty$ の $\text{SrNbO}_3$ に変換することが可能である。このように、ホモロガス相 $\text{Sr}_n\text{Nb}_n\text{O}_{3n+2}$ は、電子的・構造的に非常に興味深い物質だが、未だ高品質なエピタキシャル薄膜の作製が報告されていない。本研究では、気相エピタキシーでは作製が難しいホモロガス相の高品質薄膜を、固相エピタキシーによって実現した。予備実験として、高温(900°C)に加熱した(110) $\text{LaAlO}_3$ 基板上に直接 $\text{Sr}-\text{Nb}-\text{O}$ 薄膜を成長させたところ、 $\text{SrNbO}_3$ と $\text{Sr}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ の混相のエピタキシャル薄膜が得られた。そこで、室温下でアモルファス $\text{Sr}-\text{Nb}-\text{O}$ 薄膜を堆積させ、真空チャンバー内で徐々に加熱する、固相エピタキシーを試みた。加熱中にRHEEDパターンの変化を観察したところ、750°Cでブロードな回折スポットが現れ、900°Cまでの加熱中にストリーク状のパターンに変化した。この薄膜を真空チャンバーから取り出し、XRD測定を行ったところ、エピタキシャル関係(010)[100]  $\text{Sr}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ ||[(110)[001] $\text{LaAlO}_3$ ]のエピタキシャル薄膜であることが分かった。さらに、真空管状炉内で1400°C加熱を行い、XRD測定を行ったところ、平均結晶チルト角 $\Delta\omega \sim 0.1^\circ$ の、 $\text{Sr}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ 単一相エピタキシャル薄膜であることが分かった。逆格子マップの2200回折斑点から算出された面内コヒーレンス長は100 nm(光学系分解能)を超えており、AFM像にはこれを裏付ける大きなグレインが観察された。TEMおよびSTEM観察を行ったところ(図5)、 $n=4$   $\text{Sr}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ の層状構造が明瞭に観察でき、薄膜表面は原子レベルで平坦であることが分かった。TEM像の薄膜/基板界面近傍に見られる厚さ数ナノメートルの暗い領域は、僅かに原子配列が乱れたことに起因する。STEM像には格子不整合が見られたことから、この原子配列の乱れは $\text{Sr}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ と $\text{SrNbO}_3$ の原子配列の違いによるものであると考えられる。以上の結果から、 $\text{Sr}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ の固相エピタキシャル成長薄膜成長に成功した。(投稿中)

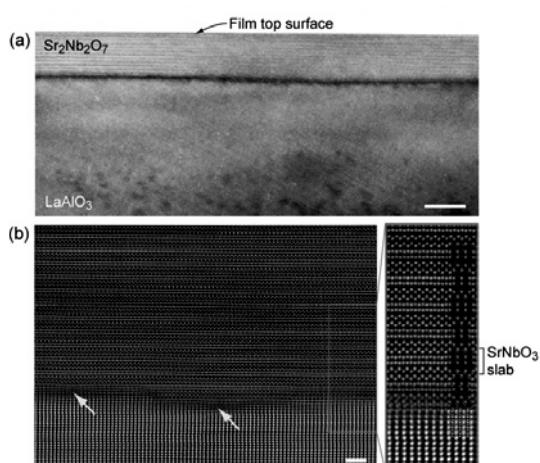


図5 固相エピタキシャル成長法によって作製した $\text{Sr}_2\text{Nb}_2\text{O}_7$ 薄膜の(a)電子顕微鏡明視野像と(b)HAADF-STEM像。

### 3. 今後の研究の展望

水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する積層構造を用いて電流誘起有効磁場の高効率発生、及び電流誘起磁壁移動デバイスの開発に取り組む。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(査読あり)

- 1) T. Onozato, T. Katase, A. Yamamoto, S. Katayama, K. Matsushima, N. Itagaki, H. Yoshida, and H. Ohta, "Optoelectronic properties of valence-state-controlled amorphous niobium oxide", *J. Phys. Condens. Mater.* **28**, 255001 (2016).
- 2) T. Katase, T. Onozato, M. Hirono, T. Mizuno, and H. Ohta, "A transparent electrochromic metal-insulator switching device with three-terminal transistor geometry", *Sci. Rep.* **6**, 25819 (2016).
- 3) K. Yokoyama, S. Yokoyama, Y. Sato, K. Hirano, S. Hashiguchi, K. Motomiya, H. Ohta, H. Takahashi, K. Tohji, and Y. Sato, "Efficiency and long-term durability of nitrogen-doped single-walled carbon nanotube electrocatalyst synthesized by defluorination-assisted nanotube-substitution for oxygen reduction reaction", *J. Mater. Chem. A* **4**, 9184 (2016).
- 4) Jiang Pu, Kaito Kanahashi, Nguyen Thanh Cuong, Chang-Hsiao Chen, Lain-Jong Li, Susumu Okada, Hiromichi Ohta, and Taishi Takenobu, "Enhanced thermoelectric power in two-dimensional transition metal dichalcogenide monolayers", *Phys. Rev. B* **94**, 014312 (2016).
- 5) Ning Li, Takayoshi Katase, Yanbei Zhu, Takao Matsumoto, Tomonari Umemura, Yuichi Ikuhara, and Hiromichi Ohta, "Solid-liquid phase epitaxial growth of  $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$  thin film", *Appl. Phys. Express* **9**, 125501 (2016).
- 6) Eun Sung Kim, Jae-Yeol Hwang, Kyu Hyoung Lee, Hiromichi Ohta, Young Hee Lee, and Sung Wng Kim, "Graphene Substrate for Van der Waals Epitaxy of Layer Structured Bismuth Antimony Telluride Thermoelectric

- Film”, *Adv. Mater.* **29**, 1604899 (2017).
- 7) Kazuma Funahashi, Naoki Tanaka, Yoshiaki Shoji, Naoki Imazu, Ko Nakayama, Kaito Kanahashi, Hiroyuki Shirae, Suguru Noda, Hiromichi Ohta, Takanori Fukushima, and Taishi Takenobu, “Remarkably air- and moisture-stable hole-doped carbon nanotube films by a boron-based oxidant”, *Appl. Phys. Express* **10**, 035101 (2017).
  - 8) Shota Katayama, Takayoshi Katase, Tetsuya Tohei, Bin Feng, Yuichi Ikuhara, and Hiromichi Ohta, “Reactive solid-phase epitaxy and electrical conductivity of layered sodium manganese oxide films”, *Cryst. Growth Des.* **17**, 1849–1853 (2017).
  - 9) Yuqiao Zhang, Bin Feng, Hiroyuki Hayashi, Tetsuya Tohei, Isao Tanaka, Yuichi Ikuhara, and Hiromichi Ohta, “Thermoelectric phase diagram of the SrTiO<sub>3</sub>–SrNbO<sub>3</sub> solid solution system”, *J. Appl. Phys.* **121**, 185102–1–7(2017).

#### 4.3 総説・解説・評論等

- 1) 太田裕道: 「特別記事・注目をあびるエレクトロクロミック材料とその可能性－窓ガラスがメモリーとして利用可能に－」、工業材料、日刊工業新聞社、65 [1] : 78–82 (2017)
- 2) 太田裕道: 「石ころの素材を使って、世の中で役に立つデバイスを創ります」、北海道大学 大学案内 Be Ambitious 2016 年度版、p.10 (2016.6 発行)

#### 4.6 講演

##### a. 招待講演（国際学会）

- 1) T. Katase, Y. Suzuki, and H. Ohta, “Reversible switching from an insulator to a conducting magnet-New way toward high capacity memory device-“, International Research School: Electronic States and Phases Induced by Electric or Optical Impacts (IMPACT 2016), Cargese, France, 23 Aug.–2 Sep., 2016 (Invited)
- 2) H. Ohta and W. S. Choi, “Unusually large thermopower of nanostructured oxides”, ENGE 2016 (International Conference on Electronic Materials and Nanotechnology for Green Environment), Ramada Plaza Jeju Hotel, Jeju, South Korea, Nov. 6–9, 2016 (Invited)
- 3) H. Ohta, “Thermoelectric Seebeck effect of two dimensional electron gas in SrTiO<sub>3</sub>“, International conference on Advances in Functional Materials, Anna University, Chennai, India, 2017 年 1 月 6 日–8 日 (Invited)

##### b. 招待講演（国内学会）

- 1) 片瀬貴義, 鈴木雄喜, 太田裕道, “絶縁体から導電性磁石への可逆切替デバイス-高密度情報記憶素子に向けて- “, 日本セラミックス協会 第 29 回秋季シンポジウム, 広島大学 東広島キャンパス, 広島県東広島市, 2016 年 9 月 7 日 - 9 日 (依頼講演)

2) 太田裕道, 金木獎太, 橋詰 保, “熱電能電界変調法 : AlGaN/GaN-MOSHEMT”，2016 年 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会, 朱鷺メッセ (新潟県新潟市) , 2016 年 9 月 13 日–16 日 (分科内招待講演)

3) 太田裕道, “導電性酸化物薄膜の物性改質方法”, 第 64 回応用物理学会春季学術講演会 (合同セッション K, シンポジウム「金属酸化物の結晶物性に迫る」), パシフィコ横浜, 神奈川, 2017 年 3 月 14 日–17 日 (招待講演)

4) 片瀬貴義, 太田裕道, (平成 28 年度進歩賞受賞講演) “遷移金属酸化物の酸化・還元を利用した薄膜機能デバイスの開発”, 日本セラミックス協会 2017 年 年会, 日本大学駿河台キャンパス, 東京, 2017 年 3 月 17 日 –19 日

##### c. 招待講演（研究会・シンポジウム・ワークショップなど（学会以外））

- 1) T. Katase and H. Ohta, “Reversibly tunable opto-electronic and electro-magnetic device of transition metal oxides using water-infiltrated glass”, Seminar at Institute of Physics, Academia Sinica (hosted by Dr. Wei-Li Lee), Academia Sinica, Taiwan, 27 July, 2016 (Invited)
- 2) 片瀬貴義, 太田裕道, “光・電気・磁気特性を切替え可能な薄膜機能デバイスの開発”, 第 12 回フロンティア材料研究所講演会、2016 年度フロンティア材料研究所学術賞 受賞記念講演会、東京工業大学フロンティア材料研究所、東京工業大学、すずかけ台キャンパス、神奈川、2016 年 9 月 21 日 (招待講演)

3) T. Katase and H. Ohta, “Optoelectronic and electromagnetic switching device with transition metal oxides using water-leakage-free electrolyte”, Seminar at Soochow University (hosted by Prof. Steffen Duham), Suzhou, China, 10 October, 2016 (Invited)

4) 片瀬貴義, 遠藤賢司, 太田裕道, “赤外線透過率-導電率同時切替デバイスの開発～多機能型スマートウェイドウに向けて～”, クロモジェニック研究会, 産業技術総合研究所中部センター, 愛知, 名古屋市, 2016 年 10 月 21 日 (招待講演)

5) 片瀬貴義, 太田裕道, “遷移金属酸化物の電気化学反応を利用した機能変調デバイス”, 6 大学連携プロジェクト公開討論会, 名古屋大学, 名古屋, 2017 年 3 月 30 日 (招待講演)

##### d. 一般講演（国際学会）

- 1) K. Kanahashi, K. Funahashi, T. Miyauchi, N. Tanaka, Y. Shoji, M. Ishihara, M. Hasegawa, K. Nakayama, H. Shirae, S. Noda, H. Ohta, T. Fukushima, and T. Takenobu, “Air-stable carrier doping into nano-carbon materials by extraordinary molecular Lewis acid”, 17th International Conference on the Science and Application of Nanotubes and low-dimensional materials, Univ. Vienna, Austria,

- 2016年8月7日-13日
- 2) M. Yamanouchi, T. Oyamada, T. Katase and H. Ohta, "Current-induced modulation of switching magnetic field in  $\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3$  structures", 61st Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials (2016 MMM Conference), New Orleans, USA, Oct. 31-Nov. 4, 2016
  - 3) T. Katase, T. Onozato, Y. Suzuki, K. Endo, M. Hirono, T. Mizuno, T. Tohei, Y. Ikuhara, and H. Ohta, "Water-gated thin film transistors on functional oxides - Toward multifunctional memory devices -", 2016 MRS Fall Meeting & Exhibit, Boston, MA, USA, 27 Nov.-2 Dec. 2016
  - 4) K. Yokoyama, S. Yokoyama, Y. Sato, K. Hirano, S. Hashiguchi, K. Motomiya, H. Ohta, H. Takahashi, K. Tohji, and Y. Sato, "Oxygen reduction reaction of nitrogen-doped single-walled carbon nanotubes synthesized by defluorination", 2016 MRS Fall Meeting & Exhibit, Boston, MA, USA, 27 Nov.-2 Dec. 2016
- e. 一般講演（国内学会）
- 1) 中村圭佑, 片瀬貴義, 押切友也, 上野貢生, 太田裕道, 三澤弘明, “全固体プラズモニック太陽電池における光電流極性の照射波長依存”, 2016年光化学討論会, 東京大学駒場第一キャンパス, 東京, 2016年9月6日-8日
  - 2) 鈴木雄喜, 片瀬貴義, 太田裕道, “ $\text{Sr}_{1-x}\text{Ba}_x\text{CoO}_{3-\delta}$ 薄膜の強磁性転移温度”, 2016年第77回応用物理学会秋季学術講演会, 朱鷺メッセ, 新潟県新潟市, 2016年9月13日-16日
  - 3) 山ノ内路彦, 小山田達郎, 片瀬貴義, 太田裕道, “Current-induced effects on switching magnetic field in  $\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3$ ”, 2016年第77回応用物理学会秋季学術講演会, 朱鷺メッセ, 新潟県新潟市, 2016年9月13日-16日（ポスター）
  - 4) 福地厚, 有田正志, 片瀬貴義, 太田裕道, 高橋庸夫, “高均一  $\text{TaO}_x$ 薄膜を用いた抵抗変化動作の局所的評価”, 2016年第77回応用物理学会秋季学術講演会, 朱鷺メッセ, 新潟県新潟市, 2016年9月13日-16日
  - 5) 小野里尚記, 片瀬貴義, 張雨橋, 藤平哲也, フウビン, 幾原雄一, 太田裕道, “モット絶縁体超薄膜の熱電能”, 2016年第77回応用物理学会秋季学術講演会, 朱鷺メッセ, 新潟県新潟市, 2016年9月13日-16日
  - 6) Yuqiao Zhang, Takayoshi Katase, Takaki Onozato, Bin Feng, Hiroyuki Hayashi, Tetsuya Tohei, Isao Tanaka, Yuichi Ikuhara, Hiromichi Ohta, “Hidden Electronic Phase Boundary in the  $\text{SrTiO}_3-\text{SrNbO}_3$  Solid-solution System”, 2016年第77回応用物理学会秋季学術講演会, 朱鷺メッセ, 新潟県新潟市, 2016年9月13日-16日（ポスター）
  - 7) Yu-Qiao Zhang and Hiromichi Ohta, “Improvement of thermoelectric power factor of heavily Nb-doped  $\text{SrTiO}_3$  superlattices”, 第52回応用物理学会北海道支部/第13回日本光学会北海道支部合同学術講演会, 北見工業大学, 北見, 2017年1月7日-8日
  - 8) 小野里尚記, 片瀬貴義, 廣野未沙子, 水野拓, 太田裕道, “3端子TFT構造アモルファス  $\text{WO}_3$ エレクトロクロミック素子の開発と動作検証”, 第52回応用物理学会北海道支部/第13回日本光学会北海道支部合同学術講演会, 北見工業大学, 北見, 2017年1月7日-8日
  - 9) Anup Sanchela and Hiromichi Ohta, “Electric Field Thermopower Modulation of  $\text{BaSnO}_3$  Epitaxial Film”, 第64回応用物理学会春季学術講演会, パシフィコ横浜, 横浜, 2017年3月14日-17日
  - 10) Yu-Qiao Zhang and Hiromichi Ohta, “Effective power factor of  $\text{Sr}(\text{Ti},\text{Nb})\text{O}_3/\text{SrTiO}_3$  superlattices”, 第64回応用物理学会春季学術講演会, パシフィコ横浜, 横浜, 2017年3月14日-17日
- 1.1) 根津有希央, 陳春林, 幾原雄一, 太田裕道, “ホモロガス相  $\text{Sr}_n\text{Nb}_n\text{O}_{3n+2}$  の固相エピタキシャル薄膜成長”, 第64回応用物理学会春季学術講演会, パシフィコ横浜, 横浜, 2017年3月14日-17日
- 1.2) 福地厚, 有田正志, 片瀬貴義, 太田裕道, 高橋庸夫, “超平坦  $a\text{-TaO}_x$ 薄膜を用いた抵抗変化メモリ動作における導電性フィラメントの直接観察”, 第64回応用物理学会春季学術講演会, パシフィコ横浜, 横浜, 2017年3月14日-17日 専攻内共同研究
- 1.3) Tatsuro Oyamada, Takayoshi Katase, Hiromichi Ohta, and Michihiko Yamanouchi, “Thickness Dependence of Current-Induced Effective Magnetic Field in  $\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3$  heterostructure”, 第64回応用物理学会春季学術講演会, パシフィコ横浜, 横浜, 2017年3月14日-17日
- f. 一般講演（研究会・シンポジウム・ワークショップなど（学会以外））
- 1) Michihiko Yamanouchi, Tatsuro Oyamada, Takayoshi Katase, Hiromichi Ohta, “Current dependence of switching magnetic field in  $\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3/\text{SrTiO}_3$ ”, HOKUDAI-NCTU International Joint Symposium on Nano, Opto and Bio Sciences, Hokkaido University, Sapporo, Japan, 4-5 Oct. 2016 (poster)
  - 2) Yuqiao Zhang, Takaki Onozato, Takayoshi Katase, Hiromichi Ohta, “Electron transport properties of  $\text{SrTiO}_3-\text{SrNbO}_3$  full range solid solutions”, HO-KUDAI-NCTU International Joint Symposium on Nano, Opto and Bio Sciences, Hokkaido University, Sapporo, Japan, 4-5 Oct. 2016 (poster)
  - 3) Takaki Onozato, Takayoshi Katase, Tetsuya Tohei, Yuichi Ikuhara, Hiromichi Ohta, “Anomalous ther-

- mopower of ultrathin  $\text{LaTiO}_3$  epitaxial layers”, HO-KUDAI-NCTU International Joint Symposium on Nano, Opto and Bio Sciences, Hokkaido University, Sapporo, Japan, 4–5 Oct. 2016 (poster)
- 4) Yuki Suzuki, Takayoshi Katase, Hiromichi Ohta, “Leakage-free alkaline electrolyte: Amorphous  $\text{NaTaO}_3$  nanopillar array”, HOKUDAI-NCTU International Joint Symposium on Nano, Opto and Bio Sciences, Hokkaido University, Sapporo, Japan, 4–5 Oct. 2016 (poster)
  - 5) Hiromichi Ohta, Shota Kaneki, Tamotsu Hashizume, “Verification of 2D enhanced thermopower theory by electric field thermopower modulation”, HO-KUDAI-NCTU International Joint Symposium on Nano, Opto and Bio Sciences, Hokkaido University, Sapporo, Japan, 4–5 Oct. 2016 (poster)
  - 6) Y. Zhang, T. Onozato, T. Katase, and H. Ohta, “Thermoelectric properties of  $\text{SrTiO}_3\text{-SrNbO}_3$  full range solid solutions”, International Workshop on Oxide Electronics 23, Nanjing International Conference Hotel, Nanjing, China, 12–14 Oct. 2016 (poster)
  - 7) T. Onozato, T. Katase, T. Tohei, Y. Ikuhara, and H. Ohta, “Anomalous thermopower of ultrathin  $\text{LaTiO}_3$  epitaxial layers”, International Workshop on Oxide Electronics 23, Nanjing International Conference Hotel, Nanjing, China, 12–14 Oct. 2016 (poster)
  - 8) Y. Suzuki, T. Katase, and H. Ohta, “Leakage-free alkaline electrolyte: Amorphous  $\text{NaTaO}_3$  nanopillar array”, International Workshop on Oxide Electronics 23, Nanjing International Conference Hotel, Nanjing, China, 12–14 Oct. 2016 (poster)
  - 9) T. Katase, Y. Suzuki, and H. Ohta, “Reversible switching from an insulator to a conducting magnet - New way toward high capacity memory device-“, International Workshop on Oxide Electronics 23, Nanjing International Conference Hotel, Nanjing, China, 12–14 Oct. 2016 (poster)
  - 10) 太田裕道, 金木奨太, 橋詰保, “熱電能電界変調法による二次元熱電能増強理論の検証”, 薄膜材料デバイス研究会, 龍谷大学 韶都ホール校友会館, 京都, 2016年10月21日-22日 (口頭)
  - 11) 小野里尚記, 片瀬貴義, 廣野未沙子, 水野拓, 太田裕道, “薄膜トランジスタ電極配置を有するエレクトロクロミックデバイスの室温作製”, 薄膜材料デバイス研究会, 龍谷大学 韶都ホール校友会館, 京都, 2016年10月21日-22日 (ポスター)
  - 12) 鈴木雄喜, 片瀬貴義, 太田裕道, “磁性と導電性を同時切替可能な全固体薄膜デバイスの作製”, 薄膜材料デバイス研究会, 龍谷大学 韶都ホール校友会館, 京都, 2016年10月21日-22日 (ポスター)
  - 13) 小野里尚記, 片瀬貴義, 廣野未沙子, 水野拓, 太田裕道, “色調-導電性を同時変調可能な酸化物エレクトロクロミック素子の開発”, 日本セラミックス協会東北北海道支部研究発表会, 北海道大学 フロンティア応用科学研究棟, 札幌, 2016年10月27日-28日
  - 14) 鈴木雄喜, 片瀬貴義, 太田裕道, “コバルト酸ストロンチウム薄膜の酸化還元反応を利用した電気・磁気メモリデバイスの開発”, 日本セラミックス協会東北北海道支部研究発表会, 北海道大学 フロンティア応用科学研究棟, 札幌, 2016年10月27日-28日
  - 15) M. Yamanouchi, T. Oyamada, T. Katase, and H. Ohta, “Current-induced effects on switching magnetic field in an oxide half-metal heterostructure”, 第21回スピノン工学の基礎と応用 (Physics and Applications of Spin-related Phenomena in Semiconductors, PASPS-21), Hokkaido University, Sapporo, Japan, 12–13 Dec. 2016
  - 16) T. Onozato, T. Katase, M. Hirono, T. Mizuno, and H. Ohta, “Amorphous  $\text{WO}_3$  electrochromic device with thin-film transistor electrode geometry”, The 17th RIES-Hokudai International Symposium 柔 [Ju], Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo, Sapporo, Japan, 13–14 Dec. 2016 (ポスター)
  - 17) K. Nakamura, T. Katase, T. Oshikiri, K. Ueno, H. Ohta, and H. Misawa, “Switchable photocurrent polarity of plasmonic photoelectric conversion by irradiation wavelengths”, The 17th RIES-Hokudai International Symposium 柔 [Ju], Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo, Sapporo, Japan, 13–14 Dec. 2016 (ポスター)
  - 18) Y. Zhang, T. Katase, T. Onozato, B. Feng, H. Hayashi, T. Tohei, I. Tanaka, Y. Ikuhara, and H. Ohta, “Thermoelectric properties of  $\text{SrTiO}_3\text{-SrNbO}_3$  full range solid solutions”, The 17th RIES-Hokudai International Symposium 柔 [Ju], Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo, Sapporo, Japan, 13–14 Dec. 2016 (ポスター)
  - 19) A. V. Sanchela and H. Ohta, “Thermoelectric properties of Nb-doped  $\text{BaSnO}_3$  thin film”, The 17th RIES-Hokudai International Symposium 柔 [Ju], Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo, Sapporo, Japan, 13–14 Dec. 2016 (ポスター)
  - 20) Y. Suzuki, T. Katase, and H. Ohta, “Characterization of amorphous  $\text{NaTaO}_3$  nanopillar array film”, The 17th RIES-Hokudai International Symposium 柔 [Ju], Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo, Sapporo, Japan, 13–14 Dec. 2016 (ポスター)
  - 21) Kaito Kanahashi, Jiang Pu, Nguyen Thanh Cuong, Chang-Hsiao Chen, Lain-Jong Li, Susumu Okada, Hiromichi Ohta, Shinya Takaishi and Taishi Takenobu, “Thermoelectric Properties in Two-Dimensional Transition Metal Dichalcogenide Monolayers and One-Dimensional Metal Complexes”, 3rd International

Symposium on  $\pi$ -System Figuration, Nagoya University, Nagoya, 2017年1月27日-28日

2) 太田裕道，“固相エピタキシャル成長法を駆使した機能性酸化物ナノ層の創製”，新学術領域「ナノ構造情報のフロンティア開拓」第4回公開シンポジウム，メルパルク京都，京都，2017年3月24日

g. コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 小野里尚記，鈴木雄喜，片瀬貴義，太田裕道，旭川西高校スーパーサイエンスハイスクール大学訪問，研究室見学対応，2015年4月14日
- 2) 研究室メンバー，“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（展示），北海道大学，札幌，2016年6月4日
- 3) Y. Zhang, T. Katase, T. Onozato, B. Feng, H. Hayashi, T. Tohei, I. Tanaka, Y. Ikuhara and H. Ohta, “Electron transport properties of  $\text{SrTiO}_3\text{-SrNbO}_3$  full range solid-solution epitaxial films”，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4回若手の会，筑波山 江戸屋，茨城，2016年7月25日-26日（ポスター発表）
- 4) 小野里尚記，張 雨橋，片瀬貴義，フウビン，藤平哲也，幾原雄一，太田裕道，“熱電能計測と電子顕微鏡観察による、 $\text{LaTiO}_3/\text{LaAlO}_3$ へテロ界面の可視化”，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4回若手の会，筑波山 江戸屋，茨城，2016年7月25日-26日（ポスター発表）
- 5) 鈴木雄喜，片瀬貴義，太田裕道，“ナノピラー構造に閉じ込められた漏液しないアルカリ水溶液—その特性と応用ー”，新学術領域研究「ナノ構造情報のフロンティア開拓 — 材料科学の新展開」第4回若手の会，筑波山 江戸屋，茨城，2016年7月25日-26日（ポスター発表）
- 6) 太田裕道，“超微細熱電材料用汎用熱電能計測装置の開発”，2015 旭硝子財団 助成研究発表会，ホテルグランドヒル市ヶ谷，東京，2016年7月29日（ポスター発表）
- 7) 太田裕道，鈴木雄喜，“電気抵抗と磁化の両方で記憶する新メモリー”，イノベーション・ジャパン2016～大学見本市&ビジネスマッチング，東京ビッグサイト，東京，2016年8月25日-26日（ポスター展示）
- 8) 山内路彦，“酸化物へテロ構造における電流誘起有効磁場”，人・環境と物質をつなぐイノベーション創出ダイナミック・アライアンス G1 エレクトロニクス 物質・デバイス グループ分科会，かんぽの宿 柳川，福岡，2016年11月18日-19日
- 9) 太田裕道，“Thermopower of two-dimensional electron gas”，Mini Workshop on Functional Nanomaterials，北海道大学電子科学研究所，札幌，2016年12月21日

#### 4.7 シンポジウムの開催

- 1) 電子科学研究所学術講演会、「Topotactic phase transformation in  $\text{SrFeO}_x$  epitaxial thin films ( $\text{SrFeO}_x$ エピタキシャル薄膜のトポタクティック相転移)」、講師：Woo Seok Choi（韓国・成均館大学校）、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）、2016年7月1日。
- 2) 「機能性ナノ材料に関するミニワークショップ（Mini Workshop on Functional Nanomaterials）」、プログラム：“Quantum conductance probing of oxygen vacancies in  $\text{SrTiO}_3$  thin films via graphene”，Woo Seok Choi (SKKU, Korea), “Synthesis and Properties of Functionalized Molecular Wires”，Jun Terao (The University of Tokyo), “Atomic scale STEM characterization of functional oxide thin films”，Tetsuya Tohei (The University of Tokyo), “Thermopower of two-dimensional electron gas”，Hiromichi Ohta (RIES, Hokkaido University), “Functionalization by electrolyte gating”，Taishi Takenobu (Nagoya 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）、2016年12月21日

#### 4.8 共同研究

a. 所内共同研究

- 1) グリーンフォトニクス研究分野（三澤弘明教授、上野貢生准教授、押切友也助教）と密接に共同研究を実施した。
- 2) 光システム物理研究分野（藤原准教授）と酸化亜鉛薄膜作製などの共同研究を実施した。

b. 民間等との共同研究

該当なし

c. 委託研究

該当なし

d. 国際共同研究

- 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。（2017.8 論文掲載済）。
- 2) 韓国・成均館大学校の Sung Wng Kim 教授との共同研究成果が独科学誌 Advanced Materials に掲載された。
- 3) 台湾・国立交通大学の Juhn-Jong Lin 教授に  $\text{SrTiO}_3$  人工超格子を送付、また、9月には Lin 教授のポスドク研究者 Shao-Pin Chiu 博士をダイナミックアライアンス経費で招聘し、LSMO/LAO/STO へテロ構造を作製した。他の共同研究も継続中。成果は今のところ学会発表1件。
- 4) 台湾・アカデミアシニカの Wei-Li Lee 博士に CAN ゲート  $\text{SrTiO}_3$  ランジスタを送付し、共同研究を継続中。超伝導転移を確認したとの報告を受けている。
- 5) 台湾・国立交通大学の Yu-Miin Sheu 助教と、超格子薄膜の熱伝導率計測に関する共同研究を開始した。

#### 4.9 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) 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ントルク」、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。
- 6) 片瀬貴義（代表）、挑戦的萌芽研究、「室温で不揮発動作可能な反強磁性/絶縁体-強磁性/金属スイッチング素子の開発」、2016～2017年度。

##### b. 大型プロジェクト・受託研究

- 1) 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。
- 2) 片瀬貴義、公益財団法人日本板硝子材料工学助成会 第38回研究助成「固体電気化学反応を利用した遷移金属酸化物薄膜の電気・磁気物性変調法の開発」、平成28年4月～平成31年3月
- 3) 片瀬貴義、科学技術振興機構さきがけ、「遷移金属酸化物歪界面を利用したフォノンドラッグ熱電能の制御」、平成28年10月～平成32年3月

#### 4.10 受賞

- 1) スチューデントアワード、鈴木雄喜、片瀬貴義、太田裕道，“磁性と導電性を同時切替可能な全固体薄膜デバイスの作製”，薄膜材料デバイス研究会、龍谷大学響都ホール校友会館、京都、2016年10月21日～22日（ポスター）
- 2) Poster Award, T. Onozato, T. Katase, M. Hirono, T. Mizuno, and H. Ohta, “Amorphous WO<sub>3</sub> electrochromic device with thin-film transistor electrode geometry”, The 17th RIES-Hokudai International Symposium 柔 [Ju], Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo, Sapporo, Japan, 13–14 Dec. 2016 (ポスター)
- 3) フロンティア材料研究所学術賞（研究奨励部門），片瀬貴義，2016年9月21日
- 4) Best poster award, T. Katase, Y. Suzuki, and H. Ohta, “Reversible switching from an insulator to a conducting magnet - New way toward high capacity memory device-“, International Workshop on Oxide Electronics 23, Nanjing International Conference Hotel, Nanjing, China, 12–14

Oct. 2016 (poster)

#### 4.11 社会教育活動

##### b. 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～。

##### c. 兼任・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～。

##### d. 外国人研究者の招聘

- 1) Woo Seok Choi, Tae Sup Yoo、韓国、2016年7月30日～2016年8月2日
- 2) Shao-Pin Chiu、台湾、2016年9月25日～2016年10月8日
- 3) Sungmin Woo、韓国、2016年10月16日～10月29日
- 4) Eun Sung Kim、韓国、2016年10月23日～11月5日
- 5) Woo Seok Choi、韓国、2016年12月20日～12月22日

##### e. 北大での担当授業科目（対象、講義名、担当者、期間）

- 1) 対象、講義名、担当者、期間

##### f. 北大以外での非常勤講師（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、2016年4月～7月。
- 2) 大学院、光電子物性学特論、太田裕道、熊野英和、2016年6月～7月。
- 3) 全学教育科目「環境と人間」ナノって何なの？(分担)、太田裕道、2016年5月6日。
- 4) 全学教育科目「科学・技術の世界」半導体エレクトロニクスの最前線(分担)、2016年5月16日。
- 5) 大学院、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論II 講義責任者、太田裕道、2016年11月16日～18日。
- 6) 大学院、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論II、山ノ内路彦、2016年11月16日。
- 7) 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、2016年4月～7月。
- 8) 一般教育演習フレッシュマンセミナー(分担)、片瀬貴義、2016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)、太田裕道、山ノ内路彦、片瀬貴義、2016年4月～7月。
- 10) 全学教育科目「物理学II」、山ノ内路彦、2016年10月～2017年3月。

- 11) 工学部情報エレクトロニクス学科、電気電子工学実験(分担)、片瀬貴義、2016年10月～2017年3月。

- 12) 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、2016年11月～2017年3月。

##### g. 新聞・テレビ等の報道

- 1) 2016年4月8日 科学新聞 「絶縁体の酸化物 電気流れる磁石に 北大電子研が成果」

- 2) 2016年4月16日 読売新聞(北海道版) 「記憶媒体容量2倍に 北大教授ら開発 スマホに応用可」
- 3) 2016年5月21日 大学ジャーナルオンライン 「窓ガラスがメモリーに? 北海道大学、記憶装置を開発」
- 4) 2016年5月27日 科学新聞 「窓ガラスがメモリーに? 新しい情報表示・記憶装置開発」
- 5) 2016年5月24日 月刊 OPTRONICS online 「北大、エレクトロクロミック表示・記憶装置を開発」
- 6) 2016年6月1日 日刊工業新聞 「北大、新しい記憶装置を開発—窓ガラスに文字や絵の表示・記憶が可能に」
- 7) June 24, 2016 Phys.org "The switch that could double USB memory"
- 8) June 24, 2016 Science Daily "The switch that could double USB memory"
- 9) June 28, 2016 gizmag "Magnetic switch holds promise for double capacity solid state storage"
- 10) June 28, 2016 truemag "Magnetic switch holds promise for double capacity solid state storage"
- 11) July 1, 2016 new electronics "The switch that could double USB memory"
- 12) July 2, 2016 Crazy Engineers "Switching States To Deliver Double USB Memory"
- 13) July 2, 2016 News Dog "The switch that could double USB memory"
- 14) July 2, 2016 Iscanews "A New Method to Double USB Memory"
- 15) July 2, 2016 Science Newsline Technology "The Switch That Could Double USB Memory"
- 16) July 2, 2016 Technobahn "The Switch That Could Double USB Memory"
- 17) July 3, 2016 RtoZ.org(Youtube) "The switch that could double USB memory"
- 18) July 6 2016 Space Daily "The switch that could double USB memory"
- 19) July 9 2016 Tom's Hardware "Hitting The Magnetic Switches"
- 20) July 11, 2016 Electronics 360 "New Device Could Double USB Storage Capacity"
- 21) July 12, 2016 EET Taiwan "磁電雙穩態材料倍增儲存容量"
- 22) July 12, 2016 COSMOS Magazine "Double memory storage with magnetic and electric signals"

#### h. ポスドク・客員研究員など

- 1) Anup Sanchela (科研費新学術領域研究)

#### i. 修士学位及び博士学位の取得状況

修士学位 (2) :

- 1) 小野里尚記: 「色と導電性の可逆変化を利用する新しいメモリ素子の室温作製」(情報科学研究科 生命人間情報科学専攻)

- 2) 鈴木雄喜: 「コバルト酸ストロンチウム薄膜を活性層とする磁性・導電性記憶素子の改善」(情報科学研究科 生命人間情報科学専攻)



# 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～）  
特任講師 日比輝正（名古屋市大院、博(薬)、2015.10～2017.3）  
助 教 川上良介（九大院、博(理)、2010.6～）  
助 教 大友康平（東北大院、博(薬)、2016.4～）  
特任助教 飯島光一朗（京大院、博(生命科学)、2011.1～）  
博士研究員 堤 元佐（北大院、博士(生命科学)、2016.09～2017.03）  
事務補佐員 本久洋子（2013.3～2017.3）

院生

博士課程 一本嶋佐理、青柳佑佳、澤田和明、田辺綾乃  
修士課程 山口和志、山中祐実

### 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1.6 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。さらに聴覚野の*in vivo*イメージングのための外科処理法の新プロトコルの確立を目指した。

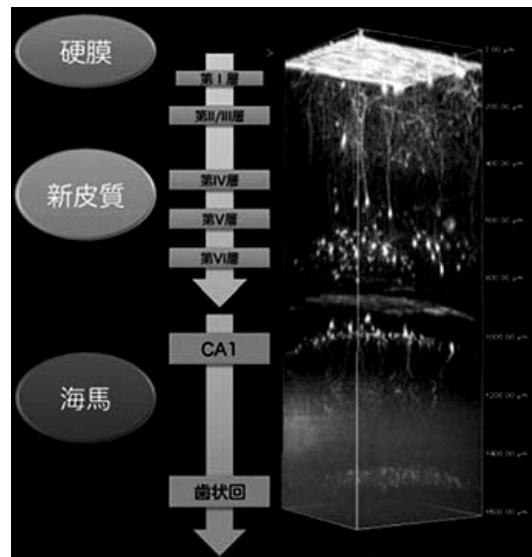


図1 “*in vivo*” 2光子顕微鏡は生体内の組織の深部を高分解能で長期間観察が可能である。麻酔下のマウス大脳新皮質の神経細胞及び海馬CA1・歯状回ニューロン。

(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ト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、最高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壊をターゲットとし、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）。さらに生体脳中で

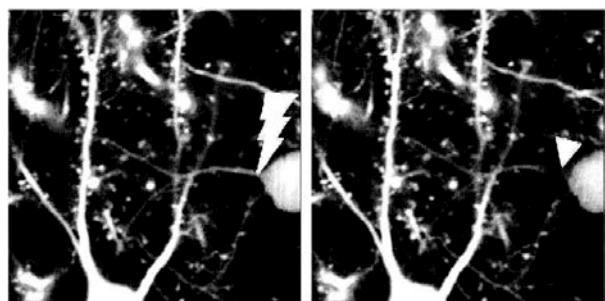


図2 マウス生体脳における神経線維の光切断

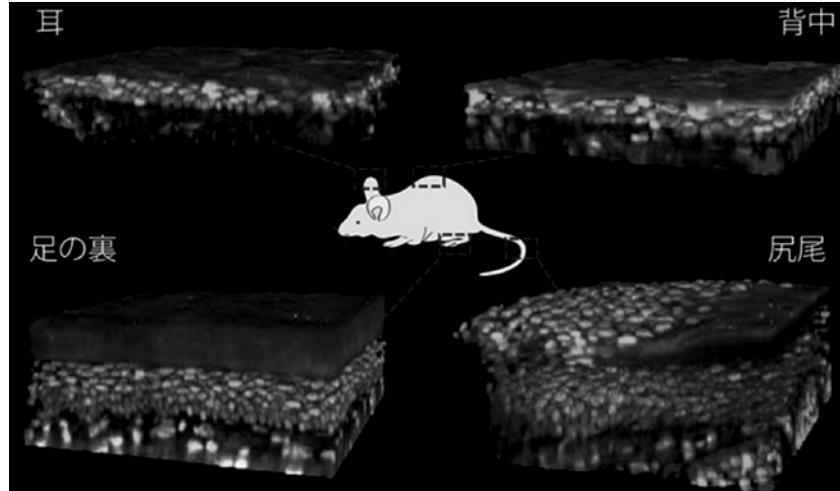


図3：*in vivo* 2光子顕微鏡法によるマウス皮膚における3次元ライブイメージング

の光破談の影響を評価するために、理研BSI・平瀬肇博士よりご提供いただいた、主としてアストロサイトにCa<sup>2+</sup>感受性蛍光タンパク質であるGCaMP7を発現するトランシジェニックマウスを用いて*in vivo* Ca<sup>2+</sup>イメージングを開発した。その結果、大脳新皮質深部でのCa<sup>2+</sup>振動のライブイメージングに成功した。なお本成果は「北海道大学大学院情報科学研究科・三上賞」、「第二回北大部局横断シンポジウム・ベストポスター賞」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、補償光学技術の開発に取り組んだ。特に、非対称な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。

また、物質・デバイス共同研究拠点事業を通じて、*in vivo*イメージングにおけるオープンスカル法の改善を目指し、東海大学工学部・岡村陽介准教授のグループと、ナノシートを用いて頭蓋骨の置換を行いという全く新しい手法の開発に着手した。その結果、「生体情報工学学生研究賞」を受賞した。

(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。新たにH2B-GFPを発現するヘアレスマウスを系統を樹立し、トランシジェニックマウスをのマウス皮膚の*in vivo*イメージングに成功した。その結果、基底細胞の分裂のライブイメージングとその3D解析により、皮膚の厚さと分裂方向に高い関係性が見られることが判明した(図3)。本成果は「北海道大学大学院情報科学研究科・吉本賞」の受賞につながった。

(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、名古屋市立大・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、微細なニューロンの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。

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、樹上突起スペイ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ペインの構造が変化する様子を解析することに成功した。

(e) 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(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。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(図3)。特に、液晶デバイスを用いて光渦を発生させることで、誘導放出抑制現象(STED)を利用し、2光子顕微鏡の空間分解能を上げ、2光子顕微鏡の超解像イメージング化の開発に成功した(図4)。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) (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。さらに新規917 nm高出力レーザーの導入により緑色系の蛍光分子や蛍光タンパク質への適用をはかることに成功した(図5)。

本方法論と先述の GCaMP7 を発現するトランシジェニックマウスを用いて膵臓外分泌腺および膵臓ランゲ

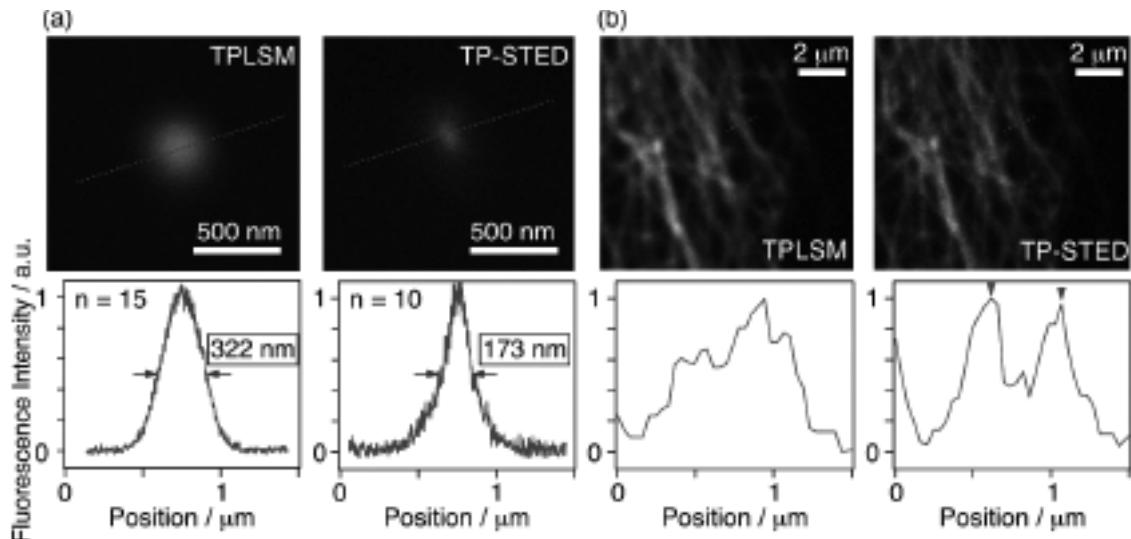


図4：2光子STED顕微鏡による超解像イメージングの比較。(a)微小蛍光ビーズ像、(b)固定したCOS7細胞の微小管の抗体蛍光染色サンプル。TPLSMは通常の2光子顕微鏡、TP-STEDは2光子STED顕微鏡による。

ルハンス氏島の *in vivo* Ca<sup>2+</sup>イメージングを開始した。長期間に渡って同一個体内部の同一の細胞の応答を追跡することが可能となった。さらに、阪大医・原田彰宏教授との共同研究では、膵臓外分泌腺細胞における消化酵素源の開口放出と膵臓ランゲルハンス氏島β細胞のインシュリン開口放出とSNARE分子SNAP23の作用機序の違いに関する知見を原著論文として出版した。

本法により、拠点アライアンス・コララボ村田隆客員教授との共同研究において、植物細胞における細胞分裂過程においての微小管の再構成の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。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」を受託し研究を進めた。

さらに開発した装置は、研究支援部ニコンイメージングセンターにおいてstation-5として共同利用に供しており、物質・デバイス共同研究拠点事業や、科学研究費補助金新学術領域先端バイオイメージング支援授業を通じて、多くのユーザーに利用をしていただいた。

### 3. 今後の研究の展望

今後の我々の研究目標は、生体脳・中枢神経系モデルにおいて、SNARE分子やその結合因子など、開口放出を引き起こす分子機械の機能解明とその生理機能、破綻として病理の理解にある。そのためには、この分子機械の有力な候補分子の動態、複合体形成などを同時多重可視化し、生合成分子の放出に伴う分子過程を定量化する方法論を開発することが重要である。また、これらの方法論を拡張し、が

ん組織、骨組織など多様な生組織の深部解像能を向上させ、可視化と光操作の同時実行による生体分子動態の高精度解析を可能としたい。その為に、このような実験を広く可能とするプラットホームの確立や研究コア・グループの形成が必要であろう。さらに、先述のように深部断層イメージングに成功しているマウス大脳新皮質と、その他の生体臓器との間の光学的な差異についても検討し、その結果を反映してレーザー顕微鏡の光学系の改良に努めることが肝要であろう。またマウス生体脳の*in vivo*イメージングは、神経回路網の機能がどのように実現されているのかを理解するためにも有用である。このように、イメージング技術を展開させることと、真の生体内部で生じている現象の定量

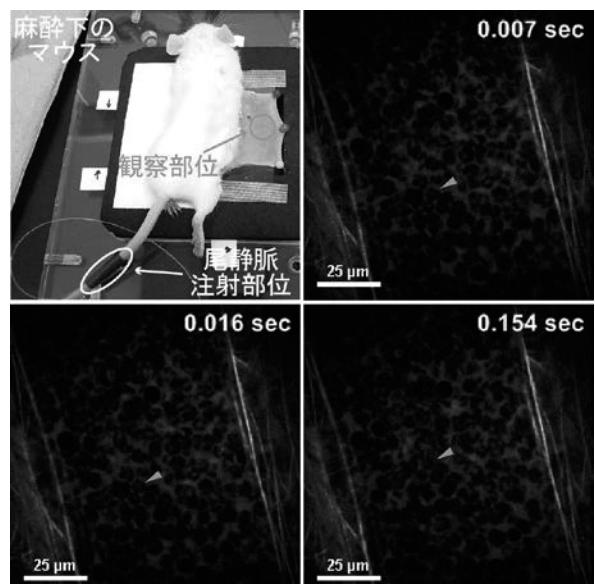


図5：二光子CSU顕微鏡によるマウス血流の*in vivo*超高速イメージング。

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（査読あり）

- 1) Sari Ipponjima, Terumasa Hibi, Tomomi Nemoto, "Three-dimensional analysis of cell division orientation in epidermal basal layer using intravital two-photon microscopy", PLoS One, vol. 11 (9), pp. e0163199-1 – e0163199-18 (2016).
- 2) Masataka Kunii, Mica Ohara-Imaizumi, Noriko Takahashi, Masaki Kobayashi, Ryosuke Kawakami, Yasumitsu Kondoh, Takeshi Shimizu, Siro Simizu, Bangzhong Lin, Kazuto Nunomura, Kyota Aoyagi, Mitsuyo Ohno, Masaki Ohmura, Takashi Sato, Shin-ichiro Yoshimura, Ken Sato, Reiko Harada, Yoon-Jeong Kim, Hiroyuki Osada, Tomomi Nemoto, Haruo Kasai, Tadahiro Kitamura, Shinya Nagamatsu, and Akihiro Harada, "Opposing roles for SNAP23 in secretion in exocrine and endocrine pancreatic cells", J. Cell Biol., vol. 215(1), pp. 121– 138 (2016)
- 3) Ayano Tanabe, Terumasa Hibi, Sari Ipponjima, Kenji Matsumoto, Masafumi Yokoyama, Makoto Kurihara, Nobuyuki Hashimoto, Tomoi Nemoto, "Transmissive liquid crystal device for correcting primary coma aberration and astigmatism in biospecimen in two-photon excitation laser scanning microscopy", J. Biomed. Opt., vol. 21(12), pp. 121503-1 – 121503-10 (2016)

### 4.2 学術論文（査読なし）

該当なし。

### 4.3 総説・解説・評論等

- 1) 大友康平、根本知己:「In vivo ナノ構造の可視化のための二光子顕微鏡法の超解像化」、レーザー研究、44(4):658–661 (2016)
- 2) 川上良介、根本知己:「2 光子励起蛍光を用いた脳の深部イメージング」、月刊オプトロニクス、35 (416):59–63 (2016)
- 3) 川上良介、山口和志、根本知己:「脳神経機能解明のための新規レーザー顕微鏡による生体脳深部のイメージング・光操作」、光アライアンス、27(7):1-4 (2016)

### 4.4 著書

- 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超解像化」、(岡田康志編)「実験医学別冊「初めてでもできる超解像イメージング」、pp.235-241、羊土社 (2016)

- 2) Kohei Otomo, Terumasa Hibi, Yuichi Kozawa, Sari Ipponjima, Shunichi Sato and Tomomi Nemoto: "Super-resolution two-photon excitation microscopy utilizing transmissive liquid crystal devices", in Alberto Diapro and Marc A. M. J. van Zandvoort (eds.), Super-resolution imaging in medicine and biology, inc., Chapter 10, pp: 189–214, Taylor & Francis Books (2016)

### 4.5 特許（発明者：特許番号、特許名、出願年月日） 該当なし。

### 4.6 講演

#### a. 招待講演（国際学会）

- 1) T. Nemoto, Plenary Talk, Three-dimensional observation in living specimens by multi-photon microscopy, Digital Holography & Information Photonics 2016 (DHIP2016)2016 Dec. 21, Sapporo convention center (Sapporo)
- 2) T. Nemoto , R. Kawakami, T. Hibi, A. Tanabe, "Two-photon Microscopy improved by Adaptive optics and new laser technology", 10th Anniversary International Symposium on Nanomedicine (ISNM2016), AIST, Tsukuba, Nov. 24, 2016,
- 3) T. Nemoto and K.Otomo, "Novel multiphoton microscopy by manipulating parameters of laser light", The 23rd Pacific Science Congress. Academia Sinica, Taipei, Taiwan, 2016 Jun 16
- 4) T. Nemoto, "Improvements and applications in "in vivo" multi-photon microscopy", The 2nd Biomedical Imaging and Sensing Conference 2016 (BISC'16), 2016 May 18–20, Pacifico Yokohama (JAPAN)
- 5) M. Tsutsumi, K. Kobayashi, K. Otomo, T. Nemoto, "Our recent works, Nikon Imaging Center at Hokkaido University (NIC@HU)", NIC directors' meeting, 2016/Oct/31, Harvard Medical School (Boston, USA) (研究支援部ニコソイメージングセンターと共に)
- 6) T. Nemoto and K.Otomo, "Improving "in vivo" two-photon microscopy imaging in living mouse brain", Academia Sinica Imaging Center Workshop, Academia Sinica, Taipei, Taiwan, 2016 Jun 15
- 7) T. Nemoto, R. Kawakami, T. Hibi, K. Otomo, S. Ipponjima, K. Sawada, A. Tanabe, "Intravital Light Microscopy Advanced by Novel Laser and Optical Technologies", The Fourth Japan-China Symposium on Nanomedicine, May 12–13, 2016, Kitakyushu International Conference Center, Kitakyushu, Japan

#### b. 招待講演（国内学会）

- 1) 根本知己:「新規レーザー技術を用いた2光子顕微鏡の改良と生体観察応用」、レーザー学会学術講演会第37回年次大会、徳島大学、2017年1月7–9日
- 2) 根本知己:「透過型液晶デバイスを用いた2光子顕微

- 鏡の超解像化」、2016年9月27日、第89回日本生化学会大会、仙台国際センター（宮城県仙台市）
- 3) 根本知己：「新規光技術を用いた多光子顕微鏡による生体イメージング」、第35回日本医用画像工学会大会、千葉大学、2016年7月23日
  - 4) Ayano Tanabe, Terumasa Hibi, Sari Ipponjima, Kenji Matsumoto, Masafumi Yokoyama, Makoto Kurihara, Nobuyuki Hashimoto, Tomomi Nemoto : "Correcting spherical aberration using a transmissive liquid crystal device in two-photon excitation laser scanning microscopy", 第39回日本神経科学会大会、パフィシコ横浜（神奈川県横浜市）,2016年7月20-22日
  - 5) 根本知己：「多光子励起顕微鏡法による生理機能の *in vivo* 可視化」量子生命科学セミナー、2017年3月21日、京都大学工学部（京都市）
  - 6) 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：「レーザー走査型蛍光顕微鏡における透過型液晶デバイスを用いた波面収差補正」第11回 NIBB バイオイメージングフォーラム「光学と生物学の融合によって切り拓く新しいバイオイメージング」、岡崎カンファレンスセンター（愛知県岡崎市）、2017年2月14日
  - 7) 根本知己：「新規レーザー光技術を用いた多光子顕微鏡と生理機能の可視化」日本顕微鏡学会先端光学顕微鏡分科会ワークショップ「先端光学顕微鏡技術・プロープ技術の開発による生命現象の理解」、東京大学医学部教育研究棟2階 第1・2セミナー室（東京都文京区）、2017年2月14日
  - 8) 根本知己：「*in vivo* 多光子顕微鏡の高解像化・超解像化」次世代脳シンポジウム、一橋大学一橋講堂(東京都千代田区)、2016年12月20日
  - 9) 川上良介、根本知己：「脳神経科学に向けた *in vivo* 2光子顕微鏡法の改良」第5回ニューロフォトニクス研究会（レーザー学会第498回研究会）、東京農工大（東京都小金井市）、11/19
  - 10) 大友 康平、根本 知己：「二光子顕微鏡法の高解像化、高速化」第四回アライアンス若手研究交流会、北海道大学（札幌市）、2016年11月9日
  - 11) 根本知己：「新規レーザービームを用いた多光子顕微鏡の高度化と応用」理研シンポジウム「第4回光量子工学研究」 10/31、理化学研究所（埼玉県和光市）
  - 12) 根本知己：「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」新学術領域平成28年度班会議、2016年7月26日
  - 13) 大友康平：「2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」東北大学 学際フロンティア研究所 主催 第一回フロンティアバイオイメージング研究会、東北大学 学際科学フロンティア研究所 1階大セミナー室（宮城県 仙台市）2016年7月20日
  - 14) 大友康平：「新規光学技術によるレーザー走査型顕微鏡の高度化と生物学応用」生化学若手の会、生物物理若手の会 合同企画 蛍光イメージングセミナー～基礎から応用まで～、北海道大学 理学部 5号館 2階 5-205（北海道 札幌市）2016年7月1日】
  - 15) 大友康平、川上良介、根本知己：「新しい技術の導入による二光子励起蛍光顕微鏡の高度化」量子科学技術研究開発機構セミナー、量子科学技術研究開発機構、関西光科学研究所（京都府・木津川市）2016年6月2日
- c. 一般講演（国際学会）
- 1) Ayano Tanabe, Terumasa Hibi, Sari Ipponjima, Kenji Matsumoto, Masafumi Yokoyama, Makoto Kurihara, Nobuyuki Hashimoto, Tomomi Nemoto, "Correcting wave-front aberration using a transmissive liquid crystal device in two-photon excitation laser scanning microscopy", Digital Holography & Information Photonics 2016 (DHIP2016) 2016 Dec. 21, Sapporo Convention Center (Sapporo)
  - 2) Jui-Hung Hung, Yi-Cheng Fang, Tomomi Nemoto, Shunichi Sato, Lung-Han Peng, Hiroyuki Yokoyama : "Generation of sub-nanosecond 650-nm optical pulses having a peak-power of over 10 W at 1-MHz repetition-rate based on semiconductor laser diodes", Optics & Photonics Taiwan, the International Conference (OPTIC 2016), National Taiwan University of Science and Technology (Taiwan Tech) , Taipei, Taiwan, 2016 Dec. 03-05
  - 3) Toshihiro Imada, Shigeru Nakamura, Ryuji Hisamura, Yusuke Oshima, Tomomi nemoto, and Kazuo Tsubota : "In vivo imaging of Ca<sup>2+</sup> dynamics in lacrimal gland of Yellow Cameleon-Nano transgenic mice.", The Association for Research in Vision and Ophthalmology (ARVO) 2016, The Washington State Convention Center, Seattle (USA) , May 5, 2016
- d. 一般講演（国内学会）
- 1) M. Izumi, K. Otomo, S. Nakamura, J. Hidema, T. Nemoto, H. Ishida "Live cell imaging analysis of piecemeal autophagy for chloroplast degradation in *Arabidopsis* leaves", 第58回日本植物生理学会年会. 鹿児島 (2017-03)
  - 2) 村田隆、大友康平、日比輝正、中山博史、根本知己、長谷部光泰：「紡錘体形成機構のマルチカラー3Dタイマラップス解析」日本植物学会第80回大会、沖縄コンベンションセンター（沖縄県宜野湾市）、那覇市、2016年9月16日 (コア連携ラボとの共著)
  - 3) Jui-Hung Hung, Yi-Cheng Fang, Tomomi Nemoto, Shunichi Sato, Lung-Han Peng, Hiroyuki Yokoyama : "Generation of multi-nano-Joule 650 nm optical pulses based on a synchronously driven gain-switched 1300 nm

- laser diode”, 第77回日本応用物理学会秋季学術講演会、2016年9月13日、新潟県新潟市、朱鷺メッセ
- 4) 山中祐実、日比輝正、小澤祐市、大友康平、田辺綾乃、橋本信幸、根本知己：「トップハット型レーザービームを用いた多点走査型2光子顕微鏡の開発」日本顕微鏡学会第72回学術講演会、2016年6月14日、仙台国際センター（仙台市青葉区）
- 5) 日本語の場合はこのフォントで。スタイルは任意。
- 6) If the talk was performed in English, please use this font.  
The style is any.
- e. 研究会・シンポジウム・ワークショップなど（学会以外）
- 1) Sari Ipponjima, Terumasa Hibi, Tomomi Nemoto, poster: “3D analysis of basal cell division in living mouse using two-photon microscopy”, HOKUDAI-NCTU Joint Symposium on Nano, Photo and Bio Sciences in 2016, Hokkaido University, Sapporo, Oct. 4, 2016
- 2) Kazushi Yamaguchi, Ryoji Kitamura, Ryosuke Kawakami and Tomomi Nemoto: “Adjustments of Two-photon Excitation Laser Irradiation Conditions Dramatically Improve in vivo Deep Mouse Brain Imaging”HOKUDAI-NCTU Joint Symposium on Nano, Photo and Bio Sciences in 2016, Hokkaido University, Sapporo, Oct. 4, 2016
- 3) Y. Yamanaka, T. Hibi, Y. Kozawa, K. Otomo, A. Tanabe, N. Hashimoto, T. Nemoto “Pancreatic cells imaging utilizing multi-point scanning two-photon microscopy”, the 16th RIES International Symposium, Sapporo (2016-12).
- 4) T. Murata, K. Otomo, H. Nakayama, T. Nemoto, M. Hasebe “3-Dimensional analyses of microtubule organization in cortical arrays of plant cells”, The 1st ABiS Symposium Towards the Future of Advanced Bioimaging for Life Sciences, Okazaki (2017-02).
- 5) Y. Yamanaka, K. Otomo, T. Hibi, Y. Kozawa, A. Tanabe, T. Hori, H. Nakayama, N. Hashimoto, S. Sato and T. Nemoto “Development of multi-point scanning two-photon microscopy and application for in vivo imaging of pancreas”, The 1st ABiS Symposium Towards the Future of Advanced Bioimaging for Life Sciences, Okazaki (2017-02).
- 6) M. Tsutsumi, K. Kobayashi, K. Otomo, Y. Matsuo and T. Nemoto “Imaging Support in Nikon Imaging Center at Hokkaido University”, The 1st ABiS Symposium Towards the Future of Advanced Bioimaging for Life Sciences, Okazaki (2017-02). (ニコンイメージングセンターと共著)
- 7) 大友康平、山中祐実、後藤亜衣、渡邊裕貴、根本知己：「多点走査型二光子顕微鏡の技術開発と生物学応用」、第2回北大・部局横断シンポジウム、2017年

- 3月14日、北海道大学医学部（北海道・札幌市）
- 8) 山口 和志、川上良介、根本知己、ボスター：in vivo 「2光子顕微鏡法を用いたマウス生体脳深部における單一神経線維破断」、第2回北大・部局横断シンポジウム、2017年3月14日、北海道大学医学部（北海道・札幌市）
- 9) 堤元佐、小林健太郎、大友康平、松尾保孝、根本知己「ニコンイメージングセンターにおけるイメージング支援」第2回北大・部局横断シンポジウム、札幌（2017-03）。(ニコンイメージングセンターと共に著)

#### 4.7 シンポジウムの開催

- 1) ファイブスター・ライアンス・北海道大学ニコンイメージングセンター公開シンポジウム「多様な生命機能の可視化解析と操作技術の展開」オーガナイザー、北海道大学（札幌市）2016年12月1日（ニコンイメージングセンターと共に著）
- 2) ダイナミックアライアンス G3 分科会、オーガナイザー、2016年12月2-3日
- 3) 「第54回生物物理学学会シンポジウム」「生体分子—電磁波間の共鳴を活用する最先端バイオイメージング」オーガナイザー、つくば国際会議場（つくば市）2016年11月25-27日
- 4) 10th Anniversary International Symposium on Nanomedicine (ISNM2016) 運営委員,AIST (Tsukuba) 2016年11月24-26日
- 5) 北海道大学ニコンイメージングセンターセミナー「第5回蛍光バイオイメージング・ミニシンポジウム」、北海道大学工学部（札幌市）、2016年9月30日（ニコンイメージングセンターと共に著）

#### 4.8 共同研究

##### a. 所内共同研究

- 1) 研究支援部ニコンイメージングセンター

##### b. 民間等との共同研究

- 1) シチズン時計（株）  
2) ニコンインステック（株）  
3) ニコン（株）  
4) 横河電機（株）  
5) イムラ・アメリカ

##### c. 委託研究

該当なし。

##### d. 国際共同研究

該当なし。

#### 4.9 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、基盤研究 A 一般、新規レーザー技術を駆使した神経・分泌機能の *in vivo* 超解像イメージングの開発、2014～2017 年度
- 2) 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
- 3) 寺野方伸、新学術領域研究、先端バイオイメージング支援プラットフォーム、2016～2020 年度（分担）
- 4) 大友康平、挑戦的萌芽研究、生きた脂質微小ドメインを可視化する高速超解像顕微鏡法の開発、2016～2017 年度
- 5) 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

##### b. 大型プロジェクト・受託研究

- 1) 根本知己、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」、2014～2018 年度
- 2) 川上良介、長期 *in vivo* 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、2010～2016 年度

#### 4.10 受賞

- 1) 平成 28 年度「科研費」審査委員 表彰、平成 28 年 9 月 30 日、日本学振興会
- 2) 山口 和志、川上良介、根本知己、ポスター：*in vivo* 2 光子顕微鏡法を用いたマウス生体脳深部における单一神經線維破断第二回北大部局横断シンポジウム、ベストポスター賞、2017 年 3 月 14 日
- 3) 高橋泰伽、生体情報工学学生研究賞、2017 年 2 月 13 日
- 4) 一本嶋佐理、北海道大学大学院情報科学研究科、吉本賞、2017 年 2 月 13 日
- 5) 山口和志、北海道大学大学院情報科学研究科、三上賞、2017 年 2 月 10 日

#### 4.11 社会教育活動

##### a. 公的機関の委員

- 1) 根本 知己：(独)日本学術振興会、専門委員(2014年～2016年)

##### 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)

- 4) 根本 知己：日本バイイメージング学会 評議員(2017 年 1 月 1 日～現在)

##### c. 兼任・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. 外国人研究者の招聘

該当なし。

##### 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、量子力学、根本 知己、2016 年 06 月 01 日～2016 年 08 月 30 日
- 2) 情報科学研究科、脳神経科学特論、根本 知己、2016 年 04 月 01 日～2016 年 05 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) 全学共通学部科目、環境と人間、根本 知己、2016 年 06 月 24 日

##### f. 北大以外での非常勤講師（対象、講義名、担当者、期間）

該当なし。

##### g. 新聞・テレビ等の報道

- 1) 2016/11/03, Asian Scientist, “The Science Of Thick Skin”, <http://www.asianscientist.com/2016/11/in-the-lab/3d-imaging-skin-thickness-body/>
- 2) 2016/10/18, ResearchSEA, “Why is skin thick on the soles of the feet?”, [http://www.researchsea.com/html/article.php/aid/10117/cid/3/research/medicine/hokkaido\\_university/why\\_is\\_skin\\_thick\\_on\\_the\\_soles\\_of\\_the\\_feet\\_.html](http://www.researchsea.com/html/article.php/aid/10117/cid/3/research/medicine/hokkaido_university/why_is_skin_thick_on_the_soles_of_the_feet_.html)
- 3) 2016/10/18, Phys.org, “Why is skin thick on the soles of the feet?”, <http://phys.org/news/2016-10-skin-thick-soles-feet.html>
- 4) 2016/10/18, e! Science, “Why is skin thick on the soles of the feet?”, <http://news.e!science.com/sources/physorg/2016/10/18/why.skin.thick.soles.feet>,
- 5) 2016/10/21, 北海道医療新聞、インスリン分泌の阻害機序解明-糖尿病治療、新薬開発に期待
- 6) 2016/10/18, “AlphaGalileo”, “Why is skin

thick on the soles of the feet?"

<http://www.alphagalileo.org/View-Item.aspx?ItemId=169077&CultureCode=en>

- 7) 2016/10/04、北海道新聞、インスリン增加 物質特定 -阪大、北大 糖尿病治療に期待
- 8) 2016/10/03、東京新聞、インスリン増やす物質特定 糖尿病治療に期待
- 9) 2016/10/03、朝日新聞「仕事遅い分子」がインスリン分泌抑制 阪大など発見
- 10) 2016/10/05、日本経済新聞、インスリン増やす物質特定 阪大チーム、マウス実験で-
- 11) 2016/10/06、大学ジャーナルオンライン、細胞膜のタンパク質がインスリン分泌を阻害、糖尿病新薬の可能性
- 12) 2016/10/03、長崎新聞インスリン増やす物質特定

#### h. ポスドク・客員研究員など

- 1) 飯島光一朗(特任助教)
- 2) 青柳佑佳(日本学術振興会特別研究員DC1)、澤田和明(日本学術振興会特別研究員DC1)

#### i. 修士学位及び博士学位の取得状況

修士学位 (1) :

- 1) 山口 和志:マウス生体脳深部における単一神経線維破断法の確立

博士学位 (2) :

- 1) 一本嶋佐理:新規2光子励起顕微鏡法を用いた表皮の恒常性維持に関する研究
- 2) 田辺綾乃:透過型液晶デバイスを用いたレーザー走査型蛍光顕微鏡における波面収差補正に関する研究

## 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、

田崎太悠、中村聰、

修士課程 鈴木重明、鳥居悠

学部生 濱島暁

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誘起する機能増強あるいは機能創発、および異方的な形状をしたナノ粒子の光学機能やバイオ応用が注目されている。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ーの開発につなげることをめざしている。平成28年度は、異方的な構造を有する金ナノ粒子の光学機能制御とバイオ応用に関する研究において顕著な成果を挙げた。

## 2. 研究成果

### (a) DNA固定化表面を利用した金ナノロッドの垂直配向固定化

金や銀などの貴金属のナノ粒子は、光照射によって自由電子の協同的な振動が励起され（プラズモン共鳴現象）、蛍光やラマン散乱の増強、光触媒活性などを示す有用な材料として注目されている。この金属ナノ粒子で起こる表面プラズモン共鳴（SPR）は、粒子の大きさや形状に依存し、ロッド状の金ナノ粒子などの異方的な形状の粒子では複数のプラズモン吸収ピークを示す。特に、長波長側でみられるLongitudinal SPRは短波長側のTransverse SPRよりも高感度であり、また形状（ロッド状ナノ粒子ではアスペクト比）により波長を制御可能であることなどから、その応用が検討されている。一方で、異方性ナノ粒子を用いてLongitudinal SPRを効果的に利用する場合、その配向を制御することが重要になる。これまで、金ナノロッドを自己集合化させることで配向が揃った集合体の作製などが報告されているが、粒子の密度や配向度合いを制御するには至っていない。

我々はこれまで、基板上にDNAを片末端で固定化し、機能性界面としての利用を検討してきた。DNAはアニオン性を有し、二重らせん構造を形成する剛直な高分子であるため、比較的低密度状態においても、高分子ブラシのような配向状態を形成しやすいと考えられる。そのため、DNA固

定化基板を用い、金ナノロッドを静電的に吸着させることで、金ナノロッドの密度や配向状態を制御できるのではないかと期待された。そこで本研究では、片末端にビオチンを有する148 bp（長さ50 nm程度）のDNAを調製し、ストレプトアビジン基板上に固定化した。この基板にカチオン性リガンドで被覆した金ナノロッド（約10 nm x 34 nm）を吸着させ、スペクトル測定を行った（図1）。その結果、金ナノロッド表面のカチオン被覆量（割合）に依存して、Longitudinal SPRのシグナルが大きく変化することが確認された（図2）。本結果は、静電相互作用の強さによって金ナノロッドの基板表面上での配向が変わることを示唆しており、コロイド界面科学の観点からも非常に興味深い。また、金ナノロッドの固定化量を300, 1000, 2500 particles/ $\mu\text{m}^2$ と変えて、垂直配向する様子が観察された。本方法は、ロッド状ナノ粒子の密度および配向度合いを制御する新たな手法として、応用展開が期待される。

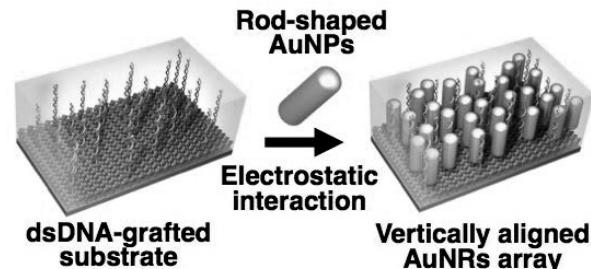


図1. 静電相互作用を利用したDNA固定化基板へのカチオン性金ナノロッドの固定化による垂直配向金ナノロッドアレイの作製の模式図

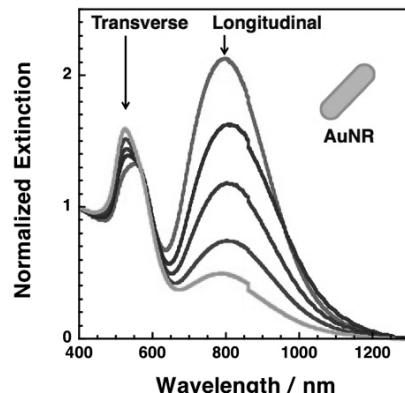


図2. DNA固定化基板へ固定化された金ナノロッドの消光スペクトル（400 nmの消光度を1になるように規格化）

### (b) 三角形金ナノプレートの細胞取り込み

近年、目的とした細胞内へ薬剤を輸送するドラッグデリバリーシステム（DDS）に関する研究が盛んに行われている。DDSにおいて重要な点は、細胞膜という障壁を効率よく突破することであり、そのための様々な研究が報告されている。その中でもキャリアーを用いる方法が数多く報告されている。代表的なキャリアーとして、リポソーム、カーボンナノチューブや量子ドット等が主に用いられているが、それらのキャリアーの作製においては、薬剤内包効率

が悪いことや、キャリアー自体の細胞毒性が高いことが知られており、新たなキャリアーの開発が望まれている。

我々は、キャリアーにおけるこれらの問題を解決するために、金ナノ粒子に着目している。金ナノ粒子は、サイズや形状のコントロールが容易であり、また生体適合性が高いことから、薬剤キャリアーとして DDS のみならず治療や診断にも用いられている。細胞内への金ナノ粒子の取り込みは主にエンドサイトーシス経路により、金ナノ粒子のサイズや形状によりエンドサイトーシスの効率が変化することが知られている。しかしながら、金ナノ粒子の形状やサイズが細胞への取り込みに及ぼす影響については未だ不明な点が多い。サイズや形状の効果を明確にすることで、薬剤伝達キャリアーの課題を克服できるのではないかと考えられる。

金ナノ粒子の細胞取り込みにおいては、(1) 細胞膜への接着及び (2) 細胞の能動的な取り込みという 2 つの過程を必要とする。金ナノ粒子の形状の中で、細胞への接着には平たい構造が、細胞の能動的な取り込みにおいてはシャープな構造が有利であることがシミュレーションにより明らかになりつつある。そこで本研究では、細胞膜との相互作用を詳細に解析すること及び細胞内への輸送効率を上げることを目的として金ナノ粒子の形状の効果を調べた。特に三角形金ナノプレートに着目し、その細胞取り込みについて詳細に解析した (図 3)。

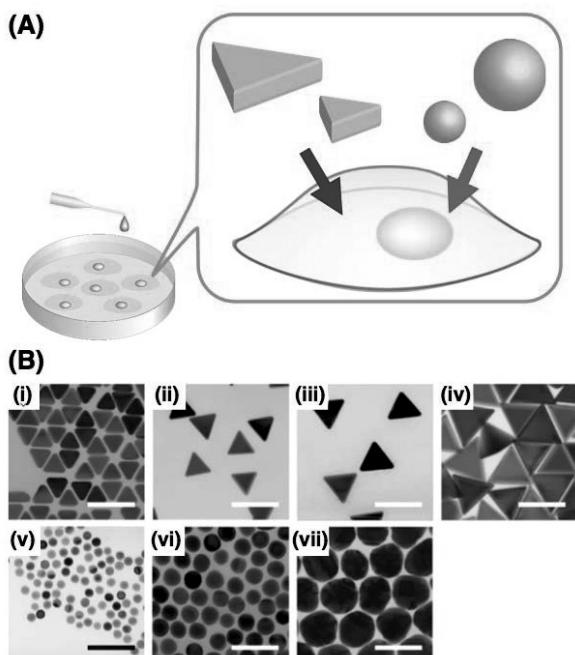


図 3. (A) 様々な大きさの三角形金ナノ粒子および球状金ナノ粒子の細胞取り込み実験の模式図と(B)実験に用いた金ナノ粒子の透過型電子顕微鏡像 (スケールバーは 100 nm)

その結果、三角形プレート状ナノ粒子はサイズが大きくなるほど細胞内に取り込まれやすくなるという、球状粒子とは反対の相関を示す興味深い結果が得られた (図 2)。マウスのマクロファージ由来の細胞である RAW264.7 にお

いても、ヒト子宮頸がん由来の HeLa 細胞においても同様の傾向が見られているが、取り込みの形状依存性は HeLa 細胞のほうが顕著であった。これは外部から積極的に物質を取り込むマクロファージのような細胞でも効果はあるが、特に外部からの物質の取り込み能が高くなき細胞において重要な効果が期待できるという点で DDS のキャリアーとしての応用が期待できる成果であった。また、より表面積の大きな粒子はより多くの量の薬剤を表面に固定化して送達できるため、この観点からも三角形プレート状ナノ粒子は今後のバイオ応用に有効であると期待される。

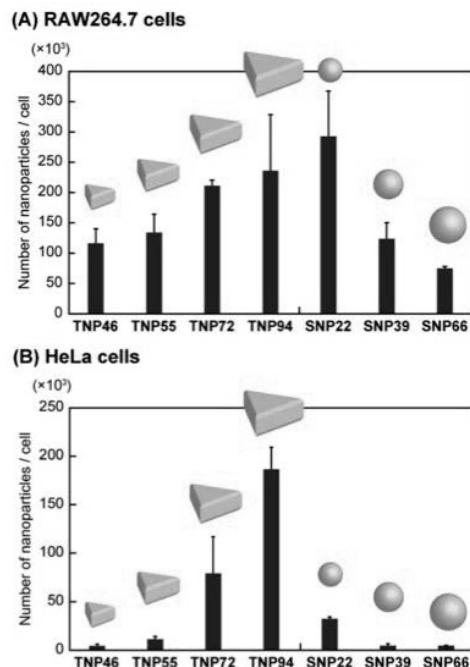


図 4. 様々な大きさの三角形金ナノ粒子および球状金ナノ粒子の細胞取り込み実験の結果. (A) RAW264.7 細胞への取り込み量 (B) HeLa 細胞への取り込み量

### 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は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。最近は特に、表面修飾を利用した界面制御のみならず、ナノ粒子の形状にも着目して研究を発展させている。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（査読あり）

- 1) K. Nambara, K. Niikura, H. Mitomo, T. Ninomiya, C. Takeuchi, J. Wei, Y. Matsuo, and K. Ijiro: "Reverse Size Dependences of the Cellular Uptake of Triangular and Spherical Gold Nanoparticles", *Langmuir*, **32**(47), 12559–12567 (2016)  
(ナノテク連携推進室との共著)
- 2) K. Sano, K. Iijima, N. Nakayama, K. Ijiro, and Y. Osada: "Efficient Cellular Protein Transduction Using a Coiled-coil Protein Carrier", *Chemistry Letters*, **46**(5), 719–721 (2017)

### 4.2 学術論文（査読なし）

該当なし

### 4.3 総説・解説・評論等

- 1) 居城邦治、三友秀之：「ナノボア(ナノサイズの穴)を用いた単分子センシング」、*バリティ Parity*, **31**(6), 23–31 (丸善出版) (2016)

### 4.4 著書

- 1) H. Mitomo, K. Niikura, K. Ijiro: "Stimuli-responsive structure control of gold nanoparticle assembly", *Stimuli-Responsive Interfaces -Fabrication and Application-*, (Springer) Chapter 8, 127–145 (2017)

### 4.5 特許（発明者：特許番号、特許名、出願年月日）

該当なし

### 4.6 講演

#### a. 招待講演（国際学会）

- 1) K. Ijiro\*, S. Nakamura, H. Mitomo, A. Pike, Y. Matsuo, K. Niikura: "Self-assembled alignment of nanorod by using DNA brush", SPIE Optics + Photonics, San Diego, California, USA (2016–8)
- 2) K. Ijiro\*: "Self-assembled 2D Monolayers and 3D Vesicle of Au Nanoparticles for Photonic and Biomedical Applications", KJF-ICOME 2016, Fukuoka, Japan (2016–9)
- 3) S. Nakamura, H. Mitomo, Y. Matsuo, K. Niikura, K. Ijiro\*, A. Pike: "DNA Brush-Directed Vertical Alignment of Au Nanorod", 12th IUPAC International Conference on Novel Materials and their Synthesis(NMS-XII), Changsha, China (2016–10)

#### b. 招待講演（国内学会）

- 1) 居城邦治\*：「バイオテンプレートを用いたナノ構造組織体の設計」、第65回高分子討論会、神奈川大学横浜キャンパス (2016–9)
- 2) 居城邦治\*：「ダイナミックなナノ粒子アセンブリング

による生体分子の表面増強ラマン散乱計測」、日本分析化学会第65年会、北海道大学工学部 (2016–9)

#### c. 一般講演（国際学会）

- 1) H. Mitomo\*, K. Horie, Y. Matso, K. Niikura, K. Ijiro: "Dynamic change of self-assembled metal nanoparticle film providing a highly functional application", 16th International Conference on Organized Molecular Films (ICOMF16) – LB16, Helsinki, Finland (2016–7)
- 2) S. Nakamura\*, H. Mitomo, Y. Matso, K. Niikura, K. Ijiro: "Vertical alignment of Au nanorods using DNA brush", 16th International Conference on Organized Molecular Films (ICOMF16) – LB16, Helsinki, Finland (2016–7)
- 3) H. Mitomo\*, S. Nakamura, Y. Matsuo, K. Niikura, K. Ijiro: "Tuning of anisotropic optical properties of gold nanorods by immobilization on DNA brush substrates", KJF-ICOME 2016, Fukuoka, Japan (2016–9)
- 4) H. Mitomo\*, S. Nakamura, Y. Suzuki, Y. Matsuo, K. Niikura, and K. Ijiro: "Metal Pattern formations templated on DNA brushes", AsiaNANO 2016, Sapporo, Japan (2016–10)
- 5) S. Nakamura\*, H. Mitomo, Y. Matsuo, K. Niikura, K. Ijiro: "Immobilization of AuNRs by assistance of a DNA brush", AsiaNANO 2016, Sapporo, Japan (2016–10)
- 6) J. Wei\*, K. Niikura, H. Mitomo, K. Ijiro: "Formation of gold nanoparticle vesicles induced by electrostatic repulsive interaction between gold nanoparticles", AsiaNANO 2016, Sapporo, Japan (2016–10)
- 7) R. Iida\*, K. Niikura, H. Mitomo, K. Ijiro: "Thermoresponsive assembly of gold nanospheres and nanorods", AsiaNANO 2016, Sapporo, Japan (2016–10)
- 8) Y. Torii\*, N. Sugimura, K. Niikura, H. Mitomo and K. Ijiro: "Size controllable co-assembly of gold nanoparticle with poly(sodium 4-styrenesulfonate)", AsiaNANO 2016, Sapporo, Japan (2016–10)
- 9) S. Emoto\*, Y. Hirai, Y. Matsuo, H. Mitomo, K. Niikura, K. Ijiro: "Surface-enhanced Raman scattering properties of titanium nitride nanostructure", AsiaNANO 2016, Sapporo, Japan (2016–10)
- 10) K. Nambara\*, K. Niikura, H. Mitomo, T. Suzuki, A. Ainai, Y. Ohara, and K. Ijiro: "Cellular Uptakes of Antigen-coated Triangular Gold Nanoparticles and the Vaccine Activity", AsiaNANO 2016, Sapporo, Japan (2016–10)
- 11) T. Tazaki\*, K. Niikura, T. Suzuki, A. Ainai, Y. Ohara, S. Kobayashi, Y. Orba, H. Mitomo, H. Sawa and K. Ijiro: "Gold nanorods are effective as template for dsRNA adjuvant of nasal influenza vaccine", AsiaNANO 2016, Sapporo, Japan (2016–10)
- 12) J. Wei\*, K. Niikura, H. Mitomo, K. Ijiro: "Formation of Gold Nanoparticle Vesicles by Fluorinated Surface Ligand

- in Solution”, 12th IUPAC International Conference on Novel Materials and their Synthesis(NMS-XII), Changsha, China (2016-10)
- 1 3) K. Ijiro\*, S. Nakamura, H. Mitomo, Y. Matsuo and K. Niikura: “DNA Brush-Directed Self-Assembly of Gold Nanorods into Vertically Aligned Arrays”, The 11th SPSJ International Polymer Conference (IPC 2016), Fukuoka, Japan (2016-12)
- d. 一般講演（国内学会）
- 1) 田崎太悠\*、新倉謙一、鈴木忠樹、相内章、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核酸アジュバントの活性増強」、第 65 回高分子学会年次大会、神戸国際会議場 (2016-5)
  - 2) S. Nakamura\*, H. Mitomo, Y. Matsuo, K. Niikura, K. Ijiro: “Immobilization of AuNR aligned by DNA brush substrate”、第 65 回高分子学会年次大会、神戸国際会議場 (2016-5)
  - 3) 新倉謙一\*、田崎太悠、南原克行、大原有樹、鈴木忠樹、相内章、長谷川秀樹、澤洋文、大場靖子、小林進太郎、三友秀之、居城邦治：「ナノ粒子を使ったインフルエンザ経鼻ワクチンの開発」、第 26 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 (2016-7)
  - 4) 鳥居悠\*、杉村尚俊、新倉謙一、三友秀之、居城邦治：「局所正電荷をもつ金ナノ粒子を用いたウイルス様自己集合」、第 26 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 (2016-7)
  - 5) 南原克行\*、新倉謙一、三友秀之、大原有樹、相内章、鈴木忠樹、二宮孝文、居城邦治：「細胞取り込みにおける三角形金ナノプレートの特徴」、第 10 回バイオ関連化学シンポジウム、石川県立音楽堂 (2016-9)
  - 6) 飯田良、三友秀之\*、新倉謙一、居城邦治：「曲率依存性を示す金ナノ粒子の温度応答性自己集合化」、第 65 回高分子討論会、神奈川大学横浜キャンパス (2016-9)
  - 7) 鳥居悠\*、杉村尚俊、新倉謙一、三友秀之、居城邦治：「オリゴエチレングリコール被覆金ナノ粒子とアニオン性高分子の pH 依存的複合体形成」、第 65 回高分子討論会、神奈川大学横浜キャンパス (2016-9)
  - 8) 佐野健一\*、居城邦治、長田義仁：「生物と材料の相互作用に学ぶ機能性材料の創製」、第 65 回高分子討論会、神奈川大学横浜キャンパス (2016-9)
  - 9) 田崎太悠\*、南原克行、新倉謙一、鈴木忠樹、相内章、大原有樹、小林進太郎、大場靖子、三友秀之、澤洋文、居城邦治：「金ナノ粒子による経鼻インフルエンザワクチンの活性増強に対する形状の効果」、第 65 回高分子討論会、神奈川大学横浜キャンパス (2016-9)
  - 10) J. Wei, K. Niikura\*, H. Mitomo, K. Ijiro: "Yolk/shell assembly of gold nanoparticles by size segregation in solution", 第 67 回コロイドおよび界面化学討論会、北海道教育大学旭川校 (2016-9)
- 1 1) 飯田良\*、新倉謙一、三友秀之、居城邦治：「球状及び異方性金ナノ粒子の温度応答性自己集合化」、第 67 回コロイドおよび界面化学討論会、北海道教育大学旭川校 (2016-9)
- 1 2) 飯田良\*、新倉謙一、三友秀之、居城邦治：「サイズ・形状依存性を示す金ナノ粒子の温度応答性自己集合化」、第 6 回 CSJ 化学フェスタ 2016、タワーホール船堀 (2016-11)
- 1 3) 鳥居悠\*、杉村尚俊、新倉謙一、三友秀之、居城邦治：「PEG 被覆金ナノ粒子とアニオン性高分子の pH 依存的な集合化挙動」、第 6 回 CSJ 化学フェスタ 2016、タワーホール船堀 (2016-11)
- 1 4) 飯田良\*、新倉謙一、三友秀之、居城邦治：「オリゴエチレングリコール誘導体で被覆された温度応答性金ナノ粒子：粒径及び形状の効果」、日本化学会第 97 春季年会、慶應義塾大学日吉キャンパス (2017-7)
- 1 5) 濱島暁\*、三友秀之、松尾保孝、新倉謙一、居城邦治：「ゲル表面に配置した金微細構造のギャップ制御と電子顕微鏡による直接観」、日本化学会第 97 春季年会、慶應義塾大学日吉キャンパス (2017-7)
- e. 研究会・シンポジウム・ワークショップなど（学会以外）
- 1) K. Ijiro\*, H. Mitomo, S. Nakamura, Y. Suzuki, A. Eguchi, Y. Matsuo, K. Niikura: “DNA brushes as functional interfaces for bio/nano applications”, The First International Symposium on Advanced Soft Matter, Sapporo, Japan (2016-6) (招待講演)
  - 2) 新倉謙一\*：“金ナノ粒子のベシクル状集合体と相分離構造解析”、文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム事業微細構造解析プラットフォーム 2016 年度 第 1 回ワークショップ、ウインクあいち (2016-8) (招待講演)
  - 3) 新倉謙一\*：“金ナノ粒子の自己集合を誘起する粒子表面分子の開発”、PCXSS ワークショップ、北海道大学 (2016-9) (招待講演)
  - 4) K. Niikura\*: “Surface Engineering of Gold Nanoparticles for Functional Self-Assembly”, RIKEN CEMS Topical Meeting “Nanoparticles / Nanotubes / Nanosheets”, Wako, Japan (2016-9) (招待講演)
  - 5) K. Ijiro\*: “Salmon DNA-based Preparation of Nanomaterials”, The 17th Chitose International Forum on Photonics Science & Technology (CIF17), Chitose, Japan (2016-11) (招待講演)
  - 6) K. Ijiro\*: “Self-assembled Nanoparticles as Photonic and Biological Nanomaterials”, International Symposium on Materials for Chemistry and Engineering (IMCE 2017), Fukuoka, Japan (2017-2) (招待講演)

- 7) H. Mitomo\*, K. Horie, Y. Matsuo, K. Niikura, K. Ijiro: "Active gap tuning of metal nano-pattern on hydrogel for sensitive detection of biomacromolecules by surface enhanced Raman spectroscopy", The First International Symposium on Advanced Soft Matter, Sapporo, Japan (2016-6)
- 8) R. Iida\*, H. Mitomo, Y. Matsuo, K. Niikura, K. Ijiro: "Thermoresponsive assembly of anisotropic gold nanoparticles covered with oligo(ethylene glycol) derivatives with an alkyl head", The First International Symposium on Advanced Soft Matter, Sapporo, Japan (2016-6)
- 9) S. Nakamura\*, H. Mitomo, Y. Matsuo, K. Niikura, K. Ijiro: "Vertical immobilization of AuNRs by assistance of a DNA brush", The 17th Ries-Hokudai International Symposium 柔, Sapporo, Japan (2016-12)
- 10) Y. Torii\*, N. Sugimura, K. Niikura, H. Mitomo, K. Ijiro: "pH-responsive assembly of oligoethylene glycol-coated gold nanoparticles and poly acrylic acid", The 17th Ries-Hokudai International Symposium 柔, Sapporo, Japan (2016-12)

#### 4.7 シンポジウムの開催

- 1) 居城 邦治: "AsiaNANO 2016", Sapporo Convention Center (Sapporo, Japan) (2016年10月10-13日)

#### 4.8 共同研究

##### a. 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-)

##### b. 民間等との共同研究

- 1) 居城 邦治 (日本工業大学) : 「ナノ構造体を利用した細胞透過性 DDS 担体の開発」、2016年度、佐野健一
- 2) 居城 邦治 (北見工業大学) : 「ピロメリット酸ジエステルをモノマーに用いた全芳香族ポリイミド微粒子の合成」、2016年度、渡邊眞次
- 3) 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」、2016年度、木村-須田 廣美
- 4) 居城 邦治 (富士フィルム株式会社) : 「金属ナノ粒子集合体の新奇な光学的特性の研究」、2016年度、納谷 昌之
- 5) 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~2016年

##### c. 委託研究

該当なし

#### d. 国際共同研究

- 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-)

#### 4.9 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) 新倉 謙一、基盤研究 B:B 細胞表層での分子認識制御によるユニバーサルナノワクチンの創製、2016~2018年度
- 2) 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
- 3) 三友 秀之、若手研究 B: 可変ナノギャップを利用した表面増強ラマン散乱による生体高分子の高感度検出法の開発、2016~2017年度
- 4) 杉村 尚俊、特別研究員奨励費: ウイルスカプセル内部ナノ空間を利用した環状 RNA、2015~2016年度
- 5) 飯田 良、特別研究員奨励費: 曲率の違いを利用した異方性ナノ粒子の多段階自己集合化、2016~2017年度

##### b. 大型プロジェクト・受託研究

- 1) 居城 邦治、新倉 謙一、松尾 保孝、納谷 昌之、白田 真也 (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、2011年度~
- 2) 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、2015~2016年度
- 3) 三友 秀之 (住友財団基礎科学的研究助成): 新奇金ナノ構造体修飾方法の開発とナノスケール場の制御による機能創発、2016~2017年
- 4) 三友 秀之 (野口遵研究助成金): DNA の塩基配列選択性によるプラズモニックメタマテリアルの創製、2016年

#### 4.10 受賞

- 1) 居城 邦治: 高分子学会三菱化学賞「バイオテンプレートを用いたナノ構造組織体の設計」、高分子学会 (2016-9)
- 2) S. Nakamura\*, H. Mitomo, Y. Matsuo, K. Niikura, K. Ijiro: RSC Poster Award, "Immobilization of AuNRs by assistance of a DNA brush", AsiaNANO 2016 (2016-10)

- 3) R. Iida\*, K. Niikura, H. Mitomo, K. Ijiro: RSC Poster Award "Thermoresponsive assembly of gold nanospheres and nanorods", AsiaNANO 2016 (2016-10)
- 4) J. Wei\*, K. Niikura, H. Mitomo, K. Ijiro: Pans Stanford Poster Award "Formation of gold nanoparticle vesicles induced by electrostatic repulsive interaction between gold nanoparticles", AsiaNANO 2016 (2016-10)
- 5) J. Wei\*, K. Niikura, H. Mitomo, K. Ijiro: Poster Award, "Formation of Gold Nanoparticle Vesicles by Fluorinated Surface Ligand in Solution", 12th IUPAC International Conference on Novel Materials and their Synthesis(NMS-XII) (2016-10)

#### 4.11 社会教育活動

##### a. 公的機関の委員

該当なし

##### b. 国内外の学会の役職

- 1) 居城 邦治 : 社団法人高分子学会バイオ・高分子研究会運営委員 (2002年4月1日～現在)
- 2) 居城 邦治 : 社団法人高分子学会北海道支部幹事 (2004年4月1日～現在)
- 3) 居城 邦治 : Asian Conference on Nanoscience & Nanotechnology (AsiaNANO), Steering Committee (2004年4月1日～現在)
- 4) 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5月1日～2017年4月30日)
- 5) 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3月1日～2018年3月1日)
- 6) 居城 邦治 : 日本化学会 生体機能関連化学部会 幹事 (2016年3月1日～2017年2月28日)
- 7) 居城 邦治 : バイオミメティクス研究会 第33期運営委員 (2016年4月1日～2018年3月31日)
- 8) 三友 秀之 : 日本化学会 生体機能関連化学部会 若手会幹事 (2012年4月1日～現在)
- 9) 三友 秀之 : 高分子学会 北海道支部 若手会幹事 (2012年6月1日～現在)

##### c. 兼任・兼任

- 1) 居城 邦治 : 独立行政法人 理化学研究所 分子情報生命科学特別研究ユニット 客員主管研究員 (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 : 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)

##### d. 外国人研究者の招聘

- 1) Colette Whitfield, U.K., (2016年5月～7月)
- 2) Andrew Pike, U.K., (2017年1月)

##### e. 北大での担当授業科目(対象、講義名、担当者、期間)

- 1) 全学教育、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、2016年4月1日～2016年9月30日
- 2) 理学部、ナノ物性化学、居城邦治、2016年4月1日～2016年9月30日
- 3) 理学部、超分子化学、居城邦治、2016年4月1日～2016年9月30日
- 4) 理学部、化学I、新倉謙一、2016年4月1日～2016年9月30日
- 5) 全学教育、自然科学実験(化学)、三友秀之、2016年04月01日～2016年09月30日
- 6) 全学教育、一般教育演習(フレッシュマンセミナー)「物質創成のフロンティア-革新的電子・バイオ・発光材料開発-」、三友秀之、2016年04月01日～2016年09月30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(ナノテクノロジー・ナノサイエンスと光科学)」(分担)、居城邦治、2016年11月18日
- 8) 総合化学院、物質化学(分子組織化学)、居城邦治・新倉謙一、2016年12月2日～2017年2月8日
- 9) 総合化学院、総合化学研究・指導法、居城 邦治、2016年4月1日～2017年3月31日
- 10) 総合化学院、総合化学実験研究法、居城 邦治、2016年4月1日～2017年3月31日
- 11) 総合化学院、総合化学特別研究第一、居城邦治、2016年4月1日～2017年3月31日
- 12) 総合化学院、総合化学特別研究、居城邦治、2016年4月1日～2017年3月31日

##### f. 北大以外での非常勤講師(対象、講義名、担当者、期間)

- 1) 新倉 謙一、日本工業大学、非常勤講師、2016年12月26日

##### g. 新聞・テレビ等の報道

該当なし

##### h. ポスドク・客員研究員など

該当なし

##### i. 修士学位及び博士学位の取得状況

修士学位(1名) :

- 1) 鈴木 重明 : DNA分子が誘起する金ナノロッドのキラルプラズモン特性

博士学位(2名) :

- 1) 魏 金建 : Dynamic Process of Gold Nanoparticle Assembly using Fluorinated Surface Ligands in Solutions(溶液中におけるフッ素化リガンド分子修飾金ナノ粒子の動的な自己集合プロセスに関する研究)
- 2) 南原 克行 : Studies of Cellular Uptake of Surface-engineered Triangular-shaped Gold Nanoparticles(表面修飾三角形金ナノプレートの細胞取り込みに関する研究)



# 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～）  
助教 孫泉（北京大院、博(理)、2016.4～）  
助教 石旭（北大院、博(情報科学)、2016.4～）  
院生

### 博士課程

于 潮、郭 景春、Ahmed Esmail Kamal Shalan、中村圭佑

### 修士課程

増永梨合花、澤柳博輝、楊 曜龍、高倉稟平、山下翔平、  
三上剛志

## 1. 研究目標

近年、二酸化炭素の排出量の増加や原子炉の廃炉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、人工光合成やペロブスカイト太陽電池など、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「光一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、プラズモニック化学研究会を新たに立ち上げ、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、平成27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表面プラズモン共鳴を示す金属ナノ構造を配置することにより、可視・近赤外光を効率良く光電変換できることを示し、そしてそれを可視光照射による全固体太陽電池や水分解に基づく水素発生および空中窒素の固定化に基づく光アンモニア合成など人工光合成の研究に展開してきた。プラズモン誘起水分解系においては、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の4電子酸化による酸素発生が効率的に起こることを明らかにした。また、白金助触媒の代わりにルテニウムまたはジルコニウム／ジルコニア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28年度は、さらに光を有効に利用するために、プラズモン共鳴を示す金属ナノ構造を担持した酸化チタン電極の3次元化を試みるとともに、プラズモンモード間の強結合によって誘起される太陽光の幅広い波長域に応答する光アンテナ構造を作製し、波長可変フェムト秒レーザーと光電子顕微鏡を組み合わせることによりプラズモン結合モードの近接場特性を明らかにすることに成功した。

## 2. 研究成果

### (i) プラズモン誘起水分解系における3次元光陽極の構築

上述のように、これまでに当研究分野では半導体平面基板上に金属ナノ構造を配置することにより、光一電気・化学エネルギー変換への利用に成功してきた。しかしながら、その変換効率は低く、特にプラズモン共鳴ピークにおいても入射光の大半が透過し、光捕集効率が十分でないことが課題であった。

そこで我々は、光捕集効率及び反応表面積向上のため、プラズモン光陽極の3次元化を試みた。その手段として、酸化チタンナノチューブ基板を用いた。なお、本研究で用いた酸化チタンナノチューブ基板は、首都大学東京近藤助教・益田教授、ならびに台湾国立交通大学Eirc Diau教授より提供頂いたものである。酸化チタンナノチューブは、その比表面積の増大に加え、電子移動経路が制御されているために高い導電性が期待できる。酸化チタンナノチューブ基板に金ナノ粒子を担持することにより、金ナノ粒子／酸化チタン構造の3次元化による高効率化を試みた。また、金前駆体である塩化金酸の配位子を水酸基に置換し、基板表面との親和性が金ナノ粒子の担持密度や光電変換特性に与える影響について検討した。

ナノチューブの結晶性を高めるために、大気雰囲気下で450°C、1時間アニールを行った後、HAuCl<sub>4</sub>及びHAu(OH)<sub>4</sub>を金前駆体、水素化ホウ素ナトリウムを還元剤として金ナノ粒子を酸化チタンナノチューブに担持した。作製した金ナノ粒子担持酸化チタンナノチューブ基板を作用電極、白金を対極、銀／塩化銀電極を参照電極とし、0.1 MのKClO<sub>4</sub>水溶液を電解液とした3電極系における光電気化学測定により光電変換特性を評価した。

金ナノ粒子担持酸化チタンナノチューブ基板の外部量子収率(IPCE)の作用スペクトル及びプラズモン共鳴スペクトルを図1(a), (b)に示す。いずれのサンプルも金のプラズモ

ン共鳴波長である550 nm付近にピークを持ち、プラズモン共鳴に基づく光電変換に成功したと考えられる。また、HAuCl<sub>4</sub>を用いて金ナノ粒子を担持したサンプルと比較して、HAu(OH)<sub>4</sub>を用いて金ナノ粒子を担持したサンプルではより高いIPCEが得られた。HAu(OH)<sub>4</sub>では水素結合により酸化チタン表面と金イオン錯体の親和性が高まることにより高密度に金ナノ粒子が担持されたものと考えられる。また、図1(c)に示すHAu(OH)<sub>4</sub>を用いて金ナノ粒子を担持したナノチューブの断面透過電子像から、平均粒径6 nm程度の金ナノ粒子が高分散に担持されていることが確認された。以上より、酸化チタンナノチューブへの金ナノ粒子担持前駆体を変化させることで粒子の分散・形状を制御し、プラズモン誘起光電変換効率の増大に成功した。

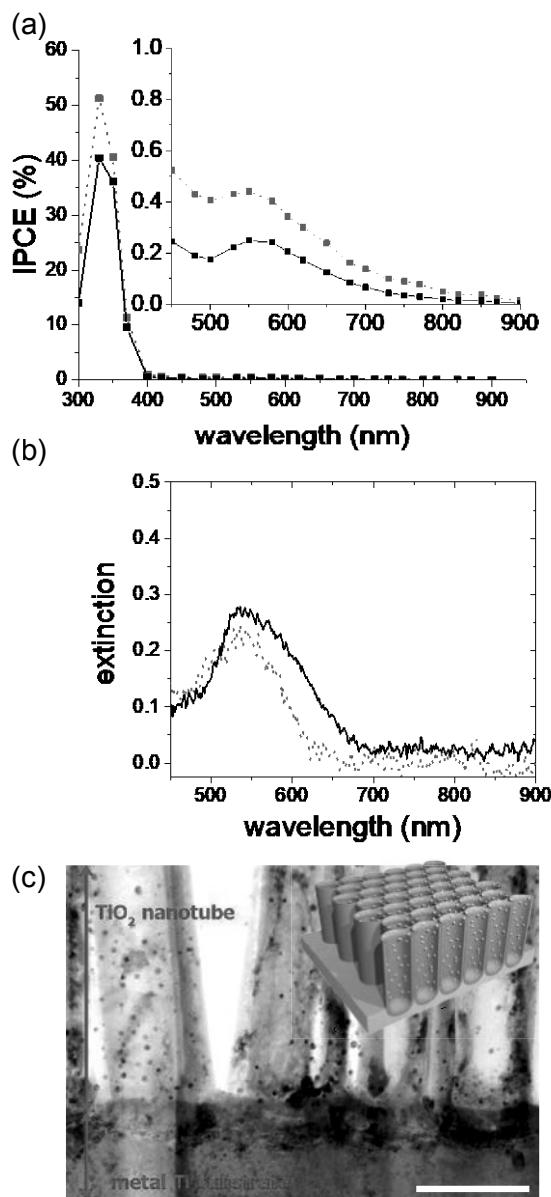


図 1 (a) 金ナノ粒子担持酸化チタンナノチューブを光陽極としたIPCE作用スペクトル、(b) 金ナノ粒子担持酸化チタンナノチューブのExtinctionスペクトル。実線:前駆体 HAuCl<sub>4</sub>、点線:前駆体 HAu(OH)<sub>4</sub> (c) HAu(OH)<sub>4</sub>を用いて金ナノ粒子を担持した酸化チタ

ンナノチューブの断面透過型電子顕微鏡図（挿入図は模式図）

さらに、HAu(OH)<sub>4</sub>で金ナノ粒子を担持した酸化チタンナノチューブを陽極、白金を陰極として光照射し、発生する酸素・水素をガスクロマトグラフィーで定量したところ、図2に示すように、可視光照射に相当する条件でも酸素・水素がおおよそ1:2の比で生成し、プラズモン誘起電荷分離に基づく水分解に成功した。

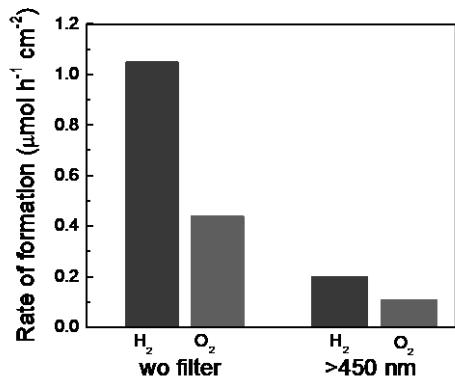


図 2 HAu(OH)<sub>4</sub>を用いて金ナノ粒子を担持した酸化チタンナノチューブを光陽極とした水分解結果

## (ii) 光電子顕微鏡によるプラズモン結合モードの近接場特性

金属ナノ微粒子に光が照射されると局在プラズモン共鳴が誘起され呈色する。局在プラズモンの共鳴波長は、金属ナノ微粒子のサイズや形状だけではなく、周囲の誘電率や構造間の距離にも鋭敏に応答する。そのため、タンパク質の結合に基づく誘電率変化、または金属ナノ微粒子の凝集によって誘起される共鳴波長のシフトや発色を利用してインフルエンザや妊娠などの簡易検査キットにも応用されている。共鳴波長が構造間距離（ナノギャップ幅）に依存する理由については、局在プラズモンの近接場相互作用に基づくことが主に電磁場計算や、遠視野場におけるスペクトル計測により明らかにされている。しかし、近接場に強く依存する現象を明らかにするためには近接場スペクトルの計測が不可欠であるが、これまでほとんど行われてこなかった。そのような背景から、我々は複数のナノギャップが存在する複雑な金属ナノ構造の近接場スペクトル特性を明らかにするために、波長可変フェムト秒レーザーと光電子顕微鏡を組み合わせ、近接場によって生じる光電子の強度の波長依存性を測定する多光子光電子顕微鏡計測を提案し、プラズモン結合モードの近接場特性を明らかにすることを試みた。

2つの平行に配置された直方体の金ナノロッドにナノギャップを介して1つの金ナノロッドを垂直に配置した金dolmen型構造を精緻に作製した（図1(a)の電子顕微鏡写真参照）。また、図1(b)に2つの入射光偏光照射条件において測定した金dolmen型構造の遠視野場におけるExtinctionスペクトルを示す。1つの金ナノロッドの長軸に対して平行な

直線偏光の光を入射した条件において、スペクトルに凹みが観測された。このスペクトルの凹みは、これまで位相緩和時間の異なる2つのモード間の干渉により観測されることが報告されている。その原理は以下のように考えられてきた。1つの金ナノロッドの長軸に対して平行な直線偏光の光を入射した場合、長軸モードに由来する局在プラズモン共鳴が誘起される。これは、双極子共鳴であり許容なモードでスペクトル幅は広い。一方、生成した金ナノロッドの双極子共鳴に基づき、近接場相互作用により2つの平行な金ナノロッドに逆位相のプラズモン共鳴（四重極子共鳴）が誘起される。四重極共鳴は禁制なモードであり、放射減衰が抑制されることから位相緩和時間は双極子共鳴に比べて長くスペクトル幅は狭い。これらのことから遠視野場スペクトルにおいて観測される凹みは、双極子と四重極子のモード間の干渉による Fano 共鳴と説明してきた。

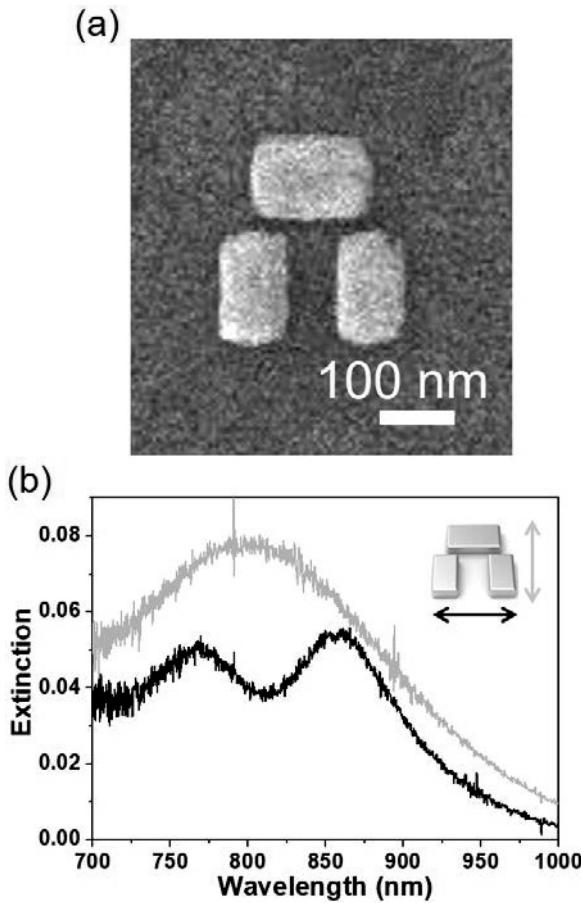


図3 (a) 金 dolmen 型構造の電子顕微鏡写真、(b) 遠視野場における Extinction スペクトル (図中矢印は、偏光方向)

しかし、金 dolmen 型構造の遠視野場スペクトルの凹みが通常の Fano 共鳴で観測される凹みのようにシャープではなく、また非対称性もないことから別な相互作用が存在すると考えた。この仮説を検証するために、多光子光電子顕微鏡計測を用いて近接場スペクトルを計測したところ、図 4(a)に示すように遠視野場のスペクトルと同様に2つのピークが観測されることが明らかになった。また、ギャップ

幅依存性を計測したところ、ギャップ幅の減少に伴って2つのピーク間隔が広がったことから、スペクトル上の凹みは Fano 共鳴によるものではなく、2つの異なるモードが存在するためであることを明らかにした。さらに、時間領域差分法 (FDTD 法) に基づく電磁場計算から、これらはプラズモンハイブリダイゼーションに基づく結合性と反結合性のモードであることが示された。一方、Fano 共鳴を示す構造として知られる7つの金ナノディスクの1つを中心として残りの6つを正六角形状に配列した金 heptamer 構造を作製して同様の計測を行ったところ、近接場スペクトルでは遠視野場スペクトルに生じる凹みの波長附近において1つのピークのみが観測され、近接場強度の大きい四重極子共鳴のみが選択的に観測されることを確認した。このことから、本研究では近接場スペクトル計測により、局在プラズモンの双極子と四重極子が干渉して生じる Fano 共鳴（弱結合）と、局在プラズモンのモードがより強く結合することによって生じるハイブリダイゼーション（強結合）を区別する方法論を見出し、複数のナノギャップが存在する複雑な金属ナノ構造に誘起されるプラズモン結合モードの近接場特性を明らかにすることに成功した。

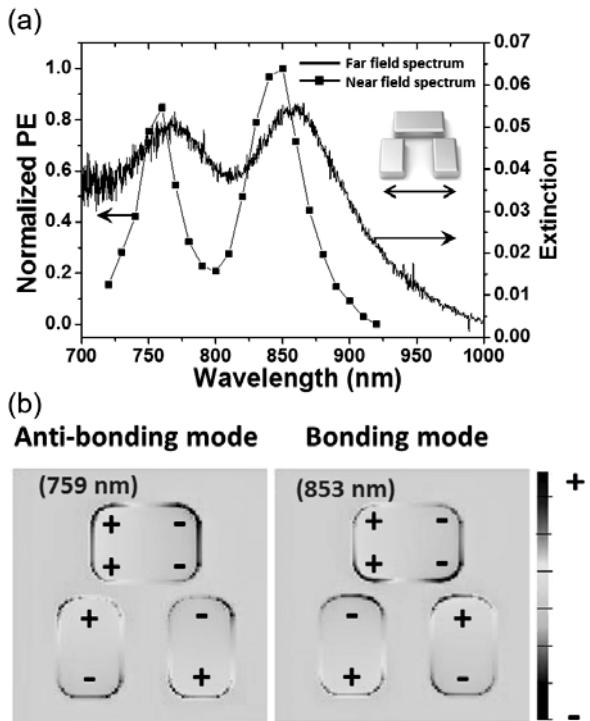


図4 (a) 多光子光電子顕微鏡計測により測定した金 dolmen 型構造の近接場スペクトルおよび対応する Extinction スペクトル (図中矢印は、偏光方向)、(b) FDTD 法による波長759 nm (左) および853 nm (右) における金 dolmen 型構造の位相情報

### 3. 今後の研究の展望

平成28年度は、酸化チタンナノチューブ構造に金ナノ微粒子を化学的な方法により担持し、光の有効利用に基づい

てプラズモン誘起水分解の効率を向上させることに成功するとともに、波長可変レーザーを励起光源として用いた光電子顕微鏡により、幅広い波長域に応答するプラズモンハイブリダイゼーションの近接場スペクトル特性を明らかにすることに成功した。

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、プラズモンとフォトニック結晶またはナノ光共振器との強結合系による光捕集効率の向上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、プラズモンと種々の光学モードの強結合系の近接場スペクトル特性や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（査読あり）

- 1) Y. Yokota, K. Ueno, H. Misawa, T. Tanaka, “Spectroscopic properties of gold curvilinear nanorod arrays”, *Photonics*, 3, 2, 18 (2016).
- 2) J. Li, K. Ueno, H. Uehara, J. Guo, T. Oshikiri, and H. Misawa, “Dual Strong Couplings Between TPPS J-Aggregates and Aluminum Plasmonic States”, *J. Phys. Chem. Lett.*, 7, 2786–2791 (2016).
- 3) K. Ueno, Q. Sun, M. Mino, T. Itoh, T. Oshikiri, H. Misawa, “Surface plasmon optical antennae in the infrared region with high resonant efficiency and frequency selectivity”, *Opt. Express*, 24, 16, 17728–17737 (2016).
- 4) H. Yu, Q. Sun, K. Ueno, T. Oshikiri, A. Kubo, Y. Matsuo, and H. Misawa, “Exploring Coupled Plasmonic Nanostructures in the Near Field by Photoemission Electron Microscopy”, *ACS Nano*, 10, 11, 10373–10381 (2016).
- 5) A. E. Shalan, T. Oshikiri, S. Narra, M. M. Elshanawany, K. Ueno, H.-P. Wu, K. Nakamura, X. Shi, E. W.-G. Diau, H. Misawa, “Cobalt Oxide (CoOx) as an Efficient Hole-extracting Layer for High-performance Inverted Planar Perovskite Solar Cells”, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, 8, 49, 33592–33600 (2016).
- 6) A. E. Shalan, T. Oshikiri, H. Sawayanagi, K. Nakamura, K. Ueno, Q. Sun, H.-P. Wu, E. W.-G. Diau, H. Misawa, “Versatile plasmonic-effects at the interface of inverted perovskite solar cells”, *Nanoscale*, 9, 1229–1236 (2017).
- 7) J. Guo, T. Oshikiri, K. Ueno, Xu Shi, H. Misawa, “Plasmon-induced photoelectrochemical biosensor for in situ real-time measurement of biotin-streptavidin binding kinetics under visible light irradiation”, *Anal. Chim. Acta.*, 957, 70–75 (2017).
- 8) K.-L. Lee, H.-U. Hsu, M.-L. You, C.-C. Chang, M.-Y. Pan, X. Shi, K. Ueno, H. Misawa, and P.-K. Wei, “Highly Sensitive Aluminum-Based Biosensors using Tailorable Fano Resonances in Capped Nanostructures”, *Scientific Reports*, 7, 44104 (2017).
- 9) H. Mizobata, K. Ueno, H. Misawa, H. Okamoto, K. Imura, “Near-field spectroscopic properties of complementary gold nanostructures: applicability of Babinet’s principle in the optical region”, *Opt. Express*, 25, 5, 5279–5289 (2017).
- 10) R. Takakura, T. Oshikiri, K. Ueno, X. Shi, T. Kondo, H. Masuda and H. Misawa, “Water splitting using a three-dimensional plasmonic photoanode with titanium dioxide nano-tunnels”, *Green Chemistry*, 19, 2398–2405 (2017).
- 11) H. Yu, Q. Sun, J. Yang, K. Ueno, T. Oshikiri, A. Kubo, Y. Matsuo, Q. Gong, H. Misawa, “Near-field spectral properties of coupled plasmonic nanoparticle arrays”, *Opt. Express*, 25, 6, 6883–6894 (2017).

##### 4.2 学術論文（査読なし）

該当なし

##### 4.3 総説・解説・評論等

- 1) 押切 友也、上野 貢生、三澤 弘明, “局在表面プラズモンを活用した人工光合成”, *光化学*, Vol. 47, No. 1, 2–8 (2016).

##### 4.4 著書

- 1) 石谷治、伊藤繁、井上和仁、井上晴夫、神谷信夫、工藤昭彦、瀬戸山亨、民秋均、堂免一成、久富隆史、藤井律子、正岡重行、三澤弘明, 「夢の新エネルギー「人工光合成」とは何か 世界をリードする日本の科学技術」, 講談社 (2016).

##### 4.5 特許（発明者：特許番号、特許名、出願年月日）

該当なし

##### 4.6 講演

###### a. 招待講演（国際学会）

- 1) Kosei Ueno, “Plasmon-based physics and chemistry using nano-engineered gold nanoparticles”, The 11th Annual IEEE International Conference on Nano/Micro Engineered and Molecular Systems (IEEE-NEMS 2016), 1181, Matsushima, Miyagi, April 17–20 (2016).
- 2) Kosei Ueno, “Plasmonic photochemistry using nano-engineered gold particles”, The 10th Asia-Pacific

- Laser Symposium (APLS2016), Jeju Island, Korea, May 10–14 (2016).
- 3) Quan Sun, Takaya Tokiwa, Hidenori Asahi, Han Yu, Kosei Ueno, Atsushi Kubo, Yasutaka Matsuo, and Hiroaki Misawa, “Ultrafast lasers: as tools for micro/nanofabrication and probing surface plasmons”, The 3rd Optical Manipulation Conference, Pacifico Yokohama (Yokohama, Kanagawa), May 18–20, 2016.
  - 4) Tomoya Oshikiri, “Visible-Light Responsible Ammonia Synthesis from Dinitrogen Via Plasmon-Induced Charge Separation”, 229th ECS Meeting, San Diego (USA), May 29–June 2, 2016.
  - 5) Hiroaki Misawa, “Plasmon-induced photoenergy conversion systems”, The 7th International Conference on Metamaterials, Photonic Crystals and Plasmonics (招待講演), Malaga (Spain), July 25–28, 2016.
  - 6) Kosei Ueno, “Infrared and THz plasmonics using nano-engineered gold structures”, The 7th International Conference on Metamaterials, Photonic Crystals and Plasmonics (META 2016), Malaga, Spain July 25–28 (2016).
  - 7) Kosei Ueno, “Spectral modulation of molecular/intermolecular vibrational mode by infrared plasmon”, Progress in Electromagnetics Research Symposium 2016 (PIERS 2016), Shanghai, China, August 8–11 (2016).
  - 8) K. Ueno, H. Misawa, “Surface plasmon-assisted chemical reactions using nano-engineered gold nanoparticles”, The 14th International Conference of Near-Field Optics (招待講演), Act City Hamamatsu Congress Center (Hamamatsu, Shizuoka), September 4–8 (2016).
  - 9) Hiroaki Misawa, “Plasmon-assisted artificial photosynthesis”, 9th Asian and Oceanian Photochemistry Conference, Singapore (Singapore), December 4–8, 2016.
  - 10) K. Ueno, S. Nozawa, J. Li, Q. Sun, T. Oshikiri, H. Misawa, “Infrared plasmonic chemistry based on strong coupling between gold nanostructures and molecular/intermolecular vibrational modes”, 9th Asian and Oceanian Photochemistry Conference, Singapore (Singapore), December 4–8, 2016.

#### b. 招待講演（国内学会）

- 1) 三澤 弘明, 「アンモニアの人工光合成」, 日本化学会第 97 春季年会, 慶應義塾大学日吉キャンパス (神奈川県横浜市), 2017 年 03 月 16 日～2017 年 03 月 19 日.
- 2) K. Ueno, S. Nozawa, H. Yu, J. Li, Q. Sun, T. Oshikiri, H. Misawa, “Spectral Properties of Plasmon-Molecule Hybrid States and Coupled Plasmonic Systems”, 慶應義塾大学日吉キャンパス (神奈川県横浜市), 2017 年 03 月 16 日～2017 年 03 月 19 日.

#### c. 一般講演（国際学会）

- 1) Tomoya Oshikiri, Kosei Ueno, Hiroaki Misawa, “Plasmon Induced N2 Conversion into Ammonia Using Water and Visible Light”, 9th Asian and Oceanian Photochemistry Conference, Singapore (Singapore), December 4–8, 2016.

#### d. 一般講演（国内学会）

- 1) X. Shi, K. Ueno, T. Oshikiri, H. Misawa, “Plasmon-induced photocurrent generation system using metal–semiconductor–metal nanostructured perfect absorber”, 2016 年光化学討論会, 東京大学 (東京都目黒区), 2016 年 09 月 06 日～2016 年 09 月 08 日
- 2) J. Li, Q. Sun, T. Oshikiri, K. Ueno, H. Misawa, “Transient absorption spectroscopy of gold nanoparticles on titanium dioxide single crystal substrate”, 2016 年光化学討論会, 東京大学 (東京都目黒区), 2016 年 09 月 06 日～2016 年 09 月 08 日.
- 3) 中村 圭佑, 片瀬 貴義, 押切 友也, 上野 貢生, 太田 裕道, 三澤 弘明, 「全固体プラズモニック太陽電池における光电流極性の照射波長依存」, 2016 年光化学討論会, 東京大学 (東京都目黒区), 2016 年 09 月 06 日～2016 年 09 月 08 日.
- 4) 高倉 稔平, 押切 友也, 上野 貢生, 近藤 敏彰, 益田 秀樹, 三澤 弘明, 「金ナノ粒子担持酸化チタンナノチューブを用いたプラズモン誘起光电変換」, 2016 年光化学討論会, 東京大学 (東京都目黒区), 2016 年 09 月 06 日～2016 年 09 月 08 日.
- 5) Kosei Ueno, Jinghuan Yang, Han Yu, Quan Sun, Xu Shi, Tomoya Oshikiri, Atsushi Kubo, Yasutaka Matsuo, Qi-huang Gong, Hiroaki Misawa, “Spectral properties and ultrafast dynamics of localized surface plasmon resonances in metal/insulator/metal nanostructures from the near field”, 日本化学会第 97 春季年会, 慶應義塾大学日吉キャンパス (神奈川県横浜市), 2017 年 03 月 16 日～2017 年 03 月 19 日.
- 6) Tomoya Oshikiri, Kosei Ueno, Hiroaki Misawa, “Quantitative evaluation of ammonia photosynthesis using plasmon photoanode”, 日本化学会第 97 春季年会, 慶應義塾大学日吉キャンパス (神奈川県横浜市), 2017 年 03 月 16 日～2017 年 03 月 19 日.
- 7) Xu Shi, Tomoya Oshikiri, Kosei Ueno, Kenji Sasaki, Hiroaki Misawa, “Plasmon-induced photocurrent generation using coupling between localized surface plasmon resonance and cavity mode”, 日本化学会第 97 春季年会, 慶應義塾大学日吉キャンパス (神奈川県横浜市), 2017 年 03 月 16 日～2017 年 03 月 19 日.
- 8) Ahmed Esmail Shalan, Tomoya Oshikiri, Sudhakar Narra, Mahmoud M. Elshanawany, Kosei Ueno, Hui-ping Wu, Keisuke Nakamura, Xu Shi, Eric Wei-guang Diau, Hiroaki Misawa, “Cobalt Oxide (CoOx) as an Efficient Hole-extracting Layer for High performance Inverted

- Planar Perovskite Solar Cells”, 日本化学会第 97 春季年会, 慶應義塾大学日吉キャンパス(神奈川県横浜市), 2017 年 03 月 16 日～2017 年 03 月 19 日.
- 9) Xiaolong Yang, Xu Shi, Tomoya Oshikiri, Kosei Ueno, Shuyan Gao, Hiroaki Misawa, “Plasmon-induced photo-current generation using a photoelectrode composed of gold nanoparticles loaded inverse TiO<sub>2</sub> photonic crystals”, 日本化学会第 97 春季年会, 慶應義塾大学日吉キャンパス(神奈川県横浜市), 2017 年 03 月 16 日～2017 年 03 月 19 日.
- 10) 高倉稟平, 押切友也, 上野貢生, 近藤敏彰, 益田秀樹, 三澤弘明, 「金ナノ粒子担持酸化チタンナノチューブによるプラズモン誘起水分解」, 日本化学会第 97 春季年会, 慶應義塾大学日吉キャンパス(神奈川県横浜市), 2017 年 03 月 16 日～2017 年 03 月 19 日.
- e. 研究会・シンポジウム・ワークショップなど(学会以外)
- 1) 三澤弘明, 「プラズモン光アンテナの開発と人工光合成への展開」, さきがけ「光エネルギーと物質変換」研究領域 第 13 回領域会議(招待講演), 首都大学東京南大沢キャンパス(東京都八王子市), 2016 年 5 月 26 日
  - 2) K. Ueno, T. Oshikiri, X. Shi, Q. Sun, H. Misawa, “Fabrication of Plasmon-Enhanced Chemical Reaction Fields and Its Application to Light Energy Conversion”, International Workshop on Nanostructures-Based Chemistry and Light-Energy Conversion(招待講演), Tokyo Metropolitan Univ. (Chiyoda-ku, Tokyo), June 11, 2016.
  - 3) Hiroaki Misawa, “Metal-nanostructures for solar energy conversion”, The 5th Hsinchu Summer Course Single Molecule/Nanoparticle Spectroscopy and Imaging(招待講演), Hsinchu (Taiwan), June 21–22, 2016.
  - 4) Hiroaki Misawa, “Plasmon-induced photoenergy conversion systems”, The 5th Hsinchu Workshop Single Molecule/Nanoparticle Spectroscopy and Imaging(招待講演), Hsinchu (Taiwan), June 23, 2016.
  - 5) K. Ueno, T. Oshikiri, H. Misawa, “Plasmon-induced artificial photosynthesis; evolution of hydrogen and ammonia”, The 6th Sino-Japan bilateral young chemist forum(招待講演), Dalian (China), June 30–July 2, 2016.
  - 6) Hiroaki Misawa, “Photochemical Reaction Field Created by Plasmonic Metal Nanostructures and Its Application to Energy Conversion Systems”, Gordon Research Conference From Plasmonic Fundamentals to Nanooptical Applications(招待講演), Newry (USA), July 10–15, 2016.
  - 7) 三澤 弘明, 「金属ナノ構造を用いた光反応場の創成とその光エネルギー変換への展開」, 第 47 回 IGER グリーン自然科学レクチャー(招待講演), 名古屋大学東山キャンパス(愛知県名古屋市), 2016 年 07 月 22 日.
  - 8) Hiroaki Misawa, “Plasmonic Photochemical Reaction Field and Its Application to Photosynthesis”, Gordon Research Conference Commercial Successes and Remaining Challenges After a Twenty Year Investment in Green Chemistry Principles(招待講演), Stowe (USA), July 31–August 5, 2016.
  - 9) Hiroaki Misawa, “Plasmon-induced photoenergy conversion systems”, The 4th International Symposium on Rare Earth Resource Utilization and The 7th International Symposium on Functional Materials(招待講演), Changchun (China), August 16–19, 2016.
  - 10) 三澤 弘明, 「局在プラズモンを用いた太陽光エネルギー変換システムの開拓」, 第 7 回近大若手シンポジウム(招待講演), 近畿大学 1 月ホール(大阪府東大阪市), 2016 年 09 月 09 日～2016 年 09 月 09 日.
  - 11) T. Oshikiri, K. Ueno, H. Misawa, “N<sub>2</sub> fixation into ammonia via plasmon-induced charge separation”, Global Artificial Photosynthesis Workshop, (招待講演), Canberra (Australia), September 8, 2016.
  - 12) K. Ueno, T. Oshikiri, H. Misawa, “Plasmon-induced water splitting by visible and near infrared light using gold nanostructured oxide semiconductors”, Global Artificial Photosynthesis – Breakthroughs for the Sustainocene(招待講演), Lord Howe Island (Australia), September 9–11, 2016.
  - 13) Hiroaki Misawa, “Plasmon-induced solar energy conversion systems”, HOKUDAI-NCTU Joint Symposium on Nano, Photo and Biosciences in 2016(招待講演), Hokkaido University (Sapporo), October 4–5, 2016.
  - 14) Hiroaki Misawa, “Plasmon-induced photoenergy conversion systems using nano-engineered gold particles”, The 29th International Mecroprocesses and Nanotechnology Conference(招待講演), ANA Crowne Plaza Kyoto (Kyoto), November 8–11, 2016.
  - 15) K. Ueno, S. Nozawa, J. Li, Q. Sun, T. Oshikiri, H. Misawa, “Spectral modulations induced by interactions between molecular vibrational modes and infrared plasmon; strong coupling or electromagnetically induced transparency”, 8th International Workshop on Advanced Materials Science and Nanotechnology(招待講演), Ha Long City (Vietnam), November 8–12, 2016.
  - 16) Quan Sun, Han Yu, Tomoya Oshikiri, Kosei Ueno, and Hiroaki Misawa, “Accessing plasmonic hot spots and their dynamics by photoemission electron microscopy”, 第4回アライアンス若手研究交流会(Poster), 北海道大学(札幌, 北海道), November 9–10, 2016.
  - 17) 上野貢生、李潔、于瀚、孫泉、押切友也、三澤弘明, 「プラズモニック結合系およびプラズモン一分子強結合系の分光特性」, 応用物理学会・量子工

- レクトロニクス研究会（招待講演），上智大学軽井沢セミナーハウス（長野県北佐久郡軽井沢町），2016年12月08日～2016年12月10日。
- 1 8) Kuang-Li Lee, Hsuan-Yeh Hsu, Meng-Lin You, Chia-Chun Chang, Ming-Yang Pan, Xu Shi, Kosei Ueno, Hiroaki Misawa, Pei-Kuen Wei, "Fano Resonances in Capped Aluminum Nanoslit Arrays for Highly Sensitive Plasmonic Sensors", The 17th RIES-HOKUDAI INTERNATIONAL SYMPOSIUM on 柔, Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (Sapporo, Hokkaido), December 13-14, 2016.
- 1 9) Jie Li, Quan Sun, Kosei Ueno, Hiroaki Misawa, "Transient absorption spectroscopy of gold nanoparticles on titanium dioxide thin Film", The 17th RIES-HOKUDAI INTERNATIONAL SYMPOSIUM on 柔, Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (Sapporo, Hokkaido), December 13-14, 2016.
- 2 0) Keisuke Nakamura, Takayoshi Katase, Tomoya Oshikiri, Kosei Ueno, Hiromichi Ohta, Hiroaki Misawa, "Switchable photocurrent polarity of plasmonic photoelectric conversion by irradiation wavelengths", The 17th RIES-HOKUDAI INTERNATIONAL SYMPOSIUM on 柔, Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (Sapporo, Hokkaido), December 13-14, 2016.
- 2 1) Jinghuan Yang, Quan Sun, Han Yu, Kosei Ueno, Hiroaki Misawa, Qihuang Gong, "Spatial evolution of near field distribution on planar gold nanoparticles with the excitation wavelength across both dipole and quadrupole modes", The 17th RIES-HOKUDAI INTERNATIONAL SYMPOSIUM on 柔, Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (Sapporo, Hokkaido), December 13-14, 2016.
- 2 2) 三澤 弘明, 「金属ナノ粒子で太陽光を捕まえて、電気や化学エネルギー変換に利用する」, LED 総合フォーラム 2016(招待講演), あわぎんホール(徳島県徳島市), 2016年12月17日。
- 2 3) Hiroaki Misawa, "Plasmon-induced photoenergy conversion systems", The Sixth Japan-Korea Workshop on Digital Holography and Information Photonics(招待講演), Sapporo Convention Center (Sapporo, Hokkaido), 2016年12月19日～2016年12月22日。
- 2 4) Quan Sun, "Exploring plasmonic hot spots and their dynamics in the near field by photoemission electron microscopy", Seminar at East China Normal University (Invited), Shanghai, China, December 21, 2016.
- 2 5) 三澤 弘明, 「プラズモン誘起電荷分離を用いた可視光による水分解・アンモニア合成」, 新学術領域研究「人工光合成による太陽光エネルギーの物質変換：実用化に向けての異分野融合」第5回最終公開シンポジウム, 東京工業大学・大岡山キャンパス(東京都目黒区), 2017年01月28日～2017年01月29日.
- 日.
- 2 6) Hiroaki Misawa, "Visible and Near-infrared Plasmon-induced Photoenergy Conversion Systems", MANA International Symposium 2017(招待講演), Epochal Tsukuba (Tsukuba, Ibaraki), 2017年02月28日～2017年03月03日。
- 2 7) Hiroaki Misawa, "Plasmon-Assisted Artificial Photosynthesis", 2017 International Conference on Artificial Photosynthesis(招待講演), Ritsumeikan University (Kyoto, Kyoto), 2017年03月02日～2017年03月05日。
- 2 8) Quan Sun, Han Yu, Kosei Ueno, and Hiroaki Misawa, "Characterization of plasmonic nanostructures in the near field from both spatial and temporal domains", International Workshop on Nanophotonics and Microfluidics, Hokkaido University, Sapporo, March 28, 2017.
- 2 9) Xu. Shi, K. Ueno, T. Oshikiri, K. Sasaki, H. Misawa, "Plasmon-induced broadband solar energy conversion using coupling between plasmon resonance and cavity mode", International Workshop on Nanophotonics and Microfluidics, Hokkaido University, Sapporo, March 28, 2017.

#### 4.7 シンポジウムの開催

- 1) 三澤弘明:第10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 (2016年6月10日)
- 2) Hiroaki Misawa, Kosei Ueno, Tomoya Oshikiri: International Workshop on Nanostructures-Based Chemistry and Light-Energy Conversion, Tokyo Metropolitan Univ. Akihabara Satellite Campus, Tokyo (2016.6.11)
- 3) 三澤弘明:第11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 (2016年11月11日)
- 4) Kosei Ueno, Hiroaki Misawa: International Workshop on Nanophotonics and Microfluidics, Hokkaido University, Sapporo (2017.3.28)

#### 4.8 共同研究

##### a. 所内共同研究

該当なし

##### b. 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」(2016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利用技術について研究をおこなう。
- 2) 三澤弘明、上野貢生、押切友也(株式会社本田技術研究所) :「プラズモニック太陽電池、並びにプラズモンを利用した CO<sub>2</sub>還元に関する共同研究」(2016年度)

プラズモンを利用した光電変換装置の効率向上に関するデバイス試験を含む検討、並びにプラズモンを利用した CO<sub>2</sub> 還元装置の実現可能性に関するデバイス試験を含む検討

c. 委託研究

該当なし

d. 国際共同研究

該当なし

4.9 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) 三澤弘明、新学術領域研究(研究領域提案型)(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
- 2) 上野貢生、基盤研究C、金属を担持した光触媒系界面反応の高分解能in-situ計測、2015～2017年度
- 3) 上野貢生、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
- 4) 押切友也、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ソモニア合成、2015～2016年度
- 5) 石旭、若手研究B、Plasmon-enhanced photoelectrochemical energy conversion on Au nanoparticles loaded titanium dioxide thin film、2015～2016年度

b. 大型プロジェクト・受託研究

該当なし

4.10 受賞

- 1) Ahmed Esmail Kamal Shalan, 北海道大学情報科学研究所長賞、2017年3月23日

4.11 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～2018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 戰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 戰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～2017年11月)
- 9) 三澤弘明:文部科学省研究振興局 科学研究費補助金「新学術領域研究」審査意見書作成者 (2016年3月38日～2016年4月18日)
- 10) 三澤弘明:日本学術振興会 平成28年度科学研究費助成事業研究進捗評価に係る評価意見書の作成者 (2016年4月1日～2016年5月31日)
- 11) 三澤弘明:科学技術振興機構 国際科学技術共同研究推進事業 (戦略的国際共同研究プログラム) アドバイザー (2016年4月1日～2017年3月31日)
- 12) 三澤弘明:文部科学省研究振興局 評価意見書の作成 (2016年6月10日～2016年7月22日)
- 13) 三澤弘明:日本学術振興会 科学研究費委員会専門委員 (2017年1月1日～2017年12月31日)
- 14) 三澤弘明:文部科学省研究振興局 科学研究費補助金評価委員会の評価者 (2016年12月8日～2017年12月7日)
- 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～)
- 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 10<sup>th</sup> 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～)
- 8) 三澤弘明:ACS Photonics, Editorial Advisory Board (2014年1月1日～現在)
- 9) 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)
- 10) 上野貢生:The 14th International Conference on Near-Field Optics, Nanophotonics, and Related Techniques (NFO-14), Local Committee Member (2015年2月～2017年3月)

- 1 1) 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，2016年10月13日～2017年7月31日）
- 1 2) 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～2017年3月）
- 1 3) 上野貢生：The 24th Congress of the International Commission for Optics (ICO-24), Program Committee Member (2016年5月～2017年7月)
- 1 4) 三澤弘明：日本化学会 学会賞選考委員（2016年9月1日～2016年11月30日）
- 1 5) 三澤弘明：The 8th International Conference on Surface Plasmon Photonics (SPP 8), Scientific and Technical Program Committee Member (2017年3月)
- c. 兼任・兼任
- 1) 三澤弘明：株式会社レーザーシステム 顧問（2015年6月1日～2017年5月30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～2017年12月31日)
- d. 外国人研究者の招聘
- 1) Wei Cui、中国、(2015. 10. 6 - 2016. 3. 27)
  - 2) Jinghuan Yang、中国、(2016. 1. 10 - 2017. 5. 31)
  - 3) Wei-Yi Tsai、台湾、(2016. 10. 1-2017. 1. 31)
  - 4) Bei Liu、台湾、(2016. 11. 4-2017. 2. 1)
  - 5) Jing Yang、中国、(2016. 12. 1-2017. 3. 31)
  - 6) Ernst Bauer、アメリカ合衆国、(2017.1.10)
  - 7) Kai Sun、中国、(2017.2.1-2017.3.31)
  - 8) Xiaoyan Zhang、中国、(2017. 2. 1-2017. 3. 31)
  - 9) Botao Wu、中国、(2017. 3. 31)
- 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「電気回路」、三澤弘明（2016年4月1日～2016年6月6日（春ターム））
  - 2) 工学部「電気回路」、上野貢生（2016年4月1日～2016年6月6日（春ターム））
  - 3) 情報科学研究科「ナノフォトニクス特論」、三澤弘明、上野貢生、押切友也（2016年10月1日～2017年3月31日）
  - 4) 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」、三澤弘明（2016年11月16日）
  - 5) 全学教育科目「環境と人間」、上野貢生（2016年5月12日）
  - 6) 全学教育科目「2030年エレクトロニクスの旅」、上野貢生（2016年11月22日）
  - 7) 工学部「生体工学概論（生体医工学基礎）」上野貢生（2016年1月10日）
  - 8) 工学部「生体情報工学実験I」押切友也(2016年4月5日～2016年9月30日)
  - 9) 工学部「生体情報工学実験II」押切友也(2016年10月1日～2017年3月31日)
  - 10) 工学部「情報エレクトロニクス演習」押切友也(2016

年4月5日～2016年9月30日)

f. 北大以外での非常勤講師（対象、講義名、担当者、期間）

- 1) 関西学院大学大学院理工学研究科、化学特殊講義 XII (集中講義)、三澤弘明（2016年8月29日～30日）

g. 新聞・テレビ等の報道

該当なし

h. ポスドク・客員研究員など

- 1) 李洁(創成研究機構 ナノテクノロジープラットフォーム事業（微細加工）・博士研究員、2011. 9. 1～)

i. 修士学位及び博士学位の取得状況

修士学位（3）：

- 1) 澤柳 博輝: 拡散電位を制御したプラズモン太陽電池の構築と光電変換特性 (Fabrication and photoelectric conversion properties of plasmonic solar cells with controlled diffusion potential)

- 2) 増永 梨合花: プラズモン誘起水分解における半導体／金界面の影響の評価 (Interface effects between semiconductor and gold on plasmon-induced water splitting)

- 3) 楊 曉龍: Plasmonic photoelectric conversion using gold nanoparticles loaded TiO<sub>2</sub> photoelectrode with 3D photonic lattices (金ナノ粒子を担持した3次元フォトニック格子酸化チタン光電極のプラズモン誘起光電変換特性)

博士学位（1）：

- 1) Ahmed Esmail Kamal Shalan : Optimization of nanoarchitectures for high-performance planar perovskite solar cells (高性能ペロブスカイト太陽電池に向けたナノ構造の最適化)

## 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～）  
外国人協力研究員 Wu Chuanbao (2015.10～2016.10)  
外国人研究員 Bian Weibai (2016.10～)  
大学院生 三澤貴浩（総合化学院D3）  
木下拓也（総合化学院M2）  
久保直紀（総合化学院M1）  
学部生 館林 堯（理学部化学科B4）

### 1. 研究目標

当該研究分野では、無機材料や金属材料中のイオンや電子スピンの状態を制御して新奇な機能や特性を引き出すことを目的として以下の基盤研究に取り組んでいる。

#### (1) 電子スピンの制御

固体中の電子が持つ「電荷」に新たな自由度である「スピン」を加えたスピントロニクスに、ナノ構造や光を取り入れた新たなデバイスの創製

#### (2) イオンの制御

固体材料への電圧印加によって、内部に含まれるイオンの置換やその濃度分布を変化させ、新たな電気的、光学的な特性を有する機能材料を創製

#### (3) 光波制御機能の発現

光学異方性、電磁場増強、光波の閉じ込めなど、自然界に存在しない光学特性を発現する光の波長レベル以下の微細な周期構造デバイスの創製

### 2. 研究成果

#### (1) 強磁性トンネル接合における室温巨大磁気キャパシタス効果の観測

電子の電荷とスピンの2つの自由度を利用する「スピントロニクス」は、現代のエレクトロニクスを凌駕する次世代技術として期待され、近年大きな注目を集めている。中でも、強磁性体/絶縁体/強磁性体から構成される強磁性トンネル接合は室温にて巨大なトンネル磁気抵抗(TMR)効果を示すことから、世界中で盛んに研究が進められている。この磁気感度の指標を示すTMR比は、現在、室温にて600%を超える。一方で、強磁性トンネル接合は、室温にてトンネル磁気キャパシタンス(TMC)効果も示す。しかしながら、TMC比は50%程度にとどまっており、また、そのメカニズムも明らかになっていない。そこで、本研究では、TMC比の向上を目指すとともに、そのメカニズムを解明することを目的とした。

TMC効果のメカニズムを明らかにするため、Debye-Fröhlichモデルを用いた新たな理論を構築した。その

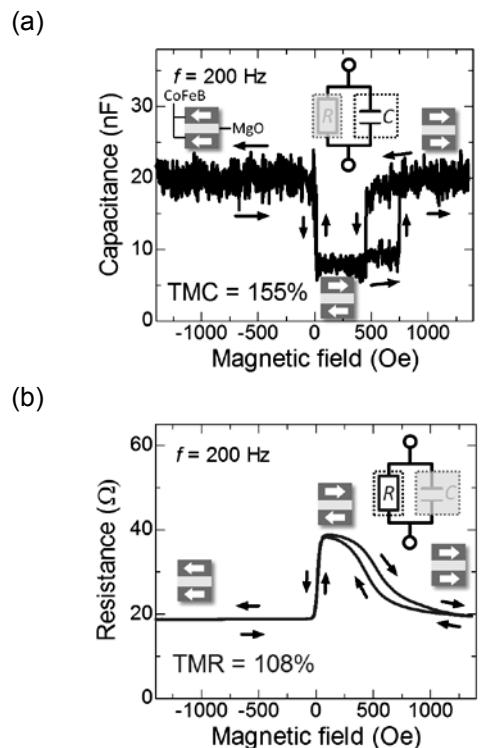


図1 強磁性トンネル接合における(a)TMC効果と(b)TMR効果

結果、ある特徴的な周波数においてTMC比は最大値を示し、その値はTMR比よりも大きくなることがわかった。そこで、本理論を実証するために、超高真空マグネットロンスパッタ装置を用いて、熱酸化Si基板上にCo<sub>40</sub>Fe<sub>40</sub>B<sub>20</sub>(3 nm)/MgO(2 nm)/Co<sub>40</sub>Fe<sub>40</sub>B<sub>20</sub>(3 nm)から構成される強磁性トンネル接合を作製し、TMC効果の周波数依存性を詳細に調べた。その結果、図1(a)に示すように、200 Hzにおいて、室温にて巨大なTMC効果を観測することに初めて成功した。ここでのTMC比はこれまでに報告された値(=約50%)を大きく超える155%を示した。また、図1(b)に示すように、この磁気トンネル接合でのTMR比は108%であることから、TMC比がTMR比より大きくなる上述の理論予測を支持する結果を得た。

図2にTMC比とTMR比の周波数依存性を示す。TMR比は周波数に対して一定のことに対し、TMC比は200 Hz附近で最大値を示すことがわかる。このTMC比の最大値は

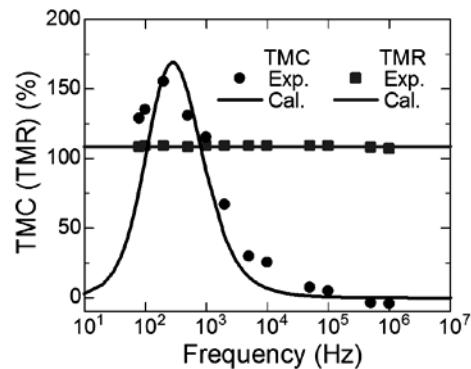


図2 TMC比とTMR比の周波数特性

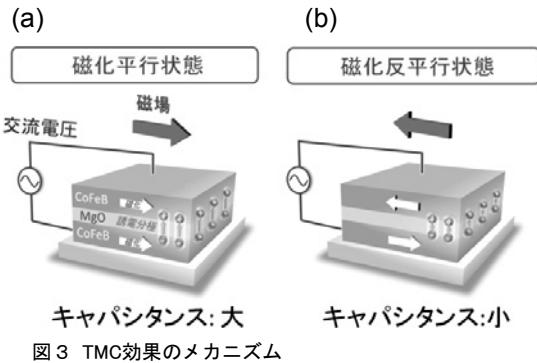


図3 TMC効果のメカニズム

TMR比より大きい。これらの実験結果はDebye-Fröhlichモデルを用いた計算結果(実線)と良い一致を示す。これはTMC効果のメカニズムが絶縁層内の動的誘電分極に起因することを意味する。すなわち、強磁性体である $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ 層の磁化が互いに平行であるときは、絶縁体であるMgO層内のキャリアは高い透過確率でトンネルするため、キャリアの緩和時間は短くなる。そのため、外部の交流電場に対してキャリアは追従することができる。これによってMgO層における誘電分極が大きくなり、キャパシタンスが大きくなる(図3(a))。一方で、 $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ 層の磁化が反平行であるときは、上述とは逆で、MgO層内のキャリアは低い透過確率でトンネルするため、キャリアの緩和時間は長くなる。そのため、MgO層における誘電分極が小さくなり、キャパシタンスが小さくなる(図3(b))。これが本研究で明らかになったTMC効果のメカニズムである。

さらに、本理論を用い、TMC比向上に関する検討を行った。図4にTMC比の周波数特性に関する計算結果を示す。本計算では、スピントン率を0.47、0.67、0.87とした。これらのスピントン率は、Julliereの式に基づくと、それぞれ57%、163%、623%のTMR比に相当する。図4からわかるように、623%のTMR比を有する強磁性トンネル接合では、TMC比が100%を超えることが理論的に明らかになった。

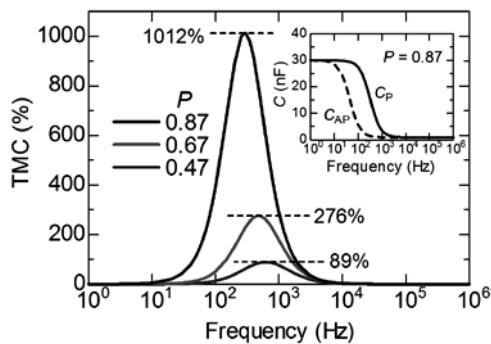


図4 TMC比の周波数特性に関する計算結果

## (2) 新規プラチナ系超伝導物質の発見

高圧を利用した物質探索、特に10 GPaを超える高圧合成が可能な施設は、国内でも数か所であり、まだまだ未開拓領域が残されている。我々のグループでは、図5に示される



図5 6-8型マルチアンビルセル

6-8型マルチアンビルセルという高圧合成装置を用いて、地球の上部マントルに匹敵する高い圧力を利用し、常圧では合成できない新規物質の探索を行っている。このような特殊環境下では、まだまだ知られていない物質が数多く存在すると期待される。ここでは、10 GPaの高圧下で初めて合成される新規Pt系超伝導物質について報告する。

得られた超伝導物質の結晶構造を図6(a)に示す。c軸方向の格子定数が60 Å以上あり、現在報告されている金属間化合物の中では最も長い超伝導物質である。さらに、電子状態計算から主成分であるPtが伝導を担うことが確認された。複雑な構造であるが、この伝導を担うPtとそれ以外のLaとAsを分けると、かなり結晶構造が見やすくなる。図6(c)はPtだけを抜き出している。4つのPt元素は四面体を作り、それが頂点を稜共有する形でネットワーク状に広がっている(図6(d))。このようなPtの層が一つのユニットセルに12枚積層しており、この部分に超伝導電流が流れれる。

しかしながら、Ptは単体では超伝導にならない元素であり、むしろ、超伝導には不向きな性質を持つ。PtやPd、Rhといった元素は非磁性遷移金属に分類されるものの、こ

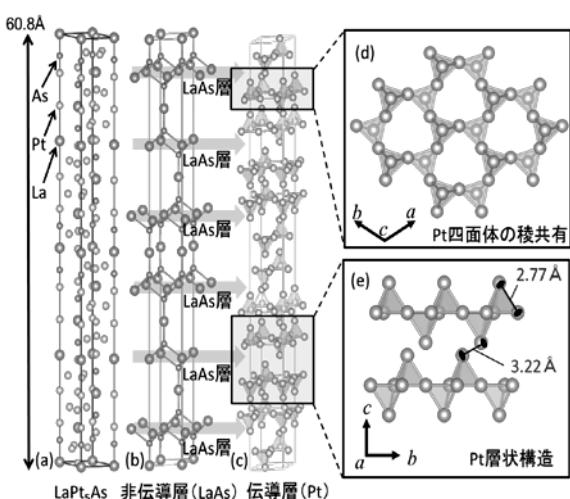


図6 新規プラチナ系超伝導物質の結晶構造

これらの元素はd電子の濃度が高く、弱い磁性を有することが知られている。一般に磁性は超伝導と競合するため、これらの元素を含む物質は超伝導になりにくいと考えられている。

また、単体Ptの原子間距離は2.77Å程度であり、d電子は比較的、原子の近くに局在している。この原子間距離が縮むとd電子間の交換相互作用が強くなり、磁性も大きくなる。一方で、原子間距離が伸びるとd電子間の交換相互作用が弱まり、磁性も小さくなる。LaPt<sub>5</sub>Asでは、Ptが層状の構造を有しているが、図6(b, c)に示されるように、LaAs層がPt層の層間を広げるため、Ptの原子間距離が伸びる(図6(e))。これが超伝導の発現に大きく寄与しているのではないかと予想される。実際にこの考え方を様々なPt系超伝導物質に適用すると、多くの物質でPt原子間の距離が単体のPtに比べて伸びていることが確認された。一方Pt原子間距離が短い超伝導体については、電子状態の計算から、伝導に関わるd電子の濃度そのものが低いことが確認された。そのため、Pt, Pd, Rhなどの元素を含む超伝導物質探索では、如何にしてd電子間の交換相互作用を減じるかという新たな物質設計の指針を本研究成果から提案するに至った。

### 3. 今後の研究の展望

磁場によりキャパシタンスが変化する磁気キャパシタンス効果は、強磁性トンネル接合のみならず、近年盛んに研究が行われているマルチフェロイック材料においても発見されている。最近では、絶縁体中にナノ粒子を分散させたナノグラニュラー材料や強磁性層と強磁性層の間に分子を挟んだ分子スピントロニクス素子においても発見されており、磁気キャパシタンス効果をキーワードとした当該研究分野が急速に発展している。このような観点から他の様々な材料・物質・デバイスにおいても室温巨大磁気キャパシタンス効果が発見される可能性は極めて高く、学術的に広く展開していくものと期待できる。さらに、将来的には、磁気キャパシタンス効果の特徴を活かした革新的低ノイズ・低消費電力メモリ素子の創製のみならず、磁気抵抗効果と組み合わせることで、従来にない多値磁気メモリ素子の創製も期待でき、応用工学的な観点からも極めて大きな意義をもつものと考えられる。また、超高压下での合成では、LaPt<sub>5</sub>Asのような特異な結晶構造を有する新物質が発見された。本物質の発見により提案される物質設計の指針に基づき、今後の物質探索研究では、非伝導層であるLaもしくはAsサイトにより大きな元素の置換を試みる。この置換によりPt元素を孤立させ、d電子間の交換相互作用を減じることができれば、超伝導特性の向上が期待される。また、このような元素置換から得られる新たな知見を物質設計にフィードバックすることで、さらなる超伝導特性の向上を目指す。

## 4. 資料

### 4.1 学術論文（査読あり）

- 1) D. Sakai, K. Harada, Y. Hara, H. Ikeda, S. Funatsu, K. Uraji, T. Suzuki, Y. Yamamoto, K. Yamamoto, N. Ikutame, K. Kawaguchi, H. Kaiju and J. Nishii : “Selective deposition of SiO<sub>2</sub> on ion conductive area of soda-lime glass surface”, *Scientific Reports*, Springer Nature, 6 : 27767(1-7) (2016)
- 2) R. Matsumoto, Y. Sasama, M. Fujioka, T. Irifune, M. Tanaka, T. Yamaguchi, H. Takeya and Y. Takano : “Note: Novel diamond anvil cell for electrical measurements using boron-doped metallic diamond electrodes”, *Review of Scientific Instruments*, AIP, 87 : 076103(1-3) (2016)
- 3) M. Fujioka, M. Ishimaru, T. Shibuya, Y. Kamihara, C. Tabata, H. Amitsuka, A. Miura, M. Tanaka, Y. Takano, H. Kaiju and J. Nishii : “Discovery of the Pt-Based Superconductor LaPt<sub>5</sub>As”, *Journal of The American Chemical Society*, ACS, 138 : 9927-9934 (2016)
- 4) T. Misawa, S. Mori, T. Komine, M. Fujioka, J. Nishii and H. Kaiju : “Structural and magnetic properties of Ni<sub>78</sub>Fe<sub>22</sub> thin films sandwiched between low-softening-point glasses and application in spin devices”, *Applied Surface Science*, Elsevier, 390 : 666-674 (2016)
- 5) T. Suzuki, J. Anzai, Y. Takimoto, K. Uraji, K. Yamamoto and J. Nishii : “Migration behavior of network-modifier cations at glass surface during electrical poling”, *Journal of Non-Crystalline Solids*, Elsevier, 452 : 125-129 (2016)
- 6) S. Ikeda, K. Uraji, T. Suzuki, K. Yamamoto and J. Nishii : “Migration behavior of alkali and alkaline-earth cations in soda-lime silicate glass surface by electrical nanoimprint”, *Journal of Non-Crystalline Solids*, Elsevier, 453 : 103-107 (2016)
- 7) Y. Sato and N. Ay : “Information flow in learning a coin-tossing game”, *NOLTA journal*, IEICE, 7: 118-125 (2016)
- 8) Y. Sato, D. Shimaoka, K. Fujimoto and G. Taga : “Neural field dynamics for growing brains”, *NOLTA journal*, IEICE, 7: 226-233 (2016)

### 4.2 学術論文（査読なし）

該当なし

### 4.3 総説・解説・評論等

該当なし

### 4.4 著書

該当なし

#### 4.5 特許

- 1) 藤岡正弥、西井準治、海住英生：特願2016-089993、  
　　インタークレーション物質の製造方法および製造装置ならびにイオン置換物質の製造方法および製造装置、平成28年4月28日
- 2) 藤岡正弥、西井準治、海住英生：特願2016-204766、  
　　インタークレーション物質の製造方法および製造装置ならびにイオン置換物質の製造方法および製造装置、平成28年10月19日

#### 4.6 講演

##### a. 招待講演（国際学会）

- 1) J. Nishii, T. Misawa, M. Takei, S. Ikeda, T. Suzuki, K. Uraji and K. Yamamoto : "Fine pattern formation on silicate glasses under DC voltage application", International Congress on Glass, Shanghai, China (2016-04)
- 2) J. Nishii : "Electrical imprint for fine patterning of silicate glasses", The 3rd Glass Summit and Atomistic Simulations Workshop, Wuhan University of Technology, China (2016-04)
- 3) H. Kaiju, T. Nagahama, J. Nishii and G. Xiao : "Large magnetocapacitance effect in magnetic tunnel junctions at room temperature", Collaborative Conference on 3D & Materials Research, Incheon, Korea (2016-06)
- 4) Y. Sato : "Anomalous diffusion in random dynamical systems", Workshop on Anomalous Dynamics and Weak ergodicity breaking, University of Warwick, Coventry, UK (2016-08)
- 5) Y. Sato : "Anomalous diffusion in random dynamical systems," Hokkaido-Pisa Summer Institute, University of Pisa, Pisa, Italy (2016-09)
- 6) M. Fujioka, H. Kaiju and J. Nishii : "New Intercalation Method for Layered Materials with Nanospace", Nano S & T-2016, Singapore, Singapore (2016-10)
- 7) Y. Sato : "Anomalous diffusion in random dynamical systems", Dynamics Days Latin America and the Caribbean, University of Puebla, Puebla, Mexico (2016-10)
- 8) J. Nishii : "Behavior of alkali and alkaline-earth ions silicate glasses under DC voltage application", CerSJ-GOMD Joint Symposium on Glass Science and Technologies co-located with The 57th Meeting on Glass and Photonic Materials & The 12th Symposium of Glass Industry Conferences of Japan, Kyoto University International Science Innovation Building (2016-11)
- 9) J. Nishii : "Electrical Nanoimprint", The 33rd International Korea-Japan Seminar on Ceramics, Daejeon Convention Center, Korea (2016-11)
- 10) Y. Sato : "Stochastic bifurcation in random logistic maps", Applications of statical-mechanics and dynamical systems to climate, LSCE, CEA, CNRS, Saclay, France (2016-11)

1 1) H. Kaiju, T. Nagahama, O. Kitakami, J. Nishii and G. Xiao : "Large tunnel magnetocapacitance in magnetic tunnel junctions", 7th Annual Congress on Materials Research and Technology, Berlin, Germany (2017-02)

1 2) H. Kaiju, T. Nagahama, O. Kitakami, J. Nishii and G. Xiao : "Large Magnetocapacitance Effect at Room Temperature in Magnetic Tunnel Junctions", 3rd Annual World Congress of Smart Materials, AVANI Riverside Bangkok Hotel, Thailand (2017-03)

##### b. 招待講演（国内学会）

1) 藤岡 正弥 : 「高圧合成法による新規 Pt 系超伝導体の発見」、第 57 回 化合物新磁性材料専門研究会、東京大学(本郷) 情報基盤センター (2016-06)

2) 藤岡 正弥 : 「高圧合成法による新しい Pt 系超伝導体の発見」、新超伝導体セミナー、首都大学 (2016-06)

##### c. 一般講演（国際学会）

1) J. Nishii, T. Misawa, M. Fujioka and H. Kaiju : "Electrical Nanoimprint on Soda-lime Silicate Glass", The 7th Japan-China-Korea Joint Conference on MEMS/NEMS 2016, Sapporo, Japan (2016-09)

2) Y. Sato: "Anomalous diffusion in random dynamical systems", CRITICS Workshop, University of Copenhagen, Copenhagen, Denmark (2016-09)

3) Y. Sato: "Stochastic bifurcation in random logistic maps," Keio Dynamics Day, Keio University, Kanagawa, Japan (2017-01)

4) M. Walid, K. Iman, A. Ramadan and M. Fujioka: "Mechanical properties of the iron-based superconductor SmFeAsO<sub>1-x</sub>F<sub>x</sub>", Frontiers in Theoretical and Applied Physics, UAE2017 (FTAPS 2017), American University of Sharjah, UAE (2017-02)

##### d. 一般講演（国内学会）

1) I. Chelali, Y. Matsumoto, S. Kawaguchi, R. Sakagami, S. R. Hall, M. Matoba, H. Kaiju, J. Nishii and Y. Kamihara : "Synthesis of Transition Metal-Based High-T<sub>c</sub> Superconducting Micro-Wire Using Bio-Polymer", 平成 28 年度日本材料科学会学術講演大会, 産業技術総合研究所 臨海副都心センター別館 (2016-06)

2) 海住 英生、武井 将志、三澤 貴浩、長浜 太郎、西井 準治、Xiao Gang : 「強磁性トンネル接合における室温巨大磁気キャパシタンス効果」、第 40 回日本磁気学会学術講演会、金沢大学 (2016-09)

3) 三澤 貴浩、森 澄人、小峰 啓史、星野 哲久、芥川 智行、藤岡 正弥、海住 英生、西井 準治 : 「薄膜エッジを利用した Ni<sub>78</sub>Fe<sub>22</sub>/Alq<sub>3</sub>/Ni<sub>78</sub>Fe<sub>22</sub> ナノ接合の作製とその構造・電気伝導特性」、第 77 回応用物理学会秋季学術講演会、朱鷺メッセ、新潟 (2016-09)

4) 館林 堯、山口 拓哉、藤岡 正弥、海住 英生、西井 準治 : 「高い耐熱性とプロトン伝導を示す希土類含有リン酸塩ガラスの作製」、平成 28 年度日本セラミック

- ス協会東北北海道支部研究発表会、北海道大学  
(2016-10)
- 5) 久保 直紀、三澤 貴浩、藤岡 正弥、海住 英生、西井 準治：「電圧印加ガラスインプリントによる特異な微細構造形成」、平成 28 年度日本セラミックス協会東北北海道支部研究発表会、北海道大学 (2016-10)
  - 6) 木下 拓也、山口 拓哉、藤岡 正弥、海住 英生、小俣 孝久、西井 準治：「コロナ放電処理で作製したプロトン伝導ガラスの評価」、平成 28 年度日本セラミックス協会東北北海道支部研究発表会、北海道大学 (2016-10)
  - 7) 木下 拓也、山口 拓哉、藤岡 正弥、海住 英生、小俣 孝久、西井 準治：「希土類酸化物含有リン酸塩ガラスのプロトン伝導性評価」、第 42 回固体イオニクス討論会、名古屋国際会議場 (2016-12)
  - 8) 木下 拓也、館林 堯、山口 拓哉、藤岡 正弥、海住 英生、小俣 孝久、西井 準治：「希土類元素を含有したプロトン伝導ガラスの熱的安定性」、化学系学協会北海道支部 2017 年冬季研究発表会、北海道大学 (2017-01)
  - 9) 館林 堯、木下 拓也、山口 拓哉、藤岡 正弥、海住 英生、小俣 孝久、西井 準治：「プロトン導入希土類含有ガラスの伝導特性」、化学系学協会北海道支部 2017 年冬季研究発表会、北海道大学 (2017-01)
  - 10) H. Kaiju, T. Nagahama, S. Sasaki, T. Shimada, O. Kitakami, T. Misawa, M. Fujioka, J. Nishii and G. Xiao : "Inverse Tunnel Magnetocapacitance in Fe/Al-oxide/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>", 第 64 回応用物理学会春季学術講演会、パシフィコ横浜 (2017-03)
  - 11) 館林 堯、木下 拓也、山口 拓哉、藤岡 正弥、海住 英生、小俣 孝久、西井 準治：「希土類含有リン酸塩ガラスのプロトン伝導特性」、日本セラミックス協会 2017 年年会、日本大学駿河台キャンパス (2017-03)
  - 12) 木下 拓也、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」、日本セラミックス協会 2017 年年会、日本大学駿河台キャンパス (2017-03)
  - 13) Y. Sato : "Anomalous diffusion and intermittency in random dynamical systems", JSIAM Conference, University of Electro-Communications, Tokyo, Japan (2017-03)
- e. 研究会・シンポジウム・ワークショップなど(学会以外)
- 1) Y. Sato : "Noise-induced statistical periodicity and almost cyclic sets", RIMS workshop on dynamical systems, Kyoto, Japan (2016-06)
  - 2) Y. Matsumoto, M. Matoba, H. Kaiju, J. Nishii, S. R. Hall and Y. Kamihara : "Approaches for transport properties of YBCO micro-wires using nano-technology", 1st Workshop on Novel Superconducting materials and bio-mimetic processes 2016, Bristol University, UK (2016-07)
  - 3) Y. Sato : "Chaos in function dynamics", RIMS workshop on mathematics for macroeconomics, Kyoto, Japan (2016-07)
  - 4) Y. Sato : "Anomalous diffusion in random dynamical systems," Progress in Anomalous Diffusion Studies, Keio University, Kanagawa, Japan (2016-09)
  - 5) T. Misawa, S. Mori, M. Fujioka, H. Kaiju and J. Nishii : "Fabrication of nanoscale junctions utilizing Ni<sub>78</sub>Fe<sub>22</sub> thin-film edges for the creation of novel spin devices", HOKUDAI-NCTU Joint Symposium on Nano, Photo and Bio Sciences, Sapporo (2016-10)
  - 6) W. Chuanbao, M. Fujioka, H. Kaiju and J. Nishii : "Synthesis of a new NASICON-structured K<sub>x</sub>Na<sub>3-x-y</sub>H<sub>y</sub>V<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sup>3</sup> Using a Novel Ion Substitution Method", HOKUDAI-NCTU Joint Symposium on Nano, Photo and Bio Sciences, Hokkaido University (2016-10)
  - 7) T. Kinoshita, T. Yamaguchi, M. Fujioka, H. Kaiju, T. Omata and J. Nishii : "Fabrication of proton conductive phosphate glass using corona discharge treatment", The 17th RIES-Hokudai International Symposium, Sapporo (2016-12)
  - 8) N. Kubo, W. Chuanbao, M. Fujioka, H. Kaiju and J. Nishii : "Synthesis of a New NASICON-structured K<sub>x</sub>Na<sub>3-x-y</sub>H<sub>y</sub>V<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sup>3</sup> Using a Novel Ion Substitution Method", The 17th RIES-Hokudai International Symposium, Sapporo (2016-12)
  - 9) D. Sakai, M. Abe, K. Harada, T. Omatsu, I. Yoshida, T. Nishiura, T. Takemori, J. Nishii and H. Shibata : "Fabrication of Microstructure on Soda-lime Silicate Glass Using Corona Discharge", The Sixth Japan-Korea Workshop on Digital Holography and Information Photonics, Sapporo (2016-12)
  - 10) M. Fujioka, H. Kaiju, J. Nishii and Y. Takano : "Superconductivity and Crystal Structure of LaPt<sub>5</sub>As with Extremely Long c Lattice Parameter", IWSRFM2016 (International Workshop on Superconductivity and Related Functional Materials), Tsukuba (2016-12)
- #### 4.7 シンポジウムの開催
- 1) 西井 準治 : 「JCK-MEMS/NEMS-2016」、70 人、Sapporo Education and Culture Hall(札幌市)(2016 年 09 月 21 日～2016 年 09 月 23 日)
  - 2) 海住 英生、藤岡 正弥、西井 準治 : 「電子科学研究所学術講演会(共催:応用物理学会北海道支部・エンレイソウの会)」、25 人、北海道大学電子科学研究所(札幌)(2016 年 09 月 30 日)
  - 3) 海住 英生、藤岡 正弥、西井 準治 : 「電子科学研究所学術講演会(共催:応用物理学会北海道支部・エン

- レイソウの会)」、20 人、北海道大学電子科学研究所(札幌)(2017 年 02 月 09 日)
- 4) Y. Sato, Organizer, Workshop on Anomalous Dynamics and Weak Ergodicity Breaking, University of Warwick, Coventry, UK (2016-08)

#### 4.8 共同研究

##### a. 所内共同研究

該当なし

##### b. 民間等との共同研究

該当なし

##### c. 委託研究

該当なし

##### d. 國際共同研究

- 1) 海住 英生、西井 準治、長浜 太郎、北上 修、小峰 啓史、Xiao Gang :「スピントロニクス学術研究基盤と連携ネットワーク」拠点整備事業共同研究プロジェクト、2016 年度
- 2) Y. Sato, J. Lamb and M. Rasmussen (Imperial College London)
- 3) Y. Sato and R. Klages (Queen Mary University of London)
- 4) Y. Sato and N. Moloney (London Mathematical Laboratory)
- 5) Y. Sato and K. Padberg-Ghele (Technical University of Dresden)
- 6) Y. Sato and S. Siegmund (Technical University of Dresden)
- 7) Y. Sato and M. Ghill (Ecole Normale Supérieure)
- 8) Y. Sato and D. Faranda (CNRS)
- 9) Y. Sato and S. Galatolo (University of Pisa)

#### 4.9 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) 西井 準治、萌芽研究 一般、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ンングと機能性付与、2015～2016 年度
- 2) 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
- 3) 海住 英生、基盤研究 B 一般、強磁性ナノ接合を用いた巨大磁気キャパシタンス効果素子の創製、2015～2017 年度
- 4) 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
- 5) 佐藤 讓、基盤研究 C 特設、マウス全半球膜電位伝播波の甘利神経場モデルによる解析、2014～2018 年度

##### b. 大型プロジェクト・受託研究

- 1) 西井 準治、海住 英生、藤岡 正弥、野呂 真一郎 (NEDO エネルギー・環境新技術先導プログラム) : “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
- 2) 神原 陽一、海住 英生 (H24-28 年度 物質・デバイス領域共同研究拠点共同研究) : 「鉄系超伝導体の微結晶を利用した輸送臨界電流密度測定」、2012～2016 年度
- 3) 小峰 啓史、海住 英生 (H25-28 年度 物質・デバイス領域共同研究拠点共同研究) : 「積層磁性膜の粒間相互作用が磁化状態に及ぼす影響」、2013～2016 年度
- 4) 海住 英生、藤岡 正弥、西井 準治、芥川 智行 (北海道大学電子科学研究所「ダイナミックアライアンス研究支援事業 若手研究者共同研究スタートアップ事業」) : 「薄膜エッジを用いたナノスケール接合の作製とその構造・電気伝導特性に関する研究」、2016 年度
- 5) 藤岡 正弥 (ナノテクキャリアアップアライアンス (Nanotech CUPAL)) : 「超高圧を利用した新規機能性物質の創出」、2016～2020 年度
- 6) 佐藤 讓: External fellow grant, “Extreme value statistics for dynamical systems,” London Mathematical Laboratory, UK, 2016–2017 年度
- 7) 佐藤 讓: PICS grant, “Understanding the dynamics of atmospheric circulation,” CNRS, France, 2016–2018 年度

#### 4.10 受賞

- 1) I. Chelali, Y. Matsumoto, S. Kawaguchi, R. Sakagami, S. R. Hall, M. Matoba, H. Kaiju, J. Nishii and Y. Kamihara : The MSSJ Prize for the Presentation of an Excellent Paper (oral) “Synthesis of Transition Metal-Based High-T<sub>c</sub> Superconducting Micro-Wire Using Bio-Polymer” (Materials Science Society of Japan) 2016 年 07 月
- 2) 三澤 貴浩、森 澄人、小峰 啓史、星野 哲久、芥川 智行、藤岡 正弥、海住 英生、西井 準治 : 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会 Poster Award 「薄膜エッジを利用した Ni<sub>78</sub>Fe<sub>22</sub>/Alq<sub>3</sub>/Ni<sub>78</sub>Fe<sub>22</sub> ナノ接合の作製とその構造・電気伝導特性」(応用物理学会) 2016 年 09 月
- 3) 木下 拓也、山口 拓哉、藤岡 正弥、海住 英生、小俣 孝久、西井 準治 : 平成 28 年度日本セラミックス協会東北北海道支部研究発表会優秀発表賞 「コロナ放電処理で作製したプロトン伝導ガラスの評価」 (日本セラミックス協会) 2016 年 10 月
- 4) H. Kaiju, T. Nagahama, S. Sasaki, T. Shimada, O. Kitakami, T. Misawa, M. Fujioka, J. Nishii and G. Xiao : 第 64 回応用物理学会春季学術講演会 Poster Award “Inverse Tunnel Magnetocapacitance in

#### 4.11 社会教育活動

##### a. 公的機関の委員

- 1) 西井 準治：科学技術振興機構 A-STEP 探索タイプ専門委員（2013年04月01日～2017年03月31日）
- 2) 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02月24日～現在）

##### b. 国内外の学会の役職

- 1) 西井 準治：応用物理学会ナノインプリント研究会運営委員会委員（2014年04月01日～現在）
- 2) 西井 準治：日本セラミックス協会東北北海道支部役員（2014年04月01日～現在）
- 3) 西井 準治：日本セラミックス協会賞選考委員（2015年04月01日～2017年03月30日）
- 4) 海住 英生：平成28年度日本セラミックス協会東北北海道支部研究発表会座長/講演賞審査委員（2016年10月27日～2016年10月28日）
- 5) 佐藤 讓：日本応用数理学会 JSIAM Letters 編集委員（2008年04月01日～現在）

##### c. 兼任・兼業

- 1) 西井 準治：住友財団基礎科学研究選考委員（2015年04月01日～現在）
- 2) 佐藤 讓：London Mathematical Laboratory (UK), 外部フェロー（2013年09月01日～現在）
- 3) 佐藤 讓：JSPS サイエンス・ダイアログ、講師、钏路湖陵高校（2016年9月15日～2016年9月16日）

##### d. 外国人研究者の招聘

- 1) Thai-Son Doan, Vietnam, (2015年11月15日～2017年11月14日)

##### e. 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、2016年6月6日～2016年8月1日
- 2) 全学共通、大学院共通科目『ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論II（ナノテクノロジー・ナノサイエンスと光科学）』「ナノテクを駆使した次世代スピンドバイス」、海住 英生、2016年11月16日～2016年11月18日
- 3) 全学共通、大学院共通科目 『トポロジー理工学特別講義』「スピントロニクスとスピントリニティ」、海住 英生、2016年12月02日
- 4) 全学共通、大学院共通科目、数理解析学講義「カオスと複雑性」、佐藤 讓、2016年度前期
- 5) 全学共通科目、大学院共通科目、数理解析学統論「カオスとランダムネス」、佐藤 讓、2016年度後期
- 6) 全学共通科目、微分積分学 I、佐藤 讓、2016年度後期

##### f. 北大以外での非常勤講師（対象、講義名、担当者、期間）

該当なし

##### g. 新聞・テレビ等の報道

- 1) 2016年06月20日 日本経済新聞 「ガラス表面に微細構造作製 北見工業大工との共同研究で、ガラス表面にサブ波長周期構造の形成に成功」
- 2) 2016年08月04日 日本経済産業新聞 「白金含む超電導物質、超高压合成で新規超伝導物質の発見」

##### h. ポスドク・客員研究員など

- 1) Thai Son Doan, JSPS 外国人特別研究員、(2015.11.1-2017.10.31)

##### i. 修士学位及び博士学位の取得状況

修士学位（1名）：

- 1) 木下 拓也：リン酸塩ガラス中のプロトン伝導機構

博士学位（1名）：

- 1) 三澤 貴浩：Studies on Electrical Conduction Characteristics of Metal/Molecule/Metal Nanoscale Junction Device（金属/分子/金属ナノスケール接合素子の電気伝導特性に関する研究）

## 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～）

### 1. 研究目標

非古典光供給システムは、光子の不可分性・情報の重ね合わせという量子力学の原理に基づく、安全且つ省電力な量子情報通信環境を提供する要素技術である。今後の本格的な運用に向けて、構造的な安定性に優れ、長寿命且つ明るく、更に低コストで製造できる非古典光源の開発が必要不可欠であり、様々な物質材料・構造等で探索研究が行われている。

当研究室では空間的な3次元閉じ込め効果によって内部エネルギーが離散化し、本質的に複数光子（対）の生成が起こらない半導体量子ドット（QD）の量子情報通信技術への展開を念頭に、安定且つ耐久性に優れた半導体量子ドットと光ファイバーの結合デバイス実現に向けた基盤技術開発を進めている。光子取得効率を高める金属埋め込み共振器中量子ドットにおいて、両者の接続機構の検討や背景光の要因を精査することで、光子発生源として冷却が必要な半導体量子ドットを用いた構造において実用化に資する高純度で機械的安定性を有する单一光子状態の長期安定生成を目指す。本年度は、単一モード光ファイバー（SMF）コアにQDを直接装着した QD in Fiber (QDinF) を用いて、主として長時間安定性および扱いやすさの観点から非古典光源の開発を進めた。

### 2. 研究成果

#### (a) QD in Fiber (QDinF) 構造の作製

光子の取得効率の向上及び单一光子状態純度の劣化抑制を狙い、従来型QDinFに対して高NAのSMFへの変更と、光子源自体のナノピラーアレイ化を実施した。SMFの動作波長帯（960–1600 nm）に合わせるために、MBE装置を用いて低速成長法により成膜した面内密度  $\sim 5 \times 10^9 / \text{cm}^2$  のInAs/GaAs QDを光子源として用いた。電子線リソグラフィーにより300 nm–直径、2.5  $\mu\text{m}$ –間隔(B)のナノピラーアレイ状に加工した。BはSMFのモードフィルド径 (MFD=2.6  $\mu\text{m}$ )に合わせ、SMFの端面に接続する際に一本のナノピラーだけが選択的に光学結合するように設計した。歪み印加中の位置ずれによる光学結合効率の欠損及び揺動を抑制するため、ネガレジスト（水素化シリセスキオキサン、HSQ）のスピンドルコートによるナノピラーアレイ形状の構造安定性の強化を選択した。ナノピラーアレイ化後にスピンドルコートを施した試料をSMF端面に直接接続し、改良型QDinFを作製した。

ナノピラー接続型QDinFを液体ヘリウム中に設置し、SNSPDとTAC (B&H: TCSPC-130EM) を用いて、2次の自己相関測定を行い、单一光子状態の純度を評価した。離散ピーク

の選択にバンド幅 50 nmのフィルター (Edmund: #85-893) とバンド幅 0.5 nm (Optoquest: custom-made) の狭帯域フィルターを併用した。低励起条件 (28.6 nW) 下だけでなく出力光子数の飽和が認められる高い励起強度条件 (1.54  $\mu\text{W}$ )においても明瞭なアンチバンチング特性が得られた [図1]。図1中の2本のデータ、はSNSPDの暗計数 ( $\sim 40$  cps) も含んだ実測結果である。過渡的な励起複合体間の状態変化を考慮し、最小自乗法により実測データを回帰し、 $g^{(2)}(0)$  及び励起レート  $\gamma$  の励起強度依存性を求めた結果、実測した励起強度の範囲では  $\gamma$  はほぼ線形に増加することが判った。一般的に背景光の寄与が少なく純度の高い单一光子が得られる弱励起強度条件下だけでなく、強励起条件下においても、 $g^{(2)}(0)$  は0.1を明瞭に下回ることも実験的に示され、ナノピラーアレイ化による背景光の抑制が極めて有効であることを示した。

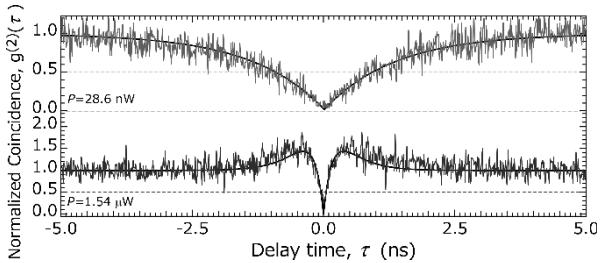


図1 改良型 QDinF による高純度单一光子生成の検証実験結果。実線は理論 fitting 結果。

单一光子源としての長時間安定性・扱いやすさは、当該研究開発課題に限らず、実用上の観点においても重要な指標である。改良型QDinFは微細加工によりナノピラーアレイ化しているため、機械的安定性の低下及び明滅現象の発生といったエネルギー不安定性の発現が懸念された。そこで長時間安定性を検証した。図2 揿入図にQDinFを4日間にわたって連続動作させ、2分間隔で光子数を測定した結果を示す。この検証中、光子源だけでなく、検出器など全光学系の調整を一切行っていないが、検出光子数の低下などは認められず、これは安定且つ扱いやすい单一光子発生システムであることを強く示唆するものである。また検出光子数の揺らぎは5%以下である。更に数十回の室温–液体ヘリウム温度間のヒートサイクル後の現在においても性能劣化がないことを確認している。

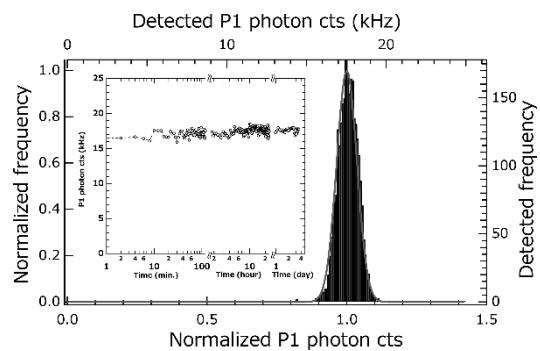


図2 改良型 QDinF の単一光子光源としての連続動作安定性。挿入図は、4 日間連続動作させた際の検出光子レートを 2 分間隔で取得したログデータ。

### 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データ空間が接続されつつある。サイバー攻撃等のリスクへの対策としては勿論であるが、量子性を有した計算機の登場等ハードウェアの大革新が起りつつあり、安心・安全を十分に担保できるセキュア通信網の確立は、社会の持続的発展のためには急務である。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となっている。本稿で議論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。

今後は、これまでに実施した安定且つ高純度な単一光子源、また多様な形態の量子ビットデバイス・量子メモリに関する成果を踏まえ、励起エネルギーの制御等の検討を通して、QDと環境系の間のキャリア移動についてより詳細な議論を進め、スペクトル狭窄化による光電相互作用の増大に向けた研究、また独立量子ドット光源からの光子干渉の高効率化に関する研究を進める予定である。光子がもつ他の系にはない特色を最大限に引き出し、量子暗号や量子計算をはじめとする量子光デバイスの実現に向けた研究開発を、今後とも鋭意展開して行きたい。

## 4. 資料

### 4.1 学術論文（査読あり）

- 1) X. Liu, H. Nakajima, Y. Li, S. Odashima, I. Suemune and H. Kumano: "Optical control of spectral diffusion with single InAs quantum dots in a silver-embedded nano-cone", Optics Express **25**, 8073–8084 (3, April 2017).

### 4.2 学術論文（査読なし）

- 1) 該当なし。

### 4.3 総説・解説・評論等

- 1) 該当なし。

### 4.4 著書

- 1) 該当なし。

### 4.5 特許（発明者：特許番号、特許名、出願年月日）

- 1) 赤崎達志、末宗幾夫、笹倉弘理、熊野英和：特開2015-216189 「量子もつれ光子対発生素子および量子もつれ光子対発生方法」、(平成26年11月20日公開)

### 4.6 講演

#### a. 招待講演（国際学会）

- 1) H. Kumano: "Quantum photon-pair generation from an isotropic quantum dot grown by droplet epitaxy", III International Workshop on Metal Droplet Epitaxy of Semiconductor Nanostructures (DeWork3), May 27, 2016, Jeju, Korea.

#### b. 招待講演（国内学会）

- 1) 該当なし。

#### c. 一般講演（国際学会）

- 1) S. Odashima, H. Sasakura, H. Nakajima, and H. Kumano: "Highly pure and stable single photon source directly coupled to a fiber", The 43rd International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS2016, Compound Semiconductor week 2016) June 26–30, 2016, Toyama, Japan.

#### d. 一般講演（国内学会）

- 1) 該当なし

#### e. 研究会・シンポジウム・ワークショップなど（学会以外）

- 1) 該当なし。

### 4.7 シンポジウムの開催

- 1) 該当なし。

### 4.8 共同研究

#### a. 所内共同研究

- 1) 該当なし。

#### b. 民間等との共同研究

- 1) 篠耕司、熊野英和：物質・デバイス領域共同研究拠点：「チタン系酸化物半導体のNd:YAGレーザーPLDによる結晶成長と新機能探索」
- 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」

#### c. 委託研究

- 1) 該当なし。

#### d. 国際共同研究

- 1) 該当なし。

### 4.9 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) 熊野英和、基盤研究B 一般「高秘匿通信のための量子ドット偏光相関2光子源：生成機構の解明と通信波長帯展開」(2016-2018年度)

#### b. 大型プロジェクト・受託研究

- 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)

### 4.10 受賞

- 1) 該当なし。

### 4.11 社会教育活動

#### a. 公的機関の委員

- 1) 熊野英和：特別研究員等審査会専門委員及び書面審査員・書面評価員（2015年8月1日～2017年7月31日）

**b. 国内外の学会の役職**

- 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)

**c. 兼任・兼業**

- 1) 該当なし。

**d. 外国人研究者の招聘**

- 1) 該当なし。

**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、応用数学II、熊野 英和、2016年04月01日～2016年09月30日

- 2) 工学部、電気電子工学実験基礎、熊野 英和、2016年10月01日～2017年03月31日

- 3) 情報科学研究科、光電子物性学特論、熊野 英和、2016年04月01日～2016年09月30日

**f. 北大以外での非常勤講師（対象、講義名、担当者、期間）**

- 1) 該当なし。

**g. 新聞・テレビ等の報道**

- 1) 該当なし。

**h. ポスドク・客員研究員など**

- 1) 該当なし。

**i. 修士学位及び博士学位の取得状況**

修士学位（人数）：

- 1) 該当なし。

博士学位（人数）：

- 1) 該当なし。

## 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 大島雄(DC3)、西出大輔(MC2)、鄭鎧(MC2)

### 1. 研究目標

一つの分子が発現する機能は多様であり、分子が示す光・電子機能性、生理活性などに基づき、エレクトロニクス・材料・医薬など広範な分野での応用に供されている。一方、複数の分子が集合すると、それぞれの分子に起因する機能だけでなく、異種分子間の相互作用により、単一の分子では実現できない新たな機能発現が期待できる。我々の研究室では、ナノメートル領域で複数の分子が集合した“ナノアセンブリ”に着目し研究を進めている。分子の自己集積化過程を設計・制御することで新奇なナノアセンブリ構造を実現し、さらに集合体における協同現象を積極的に利用することで、単一分子では達成できない機能の発現を目指す。ナノメートル領域で設計されたナノアセンブリを周期的に配列した材料、すなわちナノアセンブリ材料は、多くの場合、単結晶の形態を有する。その構造と機能の相関を詳細に検討し、次代を担う新奇材料を開拓することが、我々の研究目標である。

### 2. 研究成果

#### (a) 分子形状を基軸とした配列制御による一次元超分子カラム構造の実現

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  $(\text{Ani}^+)([18]\text{crown}-6)[\text{Ni}(\text{dmit})_2]$  結晶 ( $\text{Ani}^+$  = anilinium) における、 $[18]\text{crown}-6$  分子の回転運動や、 $\text{Ani}^+$  カチオンあるいは  $m$ -fluoroanilinium ( $m$ -FAni $^+$ ) カチオンの  $180^\circ$  フリップーフロップ運動に関する報告を行った。中でも、 $(m\text{-FAni}^+)(\text{dibenzo}[18]\text{crown}-6)[\text{Ni}(\text{dmit})_2]$  結晶では、 $m$ -FAni $^+$  カチオンのフリップーフロップ運動が協調的に起こることで、分子の分極反転に基づく強誘電体となることを見いだした。超分子結晶中におけるカチオンの回転空間、回転に伴うエネルギー障壁・障壁間の回転ダイナミクスなどを合理的に設計・制御可能になれば、新たな有機強誘電性材料の開発・構築手法を確立することができる。さらに分子回転による強誘電性とアニオンの分子・配列構造に由来する電気伝導

性・磁性を効果的に組み合わせることで、交差物性を示す新奇系ならびに多重機能性材料の開発が期待できる。しかしながら、dibenzo[18]crown-6を超分子カチオンのゲストとして用いる系を除いて、配列を制御する顕著なドライビングフォースが存在しないために結晶配列に特徴がなく、配列の制御が困難である。そのために分子回転空間の確保ならびに回転ポテンシャルの制御を可能とする系統的な設計指針が求められている。そこで、結晶内におけるクラウンエーテル分子の対称性と、結晶化した時の分子形状を考慮した超分子構造の制御を目指した。 $\text{dicyclohexano}[18]\text{crown}-6$  には 4 つの不斉炭素があり、光学異性を含め 7 種類の立体異性体が存在する。そのうち  $tst-\text{DCH}[18]\text{crown}-6$  ( $tst-\text{DCH}$  =  $trans-syn-trans$ -dicyclohexano) はシクロヘキサン環に対して酸素原子がエクアトリアル位から置換しているために平面的な構造をとり、 $C_{2h}$  点群に属する反転対称構造を有する。従って、平面構造の  $tst-\text{DCH}[18]\text{crown}-6$  に対して上下方向が同一の環境にあるため、カチオンとの水素結合相互作用によってどのような配列が実現するかに興味がもたれる。カチオン・アニオンとしてそれぞれ  $\text{Ani}^+$ 、 $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]^-$  を用いて、超分子結晶化を試みた。その結果、 $\text{Ani}^+$ 、 $tst-\text{DCH}[18]\text{crown}-6$ 、 $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]^-$  は 1:1:1 の組成比で結晶化し、単結晶 X 線結晶構造解析が可能な良質な結晶  $(\text{Ani}^+)(tst-\text{DCH}[18]\text{crown}-6)[\text{Ni}(\text{dmit})_2]^-$  (**1**) を得た。構造解析の結果、結晶 **1** の晶系は triclinic、空間群は  $P-1$  だった。 $\text{Ani}^+$  は  $tst-\text{DCH}[18]\text{crown}-6$  の酸素原子と N-H…O 間水素結合を形成しており、N…O 間距離は  $2.845(4)$ – $3.017(4)$  Å,  $\angle \text{N}-\text{H}\cdots\text{O}$  は  $167.33$ – $174.61^\circ$  であることから中程度の強さの水素結合を形成していた。また、アニオンの  $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]^-$  は、1 分子の  $\text{Ani}^+$  を取り囲むように 4 分子が配置され、超分子カチオンの間の隙間を埋めていた。 $tst-\text{DCH}[18]\text{crown}-6$  の平面性を検証するために  $tst-\text{DCH}[18]\text{crown}-6$  の非水素原子の座標からそれらの平均平面との距離を計算したところ、0.579 Å 以内の範囲に全ての非水素原子が位置していた。結果として、 $tst-\text{DCH}[18]\text{crown}-6$  は結晶内で極めて平面的な構造をとったといえる。平面的なコンホメーションのために、予想通り結晶学的に同一の環境が  $tst-\text{DCH}[18]\text{crown}-6$  分子の上下に形成しており、上下方向のどちらからでも  $\text{Ani}^+$  との水素

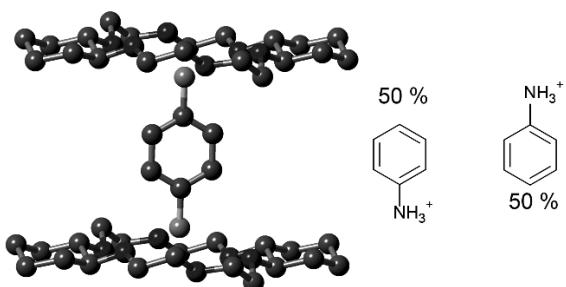


図1 結晶**1**における $\text{Ani}^+$ ・ $tst-\text{DCH}[18]\text{crown}-6$ による超分子構造と  $\text{Ani}^+$  の配向のディスオーダー

結合が可能となっていた。結果として $\text{Ani}^+$ のアンモニウム基は、 $\text{Ani}^+$ のフェニル環の1,4-位でそれぞれの占有率が50%のディスオーダーを示していた。さらに $tst\text{-DCH[18]crown-6}$ の平面性および上下方向での水素結合形成能により、 $\text{Ani}^+$ と $tst\text{-DCH[18]crown-6}$ が $a$ 軸方向に積層し、 $[-(\text{Ani}^+)-(tst\text{-DCH[18]crown-6})-\dots]$ で表される1次元超分子カラム構造を形成していた。

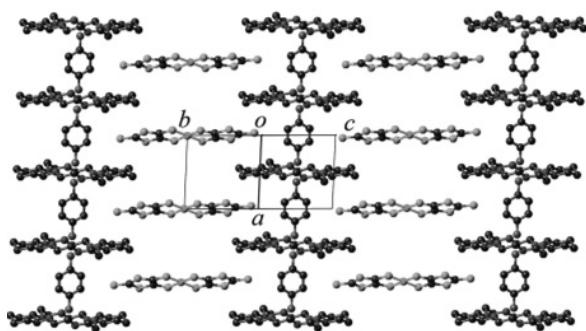


図2 結晶1における一次元超分子カラム構造

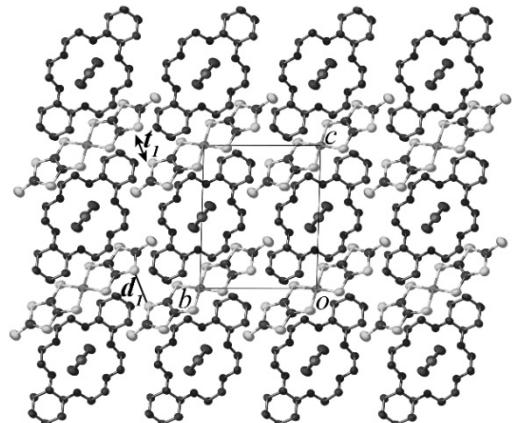


図3 結晶1の $a$ 軸投影図

クラウンエーテルの分子形状に着目した超分子構造の形成に関し、対となるカチオンが与える影響について検証するため、 $m\text{-FAni}^+$ をカチオンとした結晶( $m\text{-FAni}^+)(tst\text{-DCH[18]crown-6})[\text{Ni}(\text{dmit})_2]^-$ (2)を作製し、結晶構造解析を試みた。解析の結果、結晶2でも1と同様に、平面的な $tst\text{-DCH[18]crown-6}$ 分子形状と、 $m\text{-FAni}^+\cdot tst\text{-DCH[18]crown-6}$ 間でのN-H…O水素結合の形成(N…O間距離: 2.810(8)-3.251(6) Å,  $\angle \text{N}-\text{H}\cdots\text{O}$ 結合角: 155.58-171.89°)を確認した。また、結晶2においても超分子カチオン間の隙間を埋めるように $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]^-$ が配列していた点、平面上の $tst\text{-DCH[18]crown-6}$ 分子に対して $m\text{-FAni}^+$ が上下方向から相互作用し、一次元超分子カラム構造を形成していた点も結晶1と同様であった。その一方で、結晶学的に独立な $m\text{-FAni}^+$ ,  $tst\text{-DCH[18]crown-6}$ はそれぞれ4, 3分子存在し、結晶1に比べ複雑な構造となっていた。結晶学的に独立な $tst\text{-DCH[18]crown-6}$ をcrown i, ii, iii とすると、それぞれの分子の有する全非水素原子は、それらの平均平面から 0.456, 0.644, 0.674 Å 以内に位置しており、

$tst\text{-DCH[18]crown-6}$ は平面的な形状でありつつも、結晶中の環境に合わせて分子構造を柔軟に変化可能であることがわかった。また、結晶学的に独立な $m\text{-FAni}^+$ を1, 2, 3, 4とすると、一次元超分子カラム構造は(3-i-1-ii-2-iii-4)が繰り返しのユニットとなっており、cation 3, 4上に結晶の反転対称心が位置していたために、一次元超分子カラム構造は $[-3-i-1-ii-2-iii-4-iii-2-ii-1-i-]_n$ で表すことができる。さらに $m\text{-FAni}^+$ はフッ素基を有するため、アンモニウム基・フッ素基それぞれの方向を組み合わせた複雑なディスオーダーを示した。crown i と crown ii に挟まれた cation 1 サイトには、cation 1A, 1B, 1C という 3 種類のディスオーダーが観測された。cation 1A, cation 1B のアンモニウム基は crown i と、cation 1C の

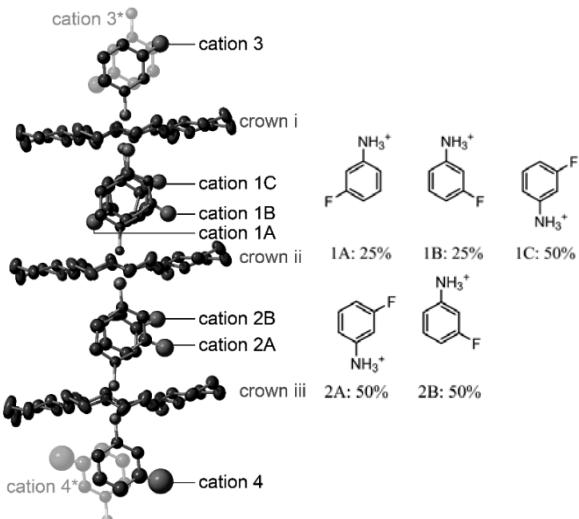


図4 結晶2における一次元超分子カラムのユニット構造と $m\text{-FAni}^+$ の配向のディスオーダー

アンモニウム基は crown ii と、それぞれ水素結合を形成し、お互いにカラムに沿って逆向きに配置された。cation 1A と cation 1B のフッ素基は互いに C-N 結合を軸として 180° 反転していた。占有率の比は cation 1A : cation 1B : cation 1C = 1 : 1 : 2 であった。crown ii と crown iii に挟まれた cation 2 サイトには、2 種類のディスオーダー—cation 2A, 2B が観測された。cation 2A のアンモニウム基は crown ii と、cation 2B のアンモニウム基は crown iii とそれぞれ水素結合を形成し、占有率は 1 : 1 であった。cation 3 と 4 はユニットの両端に位置し、占有率は 50% であった。

以上より、結晶1, 2 ともに $tst\text{-DCH[18]crown-6}$ の平面性と 2 方向からの水素結合形成能によって、一次元超分子カラム構造を実現した。また、水素結合の結合長・結合角の多様性、 $tst\text{-DCH[18]crown-6}$ の構造柔軟性によって、カチオンの置換基が変化しても、同様の一次元構造が得られることが分かった。このように、超分子構造設計において超分子ホストであるクラウンエーテルの形状に着目した構造設計は、結晶配列を制御する上で有用なアプローチのひとつであることが明らかになった。

## (b) 金属錯体を用いた新奇多孔性材料の開発

金属イオンと有機架橋配位子を自己集積させることによって得られる金属錯体は、構造の多様性・設計性・柔軟性に富んだ高結晶性の物質である。また、無機部品の金属イオンと有機部品の配位子が共存しているため、それぞれの特性を兼ね備えることが可能となる。そのため、様々な機能性物質（磁性、誘電性、光学特性、多孔性）の研究対象として注目されてきた。特に、均一なマイクロ孔を有する多孔性金属錯体はここ20年の間に急速に発展した分野であり、ゼオライト・活性炭に続く第3の多孔性材料として精力的に研究されている。本研究では、金属錯体の構築部品として軽金属イオンに着目し、軽金属イオンを骨格中に導入するための新規配位子の設計・多孔性金属錯体の合成とその蒸気分離特性評価を行った。

これまで多孔性金属錯体の金属イオンとして重金属イオンが頻繁に用いられてきた。一方で、軽金属イオンは重金属イオンと比べてユビキタスかつ低毒であるため、多孔性金属錯体の実用・応用化を進める上で必須の構築部品といえる。我々は硬い酸である軽金属イオンに結合可能な新規配位部位としてピリジン-*N*-オキシドに着目した。ピリジン-*N*-オキシドは全体として中性であるが、酸素上に負電荷が、窒素上に正電荷が局在する分極構造をもつ。そのため、負電荷が局在した酸素は“硬い塩基”として硬い酸である軽金属イオンとイオン結合性の強い配位結合を形成すると予想された。実際に、図5のピリジン-*N*-オキシド部位を有する有機架橋配位子isonicotinic acid *N*-oxide (H-ino, 図5a) とMgイオンを反応させることにより無色透明結晶を得ることができた。単結晶X線構造解析から、得られた結晶3は $[\text{Mg}_4(\text{ino})_4(\text{DMF})_6(\text{H}_2\text{O})_2]\cdot2\text{DMA}\cdot6\text{Cl}\cdot\text{H}_2\text{O}$  (DMF = *N,N*-dimethylformamide, DMA = dimethylammonium)の組成をもち、ino配位子がMgイオンを架橋した二次元シート構造が形成されていることが明らかとなった(図5b)。また我々の予想通り、ino配位子の負電荷が局在したピリジン-*N*-オキシド酸素原子はMgイオンと結合していた ( $\text{Mg}-\text{O} = 2.130(2)-2.148(2)$  Å)。これら二次元シートはc軸方向に積層し、その層間に各種ゲスト分子(DMF, H<sub>2</sub>O, DMA, Cl)が取り込まれていた。脱溶媒後の微結晶の各種蒸気吸着測定を行ったところ、サイズ選択性と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5c)。さらに、室温におけるH<sub>2</sub>O/2-propanol混合蒸気を用いた分離実験を試みたところ、高選択的にH<sub>2</sub>Oが分離除去できることを確認した(図5d)。以上の結果から、軽金属イオンMgを含む多孔性金属錯体3は吸着分離材料への応用が強く期待できる。

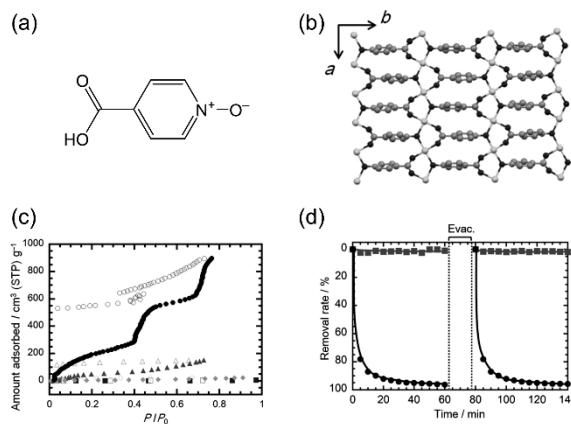


図5. (a) H-ino配位子の分子構造。(b) 結晶3の二次元シート構造。(c) 298Kにおける蒸気吸着特性 (○: H<sub>2</sub>O, △: methanol, ◇: ethanol, □: 2-propanol)。(d) 298KにおけるH<sub>2</sub>O/2-propanol混合蒸気分離特性 (○: H<sub>2</sub>O, □: 2-propanol)。初期濃度: H<sub>2</sub>O = 64.4 μmol, 2-propanol = 77.2 μmol。

## 4. 資料

### 4.1 学術論文（査読あり）

- Z. Cai, S. Uchikawa, N. Hishino, T. Takeda, L. Zheng, S. Noro, T. Nakamura and T. Akutagawa, “Successive Phase Transition, Dielectric Ordering, and Liquid Crystalline Behavior of Simple (Laurylammnonium)(Phenyl Phosphonates) Salts”, *J. Phys. Chem. B*, **120**, 6761–6770 (2016).
- Y. Ohshima, K. Kubo, T. Matsumoto, H. Ye, S. Noro, K. Fukuhara and T. Nakamura, “One-dimensional supramolecular columnar structure of *trans-syn-trans*-dicyclohexano[18]crown-6 and organic ammonium cations”, *CrystEngComm*, **18**, 7959–7964 (2016).
- R. Ochi, S. Noro, Y. Kamiya, K. Kubo and T. Nakamura, “A Highly Water-Tolerant Magnesium(II) Coordination Polymer Derived from a Flexible Layered Structure”, *Chem. Eur. J.*, **22**, 11042–11047 (2016).
- T. Nakamura and S. Jayanty : “Poly(4-styrenesulfonate) templated polyaniline-carboxymethyl cellulose blend: Morphology and surface resistivity of the spin-coated films”, *Soft Mater.*, **14**, 309–315 (2016).
- S. Noro, R. Ochi, K. Kubo and T. Nakamura : “Reversible Structural Changes of Strong Hydrogen Bond-Supported Organic Networks Using Neutral 3,5-Pyridinedicarboxylic Acid N-oxide through Solvent Release/Uptake”, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, **89**, 1503–1509 (2016).

### 4.6 講演

#### a. 招待講演（国際学会）

- T. Nakamura\*, M. Yoshitake, K. Kubo and S. Noro: “Functional Magnetic Materials based on Mn-Cr Oxalate Complexes with Supramolecular Rotator Structure”, The

8th International Symposium on Nano & Supramolecular Chemistry (ISNSC8), Brisbane, Australia(2016-07)

**b. 招待講演（国内学会）**

該当なし

**c. 一般講演（国際学会）**

- 1) X. Zheng\*, S. Noro, K. Kubo and T. Nakamura: "Crystal Structures and Physical Properties of Fused Materials of Coordination Polymers and Ionic Liquids", The International Conference on Science and Technology of Synthetic Metals in 2016 (ICSM2016), 広州, 中国 (2016-06 ~ 2016-07)
- 2) D. Nishide\*, K. Kubo, S. Noro and T. Nakamura : "Sandwich-Type Polyoxometalates with Trinuclear Lanthanoid Complexes: Synthesis, Structures and Magnetic Properties", The 15th International Conference on Molecule-Based Magnets (ICMM2016), 仙台 (2016-09)
- 3) K. Kubo\*, M. Yoshitake, T. Endo, S. Noro, T. Akutagawa and T. Nakamura : "Structural Design of Coordination Polymers Based on Manganese and Chromium Ions Bridged by Oxalate Ligands Including Bulky Organic Cations", The 15th International Conference on Molecule-Based Magnets (ICMM2016), 仙台 (2016-09)
- 4) Y. Ohshima\*, K. Kubo, S. Noro, T. Akutagawa and T. Nakamura : "One-Dimensional Columnar Architecture Base on (Anilinium)(Dicyclohexano[18]Crown-6) Supramolecular Cation in  $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]$  Magnetic Crystal", The 15th International Conference on Molecule-Based Magnets (ICMM2016), 仙台 (2016-09)
- 5) T. Kanetou\*, Y. Takahashi, S. Noro, K. Kubo, T. Nakamura and R. Tsunashima : "Synthesis and Structure of Cu(II) Complex Axially Substituted with Methyltrifluoroborate", The 15th International Conference on Molecule-Based Magnets (ICMM2016), 仙台 (2016-09)
- 6) R. Ochi\*, S. Noro, K. Kubo and T. Nakamura, "Structural diversification of light metal coordination polymers using a 4-(methylsulfonyl) benzoate ligand with a charge-polarized neutral methylsulfonyl moiety", The 11th SPSJ International Polymer Conference (IPC2016), Fukuoka (2016-12)
- d. 一般講演（国内学会）**
- 1) R. Ochi\*, S. Noro, K. Kubo and T. Nakamura : "Zn(II) porous coordination polymer having novel dinuclear  $[\text{Zn}_2(\text{N-oxide})_2]$  secondary building units", 錫体化学会第66回討論会, 福岡 (2016-09)
- 2) X. Zheng\*, S. Noro, K. Kubo and T. Nakamura : "Solvent effects on the syntheses of copper complexes with bulky fluorinated anions: Different characteristics of structures and physical properties", 錫体化学会第66回討論会, 福岡 (2016-09)
- 3) 久保 和也\*、巖 寅男、野呂 真一郎、芥川 智行、中村 貴義 : 「(1-naphylamminium<sup>+</sup>)(dibenzo[18]crown-6)超分子カチオンの結晶内分子運動による構造相転移」、第10回分子科学討論会2016、神戸 (2016-09)
- 4) 武田 貴志\*、野呂 真一郎、鈴木 康孝、川俣 純、中村 貴義、芥川 智行 : 「アリールスルホニアミド基を有するアントラキノン：特異な電子状態と溶媒吸着能を有する結晶構造」、第10回分子科学討論会2016、神戸 (2016-09)
- 5) 町田 亮\*、西原 権文、國塙 和久、Kseniya Maryunina、井上 克也、芥川 智行、中村 貴義 : 「超分子カチオン構造  $[\text{Ph}(\text{NH}_3)]$ ([18]crown-6)を利用した  $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]$  スピンラダーへのキャリアドーピング」、第10回分子科学討論会2016、神戸 (2016-09)
- 6) 越智 里香\*、野呂 真一郎、土方 優、久保 和也、中村 貴義 : 「電荷分極した中性メチルスルホニル部位を有するメチルスルホニル安息香酸を有機架橋配位子として用いた軽金属配位高分子の構造多様化」、日本化学会第97春季年会、横浜 (2017-03)
- 7) X. Zheng\*, S. Noro, K. Kubo and T. Nakamura : "Synthesis and properties of coordination polymers consisting of components similar to ionic liquids", 日本化学会第97春季年会, 横浜 (2017-03)
- e. 研究会・シンポジウム・ワークショップなど（学会以外）**
- 1) T. Nakamura\* : "Magnetic and dielectric properties of Mn-Cr oxalate complexes with supramolecular cations", Core-to-Core/Leverhulme Trust Joint Workshop, St. Andrews 2016 "Organic Electronics of Highly-Correlated Molecular", St. Andrews, UK (2016-04)
- 2) X. Zheng\*, S. Noro, K. Kubo and T. Nakamura : "Unique physical properties of a flexible one-dimensional porous copper complex containing bulky fluorinated anions", Core-to-Core/Leverhulme Trust Joint Workshop, St. Andrews 2016 "Organic Electronics of Highly-Correlated Molecular", St. Andrews, UK (2016-04)
- 3) 中村 貴義\* : 「ポリオキソメタレートを元素ブロックとする機能物質開拓」、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、神戸 (2016-05)
- 4) Y. Takahashi\*, S. Noro, K. Kubo and T. Nakamura : "Synthesis, Structure and Adsorption Properties of Stable Porous Copper Complex with Fluorinated Anions", The 2016 EMN Meeting on metal-organic frameworks, 青島, 中国 (2016-06)
- 5) X. Zheng\*, S. Noro, K. Kubo and T. Nakamura : "Flexible porous metal complexes with bulky fluorinated anions: Synthesis, crystal structures and adsorption properties", The 2016 EMN Meeting on metal-organic frameworks,

- 青島, 中国 (2016-06)
- 6) T. Nakamura\* : "Magnetic and dielectric properties of Mn-Cr oxalate complexes with supramolecular cations", Pre-ICMM2016 in Nagoya, 名古屋 (2016-09)
  - 7) Y. Ohshima\*, K. Kubo, T. Matsumoto, H. Ye, S. Noro, T. Akutagawa and T. Nakamura : "One-Dimensional Supramolecular Columnar Structures of *trans*-*syn*-*trans*-dicyclohexano[18]crown-6 and Organic Ammonium Cations", Core-to-Core/Leverhulme Trust Joint Workshop, Novosibirsk 2016 "Organic Electronics of Highly-Correlated Molecular Systems", Novosibirsk, Russia (2016-09)
  - 8) D. Nishide\*, K. Kubo, S. Noro and T. Nakamura : "Tri-nuclear lanthanoid complexes sandwiched by lacunary-type polyoxometalates: Synthesis, structures and magnetic properties", Core-to-Core/Leverhulme Trust Joint Workshop, Novosibirsk 2016 "Organic Electronics of Highly-Correlated Molecular Systems", Novosibirsk, Russia (2016-09)
  - 9) K. Kubo\*, Y. Yan, S. Noro, T. Akutagawa and T. Nakamura : "Relaxer Type Dielectric Response Caused by The Molecular Motion of Supramolecular Cation in the Solid State", Core-to-Core/Leverhulme Trust Joint Workshop, Novosibirsk 2016 "Organic Electronics of Highly-Correlated Molecular Systems", Novosibirsk, Russia (2016-09)
  - 10) R. Ochi\*, S. Noro, K. Kubo and T. Nakamura : "Nanoporous Zn(II) coordination polymer having novel dinuclear [Zn<sub>2</sub>(N-oxide)<sub>2</sub>] secondary building units based on 3,5-pyridinedicarboxylic acid N-oxide", HO-KUDAI-NCTU International Joint Symposium on Nano, Photo and Bio Sciences, 札幌 (2016-10)
  - 11) Y. Ohshima, J. Xiong, K. Kubo, S. Noro and T. Nakamura\* : "Supramolecular Cations for Constructing Molecular Electronic Materials", The 12th Japan-China Joint Symposium on Conduction and Photoconduction in Organic Solids and Related Phenomena, 東京 (2016-10)
  - 12) K. Kubo\*, M. Yoshitake, T. Endo, S. Noro, T. Akutagawa and T. Nakamura : "Development of Multifunctional Materials based on [MnCr(oxalate)<sub>3</sub>]-Complexes with Supramolecular Cations", The 12th Japan-China Joint Symposium on Conduction and Photoconduction in Organic Solids and Related Phenomena, 東京 (2016-10)
  - 13) 久保 和也\*、巖 寅男、野呂 真一郎、芥川 智行、中村 貴義 : 「(1-naphylamminium+) (dibenzo[18]crown-6) 超分子カチオンの結晶内振り子分子運動による構造相転移」、第4回アライアンス若手研究交流会～アライアンス（若手）の再考～、札幌 (2016-11)
  - 14) D. Nishide\*, K. Kubo, S. Noro and T. Nakamura :
- "sandwich-type polyoxometalates with trinuclear lanthanoid complexes: synthesis, structures and magnetic properties", The 17th RIES-Hokudai International Symposium on 柔, 札幌 (2016-12)
- 15) Y. Ohshima\*, Y. Yan, K. Kubo, T. Matsumoto, H. Ye, S. Noro, T. Akutagawa and T. Nakamura : "Solid-state molecular motions of organic ammonium cations in two- and one-dimensional supramolecular architectures", The 17th RIES-Hokudai International Symposium on 柔, 札幌 (2016-12)
  - 16) R. Ochi\*, S. Noro, Y. Kamiya, K. Kubo and T. Nakamura : "Highly water-tolerant 2D magnesium(II) coordination polymer capable of water/alcohol mixed vapour separation", Workshop on Soft and Nano Materials Orchestrated with Wisdom from Japan (SNOWJ), Niseko (2017-01)
  - 17) 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希土類錯体の構造と磁性」、化学系学協会北海道支部2017年冬季研究発表会、札幌 (2017-01)
- #### 4.9 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) 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
  - b. 大型プロジェクト・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
  - c. 外国人研究者の招聘
  - 1) Pia Vervoorts、Germany、(2016 年 09 月 18 日～2016 年 10 月 22 日)
  - 2) Inke Hante、Germany、(2017 年 01 月 16 日～2017 年 04 月 08 日)
  - d. 北大での担当授業科目（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、2016 年 04 月 01 日～2016 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、2016 年 04 月 01 日～2017 年 03 月 31 日
  - 3) 環境科学院、環境物質科学論文講読 I、中村貴義、野呂真一郎、久保和也、2016 年 04 月 01 日～2017 年 03 月 31 日
  - 4) 環境科学院、環境物質科学論文講読 II、中村貴義、

- 野呂真一郎、久保和也、2016年04月01日～2017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、2016年04月01日～2017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、2016年04月01日～2017年03月31日
- 7) 環境科学院、分子環境学特論II、中村貴義、野呂真一郎、2016年10月01日～2017年03月31日
- 8) 全学教育、化学I、野呂真一郎、2016年04月01日～2016年09月30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、2016年06月10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、2016年04月01日～2016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、野呂真一郎、2016年11月16日～2016年11月18日
- f. 北大以外での非常勤講師(対象、講義名、担当者、期間)
- 1) 熊本大学、集中講義「無機化学III、中村貴義、2016年11月01日～2017年3月31日
- h. 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)
- i. 修士学位及び博士学位の取得状況
- 修士学位(1名)：
- 1) 西出 大輔：欠損型ポリオキソメタレートを配位子とする多核金属錯体の構造と磁性
- 博士学位(1名)：
- 1) 大島 雄：動的構造を有する超分子結晶のデザインと物性 Design and physical properties of supramolecular crystals with dynamic structure

# 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）、2012.10～2016.3)

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 Kim Minsoo

修士課程 金子美奈、岡本守、蓑毛崇章、片山歩、佐藤優祐、趙子夏

### 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には、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的範疇だけで行うではなく、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) 界面現象の数理科学

本課題は化学実験で見られる「active matter」界面現象のモデリングとそれに共なる数理科学の研究を目指している。数学解析の側面としてのこの研究は、「co-dimension 1」の界面（図1を参照）を表現するための数理構造の構築に着目している。また、数理モデリングではこの数理構造を実現する計算手法と有限要素法のアルゴリズム開発を目標とし研究を進めている。さらに、それらを用いた化学実験のシミュレーションを行い、計算結果を通して実際の現象

と比較も設定する。これにより数学の理論、計算の技術、そして対象となる化学実験の現象の発展を学際的に導き出す計画である。

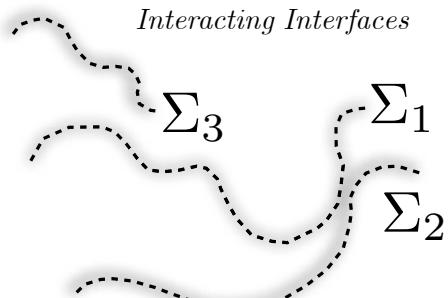


図1 Interfacial Active Matter。

#### (3) 動物の適応的な振る舞いの構成論的理解

時事刻々と変化する予測不可能な環境の中で私たち全ての動物は生活している。そのような無限定環境の中でも動物は、状況に応じた運動や行動をとっている。一方、既存の人工物（ロボット）に動物のような適応的な振る舞いを実装することは未だに至難の技である。私たちがよく目にする産業用のロボット、は迅速でしなやかな動作をしているが、限られた環境に設置し限られた動作をだけを実行する時にだけうまく動作するのであって、ロボットを無限定な環境下に持ち出せばたちまち止まってしまう。ロボットは、周りの環境を観測し、観測結果に応じて動作出力を決めているため、計測限界を超えた環境下では動作できない。既知の環境の中でしか人工物を制御する方法しか持ち合わせていない我々にとって、このようなフレーム問題に対処するには何らかの手本が必要であり、それが生物である。動物は、フレーム問題に囚われることなく、環境の変化や刻々と変わる状況に応じて適応的な運動や行動発現を実時間で実現している。我々は、この様な適応的な運動や行動の基盤となる身体や脳のメカニズムを理解し、更にそこから新奇な制御論の確立を目指している。

#### (4) 嗅覚情報処理アルゴリズムの解析

5感の中で嗅覚の処理様式の研究は最も遅れている。とりわけ、絶え間なく変化する匂いの分布や方向についての情報を動物がどう処理しているのかについては全くわかっていない。資源探索に嗅覚を用いる夜行性の昆虫をモデルとし、この問題について明らかにする。

### 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を用いて病態再現にむけた基礎的な数値計算を進めた。まず1つの表皮幹細胞から生まれた細胞が分化時に異常分化（通常の細胞より分化が早い）を起こすと仮定して数値計算を行うと、真皮が凹んで、角層が表皮部分に侵入する現象がみら

れた。この病態は「鶏眼」に対応すると考えられる。また、1つの表皮幹細胞の細胞周期が早くなる（異常細胞分裂）と仮定し、その細胞から生まれた娘幹細胞もやはり異常細胞分裂を起こすと仮定して数値計算を行うと、その部分の真皮は凹んでいき、表皮全体が厚くなる現象が確認された。この病態は Bowen 病と呼ばれる皮膚がん（基底細胞がん）になる前に発症する病態に類似していることがわかった。そして、一つの表皮幹細胞から分裂する細胞が基底膜を分解し、基底膜から離れても分裂し続けると仮定した数値計算を行うと、表皮細胞群が真皮内部に侵入する現象が見られ、表皮細胞のがん化の基礎的な数値シミュレーションに成功した。

さらに、表皮細胞の形状を3次元ボロノイ分割することで表現し、各細胞の形状を調べた結果、顆粒層細胞は14面体が一番多いことがわかった。この結果は最近の皮膚科学研究の中で報告されているタイトジャンクションバリア機能の恒常性を維持するための表皮細胞形状仮説を指示する結果であり、皮膚科学者との連携研究のさらなる進展を見込めることができる結果である。

## (2) 細胞極性の数理解析

形態形成を研究する上で、形を数学的な方法で表現する方法を持つことは非常に重要である。形状を数学的な方法を用いて定式化することで、形の適量的な評価を行うことができるだけでなく、コンピュータ・シミュレーションなどの方法を用いることができ、形作りの原理を明らかにすることができる。しかし、領域の形状が前もってわからない状態で、領域内の変数を解くことは自由境界問題となり非常に難しい。一方、生物はこの問題を何らかのメカニズムによりうまく解決している。それでは生物はどのようにこの問題を解きそして堅牢性を持たせているのであろうか。この方法がわかれれば、形の数学的な記述法を確立でき、さらにその妥当性を検証できるに違いない。そこで、今年度は幾つかの生物現象に関して、3次元形態を表現する数学的方法論を見つけることに重点をおいて研究調査を行った。

松野氏とのショウジョウバエ腸管に関する共同研究では、バーテックスダイナミクスモデルを用いシミュレーションを行い、幾つかの腸管捻転のシナリオを提案した。

近藤氏のカブトムシに関する共同研究では、観察実験より、蛹期に将来角になる部分では、多数の皺（しわ）を見る事ができた。成虫の角は2回の分岐があり、合計4箇所の突起構造があるが、この構造は、蛹期のシワにもその痕跡をみることができた。生物組織のほとんどが細胞シートの折り畳みとしてできることから、2Dから3Dが出来上がっていく様子を折り紙のアナロジーを使う事で、空間トポロジーの数学として表現できると考えた。そこで、シート状の組織を表現するためのモデルに関して、研究を行った。

船山氏との共同研究でカイメンの形態形成に関して、フェーズフィールド法を用いた数理モデルを構築した。

## (3) 自励振動運動モデルの数理解析

今年度は、中田聰教授（広島大学）らと共同研究で、化学反応を伴う液滴の自励振動運動の数理モデル化を行った。細長い水路上で境界の影響を受けることなく往復振動する現象の理論的理理解に向けて研究を進めた。この運動はバルク中のSTAC濃度に依存して変化することがわかつっていたが、我々は化学反応系と運動をカップルさせた数理モデルを構築し現象の再現に成功した。そして停止解からのHopf分岐によってこの運動が生じることが数理モデルからわかつた。

## (4) 界面現象の数理科学

今年度は、水面上で動き出す界面活性剤フィラメント(Cemedine-c strings)を実験により発見した(図2を参照)。この界面現象のモデリングを行なった結果、モデル方程式の弱形式でデルタ関数(line masses)を用いると自然的にco-dimension 1の界面を表現することができる事が分かった。また、モデル方程式の定常解および進行解の存在を解析的に証明することに成功した。さらに、作成したモデル方程式の弱形式を数值的に解く近似解法を用いた結果、定常解と進行解の存在を数値的にも確認することができた。

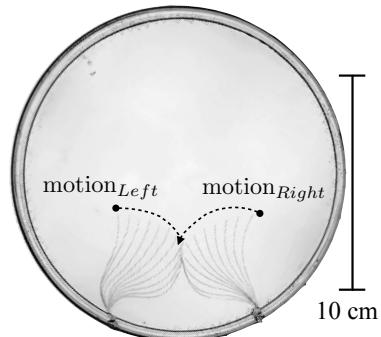


図2 Motion of Cemedine-c filaments

## (5) 適応的な行動発現の制御構造とその設計原理

動的に変化する環境のなかで適応的に行動を実時間で切り替える動物の脳神経系の働きを理解するためには、個体を取り巻く環境、身体、神経系のいづれかを任意に操作することで、適応的な運動や行動の基盤となる制御機構をあぶり出すことができる。昆虫、クモ類、クモヒトデなど神経系の構造が比較的単純な無脊椎動物を使うことでこれらの操作を行い、適応的な運動や行動をつくりだす制御構造とその設計について調べた。特に、動物に普遍的にみられるロコモーションや攻撃行動の発現メカニズムにフォーカスを当て、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脳機能について研究した。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（図3）。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。

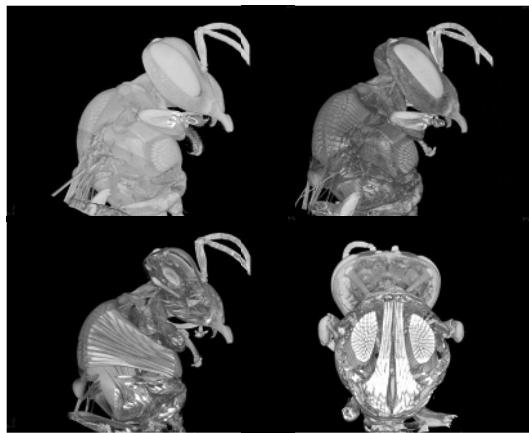


図3：X線マイクロCTを用いて無破壊で昆虫の神経・筋・骨格系の3次元構造を観察し、3次元デジタルデータとして取得した。

#### （6）昆虫を用いた感覚情報処理の実験解析

動物は、ダイナミックに変化する周囲の環境を感覚器で受容し、状況に応じた感覚情報を抽出し、運動や行動を制御する。素早い運動を作り出すためには、感覚信号を受容してから感覚情報処理、運動制御信号の生成、運動出力にかかる時間を短くする働きが重要となる。神経系には、信号を早く伝える仕組みがあるものの、その伝搬には限界がある。ところが、昆虫には神経細胞を伝わる信号の伝搬速度や筋収縮の速度を超えた素早い動きを作り出すことができる。アギトアリというハリアリの仲間は、大顎を使って獲物を捕らえるが、その時に大顎を閉じる速度は時速230Kmを超える。この速度は、動物が生み出す動きとして世界最速とも言われている。大顎の内側には、獲物の接近を検出する長い機械感覚毛が生えている（図4）。この機械受容器で捉えた獲物の情報は、感覚細胞から大顎の運動神経に直接接続し、内転筋を動かして大顎を閉じる。この内転筋は、遅筋から構成されている筋肉であり、超高速の筋収縮は起こせない。このアリが超高速運動を生み出すには、骨格の構造を使った座屈によると考えられる。昆虫の筋骨格系の構造を利用した超高速運動を理解することで、弱い力しか出せないアクチュエーターを使って、高速かつ高出力の運動を生み出す新たな制御論を構築することが期待できる。

#### （7）嗅覚情報処理アルゴリズムの解析

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を進めている。昆虫の脳



図4：アギトアリの大顎。内側には長い機械感覚毛は生えている。

内には哺乳類の海馬や大脳皮質に相当するキノコ体と呼ばれる高次中枢がある。キノコ体は数十万個の神経細胞からなる機能モジュールを形成するが、この活動状態がわずか4本のGABA作動性の巨大神経によって協調的かつ抑制的に調節されることを発見した（Takahashi et al., 2016、図5）。また、防除の観点にもとづいた嗅覚情報処理の研究からはゴキブリの雌同士と一緒に飼育すると単独飼育よりも単為生殖が促進されること、また、この促進には他個体の匂いや機械的接触の検出が重要であることが明らかとなった（Katoh et al. 2017）。

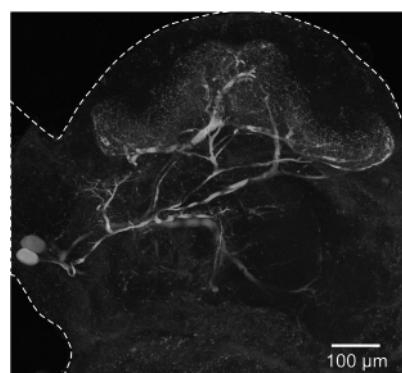


図5：キノコ体の異なる領域を支配する2本の抑制性巨大神経（マゼンタと緑）。脳の輪郭は白破線で示す。

### 3. 今後の研究の展望

#### （1）表皮構造の数理モデル

来年以降は、細胞変形を数理モデルの中に取り入れていきたい。表皮細胞は扁平化することが知られており、その扁平化が表皮構造に与える影響を考察するために重要な課題である。最近の皮膚科学の報告から、タイトジャンクションバリア機能は顆粒層の第2層目の細胞が担っていることがわかつてきた。そこで、我々の数理モデルで顆粒層の形成機構を考えていく。これまでの数理モデルでは顆粒層が3層になる必然性が全くなないことから、3層になるメ

カニズムを考える。そして、タイトジャンクションの形成を再現することで、タイトジャンクションバリア機能を持つ数理モデルの構築を目指す。さらに、基底層におけるメラノサイト（色素細胞）の均等分布問題を考えていく。何故、メラノサイトが基底層に孤立して均等分布できるのか明らかにすることによって表皮の持つ紫外線バリア機能の数理的解明を目指す。この問題が解決した後は、ランゲルハンス細胞（抗原提示細胞）が有棘層の中層から上層に孤立して均等分布するメカニズムの解明に挑戦する。

今年度に引き続き、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

松野氏とのショウジョウバエ腸管に関する共同研究では、腸管壁の細胞をバーテックスダイナミクスモデル用いて表現し腸捻転のメカニズムを検討した。細胞の体積を一定にするために、細胞の辺の角度を拘束することで、間接的に実現していたが、この方法だと、捻転力を陽に仮定する可能性があったため、改善が必要であった。そこで、この問題を解決するため、細胞の体積は頂点の3次元位置ベクトルを引数とする汎関数とみなすことができるため、その汎関数微分を正確に求めた。この方法は、他のバーテックスダイナミクスユーザーにも共有すべく、方法論をまとめHPに公開した。また、細胞のねじれに関しては、細胞のApical面とBasal面が平行でないと、誤ったねじれ角を求めてしまう可能性があったため、ねじれ角の定義を検討し、基準を決めた。この新しい方法を用いて、腸管全体に対して、強制的に外力を加えて捻転させたところ、我々の先行するモデルと同様に、個々の細胞にもねじれを認めることができた。この際、細胞のねじれが腸管全体に渡る場合と部分的にねじれる場合があることがわかった。その結果、Apical面とBasal面の辺の長さがある条件を満たし、かつ、細胞の体積がほとんど変わらない場合には、個々の細胞のねじれは腸管全体に渡ることがわかった。一方で、腸管全体を捻転させる際、腸管の前方と後方にどのような境界条件を用いるかが適切であるかに關しても幾つかの検討項目を列挙することができた。

近藤氏のカブトムシの研究では、マイクロX線CTにより角原基（蛹期）のマイクロX線CT撮像データを得ることができた。この撮像データは膨大な量であり、このままでは、3Dプリンタで汎用の入力形式に対応しないことがわかった。そこで、汎用の入力形式へ変換する方法を検討し、Vcat5(理化学研究所)というソフトを用いることで、データ量を効率的に落とすことができた。この解析結果を用い、3Dの角を造形することで、皺の特徴的な分布傾向をつかむことができた。今後は、得られた分布を記述するような、皺パターン生成の数理モデルの構築を目指したい。

## （3）集団運動モデルの数理解析

複数の樟脳円盤が円環水路でみせる集団運動の数理解析を進める。4つの樟脳円盤の集団運動では非対称クラスター運動や振動運動が見られるため、これまでに構築した数理モデルを駆使して、現象の再現および分歧理論を用いた集団運動の出現機構の解明を行う。それと同時に、2次元円盤領域における樟脳円盤の集団運動の解析も行う。特に、複数の円盤を浮かべたときに生じる間欠的な振動運動の起るメカニズムについて考察したい。さらに、液滴の集合離散運動の解析を行う。この運動は長時間に渡って集合と離散を繰り返す運動であり、これまで数理モデルでは説明できないことがわかつており、数理モデル化から考えていいく予定である。

## （4）界面現象の数理科学

これまでのシミュレーションでは界面追求法(front tracking)を使用してきた。このアプローチでの界面は、ノードの集まりとして表現されているため、数値計算を行うときに数値的な不安定性が浮かんでくることが知られている。従って、この不安定性を避けるために埋め込み境界法(immersed boundary method, IBM)を導入したいと考えている。特にモデル方程式のsource termとなるデルタ関数をIBMで表現するための計算手法や有限要素法のアルゴリズムなどを作成することが必要となる。また、解析的に求めた定常解と進行解を実験上においての特徴と実現可能性の実験も行いたい。これと同時に、定常解と進行解の安定解析を行えば、実験の結果も数理的に解説したいと考えており、モデル方程式の発展にも繋がると確信している。また、複数のフィラメントを使用した実験結果では、周期的に動くような行動が見られたので、モデル方程式における周期解の存在も解析的に確認して行きたい。

## （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を使ったマイクロボリュームイメージングでは、空間分解能が $10\text{ }\mu\text{m}$ ほどであったが、観察する標本の作成法を工夫することで、空間分解能を $5\text{ }\mu\text{m}$ 程度まで向上することができた。これにより、身体や神経系・筋骨格系の構造について従来よりも詳細なデジタルデータとして取得できる。3次元デジタルデータ化した様々な動物の身体構造は、任意の角度や断面から解析が可能で、そのデータをもとに、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て身体の3次元モデルとして再構築することで、関節の運動を詳細に解析するためのプラットフォームの構築する。X線マイクロCTから得られた画像はグレースケールである。したがって、身体を構成する器官を詳細に再現するためには、それぞれの器官を識別して表示するセグメンテーションの作業が必要である。ところが、異なる器官が隣り合う界面は、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、セグメンテーションの作業を半自動化し、より効率よく筋・骨格そして神経系をセ

グメンテーションする手法を開発している。これにより、様々な動物ごとの運動解析プラットフォームの構築を目指す（図4）。

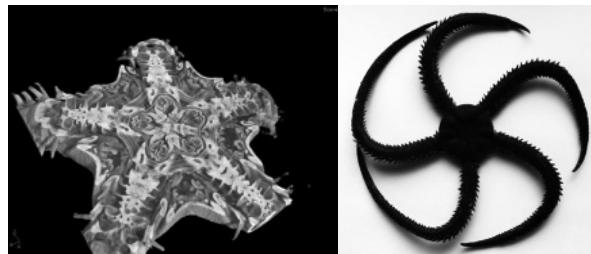


図4:X線マイクロCTで撮像した動物（クモヒトデ）の筋骨格の3Dデジタルデータから3Dプリンターで3次元モデルとして再構築した。

#### (6) 多種感覚情報処理の神経機構

匂いはこれを運ぶ空気流がないと感知できない。したがって、正確な匂い源定位には気流情報と匂いの統合処理が不可欠である。夜行性昆虫の二次嗅覚ニューロンに着目することで、匂いを運ぶ気流の変化や速度によってその活動がどのように修飾されるのかを明らかにする。

## 4. 資料

### 4.1 学術論文（査読あり）

- 1) M. Sato, T. Yasugi, Y. Minami, T. Miura and M. Nagayama, “Notch-mediated lateral inhibition regulates proneural wave propagation when combined with EGF-mediated reaction diffusion”, PNAS 113, 35(2016).
- 2) J. Kumamoto, M. Goto, M. Nagayama and M. Denda, “Real-time imaging of human epidermal calcium dynamics in response to point laser stimulation”, Journal of Dermatological Science, 2017.
- 3) Y. Satoh, Y. Sogabe, K. Kayahara, S. Tanaka, M. Nagayama and S. Nakata, “Self-inverted reciprocation of an oil droplet on a surfactant solution”, Soft Matter 13, 3422–3430(2017).
- 4) H. Shimoji, H. Aonuma, T. Miura, K. Tuji, K. Sasaki and Y. Okada, Queen contact and among-worker interactions dually suppress worker brain dopamine as a potential regulator of reproduction in an ant. Behavioral Ecology and Sociobiology , 71(35) (2017)
- 5) H. Aonuma, M. Kaneda, D. Hatakeyama, T. Watanabe, K. Lukowiak and E. Ito, Relationship between the grades of a learned aversive-feeding response and the dopamine contents in Lymnaea. Biology Open, 5(12) : 1869–1873 (2016)
- 6) R. Matsuo, M. Tanaka, R. Fukuta, S. Kobayashi, H. Aonuma and Y. Matsuo, Octopaminergic system in the central nervous system of the terrestrial slug. Journal of Comparative Neurology, 524 : 3849–3864 (2016)
- 7) Y. Ishikawa, H. Aonuma, K. Sasaki and T. Miura, Tyraminergic and octopaminergic modulation of defensive behaviour in termite soldier. PLoS ONE, 1(5) : e0154230- (2016)
- 8) M. Akiyama, A. Tero, M. Kawasaki, Y. Nishiura, Y. Yamaguchi, “ Theta-alpha EEG phase distributions in the frontal area for dissociation of visual and auditory working memory”, Scientific Reports 7, Article number : 42776, 2017 , doi:10.1038/srep42776
- 9) I. Kunita, T. Yamaguchi, A. Tero, M. Akiyama, S. Kuroda, T. Nakagaki, ” A ciliate memorizes the geometry of a swimming arena” ”Journal of The Royal Society Interface, 13(118), 20160155, 2016
- 10) E. Ginder, K. Svadlenka “Wave-type threshold dynamics and the hyperbolic mean curvature flow” J. Journal of Industrial and Applied Mathematics, 33, No. 2, 2016, 501–523.
- 11) E. Ginder, T. Minomo, M. Nagayama, S. Nakata, H. Yamamoto “Traveling pulse solutions in a point mass model of diffusing particles” Computer Methods in Materials Science, 17, 2017.
- 12)
- 13) K. Katoh, M. Iwasaki, S. Hosono, A. Yoritsune, M. Ochiai, M. Mizunami and H. Nishino : Group-housed females promote production of asexual ootheca in American cockroaches, Zool. Lett , 3(3) : 1–9 (2017)
- 14) N. Takahashi, K. Katoh, H. Watanabe, Y. Nagayama, M. Iwasaki, M. Mizunami and H. Nishino : Complete identification of four giant interneurons supplying mushroom body calyces in the cockroach *Periplaneta americana*, J. Comp. Neurol., 525 : 204–230 (2017)

### 4.2 学術論文（査読なし）

- 1) 長山雅晴, 小林康明, 熊本淳一, 傅田光洋, 北畠裕之, 中田聰, ”真皮形状を伴う表皮構造の数理モデリング”, 計算工学講演会論文集, 21(2016)

### 4.3 総説・解説・評論等

- 1) 該当なし

#### 4.4 著書

- 1) H. Aonuma, Fighting behavior: Understanding the mechanisms of group-size-dependent aggression, in Cricket as a model organism for the 21st century; Development, Regeneration, and Behavior. (Eds: Noji S., Horch H.W., Ohuchi H. and Mito T.) , Springer : 179–209 (2017)
- 2) H. Aonuma, Synthetic approaches for observing and measuring cricket behaviors, in Cricket as a model organism for the 21st century; Development, Regeneration, and Behavior. (Eds: Noji S., Horch H.W., Ohuchi H. and Mito T.) , Springer : 313–325 (2017)

#### 4.5 特許（発明者：特許番号、特許名、出願年月日）

- 1) 該当なし

#### 4.6 講演

##### a. 招待講演（国際学会）

- 1) M. Nagayama, Mathematical modeling and analysis of the self-propelled disk and its collective motions, International Conference on "Reaction-diffusion system, theory and applications", Meiji University (Tokyo, Nakano), March 17th - 19th, 2017
- 2) M. Nagayama, Mathematical modeling for the farrier function of the stratum corneum, The 27th CDB Meeting "Body Surface Tactics: Cellular crosstalk for the generation of super-biointerfaces, RIKEN Center for Developmental Biology (Kobe, Japan), November 14th and 15th, 2016
- 3) M. Nagayama, Mathematical analysis of the collective motion of camphor disks, International Workshop: Mathematics of Pattern Formation, Mathematical Research and Conference Center, Bedlewo (Poland) September 11th-17th, 2016,
- 4) M. Nagayama, Chaotic traveling pulses in some reaction-diffusion system, The 11th AIMS Conference on Dynamical systems, Differential Equations and Applications, Orlando, USA, July 1st - 5th, 2016
- 5) M. Nagayama, The collective motion of camphor papers in an annular water channel, International Workshop in Industrial Mathematics, Campinas University, Sao Paulo, Brazil, May 5th-7th, 2016
- 6) M. Akiyama, T. Sushida, "A Mathematical Model for Cell Polarity and Cell Migration", Japan -Austria joint meeting 「Understanding the logic behind developmental dynamics」, 2016/11/28 - 2016/11/29, IST Austria, Vienna, Austria

##### b. 招待講演（国内学会）

- 1) 表皮機構の数理モデリングとその皮膚疾患への応用, 第 17 回計測自動制御学会, システムインテグレーション部門講演会, 札幌コンベンションセンター(北海道・札幌市), 2016 年 12 月 15 日～17 日
- 2) E. Ginder, International Conference CoMFoS16. "Modeling of interfacial active matter: a line mass approach" 2016 年 10 月 23 日

##### c. 一般講演（国際学会）

- 1) M. Nagayama, Mathematicsl modeling for the barrier function of the stratum corneum, Czech Japanese Polish Seminar in Applied Mathematics 2016, AGH University of Science and Technology (Kraków, Poland), September 5th-9th, 2016
- 2) F. Kimura, H. Aonuma, T. Sato and M. Sakura, Changes in biogenic amine levels and locomotion activities in the praying mantis *Tenodera angustipennis* and *Hierodula perifella* caused by the parasitic horsehair worm *Chordodes sp.*, 22nd International congree of Zoology and 87th meeting of Zoological Society of Japan, 恩納村, 宜野湾市 (2016-11)
- 3) R. Okada, H. Ikeno and H. Aonuma, Behavioral pattern of a follower bee in the dance communication, 22nd International congree of Zoology and 87th meeting of Zoological Society of Japan, 恩納村, 宜野湾市 (2016-11)
- 4) S. Kuroda, H. Aonuma, K. Yasui and A. Ishiguro, The role of body stiffness for adaptive locomotion in centipede, 22nd International congree of Zoology and 87th meeting of Zoological Society of Japan, 恩納村, 宜野湾市 (2016-11)
- 5) H. Aonuma, S. Kuroda, K. Yasui, T. Kano and A. Ishiguro, Three dimensional analysis of walking legs and their controlling muscles in the centipede *Scolopendra subspinipes* mutilans using micro-CT technique, 22nd International congree of Zoology and 87th meeting of Zoological Society of Japan, 恩納村, 宜野湾市 (2016-11)
- 6) M. Okamoto, N. Nagayama, M. Akiyama, "Mathematical model including fluid's effect of camphor disk's self-motion" , Czech-Japanese-Polish Seminar in Applied Mathematics 2016, 2016/09/05-2016/09/09, AGH University of Science and Technology, Krakow, Poland
- 7) H. Nishino, M. Iwasaki, N. Takahashi, K. Katoh and A. Matsushita : A neuron coding odor direction, The 87th Annual Meeting of the Zoological Society of Japan, 沖縄コンベンションセンター (宜野湾市) (2016-11)
- 8) H. Koga, H. Watanabe, H. Nishino, M. Hojo, W. Ohmura, T. Takanashi and F. Yokohari : Similarity and

- variability of glomerular organizations of the antennal lobes in seven species of termites, The 87th Annual Meeting of the Zoological Society of Japan, 沖縄コンベンションセンター(宜野湾市) (2016-11)
- 9) H. Watanabe, H. Nishino, M. Mizunami and F. Yokohari : Two parallel coding strategies to process general odor in basal insects, The 87th Annual Meeting of the Zoological Society of Japan, 沖縄コンベンションセンター (宜野湾市) (2016-11)
- 10) T. Takanashi, H. Sakamoto, N. Skals, S. Fukui , Y. Matsui, T. Koike and H. Nishino : Vibration sensitivity in cerambycid beetles and its potential for insect pest control, The 87th Annual Meeting of the Zoological Society of Japan, 沖縄コンベンションセンター(宜野湾市) (2016-11)
- 11) N. Takahashi, K. Katoh, H. Watanabe, M. Mizunami and H. Nishino : Complete identification of four calycul giant interneurons in an insect brain. The 87th Annual Meeting of the Zoological Society of Japan , 沖縄コンベンションセンター(宜野湾市) (2016-11)
- 12) K. Katoh, N. Takahashi, H. Watanabe, M. Mizunami and H. Nishino : Aggregation pheromone processing in a cockroach brain, JSCP 2016 Tokyo, 玉川大学 (東京・町田市) (2016-09)
- 13) H. Nishino, K. Katoh, M. Iwasaki, N. Takahashi and H. Watanabe : Activity of a pheromone-responsive projection neuron is inhibited by pheromonal stimulation to the contralateral antenna., JSCP 2016 Tokyo, 玉川大学 (東京・町田市) (2016-09)
- 14) K. Terao, T. Watanabe, H. Aonuma, H. Nishino and M. Mizunami : Distribution of putative octopaminergic and tyraminergic neurons in a cockroach brain, JSCP 2016 Tokyo, 玉川大学 (東京・町田市) (2016-09)
- 15) H. Watanabe, H. Nishino, M. Mizunami and F. Yokohari : Olfactory processing via temporally and spatially segregated parallel pathways in an insect brain. Environmental Sensing and Animal Behavior (ESAB) , 東京大学 (2016-06)
- d. 一般講演 (国内学会)
- 1) 長山雅晴, 皮変形を伴う表皮構造の数理モデリング, 第21回計算工学講演会, 新潟コンベンションセンター (新潟県・新潟市), 5月31日～6月2日
  - 2) K. Terao, T. Watanabe, H. Aonuma, H. Nishino and M. Mizunami, Distribution of putative octopaminergic and tyraminergic neurons in a cockroach brain, JSCP 2016 Tokyo, 玉川大学 (東京・町田市) (2016-09)
  - 3) 古賀 晴華、渡邊 英博、西野 浩史、北條 優、大村 和香子、横張 文男 : 「シロアリの触角葉糸球体構成のカースト間比較」、第61回日本応用動物昆虫学会大会、東京農工大学小金井キャンパス (2017-03)
  - 4) 田中 真史、加藤 巧、西野 浩史、大門 高明 : 「ワモンゴキブリの単為生殖のメカニズム」、第61回日本応用動物昆虫学会大会、東京農工大学小金井キャンパス (2017-03)
  - 5) 向井 裕美、西野 浩史、Scals Niels、高梨 琢磨 : 「カメムシは左右脚部の振動受容器が生む強度差比較により振動源に定位する」、第61回日本応用動物昆虫学会大会、東京農工大学小金井キャンパス (2017-03)
  - 6) H. Mukai, H. Nishino, N. Skals and T. Takanashi : Male jewel bug localizes female calling vibrations: directional vibration sensing by chordotonal organs, 第3回生物音響学会年次研究発表会 , 伊良湖シーパーク & スパ (愛知県田原市伊良湖町宮下) (2016-12)
  - 7) 古賀 晴華、渡邊 英博、西野 浩史、北條 優、大村 和香子、高梨 琢磨、横張 文男 : 「7種のシロアリの触角葉糸球体構成の比較解析」、動物学会・植物学会・生態学会三学会合同鹿児島大会、鹿児島大学 (2016-05)
- e. 研究会・シンポジウム・ワークショップなど (学会以外)
- 1) 長山雅晴, 表皮の数理モデル, 京都大学皮膚科セミナー, 京都大学 (京都府・京都市), 2017年3月23日
  - 2) 長山雅晴, 角層バリア機能の数理モデル, ポスター発表, 第二回部局間横断シンポジウム「免疫・癌・感染」, 北海道大学 (北海道・札幌) , 2017年3月14日
  - 3) 長山雅晴, 自励往復運動する液滴の数理モデル, 非線形現象の数値シミュレーションと解析 2017, 北海道大学 (北海道・札幌) , 2017年3月7日～8日,
  - 4) 長山雅晴, 表皮構造の数理モデリング, 数理生物研究会 2017, 北海道大学 (北海道・札幌市) , 2017年3月9日～10日
  - 5) 長山雅晴, 表皮の数理モデルについて, 第5回皮膚の会, アイ・アイ・ランド (大阪府・四條畷市) , 2017年3月4日～5日
  - 6) 長山雅晴, 樟脳円盤の集団運動と反応拡散系, 複雑系数理の新展開, 北海道大学 (北海道・札幌市) , 2017年2月15日～16日
  - 7) 長山雅晴, 皮膚構造の数理モデリング: 病態再現への挑戦, CREST領域シンポジウム, 東京大学大学院数理科学研究科 (東京都・駒場) , 2017年2月11日～12日
  - 8) 長山雅晴, 自走運動に対する数理モデリングとその解析, 2017年軽井沢グラフと解析研究集会, 日本

- 大学軽井沢研修所（長野県・軽井沢市）, 2017年2月8日～10日
- 9) Mathematical modeling and analysis of the self-propelled disk and its collective motions, Seminar, Université Paris-Sud 11 (France, Orsay) January 19th, 2017
  - 10) 長山雅晴, 表皮が維持される仕組みを数理で考える, 生物多様性コロキウム, 京都大学（京都府・京都市）, 2017年1月10日
  - 11) 長山雅晴, 表皮構造の数理モデルの医学・産業界への応用の可能性について, ものづくりセミナー, 鹿島建設（東京都・港区）, 2016年10月26日
  - 12) 長山雅晴, 表皮構造の数理モデルとその応用について, 医用画像と数理に関する4プロジェクト合同セミナー, 北海道大学電子科学研究所（北海道・札幌市）, 2016年9月21日～22日
  - 13) 長山雅晴, 角層バリア機能の数理モデリングとその応用, 第53回 芝浦工大数理科学科談話会, 芝浦工業大学大宮キャンパス（埼玉県・さいたま市）, 2016年4月27日
  - 14) 長山雅晴, 反応拡散系と樟脳運動の数理モデル, 金沢解析セミナー, 金沢大学キャンパスプラザ（石川県・金沢市）, 2016年4月9日
  - 15) F. Kimura, H. Aonuma, T. Sato and M. Sakura, Changes in biogenic amine levels and locomotion activities in the praying mantis *Tenodera angustipennis* and *Hierodula perifella* caused by the parasitic horsehair worm *Chordodes sp.*, 22nd International congree of Zoology and 87th meeting of Zoological Society of Japan, 恩納村, 宜野湾市 (2016-11)
  - 16) R. Okada, H. Ikeno and H. Aonuma, Behavioral pattern of a follower bee in the dance communication, 22nd International congree of Zoology and 87th meeting of Zoological Society of Japan, 恩納村, 宜野湾市 (2016-11)
  - 17) S. Kuroda, H. Aonuma, K. Yasui and A. Ishiguro, The role of body stiffness for adaptive locomotion in centipede, 22nd International congree of Zoology and 87th meeting of Zoological Society of Japan, 恩納村, 宜野湾市 (2016-11)
  - 18) H. Aonuma, S. Kuroda, K. Yasui, T. Kano and A. Ishiguro, Three dimensional analysis of walking legs and their controlling muscles in the centipede *Scolopendra subspinipes* mutilans using micro-CT technique, 22nd International congree of Zoology and 87th meeting of Zoological Society of Japan, 恩納村, 宜野湾市 (2016-11)
  - 19) 小野 達也、加納 剛史、青沼 仁志、松坂 義哉、石黒 章夫「足場を活用して推進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、パシフィコ横浜、横浜 (2016-06)
  - 20) 小野 達也、金内 大地、加納 剛史、青沼 仁志、石黒 章夫「クモヒトデの適応的ロコモーションに内在する階層的な自律分散制御則の解明」、第29回 自律分散システム・シンポジウム、調布クレストンホテル、東京 (2017-01)
  - 21) 安井 浩太郎、菊池 和気、加納 剛史、早瀬 友美乃、黒田 茂、青沼 仁志、小林 亮、石黒 章夫「ムカデの適応的ロコモーションに内在する自律分散制御則」、第29回 自律分散システム・シンポジウム、調布クレストンホテル、東京 (2017-01)
  - 22) E. Ginder, Mathematical Soft Matter Seminar “Variational approaches to the analysis and modeling of interfacial motions” 2017年3月28日
  - 23) E. Ginder, MIMS International Conference on Reaction-diffusion system, theory and applications “A line mass approach to some active matter systems” 2017年3月18日
  - 24) E. Ginder, CREST・さきがけ・数学共同プログラム合同シンポジウム “Multiphase shape optimization in phononic crystal design” 2017年2月11日
  - 25) E. Ginder, 2016年度第11回明治非線型数理セミナー “双曲型平均曲率流の近似解法について” 2016年11月7日
  - 26) E. Ginder, Applied Mathematics for Real-world Problems II. “A density gradient approach to bandgap optimization in composite materials” 2016年10月29日
  - 27) E. Ginder, Workshop on Nonlinear phenomena, Modeling, and Simulation. “A vector field approach to the embedding of multiphase hypersurfaces in three-dimensional Euclidean spaces” 2016年9月2日
  - 28) E. Ginder, Maet mini-workshop. “A method for embedding multiphase hypersurfaces in Euclidean spaces” 2016年6月15日
  - 29) 秋山正和、”細胞極性と細胞移動の数理モデル”、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、2016/05/23～2016/05/24、北海道大学電子科学研究所（北海道札幌市）、札幌市、ポスター発表（主）
  - 30) M. Akiyama, T. Ayukawa, M. Yamazaki, ”A Mathematical Model of Planar Cell Polarity”、The European Conference on Mathematical and Theoretical Biology 2016 (ヨーロッパ数理生物会)、2016/07/11-2016/07/15、The University of Nottingham、Nottingham、England、ポスター発表（主）
  - 31) M. Okamoto、M. Nagayama、M. Akiyama、”Mathematical model including fluid's effect of camphor disk's self-motion”、International Conference: Patterns and Waves 2016、2016/08/01、2016/08/05、北海道大学（北海道札幌市）、ポスター発表（共著）

- 32) M. Akiyama、T. Ayukawa、M. Yamazaki、”A Mathematical Model of Planar Cell Polarity”、International Conference:Patterns and Waves 2016、2016/08/01-2016/08/05、北海道大学(北海道札幌市)、ポスター発表(主)
- 33) 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”、数理で解き明かす森羅万象~小林亮と“ゆかい”な仲間たちの研究会~、2016/08/20-2016/08/21、広島大学(広島県東広島市)、招待講演(主)
- 34) 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”、数理で解き明かす森羅万象~小林亮と“ゆかい”な仲間たちの研究会~、2016/08/20、2016/08/21、広島大学(広島県東広島市)、ポスター発表(主)
- 35) 岡本守、長山雅晴、秋山正和、”マランゴニ流の影響を含む、円環水路における樟脳円盤の自律運動の数理モデル”、第10回応用数理研究会、2016/08/25-2016/08/26、休暇村能登千里浜、石川県羽咋市、講演(共著)
- 36) T. Hayashi, M. Akiyama, M. Sato, ”Tetragonal versus hexagonal tiling of the Drosophila eye”, 12th Japanese Drosophila Research Conference(第12回 日本ショウジョウバエ研究会)、2016/09/09-2016/09/11、立教大学、講演(共著)
- 37) 秋山正和、須志田隆道、”細胞極性と細胞移動の数理モデル”、RIMS研究集会「集団ダイナミクスに現れる時空間パターンの数理」、2016/10/12-2016/10/14、京都大学数理解析研究所(京都府京都市)、招待講演(主)
- 38) 須志田隆道、秋山正和、”3次元形態を表現する数学的基盤の構築”、RIMS研究集会「集団ダイナミクスに現れる時空間パターンの数理」、2016/10/12-2016/10/14、京都大学数理解析研究所(京都府京都市)、講演(共著)
- 39) 岡本守、長山雅晴、秋山正和、”樟脳の自律運動に対する対流の影響”、RIMS研究集会「現象解明に向けた数値解析学の新展開Ⅱ」、2016/10/19-2016/10/21、京都大学数理解析研究所(京都府京都市)、講演(共著)
- 40) 秋山正和、山崎正和、鮎川友紀、”毛の方向が一方向に揃う現象に関する数理モデル”、第4回アライアンス若手研究交流会、2016/11/09-2016/11/10、北海道大学(北海道札幌市)電子科学研究所、招待講演(主)
- 41) 秋山正和、須志田隆道、”細胞極性と細胞移動の数理モデル”、第4回アライアンス若手研究交流会、2016/11/09-2016/11/10、北海道大学(北海道札幌市)電子科学研究所、ポスター発表(主)
- 42) 秋山正和、須志田隆道、”細胞極性と細胞移動の数理モデル”、RIMS研究集会 第13回「生物数学の理論とその応用」-連続および離散モデルのモデリングと解析-、2016/11/14-2016/11/17、京都大学数理解析研究所(京都府京都市)、講演(主)
- 43) 須志田隆道、秋山正和、”3次元形態を表現する数学的基盤の構築”、日本数学会 異分野・異業種研究交流会2016、2016/11/19、明治大学(東京都)、ポスター発表(共著)
- 44) M. Akiyama, T. Ayukawa, M. Yamazaki, ”A Mathematical Analysis of Planar Cell Polarity Model”, H27年度電子科学研究所国際シンポジウム、2016/12/13-2016/12/14、シャトレーゼ・ガトーキングダム札幌、北海道、ポスター発表(主)
- 45) M. Okamoto, N. Nagayama, M. Akiyama, ”Mathematical model including fluid's effect of camphor disk's self-motion”, H27年度電子科学研究所国際シンポジウム、2016/12/13-2016/12/14、シャトレーゼ・ガトーキングダム札幌、北海道、ポスター発表(共著)
- 46) 須志田隆道、秋山正和、”細胞極性と細胞移動の数理モデル”、2016年度応用数学合同研究集会、2016/12/15-2016/12/17、龍谷大学(滋賀県大津市)、講演(共著)
- 47) 岡本守、秋山正和、長山雅晴、”マランゴニ流の影響を含む、円環水路における樟脳円盤の自律運動の数理モデル”、2016年度応用数学合同研究集会、2016/12/15-2016/12/17、龍谷大学(滋賀県大津市)、講演(共著)
- 48) 秋山正和、山崎正和、”細胞集団が同じ方向を向く仕組み～数学と生物学のマリアージュ～”、CREST「生命動態の理解と制御のための基盤技術の創出」研究領域第7回数理デザイン道場、2016/12/19-2016/12/20、お台場、東京、招待講演(主)
- 49) 秋山正和、”生物の形に関する数理的アプローチ”、第4回 JST 数学領域横断若手合宿、2017/02/20-2017/02/23、休暇村 讃岐五色台(香川県・坂出市)、ポスター発表(主)
- 50) 秋山正和、”細胞極性と細胞移動の数理モデル”、数理生物研究会2017、2017/03/09-2017/03/11、北海道大学電子科学研究所(北海道札幌市)、講演(主)
- 51) 須志田隆道、秋山正和、”消化管の捻転現象を理解するための三次元バーテックスダイナミクスモデル”、数理生物研究会2017、2017/03/09-2017/03/11、北海道大学電子科学研究所、(北海道札幌市) 講演(主)

#### 4.7 シンポジウムの開催

- 1) 長山雅晴、第10回応用数理研究会、休暇村能登千里浜、2016年8月25日～8月27日

- 2) 長山雅晴、非線形現象研究会 2016、北海道大学 中央キャンパス総合研究棟、2016年8月30日～8月31日
- 3) 長山雅晴、札幌数理生物研究会 2017、北海道大学 中央キャンパス総合研究棟、2017年3月9日～10日
- 4) 青沼仁志、第3回生物を規範としたロボット設計に関する研究会大濱信泉記念館（沖縄県石垣市）(2016年12月03日～2016年12月05日)
- 5) 秋山正和、数理で解き明かす森羅万象「小林亮とゆかいな仲間たちの研究会」、2016年8月20-2016年08/21、広島大学（広島県東広島市）
- 6) 秋山正和、第4回 JST 数学領域横断若手合宿、2017年2月20-2017年2月23、休暇村 讀岐五色台（香川県・坂出市）

#### 4.8 共同研究

##### a. 所内共同研究

- 1) 該当なし

##### b. 民間等との共同研究

- 1) 長山雅晴、新日鐵住金株式会社、活性汚泥法モデルの高精度化、2016年度～2018年度
- 2) 長山雅晴、株式会社資生堂、表皮構造モデルの構築、2016年度

##### c. 委託研究

- 1) 該当なし

##### d. 国際共同研究

- 1) 該当なし

#### 4.9 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（代表）、基盤研究 B 一般、自己駆動系の集団運動に対する数理モデリングとその数理解析、2016～2019年度
- 2) 長山雅晴（分担）、基盤研究 A 一般、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
- 3) 長山雅晴（分担）、基盤研究 C 一般、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
- 4) 長山雅晴（分担）、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
- 5) 青沼仁志（分担）、基盤研究 A、マルチテレストリアルロコモーションから解き明かす生物の多様な振る舞いの発現機序、2016～2019年度
- 6) 青沼仁志（分担）、基盤研究 B、ロボット義足による歩行運動への介入から解き明かす昆虫の脚間協調メカニズム、2016～2018年度
- 7) 青沼仁志（分担）、基盤研究 B 特設分野、自切する生物から切り拓くスーパーレジリアントなシステムの設計論、2016～2019年度
- 8) 秋山正和（代表）、新学術領域研究（研究領域提案型）、「3次元形態を表現する数学的基盤の構築」、2015年度～2020年度
- 9) 秋山正和（代表）、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」、2015～2019年度
- 10) 秋山正和（分担）、新学術領域（研究領域提案型）、生物の3D形態を構築するロジック、2015年度～2019年度
- 11) 秋山正和（分担）、新学術領域（国際活動支援班）、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
- 12) 秋山正和（分担）、挑戦的萌芽研究、平面内細胞極性の向きを逆転させる未知の機構の解析、2016年～2017年度
- 13) 秋山正和（分担）、基盤研究 B、「組織の力学的基礎を司る第三のP C P制御グループを介した新たなP C P調節機構の解明、2016年度～2018年度
- 14) Elliott Ginder（代表）、基盤研究 C 特設分野、The interfacial and free boundary problems of active matter、2015年度～2018年度
- 15) 西野浩史（代表）基盤研究 C 一般、単一嗅覚器による匂い方向検出の神経基盤の解明、2014～2016年度

##### b. 大型プロジェクト・受託研究

- 1) 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
- 2) 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
- 3) 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
- 4) Elliott Ginder, JST PRESTO, Multiphase shape optimization in phononic crystal design, 2015年度～2018年度

#### 4.10 受賞

- 1) 長山雅晴、総長研究賞 優秀賞
- 2) H. Mukai, H. Nishino, N. Skals and T. Takanashi : 生物音響学会最優秀発表賞 “Male jewel bug localizes female calling vibrations: directional vibration sensing by chordotonal organs. 生物音響学会 2016年12月
- 3) K. Katoh, N. Takahashi, H. Watanabe, M. Mizunami and H. Nishino : 優秀論文賞（大会委員長賞）“Aggregation pheromone processing in a cockroach brain” JSCPB (日本比較生理生化学会) 2016年09月

#### 4.11 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
- 2) 秋山正和、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 教育研究資金検討委員会 委員
- 2) 青沼仁志、The 8th International Symposium on Adaptive Motion of Animals and Machines (AMAM2017, Sapporo) 実行副委員長、ローカルオーガナイザー
- 3) 青沼仁志、日本比較生理生化学会、評議委員
- 4) 青沼仁志、日本動物学会北海道支部役員
- 5) 青沼仁志、日本動物学会国際交流委員
- 6) Elliott Ginder、日本数学会 「数学」編集委員会 委員
- 7) 西野浩史、日本比較生理生化学会 評議委員
- 8) 西野浩史、日本動物学会北海道支部 役員

##### c. 兼任・兼業

- 1) 長山雅晴 : JST さきがけアドバイザー (2014年4月～2019年3月)

##### d. 外国人研究者の招聘

- 1) Joanna Wyszkowska、Poland、(2016年4月15日-2017年3月1日)

##### e. 北大での担当授業科目（対象、講義名、担当者、期間）

- 1) 理学部3、4年生、数理科学A、長山雅晴、2016年後期
- 2) 理学部3、4年生、数理科学演習、秋山正和、2016年後期
- 3) 全学、英語演習、Elliott Ginder、2016年前期
- 4) 理学部2年生、コンピュータ、Elliott Ginder、2016年後期
- 5) 全学1年生、フレッシュマンセミナー、西野浩史、2016年前期

##### f. 北大以外での非常勤講師（対象、講義名、担当者、期間）

- 1) 工学研究科大学院生修士課程、ロバスト制御理論、青沼仁志（オムニバス）、2017年2月3日

##### g. 新聞・テレビ等の報道

- 1) 秋山正和、「頭の中で想像する内容を脳波リズムの位

相差が切り替える～振動子モデルによる脳型コンピュータへの応用に期待～」. プレスリリース (筑波大・九州大、北大合同). (2017.3.13)

- 2) H. Nishino : ウオールストリート・ジャーナル 2017年03月21日 A new study offers a hint why American cockroaches are so hard to get rid of.
- 3) H. Nishino : スペインEFE通信社 2017年03月16日 “Estudio japonés vincula reproducción de cucarachas con cohabitación femenina EFE
- 4) 西野 浩史 : 毎日新聞 東京夕刊 2017年03月15日 「ゴキブリ増殖、雄いらず雌3匹以上、単為生殖促進
- 5) H. Nishino : ジャパンタイムス 2017年03月14日 “Cockroach longevity linked to female cohabitation
- 6) 高梨 琢磨、深谷 緑、中牟田 潔、スカルス・ニールス、西野 浩史: 日本農業新聞 2017年02月02日 「振動で害虫追い払い」
- 7) 西野 浩史 : ニュートンVol.37, No8 2017年06月07日 「ゴキブリが雌だけで繁殖できる秘密にせまる」
- 8) 西野 浩史 : 宇宙（そら）のとびら第40号（夏号） 2017年06月01日 「ゴキブリは雌が集まると卵ができるやすくなる」
- 9) 西野 浩史 : フジテレビネットニュースFLAG9 2017年03月13日
- 10) 西野 浩史 : NHK 2016年11月02日 「ゴキブリの脳にヒトの脳と同じように 神経の興奮を抑え、効率良く情報を伝える頭を冷やす働きを持つ巨大神経があることを発見」

##### h. ポスドク・客員研究員など

- 1) 須志田道隆（博士研究員）
- 2) 熊本淳一（学術研究員）
- 3) 渡邊貴之（研究所研究員）

##### i. 修士学位及び博士学位の取得状況

###### 修士学位（1）：

- 1) 片山 渉: 多相環境における界面運動の近似解法
- 2) 篠毛 崇章: Traveling pulse solutions in a point mass model of diffusing particles

###### 博士学位（0）：

- 1) 該当なし

## 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、2008.3～2016.9)  
助 教 寺本 央（東大院、博(学術)、2008.6～2016.6)  
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)、2015.9～2016.9)  
Preetom Nag (北大、博士(生命科学)、2016.5  
～2017.3)  
博士研究員 Kernel Enrique Prieto Moreno (2015. 8～)  
学 生  
博士課程後期  
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)  
学部生  
三本斎也 (理学部 生命科学科)

### 1. 研究目標

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

自然科学研究において革命的な発展をもたらすものは、多くの場合、新しい実験技術とその新しい実験事実に基づいた理論・概念の転回である。近年、一分子計測技術等の飛躍的な進展により、「観測」の在り方が大きな変貌を遂げ、サブミリ秒程度の時間分解能で、一分子レベルの大規模構造変形や細胞の分化の経時変化を直接観測することが可能になってきた。

当該研究分野では、化学反応や生体分子の構造転移などの状態変化における「偶然と必然」、「統計性と選択性」、「部分と全体」の基礎原理を解明するとともに、“トップダウン”と“ボトムアップ”的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、單一分子分光を用いた生体計測を通して、階層を越えた構造と機能の相関を探っている。具体的には、700～1400 nmの近赤外波長領域の光計測技術を用いた非侵襲計測により、生きたままの生体組織の定量的生体計測技術を確立する。それにより、單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) 反応座標切り替え機構の実験的検証に向けて

[PRL 106, 054101 (2011); PRL 115, 093003 (2015)]によって提案された、「分子のエネルギーを上げていくと、分子の反応座標がポテンシャルの形状から決まる極限反応座標の方向から、別の方向へと不連続に切り替わる新規反応機構」の実験的検証可能性を検討した。実験的検証のために選んだ系は直交する電場磁場中の水素原子である。我々はこの系を三つの観点から選んだ。一つ目は反応座標切り替え機構が起こるために必要最小限必要な3自由度を持つシンプルな系であること、二つ目はこの系はスケーリング則を満たし、適切に電場と磁場の強度を調整することにより系の有効プランク定数（量子性の強さの指標の一つ）を自由に変化させることができること、三つめは反応座標の切り替えが起こると水素原子から解離していく電子の飛散方向が変化するので、その電子の飛散方向を検出することで反応座標切り替えを検出できること、である。東北大学多元物質科学研究所の高橋正彦教授のもとにその詳細な検出プロトコルに関して議論をした。プロトコルとしては、真空中に水素原子を分子ビームで直交する電場磁場中に放射し、励起光により狙ったエネルギー準位に上げる、最後にディテクターを反応座標切り替え前と後の電子の解離方向に設置し、電子の飛散方向を検出するというものである。

・当初想定していた数テスラの磁場の強度を実現するのは実験的に難しいであろうことが判明し、ヘルムホルツコイル等で実現可能な数十から数百ガウス程度の磁場強度下で反応座標切り替えが起こるのか、あるいは、起こったとしてどの位置にどのサイズのディテクターを設置すれば反応座標切り替えを検出することができるのかが検討課題として浮上した。

・有効プランク定数を変化させることで、量子力学の特異極限にあたる半古典近似が良く成り立つ領域からその極限から離れた領域まで実験することが可能である。[PRL 106, 054101 (2011); PRL 115, 093003 (2015)]では、量子効果は考慮されていなかったが、この実験により、反応座標切り替え機構にとって量子効果がどのような役割を果たすのかを検証することが可能となる。量子効果の検証には、量子共鳴状態の計算も重要であり、現在その計算も併せて行っている状況である。

## (2) ラマン分光イメージングの情報計測技術

Raman 顕微鏡は、細胞内において色素分子の侵襲的ラベリングをせずに細胞の動的過程の詳細を捕える能力を有している。生細胞の Raman 顕微鏡画像は細胞全体、例えば膜組織や核といった細胞を成す構成要素、それから脂質、タンパク質、核酸などの細胞成分を形作る構成要素などについての情報を豊富に含んでいる。例えば、アポトーシスの直前にミトコンドリア膜からシトクロム c が放出されることが Raman 顕微鏡で観察されている。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、Raman 画像の分析手法は、観測によって得られる情報のほんの少ししか扱っていない。Raman 顕微鏡で得られる信号は本質的に弱いため、重要なスペクトル特徴を明らかにする上で、バックグラウンドの混入や大幅な雑音ゆらぎを縮小させることが不可欠である。我々は最近、バックグラウンドの混入や検出雑音の影響を、整合的にかつ客観的に縮小するデータ駆動型の手法を開発した。この手法は、さらなる分析に際し画像を鮮明化及び明確化することを可能とし、主観的手法を用いずに有用なスペクトル情報を区分できるという利点を提供する。例えば、図 1 の瀕胞甲状腺癌細胞の画像では、大きな脂肪滴を簡単に見分けることができる。がん細胞は脂肪を過剰生産することが良く知られているため、現在取り組んでいる研究では、細胞小器官の空間およびスペクトル特性の両方を用い、特定の細胞ががん性であるかどうかを決定することに焦点を当てている。

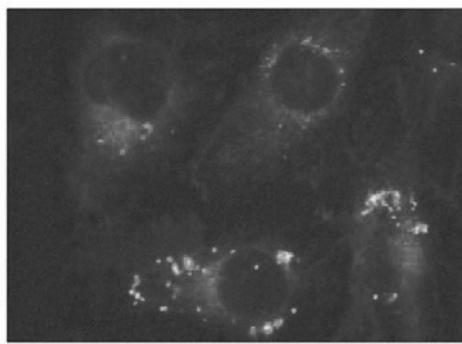


図 1. Raman 顕微鏡画像が示す瀕胞甲状腺癌細胞における脂肪滴

## (3) 毛細胞の周りの引張応力へ微小管応答の量化

植物器官は個体に依らずほぼ同形・同サイズの形状を獲得する驚くべき相同性や再現性を持つ。しかしながら、細胞レベルでは形状やサイズが多様であり、植物がどのように多様性をコントロールして最終形状に至るかは未だ解明されていない。本研究では、植物器官に点在する毛細胞(図 2A)が器官サイズに与える影響を調べている。力学シミュレーションモデルで予言された毛細胞の周りの引張応力への微小管応答が野生型と変異体でどの程度異なるかを量化

することで、局所的な力学変化が全体の器官サイズに与える影響を明らかにすることに挑戦した。

共同研究グループによる細胞圧力化モデルにより、コンピュータ上の仮想毛細胞に対して内側から膨圧を想定した圧力を与え、周りの細胞の表面応力を調べたところ、毛細胞の周りに円状の応力ネットワークが構築されることが明らかになった。この結果の原因としては、1)細胞の急激な膨圧変化に起因する場合、あるいは2)膨圧一定下で細胞の表面が軟化して急激に成長する場合の2つが考えられるが、シミュレーション上はどちらの場合も(2の場合は細胞全体への張力が必要であるが)毛細胞周りに円状の応力構造が現れることが数値実験を援用して確かめられた。

植物細胞は応力構造に起因して微小管切断タンパク質 Katanin が機能することが知られており、微小管は応力方向に並んで配向する多くの実験で明らかになっている。我々は野生型(WT), 微小管重合化欠陥変異体(bot1-7), 微小管重合化促進変異体(spr2-2)の3つの変異体の毛細胞の周りの微小管配向角度を定量化した(図 2B-E). その結果、毛細胞の近い近傍で、毛細胞の出現直前の微小管配向は、WT と spr2-2 はほとんど同程度の円状配向度であったが、bot1-7 は円状に配向していないことがわかった。一方で、spr2-2 では毛細胞が出現した後も円状の配向を維持していることも確かめられた(図 2F). またその傾向は、毛細胞の遠い近傍においても認められた(図 2G). すなわち、bot1-7 は微小管応答が弱く遅いため、円状配向が毛細胞近傍でも形成されず、spr2-2 は微小管応答が強く早いため、円状配向が長く遠くまで維持されると結論づけられる。

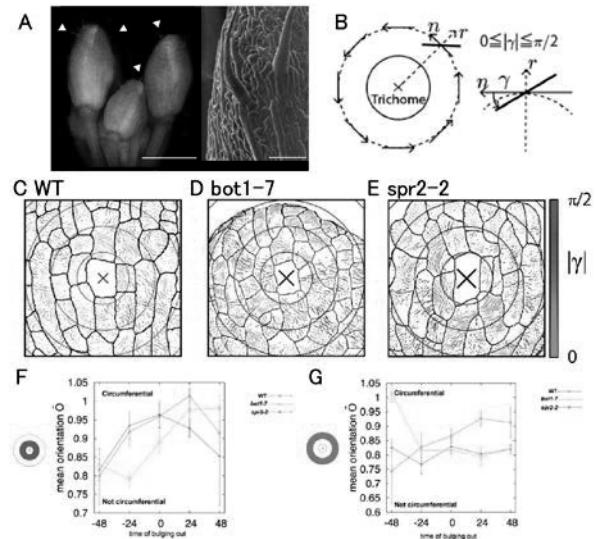


図 2. A) シロイヌナズナ萼片の毛細胞。B) 微小管配向の円状配向度の定量化方法の概念図。C-E) 野生型と変異体の微小管配向の円状配向度の空間分布。F-G) 円状配向度の比較(F: 10μm-20μm, G: 20μm-30μm)。

現在、微小管応答の違いが全体の器官サイズや形状に与える影響を調べるために、野生型と変異体の最終形状データを比較する解析を継続して進めている。

#### (4) 細胞の役割分化のデータ科学

集団的細胞運動は、例えば、胚発生、癌転移、創傷治癒といった、いくつかの生物学的過程の中で極めて重要な役割を果たしている。図3ではMadin - Darbyイヌ腎臓(MDCK)上皮細胞の集団運動時に、突如現れた特殊化した“リーダー”と呼ばれる細胞が“フォロワー”と呼ばれる周辺の細胞群に対してリーダー的な役割を担い上皮組織の全体性を保つつもコロニーの境目から出てきている様子を示す。最近の研究では、遊走コロニーの中でリーダー細胞に先導されて起こる末端での突起の発生のきっかけとなる生体分子が示された。しかし、リーダー細胞の出現の背後にある物理的現象は、未だ理解が深まっていない。上皮細胞の集団運動におけるリーダー細胞出現時の物理的現象の変化を理解するために、我々は軟コラーゲンゲル基質の上で培養されたMDCK上皮シートの位相差顕微鏡画像の経時変化（生命融合科学コース芳賀永教授らにより提供）から得られた速度場に着目した。個々の細胞追跡に特有の技術的問題（画像系列や細胞分裂の蛍光コントラストの不一致）を避けるために、ここでは上皮組織の速度場は粒子画像速度測定(PIV)技術を用いて得ている。実際に、PIVは連続画像の相互相關から局所変位ベクトルを抽出しており、通常、流体力学で用いられている。位相差顕微鏡の画像の構造のおかげで、我々の研究では実験系に微小なトレーサーを加える必要はない。図3はPIV分析から得られた速度場の代表的なスナップ写真である。コロニーで突起が起こる前に、細胞はやや協働的ではない運動をしており、ともすれば、不規則かつ時には回転するような動きを見せていましたが観測された。しかしながら、リーダー細胞が現れた後は、この分析で観測されたように、細胞群の細胞がリーダー細胞の方向に沿って協働的に運動している。PIV技術で得られた速度場に基づき、時間ごとの速度の大きさの分布を計算した（図4）。突起が現れる前の初期段階と比べると、コロニーで突起が現れた後（観測を始めてから35時間後）では分布が広がることが分かった。これは、高い可動性を示すリーダー細胞に先導されて境界から指状に前に出る状態が出現し、さらに、リーダー細胞はフォロワー細胞とカドヘリンにより仲介された接触を強く保っているからである。そのため、表面の前身の間もフォロワー細胞も高い可動性を示し、結果として指状突起が現れた後は平均速度が上昇している。多次元尺度構成法を用いて、我々はリーダー細胞がコロニーに出現し始める際に、速度の大きさの分布があるクラスタから別のクラスタに変化するということを発見した。我々は、コロニーにおけるリーダー細胞の出現が観測される他の類似の実験においても、今回の結果と整合する結果が得られるだろうと考えている。

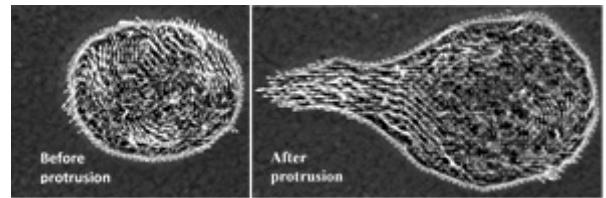


図3. 代表的な速度マップ: 速度マップは上皮細胞の上のみでプロットしており、軟コラーゲン基質上の培養されたMDCK細胞の位相差顕微鏡の画像の上に重ねて描かれている。

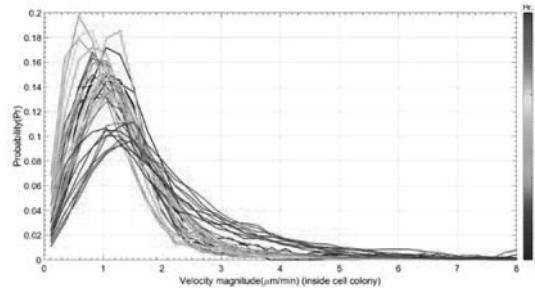


図4. 速度の大きさの分布の時間発展

(5) Raman顕微分光画像の情報理論的データ解析アプローチ  
ラマン顕微分光イメージングは、非侵襲的で分子標識を必要としない生細胞イメージング技術である。そのイメージには単一細胞における分子振動の空間およびスペクトルの情報が含まれている。スペクトルの特徴は、シトクロムc、脂質、蛋白質、ビタミンAなどの個別の生体分子に特有である。Raman画像は多くの情報を含んでいるが、生スペクトルの信号が弱いため、有用なデータ処理方法の開発が必要となる。そこで、我々はRaman顕微分光画像の情報理論的データ解析手法を開発して異なる2つの疾病型のラットの脂肪肝から得られたデータを分析した。生スペクトルへのバックグラウンド混入や雑音のゆらぎに対応するため、再帰的な多項式フィッティングや特異値分解のようなデータ分析ツールをいくつか用いて、特徴の識別精度を上げるための前処理をした。また、疾病型を分類するために速度歪み理論を用いた情報理論的ソフトクラスタリング法を使用した。まず、4パターンの摂食周期でそれぞれコントロール食(CD)、高脂肪食(HFD)および高脂肪高コレステロール食(HFHC)を与えた3匹のラットの組織切片の48のRaman画像(各画像: 70×20 pixels, ピクセルサイズ: 5 μm×5 μm)から得られたRamanスペクトルを前処理した。また、多次元尺度構成法(MDS)によりデータの隠れた構造を明らかにした。図5で示されているのは、672個のスペクトルを2次元MDSで表現したものでそれぞれの点がRamanスペクトルに相当する。MDSで表現された点の配置を分析すると、大半のCD、HFDおよびHFHCに対応するスペクトルがきれいに分離していることがわかる。

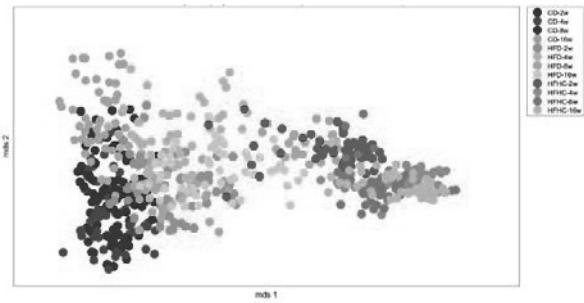


図 5. Raman スペクトルの2次元 MDS による表現

#### (6) 時間分解法を用いた、組織深部の蛍光ターゲットイメージング手法の開発

ガンなどの病変部を放射性プローブにより高感度に検出する方法が実用化しているが、被曝や特殊な施設を必要とするなど問題が多い。放射性プローブを蛍光プローブなどに置き換えることによりそれらの問題は解消できると考えられるが、組織に埋め込まれた蛍光プローブの検出は極めて難しい。これは生体組織が強い散乱吸収を持つためである。しかし光子検出システムとパルスレーザーを用いた高い時間分解能を持つ計測により、深さ 1 cm 程度の蛍光プローブについても検出可能であることがわかっている。しかし、実際にその空間的分布を知るいわゆる蛍光トモグラフィ手法は、現在も研究途上にある。本年度は、時間分解蛍光検出システムの開発とそこからのデータを用いるためのトモグラフィ手法の開発を行った。

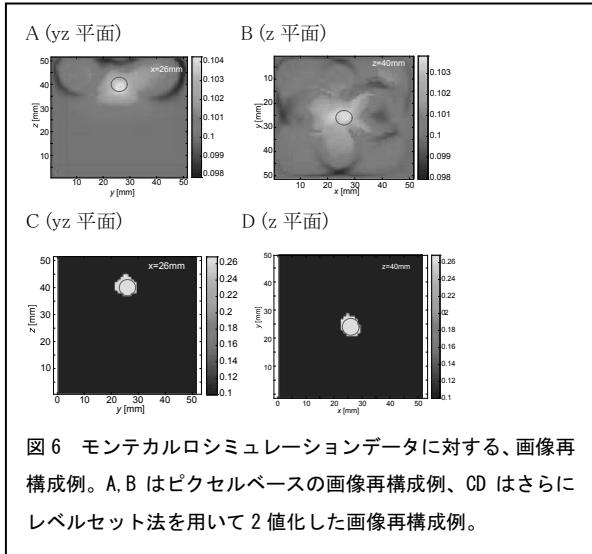


図 6 モンテカルロシミュレーションデータに対する、画像再構成例。A, B はピクセルベースの画像再構成例、C,D はさらにレベルセット法を用いて 2 値化した画像再構成例。

蛍光のトモグラフィを行うためには、複数の空間的に異なる点において蛍光の時間応答関数を計測する。時間応答関数には、蛍光プローブの蛍光減衰特性とともに組織内を伝播した光路に関する情報が含まれる。これらに対し、光伝播の数理モデルを作り、その結果と比較しその差が小さくなるような操作を行い画像を得る。本年度は光伝播を光の輸送方程式で記述し、また励起光は一様な半空間の媒体で

の近似的な解析式を用いて単純化した。

アルゴリズムを確認するために、モンテカルロ法により光伝播をシミュレーションし、その結果をデータと見立て画像再構成を行った。シミュレーションでは半空間の組織を考え、その中に球形の蛍光ターゲットを設置した。半空間の表側の4箇所で順に光を入れ、12箇所の検出点で蛍光を観測したとした。それによる再構成画像を図 N に示した。図の A, B は各ピクセルでの蛍光ターゲットの吸収係数に制限を与えないいわゆるピクセルベースの画像再構成の結果である。赤の丸は真の位置を示す。ピクセルベースの結果においても、真の像に近い分布を再構成することができたが、値は小さくまた分布は広がっている。ここに、蛍光ターゲットでの値の分布がないとし 2 値化するような拘束を導入し、いわゆるレベルセット法により画像を再構成した結果が C,D である。2 値化し解を制限することにより画像は大幅に改善し、また値自身も真値に近づいた。

今後は、実際の実験データを用いた画像再構成を進めるとともに、さらに安定でロバストなアルゴリズムを探す。さらにそれを用いた医療応用へと展開する計画である。

### 3. 今後の研究の展望

生体機能を司る分子は、多くの場合、アボガドロ数個ではなく、少数個が参画し、有限時間内に生体機能は生起する。そこでは平衡統計の枠組みが必ずしも成立している保証はなく、一分子観察を通して、長時間の分子記憶などの動態現象として具現化されているものと思われる。しかしながら、シグナル伝達、エネルギー伝達、DNA複製などの細胞機能において重要な役割を果たす分子機械は、熱揺らぎに晒されながら、入力刺激に対する応答として始まる一連の構造変化とそれに伴う化学反応から成り、平均熱エネルギー ( $\sim kT$ ) よりもさほど大きくない入力に対し、その機能を効率的かつ選択的に発現する。しかしながら、その指導原理は未だに解明されていない。それゆえ、統計性を予め仮定しない基礎理論から化学反応や構造転移の根本原理を追求するとともに、あらかじめ系についての性質(統計性、次元性など)を前提としないで、(実際に観測される)一分子時系列情報から背後に存在する動態構造について読み解く方法論を確立することは熱揺らぎ存在下における生体機能の指導原理を考察するうえで本質的に重要である。今後、引き続き、一分子生物学における自由エネルギー地形概念そのものの再考、生体分子系ダイナミックスと熱揺らぎの拮抗関係、時空間スケールの異なる階層間の情報伝達、環境に適応しながら時々刻々変化する階層ネットワーク構造の遍歴現象などを考察していき、一分子基礎学の創出を目指していく予定である。

一方、近赤外波長域を用いた生体組織レベルでの定量的計測法の確立を目指し、それを用いた生物システムの階層をまたいた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（査読あり）

- 1) L. Hong, M. Dumond, S. Tsugawa, A. Sapala, A. Routier-Kierzkowska, Y. Zhou, C. Chen, A. Kiss, M. Zhu, O. Hamant, R. S. Smith, T. Komatsuzaki, C. Li, A. Boudaoud and A. H. Roeder : “Variable cell growth yields reproducible organ development through spatiotemporal averaging”, *Developmental Cell*, 38(1) : 15–32 (2016)
- 2) S. Tsugawa, H. Nathan, O. Hamant, A. Boudaoud, R. S. Smith, C. Li and T. Komatsuzaki : “Extracting subcellular fibrillar alignment with error estimation: Application to microtubules”, *Biophysical Journal*, 110(8) : 1836–1844 (2016)
- 3) G.Nishimura, K.Awasthi, and D.Furukawa, “Fluorescence lifetime measurements I heterogeneous scattering medium,” *J.Biomed.Opt.* 21, 075013 (2016).
- 4) K.Prieto, and G.Nishimura, “A novel approach for the time-domain fluorescence imaging of a semi-infinite turbid medium: Monte Carlo evaluation.” *SPIE Proc.*, 10059, 1005910 (2017).

### 4.2 学術論文（査読なし）

該当なし

### 4.3 総説・解説・評論等

- 1) L. Wiesenfeld, W. Thi, P. Caselli, A. Faure, L. Bizzocchi, J. Brandão, D. Duflot, E. Herbst, S. J. Klippenstein, T. Komatsuzaki, C. Puzzarini, O. Oncero, H. Teramoto, M. Toda, A. Avoird and H. Waalkens : 「Theory of Gas Phase Scattering and Reactivity for Astrochemistry」、Report from the Workshop on Theory of Gas Phase Scattering and Reactivity for Astrochemistry Nov 23 - Dec 4, 2015, 1-24 (2016)
- 2) 小松崎 民樹 : 「データ科学雑感」、生物物理、54(4) : 197 (2016)
- 3) 寺本 央、戸田 幹人、河野 裕彦、高橋 正彦、小松崎 民樹 : 「化学反応の行き先を変える“スイッチ”—エネルギーの上昇で反応経路が切り替わる新現象」、月刊化学、71(5) : 25-30 (2016)

### 4.4 著書

- 1) 永井 健治、富樫 祐一(編)、小松崎 民樹(著) : 「少數性生物学：第 5 章「少數の個性～分子にも個性？」」、株式会社 日本評論社 (2017)

### 4.5 特許（発明者：特許番号、特許名、出願年月日）

該当なし

### 4.6 講演

#### a. 招待講演（国際学会）

- 1) T. Komatsuzaki\* : “A kinetic connectivity graph to decode timescale hierarchy buried in reaction networks”, Conference on Energy Landscapes: Theory and Applications, The Centre IGESA, France (2016-06 ~ 2016-07)
- 2) G.Nishimura\*, “Near-infrared fluorescence detection and its medical applications,” The 10<sup>th</sup> ICME International Conference on Complex Medical Engineering (CME2016), Tochigi Prefecture Culture Center Utsunomiya, Japan (2016.8.4-6)

#### b. 招待講演（国内学会）

- 1) 西村 吾朗\*: 「Time-domain fluorescence diffuse optical tomography for quantitative imaging of a fluorescence target in deep biological tissue」第 94 回日本生理学会大会、浜松アクトシティコングレスセンター、浜松 (2017.3.28-30).
- 2) 小松崎 民樹\* : 「マイノリティ細胞を彫りだすデータ科学」、第 39 回日本分子生物学会年会、パシフィコ横浜 (2016-11 ~ 2016-12)
- 3) 小松崎 民樹\* : 「1 細胞ラマン分光イメージングから如何にして細胞の個性を定量化するか?」、第 54 回日本生物物理学会年会、つくば国際会議場 (2016-11)

#### c. 一般講演（国際学会）

- 1) K.Prieto, and G.Nishimura, “A novel approach for the time-domain fluorescence imaging of a semi-infinite turbid medium: Monte carlo evaluation”, Bios SPIE Photonics West, The Moscone Center, San Francisco, CA, USA (2017.1.28-2.2)
- 2) K.Hattori, H.Fujii G.Nishimura, K.Kobayashi ad M.Watanabe, “Quantitative method to determine the optical properties of melons by the photon diffusion equation”, Asian NIR Symposium 2016 (ANS2016), Shiroyama Kanko Hotel, Kagoshima, Japan (2016.11.30-12.3)
- 3) H.Fujii, G.Nishimura, K.Hattori, K.Kobayashi and M.Watanabe, “Near-infrared optical properties of white bread using the light propagation model,” Asian NIR Symposium 2016 (ANS2016), Shiroyama Kanko Hotel, Kagoshima, Japan (2016.11.30-12.3)
- 4) K.Hattori, H.Fujii, G.Nishimura, K.Kobayashi and M.Watanabe, “Optical properties of melons determined by an analysis based on the photon diffusion equation,” Furst Fiid Chemistry Conference - Shaping the Guture of Food Quality, Health and Safety, NH Grand Hotel Kransnapolsky, Amsterdam, The Netherlands (2016.10.30-11.1)
- 5) K.Prieto and G.Nishimura, “A new strategy of the time-domain fluorescence imaging for a semi-infinite

turbid media,” 2<sup>nd</sup> Biomedical Imaging and Sensing Conference 2016 (BISC2016), Pacifico Yokohama, Yokohama, Japan (2016.5.18–20).

d. 一般講演（国内学会）

- 1) J. N. Taylor\*, K. Fujita and T. Komatsuzaki : “Data Driven Approaches to Raman Microscopic Analysis”, 第 54 回日本生物物理学会年会, つくば国際会議場 (2016-11)
- 2) N. Preetom\*, K. Helal, H. Teramoto, N. Yamaguchi, C. Li, H. Haga and T. Komatsuzaki : “Spatial heterogeneous and transient dynamics during collective cell migration in a monolayer of MDCK epithelial cells”, 第 54 回日本生物物理学会年会, つくば国際会議場 (2016-11)
- 3) K. Prieto, 西村 吾朗\*、「反射型拡散蛍光トモグラフィー - 半無限媒体中の蛍光ターゲットイメージング」、Optics and Photonics Japan 2016、筑波大学東京キャンパス文京校舎、(2016.10.30-11.2).
- 4) 永幡 裕、前田 理、寺本 央、武次 徹也、小松崎 民樹\*：「時間解像度に依存した反応ネットワークの階層的变化とその予測手法の開発」、分子科学討論会 2016、神戸ファッショントマート (2016-09)

e. 研究会・シンポジウム・ワークショップなど（学会以外）

- 1) 小松崎 民樹\* : 「1 細胞ラマンスペクトル画像から抽出する細胞状態タキソノミー」、平成 28 年度新分野創成センターイメージングサイエンス研究分野プロジェクト成果発表会、自然科学研究機構事務局会議室 (2017-03)
- 2) 小松崎 民樹\* : 「1 細胞ラマン分光イメージング画像から読み解く情報計測科学」、バイオ計測解析技術研究会、かんぽの宿 小樽 (2017-03)
- 3) G.Nishimura, ”Optical tomography for near-infrared fluorescence imaging”, Inverse problems and medical imaging, Graduate school of mathematical science, The University of Tokyo (2017.2.13-17) (招待)
- 4) K.Prieto, G.Nishimura “A new scheme for the time-domain fluorescence imaging of a semi-infinite turbid medium: Monte Carlo evalutation.” Inverse problems and medical imaging, Graduate school of mathematical science, The University of Tokyo (2017.2.13-17) (招待)
- 5) J. N. Taylor\*, 李 振風、Fujita Katsumasa、小松崎 民樹 : 「Data-Driven Analysis of Raman Microscopic Images」、電子科学研究所 研究交流会、電子科学研究所、1 階会議室 (2017-01)
- 6) 小松崎 民樹\* : 「分子から細胞の個性に関するデータ駆動型数理科学」、第 1117 回生物科学セミナー、東京大学理学部 (2016-12) (招待)
- 7) K. M. Helal\*, P. Nag, H. Teramoto, C. Li, H. Hisashi and T. Komatsuzaki : “Collective Cell Migration: Underlying Dynamics and Emergent Structures of Heterogeneity”,

The 17th RIES-Hokudai International Symposium, Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (2016-12)

- 8) P. Nag\*, K. M. Helal, H. Teramoto, C. Li, H. Haga and T. Komatsuzaki : “Dynamical Heterogeneity During Collective Migration of MDCK Epithelial Monolayer”, The 17th RIES-Hokudai International Symposium, Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (2016-12)
- 9) J. N. Taylor\*, C. Li, K. Fujita and T. Komatsuzaki : “Data-Driven Approaches to Raman Microscopic Image Analysis”, The 17th RIES-Hokudai International Symposium, Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (2016-12)
- 10) Y. Tamiya\*, C. Li, R. Watanabe, H. Noji and T. Komatsuzaki : “The Non-equilibrium Effects on Reaction Kinetics of F1-ATPase”, The 17th RIES-Hokudai International Symposium, Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (2016-12)
- 11) 小松崎 民樹\* : 「一細胞ラマン計測とスペース学習、バンディット手法などの情報科学の融合による細胞診断の迅速解析」、基盤 (S) 離散構造処理系プロジェクト「2016 年度 秋のワークショップ」、ガトーキングダム・サッポロ (2016-11)
- 12) 小松崎 民樹\* : 「一細胞ラマン計測と情報科学の融合による細胞診断の迅速解析技術の開発」、C R E S T・さきがけ複合領域 「計測技術と高度情報処理の融合によるインテリジェント計測・解析手法の開発と応用」, キックオフ会議、TKP 市ヶ谷カンファレンスセンター (2016-11) (招待)
- 13) 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」、特設分野研究「遷移状態制御」研究代表者交流会、日本学術振興会 (2016-10) (招待)
- 14) J. N. Taylor\*, F. Katsumasa and T. Komatsuzaki : “Data-Driven Approaches to Raman Microscopic Image Analysis”, 「理論と実験」研究会 2016, 広島大学東広島キャンパス (2016-10)
- 15) 田宮 裕治\* : 「回転自由度の非平衡性が分子モーターF1-ATPase の反応動力学に及ぼす影響について」、「理論と実験」研究会 2016, 広島大学東広島キャンパス (2016-10)
- 16) P. Nag\* : “Spatio-temporal heterogeneity during collective migration in a confluent monolayer of MDCK epithelial cells”, 「理論と実験」研究会 2016, 広島大学東広島キャンパス (2016-10)
- 17) T. Komatsuzaki\* : “Molecular Functions and Energy Landscapes Extracted from Single Molecule Time Series Data”, HOKUDAI-NCTU Joint Symposium on Nano, Photo and Bio Sciences in 2016, Lecture Hall, Frontier Research in Applied sciences Building, Hokkaido University (2016-10) (招待)
- 18) C. Li\* : “Single Molecule Time Series Analyses of

- F1-ATPase to Unveil the Roles of ATP Hydrolysis”, 分子研研究会「超機能分子の創成-合成、計測、数理が織りなす社会実装分子の戦略的設計と開発-」, 岡崎コンファレンスセンター (2016-06) (招待)
- 1 9) T. Komatsuzaki\* : “Phase Space geometry and Chemical Reaction Dynamics: Past, Present, and Future”, Seminar of the ICB/Nanosciences department, Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne, France (2016-06) (招待)
- 2 0) T. Komatsuzaki\* : “Single Molecule Biophysics: How can One extract the Underlying Markovian/non-Markovian Network from Noisy and Short Time Series?”, IXXI-ENS Lyon seminar, ENS de Lyon, France (2016-06) (招待)
- 2 1) T. Komatsuzaki\* : “Defining Global Transition State over an Entire Markov Network”, Seminar of the ICB/Nanosciences department, Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne, France (2016-06) (招待)
- 2 2) T. Komatsuzaki\* : “Single Molecule Biophysics: How can One Dig the Underlying Network from Noisy and Short Time Series?”, Seminar of the ICB/Nanosciences department, Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne, France (2016-06) (招待)
- 2 3) T. Komatsuzaki\* : “Defining Global Transition State over an Entire Markov Network”, Seminar at Beijing Computational Science Research Center, Beijing Computational Science Research Center, China (2016-05) (招待)
- 2 4) C. Li\* : “A Nano-Scale Key-and-Lock Mechanism in the F1-ATPase revealed by Single Molecule Time Series Analysis”, Seminar at Beijing Computational Science Research Center, Beijing Computational Science Research Center, China (2016-05) (招待)
- 2 5) 小松崎 民樹\*、寺本 央、戸田 幹人、河野 裕彦、高橋 正彦 : 「化学反応の行き先を変えるスイッチ-エネルギーの上昇で反応経路が切り替わる新奇現象」、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 27 年度成果報告会、大阪大学銀杏会館 3 階 (2016-05)
- 2 6) H. Teramoto\* : “Classification of Hamiltonians in neighborhoods of band crossings in terms of the theory of singularities”, 幾何学コロキウム, 北海道大学理学部 4 号館 (2016-05)
- 2 7) 寺本 央\* : 「反応座標スイッチング機構の背景の概説、意義と今後の展望」、高橋研オーブンセミナー、東北大学多元物質科学研究所 (2016-05) (招待)
- 2 8) 小松崎 民樹\* : 「シロイヌナズナの萼片組織に見る植物細胞集団の振動現象」、理研シンポジウム: 細胞システムの動態と論理 VIII、理化研究所 生物科学研究棟 (2016-04)
- 2 9) J. N. Taylor\* : “Error-based Extraction of States and Energy Landscapes from Experimental Single-Molecule Time-Series”, Mathematical Sciences Evening Seminar, 北海道大学遠友学舎 (2016-04)
- 3 0) 寺本 央\*、戸田 幹人、小松崎 民樹 : 「Classification of Electron Energy Level Crossings in terms of the Theory of Singularities and Analysis of Non-Adiabatic Transitions around the Crossings」、第 89 回現象数理セミナー、九州大学伊都キャンパス (2016-04)

#### 4.7 シンポジウムの開催

- 1) 永井 健治、鶩尾 隆、小松崎 民樹 : 「バイオ計測解析研究会」、23 人、かんぽの宿 小樽 (北海道小樽市) (2017 年 03 月 18 日～2017 年 03 月 20 日)
- 2) 小松崎 民樹 : 「バイオ計測解析プレ研究会」、7 人、かんぽの宿 小樽 (北海道小樽市) (2017 年 03 月 17 日)

#### 4.8 共同研究

##### a. 所内共同研究

該当なし

##### b. 民間等との共同研究

- 1) 株式会社日立製作所「数理モデルとハードウェアアルゴリズムに基づく社会応用」2016-2018 年度
- 2) 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」2015.6-2018.7

##### c. 委託研究

該当なし

##### d. 國際共同研究

- 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) J. N. Taylor, 小松崎民樹 (北海道大学)、Gilad Haran (ワインズマン研究所、イスラエル) との国際共同研究 「AKタンパク質の折りたたみ一分子観察からのエネルギー地形再構成」
- 3) 小松崎民樹 (北海道大学)、Rigoberto Hernandez (ジョンズ・ホプキンス大学) との国際共同研究 「化学反応力学における相空間構造理論」

#### 4.9 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) 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
- 2) 小松崎 民樹、新学術領域研究、多階層システム生物学におけるデータ駆動科学の展開、2016 年度

- 3) 小松崎 民樹、萌芽研究、細胞の集団と少數性のシステム生物学、2016～2018年度
- 4) 李 振風、基盤研究 B、Data-driven Multiscale Modeling of Signal Processing in Bacterial Chemotaxis、2016年度
- 5) 寺本 央、若手 B、反応座標スイッチング機構の複雑分子系への展開、2016年度
- 6) J. N. Taylor、若手 B、New Data-Driven Tools to Quantify Heterogeneous Microenvironments in Live Cell Images、2015～2016年度

**b. 大型プロジェクト・受託研究**

- 1) 小松崎 民樹、CREST、一細胞ラマン計測と情報科学の融合による細胞診断の迅速解析技術の開発、2016～2021年度、科学技術振興機構
- 2) C. B. Li (国際ヒューマン・フロンティア・サイエンス・プログラム推進機構)：“From stochastic cell behavior to reproducible shapes: the coordination behind morphogenesis”，2013～2016年度、A. Boudaoud (リヨン高等師範学校), A. Roeder (コーネル大), R. Smith (コンスタンツ大)との共同研究
- 3) 西村 吾朗、医療分野研究成果展開事業、产学共創基礎基盤研究プログラム：「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」、2011～2016年度、日本医療研究開発機構

**4.10 受賞**

該当なし

**4.11 社会教育活動**

**a. 公的機関の委員**

該当なし

**b. 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)

**c. 兼任・兼任**

- 1) 西村 吾朗：理化学研究所生命システム研究センター細胞動態計測コア、客員研究員(2014.5～)

**d. 外国人研究者の招聘**

- 1) Patrick Senet、France、(2016年11月12日～2016年11月17日)
- 2) Srihari Keshavamurthy、India、(2016年11月09日～2016年11月10日)
- 3) Nathan Hervieux、France、(2016年08月20日～2016年08月28日)
- 4) Kai-Chun Chang、Taiwan、(2016年08月15日～2016

年08月18日)

- 5) Kevin Mitchell、USA、(2016年08月14日～2016年08月19日)
- 6) Sulimon Sattari、USA、(2016年05月28日～2016年09月11日)

**e. 北大での担当授業科目(対象、講義名、担当者、期間)**

- 1) 理学部、数学総合講義I、小松崎 民樹、2016年10月01日～2017年03月31日
- 2) 生命科学院、生命情報分子科学特論、小松崎 民樹、2016年10月01日～2017年03月31日
- 3) 生命科学院、生命融合科学概論、小松崎 民樹、2016年04月01日～2016年09月30日
- 4) 医学部、生化学II、小松崎 民樹、2016年11月2日
- 5) 理学部、数理科学基礎、李 振風、2016年04月01日～2016年09月30日
- 6) 大学院共通講義ナノテクノロジーナノサイエンス概論、西村吾朗、2016年8月

**f. 北大以外での非常勤講師(対象、講義名、担当者、期間)**

- 1) 高校生(北海道立札幌西高等学校)、国民との科学・技術対話出張講義、「光で生体を見る！」西村 吾朗(2016.10.25)

**g. 新聞・テレビ等の報道**

該当なし

**h. ポスドク・客員研究員など**

- 1) Kernel Enrique Prieto Moreno (博士研究員)

**i. 修士学位及び博士学位の取得状況**

修士学位 (2)

博士学位 (0)

## 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 ダニエル・シェンツ（D2），越智翔大（M1），  
飯塚洋介（B4）

### 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ふ、いわば生命情報処理の原点を目指す。そのために、理論や実験ならびにフィールド調査を、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) 粘菌の用不用則にならった形状最適化設計法の検討

生物システムのつくる構造物は優れた機能性を有しているとしばしば指摘される。そのような機能的な構造がどのようなアルゴリズムによって設計されているかは、興味深い問題である。本研究では、真正粘菌モジホコリという真核単細胞生物がつくる輸送ネットワークの設計方法にヒントを得た構造物の設計方法を検討した。最たる特徴は、「よく使われる部分は強化され、そうでない部分は弱化される」という、いわゆる「用不用則」である。この運動規則がシステムの局部で自律的かつ分散的に作用することによって、全体としてある種の最適性が実現された。まずははじめに、流量強化則の事例として交通網と町の共発展現象を検討し、次に構造物に題材を変えてヒト大腿骨におけるリモデリング現象を検討した。その後、単純な例題として片持梁のデザインに用不用則を適用した。「どれほど使われるとどれほど強化されるか」を定める関数形（さじ加減）によって、

多様なトポロジーをもつ形状が生み出された。また、初期状態をあえて一様でなくして、偏りをつけておくことによっても、多様さが生じた。これら二つの要因で形状を調整できることは設計の立場からすると都合がよいと思われる。この最適化法の可能性について議論した。

#### (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運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ブに規定され、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知する自己受容性感覚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单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) 流れによって誘起される相分離現象（シアバンディング）の内部構造の直接観察

コロイド溶液や高分子溶液などの複雑液体は単純ずりに対して複雑なレオロジー的挙動を示すが、その中の興味深い現象の一つにずり流動下で溶液が粘性の高い状態と低い状態に自発的に分離する現象（シアバンディング）がある。この現象は非平衡での相分離現象であるのにもかかわらず、平衡で観測される液体一気体相分離現象（一次相転移）と同じ挙動を示す。その相分離の原因是溶液内のマクロ分子の状態が変化するからだと考えられてきたが、その直接的な検証はこれまでなされていなかった。本年度、我々はアクチンフィラメント溶液がシアバンディングを示

すということとアクチンフィラメントは蛍光タンパクで直接観察できるという2つの事実を用いて、シアバンディングを起こしている溶液内のマクロ分子の配向を直接観測することに成功した。P I Vと共に焦点顕微鏡を用いた。この直接観測によってシアバンディングのメカニズムの解明が大きく進むことが期待される。

#### (e) 線虫の集団運動

*C. elegans*(線虫)は生物の業界で最もよく調べられているモデル生物の一つであり、例えばゲノムすべて明らかにされている。しかしながら、その行動についてはそれほどよく調べられていない。特に集団的な振る舞いはあまり調べられていない。本年度、我々は*C. elegans*を高密度で寒天上に放置すると、自発的に集合し、ある特有のパターンを作ることを見た。またそのパターンを再現する数理モデルを作成した。自己駆動粒子システムに新しいタイプの相互作用を導入した。

### 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) 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ま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。

#### (c) 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。

#### (d) 単細胞生物の自発運動の時系列解析

ゾウリムシの自発運動の実験データから空間運動のダイナミクスを抽出し、その異常拡散性について、ランダム力学

系理論の観点から解析する。リターンマップにより単体の自発運動のダイナミクスを離散写像系でモデル化し、集団の運動を結合写像系でモデル化する。少数の単細胞生物の相互作用による空間運動の多様性のメカニズムを探る。

#### (e) クラミドモナスの運動学

クラミドモナスは古くから纖毛の力学や走光性などのメカニズム解明のためによく用いられているが、そのアプローチは分子的なものがほとんどであり、運動学的、力学的なアプローチはほとんどない。本研究では、クラミドモナスに詳しい共同研究者の協力の下に、クラミドモナスの運動学に物理学の力学的な視点を導入して、クラミドモナスの走光性を説明する数理モデルを開発し、新しい実験システムの提供を目指す。

## 4. 資料

### 4.1 学術論文(査読あり)

- 1) T. Umedachi, K. Ito, R. Kobayashi, A. Ishiguro and T. Nakagaki : “Response to various periods of mechanical stimuli in *Physarum plasmodium*”, J. Phys. D: Appl. Phys, 50 : 254002- (2017)
- 2) B. Meyer, C. Ansorge and T. Nakagaki : “The role of noise in self-organized decision making by the true slime mold *Physarum polycephalum*”, PLOS ONE, 12(3) : e0172933- (2017)
- 3) M. Iima, H. Kori, and T. Nakagaki : “Studies of the phase gradient at the boundary of the phase diffusion equation, motivated by peculiar wave patterns of rhythmic contraction in the amoeboid movement of *Physarum polycephalum*”, Journal of Physics D: Applied Physics, 50 : 154004- (2017)
- 4) S. Kuroda, S. Takagi, T. Saigusa and T. Nakagaki : “Physical ethology of unicellular organism”, Brain evolution by design -From Neural origin to cognitive architecture- (Ed. by S. Shigeno, Y. Murakami, T. Nomura) ISBN: 978-4-431-56467-6, Springer-Verlag : 3-23 (2017)
- 5) D. Akita, I. Kunita, M. Fricker, S. Kuroda, K. Sato and T. Nakagaki : “Experimental models for Murray’s law”, Journal of Physics D: Applied Physics, 50 : doi:10.1088/1361-6463/50/2/024001- (2017)
- 6) 吉原一詞、中垣俊之 : 「粘菌の用不用適応能に倣った形状最適化設計法の検討」、土木学会論文集 A2(応用力学)、72(2) : l.3-l.11 (2016)
- 7) I. Kunita, T. Yamaguchi, A. Tero, M. Akiyama, S. Kuroda and T. Nakagaki : “A ciliate memorizes the geometry of a swimming arena”, J. Roy. Soc. Interface, 13 : 20160155- (2016)
- 8) Koutaro Nakagome, Katsuhiko Sato, Seine A. Shintani, Shin’ichi Ishiwata, “Model simulation of the SPOC wave in a bundle of striated myofibrils”, Biophysics and Phys-

- icobiology Vol. 13, pp. 217–226 (2016).
- 9) K. Sato, I. Kunita, Y. Takikawa, D. Takeuchi, Y. Tanaka, T. Nakagaki and H. Orihara, "Direct observation of orientation distributions of actin filaments in a solution undergoing shear banding", *Soft Matter*, 13, 2708–2716 (2017).
  - 10) Enoki,R. and Ono,D. and Kuroda,S. and Honma,S. and Honma,K-I., "Dual origins of the intracellular circadian calcium rhythm in the suprachiasmatic nucleus", *Scientific Reports* 7, 41733 (2017)
- 4.2 学術論文（査読なし）**  
該当なし
- 4.3 総説・解説・評論等**
- 1) 中垣 俊之：「庭先にしゃがみ込んで」、近畿化学工業界 きんか、68(10) : 5–7 (2016)
  - 2) 中垣 俊之：「人工知能と自然知能」、情報処理、57(10) : 2–3 (2016)
- 4.4 著書**  
該当なし
- 4.5 特許（発明者：特許番号、特許名、出願年月日）**  
該当なし
- 4.6 講演**
- a. 招待講演（国際学会）
- 1) T. Nakagaki\* : "physical ethology of single-celled organism", The 31st International Congress of Psychology, invited symposium [Ig Nobel prize winners talk about the evolutionary basis of the human mind], Pacifico Yokohama (2016-07)
  - 2) T. Nakagaki\* : "Transport network in a micro-organism", MANA International Symposium 2017, Tsukuba International Congress Center (2017-02 ~ 2017-03)
  - 3) T. Nakagaki\* : "Transport network in living systems designed by current-reinforcement rule", Asia pacific Consortium of Mathematics for Industry, Forum Math-for-Industry 2016, Agriculture as a metaphor for creativity in all human nendeavors, Queensland University of Technology, Brisbane, Australia (2016-11)
  - 4) T. Nakagaki\* : "Pattern formation of spatial distribution of town and transportation network -a case study on Hokkaido region-", Interdisciplinary Applications of Nonlinear Science, Kagoshima University (2016-11)
  - 5) Katsuhiko Sato, "Left-right asymmetric cell intercalation drives directional collective cell movement in epithelial morphogenesis", invited talk, Current and Future Perspectives in Active Matter, Koshiba Hall, The University of Tokyo, Tokyo, Japan (2016-10).
- 6) Kuroda,S. "Dynamic gait generation in the crawling locomotion: observation and modelling", HO-KUDAI-NCTU Joint Symposium on Nano, Photo and Bio sciences in 2016, Oct 4–5, 2016 (2016-10)
- b. 招待講演（国内学会）
- 1) 中垣 俊之\* : 「生物の用不用則に基づく機能的な形づくり」、第 12 回理研「バイオものづくりシンポジウム」、理化学研究所、和光市 (2017-03)
  - 2) 中垣 俊之\* : 「粘菌の物理エソロジー」、レーザー学会「ナチュラルコンピューティングとレーザーカオス」シンポジウム、徳島大学 (2017-01)
  - 3) 中垣 俊之\* : 「単細胞のちょっと賢いはなし」、明治大学 MIMS 共同利用研究集会「比較動物学と現象数理学から考える「海の霊長類」の知の表現法」、明治大学中野キャンパス (2016-12)
  - 4) 中垣 俊之\* : 「テトラヒメナにおける空間形状への適応的遊泳」、日本微生物生態学会 日本原生生物学会共催シンポジウム「原生生物の環境センシングと運動」、横須賀市文化会館 (2016-10)
  - 5) 中垣 俊之\* : 「生物の用不用則に基づく適応的なネットワーク設計」、電子情報通信学会情報ネットワーク科学時限研究専門委員会 (NetSci) /複雑コミュニケーションサイエンス研究専門委員会 (CCS) 共催ワークショップ、余市町中央公民館 (2016-08)
  - 6) 中垣 俊之\* : 「繊毛虫の学習行動」、津田一郎教授退官記念一複雑系数理の新展開一、北海道大学 (2017-02)
  - 7) 中垣 俊之\* : 「あるアメーバ型細胞の作る細胞内輸送ネットワーク」、ナノ学会ナノ機能応用部会講演会、秋田県グランドパレス川端 (2016-12)
  - 8) 中垣 俊之\* : 「A ciliate memorizes the geometry of a swimming arena」、RIMS 研究集会「集団ダイナミクスに現れる時空間パターンの数理」、京都大学数理解析研究所 (2016-10)
  - 9) 中垣 俊之\* : 「粘菌：生きたゾルグル変換体の形作りと機能作り」、第 67 回コロイドおよび界面化学討論会、旭川市民文化会館 (2016-09)
  - 10) 中垣 俊之\* : 「粘菌、数理モデリング、共同研究」、数理で解き明かす森羅万象～小林亮とゆかいな仲間たちの研究会～、広島大学 (2016-08)
  - 11) 中垣 俊之\* : 「粘菌の形作りと機能作り～力学の視点から～」、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専門委員会講演会、札幌市定山渓ビューホテル (2016-06)
  - 12) 中垣 俊之\* : 「原生生物粘菌の構造物最適化設計法一用不用則なる適応能から一」、土木学会応用力学委員会主催第 19 回応用力学シンポジウム、北海道大学、札幌 (2016-05)
  - 13) 佐藤 勝彦, "上皮細胞の集団運動", invited

talk, 第35回エアロ・アクアバイオメカニズム学会, 北海道大学 函館キャンパス 講義棟大講義室, 北海道 函館市 (2016-9).

c. 一般講演（国際学会）

該当なし

d. 一般講演（国内学会）

- 1) 黒田茂 「環境との相互作用をもつ単純なゾウリムシ遊泳モデルにおける複雑分岐現象」日本応用数理学会 2017年 第13回研究部会連合発表会 (平成29年3月6-7日、調布市) (2017-3)
- 2) 黒田茂「這行ロコモーションにおける動的歩容生成ミニマルモデル」 日本応用数理学会 2016年度年会 (平成28年9月12-14日, 北九州市) (2016-9)

e. 研究会・シンポジウム・ワークショップなど（学会以外）

- 1) T. Nakagaki\* : "Introduction to physical ethology", University of Bremen, Institute for biophysics SONDERKOLLOQUIUM, University of Bremen, Dept of Physics, Germany (2016-09)
- 2) T. Nakagaki\* : "Biomechanics of crawling locomotion in legged and limbless organisms", Berlin Center for Studies of Complex Chemical Systems regular seminar, Berlin PTB Institute, Germany (2016-09)
- 3) 中垣 俊之\*: 「生物システムの輸送ネットワーク～粘菌モジホコリの循環系を例に～」、大阪大学生命機能研究科セミナー、大阪大学生命機能研究科 (2016-12)
- 4) 中垣 俊之\*: 「単細胞生物の賢さを探る」、第25回先端科学移動大学、釧路市生涯学習センター (2016-11)
- 5) 中垣 俊之\*: 「単細胞の賢さを探る」、北海道立釧路江南高校講演会、釧路江南高校 (2016-11)
- 6) 中垣 俊之\*: 「単細胞生物の物理エソロジーに向かって」、九州大学理学院化学科セミナー、九州大学伊都キャンパス (2016-07)
- 7) 中垣 俊之\*: 「単細胞生物の物理エソロジーにむかって」、中央大学理工学部生命科学セミナー、中央大学生命科学部 (2016-06)
- 8) 中垣 俊之\*: 「生き物に学ぶ最適化設計」、バイオミメティック市民セミナー、北海道大学 (2016-04)
- 9) 佐藤勝彦, "Flow-induced phase separation in actin solutions", ダイナミックアライアンス G3 分科会, 北海道大学 フロンティア応用科学研究棟, 北海道 札幌市 (2016-12).
- 10) Kuroda,S. "Minimal model for crawling locomotion with dynamic gait generation", Patterns and Waves 2016, Aug 1-5, 2016, Sapporo, Japan.(2016-8)

4.7 シンポジウムの開催

- 1) Y. Nishino, M. Nagayama, T. Nakagaki, S. Noro, K. Ueno,

H. Aonuma, C. Li, M. Fujioka, T. Kimura, K. Otomo, Y. Sagara, A. Suzuki, Y. Iseya and S. RIES : "The 17th RIES-HOKUDAI INTERNATIONAL SYMPOSIUM on "柔" [ju] Joint with the 1st International Symposium of Dynamic Alliance for Open Innovation Bridging Human, Environment and Materials (Five-Star Alliance)", 130人, Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (Sapporo) (2016年12月13日～2016年12月14日)

- 2) 中垣 俊之、佐藤 勝彦 : 「ソフトマター研究会」、100人、北大鈴木章ホール (札幌) (2016年10月24日～2016年10月26日)
- 3) 佐藤勝彦 : "第一回アクティブ・ソフトマター研究会", 15人, 小樽市公会堂 2号室、小樽 (2016年11月14日～2016年11月15日)

4.8 共同研究

a. 所内共同研究

該当なし

b. 民間等との共同研究

該当なし

c. 委託研究

- 1) 中垣 俊之(国際高等研究所研究プロジェクト) : 「ネットワーク科学」、代表者：郡宏（お茶の水大学）、2014～2016年度、4200千円

d. 国際共同研究

- 1) M. Fricker, T. Nakagaki, N. Jones and A. Pringle (University of Oxford (The Leverhulme Trust, Research Project Grant)) : "The third mode of life", 2015～2018年度, The Leverhulme Trust 財団の Research Project Grant による国際共同研究プロジェクト。
- 2) T. Nakagaki (大学共同利用機関法人 人間文化研究機構 総合地球環境学研究所) : "FS (機関連携型) 共同研究「ヒト・自然・地域ネットワークの再構築: ナラティブとアクションリサーチをつなぐ数理地理モデルリング」代表 村山聰 (香川大学教育学部教授)" , 2016～2018年度, 国内研究者16名、海外研究者12名からなる国際共同研究
- 3) 台湾 National Chiao Tung University の Ming-Chih Lai 教授と粘弹性方程式の数値的解法に関する共同研究を行った。

4.9 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) 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) 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.

- 3) 佐藤勝彦：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).

b. 大型プロジェクト・受託研究

該当なし

4.10 受賞

該当なし

4.11 社会教育活動

a. 公的機関の委員

- 1) 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

b. 国内外の学会の役職

該当なし

c. 兼任・兼業

- 1) 中垣俊之：大阪大学 生命機能研究科 客員教授（2011 年 04 月 01 日～2017 年 03 月 31 日）

d. 外国人研究者の招聘

- 1) Prof. Dr. Helmut Brand、バイロイト大学 物理学科、Germany、(2016 年 08 月 22 日～2016 年 08 月 24 日)  
2) Prof. James Keener、ユタ大学 数学科、USA、(2016 年 08 月 01 日～2016 年 08 月 12 日)  
3) Prof. Alexander Mikhailov、フリツ・ハーバー研究所（マックスプランク協会）、Germany、(2016 年 11 月 15 日～2016 年 11 月 18 日)

e. 北大での担当授業科目（対象、講義名、担当者、期間）

- 1) 理学部、数学総合講義 1 「数理で読み解く生物行動学」、中垣 俊之・佐藤勝彦・黒田茂、2016 年 11 月 07 日～2016 年 11 月 11 日  
2) 生命科学院、生命機能制御学特論「数理生理学」、中垣 俊之、2016 年 10 月 01 日～2017 年 03 月 31 日  
3) 全学共通、ナノテクノロジーナノサイエンス概論 1-ナノバイオシステム論-、中垣 俊之、2016 年 08 月 03 日～2016 年 08 月 05 日  
4) 全学共通、生命融合科学概論、中垣 俊之、2016 年 06 月 09 日  
5) 全学共通、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」、中垣 俊之、2016 年 05 月 13 日  
6) 全学教育（基礎科目）、物理学 I、佐藤勝彦、2016 年度 1 学期  
7) 学部、一般教育演習(フレッシュマンセミナー)（数理から生物を巡る旅～最先端研究から観えるもの～）第 6-7 回 単細胞生物の行動を数理する（開講時期：前期）（対象：全学 1～年次（分担）

- 8) 大学院、生命機能制御科学特論(数理生理学)（開講時期：III 期）（対象：生命科学院生命科学専攻 1-2 年次）（分担）

f. 北大以外での非常勤講師（対象、講義名、担当者、期間）

- 1) 中垣 俊之、公立はこだて未来大学システム情報科学、物質の科学、2017 年 02 月 01 日～2017 年 02 月 06 日  
2) 中垣 俊之、大阪大学生命機能研究科、生命科学者のための数理細胞生理学序論、2016 年 12 月 06 日～2016 年 12 月 08 日  
3) 中垣 俊之、イタリア ピサ大学／ピサ高等師範学校数学科、Introduction to Mathematical Ethology、2016 年 08 月 30 日～2016 年 09 月 08 日  
4) 中垣 俊之、九州大学大学院理学府、化学特別講義「細胞行動の生理と数理」、2016 年 04 月 01 日～2016 年 09 月 30 日

g. 新聞・テレビ等の報道

- 1) 中垣 俊之：毎日小学生新聞 2017 年 01 月 08 日「きょうのなぜ？」欄で「粘菌ってどんな生物？ 賢い自律分散方式」云々という見開き 2 ページの記事で、当研究室の粘菌研究が紹介された。」  
2) 中垣 俊之：日刊工業新聞 2016 年 11 月 23 日「深層断面」欄にて「イグノーベル賞 人を引きつけ深淵に誘う」という 1 ページの記事にて当研究室の研究フィロソフィーの一端が紹介された。」  
3) T. Nakagaki : Die Presse (Austrian newspaper) 2016 年 06 月 12 日 “Denken ohne Gehirn という 1 ページ程の記事で当研究室の粘菌研究の一端が紹介された。”  
4) 中垣 俊之：社会をたのしくする障害者メディア コトノネ 19巻 2016 年 08 月 20 日 「ぶっちゃけインタビュー」欄にて「脳のない粘菌が迷路を解く」という 6 ページの記事で当研究室の粘菌研究の一端が紹介された。」  
5) 中垣 俊之、佐藤 勝彦、黒田 茂：NHK 総合テレビ「へんてこ生物アカデミー」 2016 年 04 月 01 日 「午後 7 時半からの 70 分間の番組（全国放送）で、5-10 分程、粘菌の自然知能に関する当研究室の研究内容が放送された。」  
6) 中垣 俊之：新潮文庫「たけしの面白科学者図鑑 へんな生き物がいっぱい！」ビートたけし著 2017 年 02 月 01 日 「全 10 節中の第 9 節「粘菌：単細胞だってなめんなよ」(pp. 213-236) にて研究内容が対談形式で紹介された。」  
7) 中垣 俊之：国立大学附置研究所・センター長会議ホームページ 2016 年 11 月 30 日 「インタビュー vol. 25 「粘菌に「知性」はあるか——。単細胞生物に「人間らしさ」の起源を探る、孤高の研究」（文：

竹林篤実 撮影:島田拓身)」

- 8) 中垣 俊之 : 国立情報研究所 researchmap カバーストーリー「知のフィールドを拓く」 2016年08月01日 「<http://article.researchmap.jp/tsunagaru/2016/08/>」にて「イグ・ノーベル賞2回受賞の科学者が、粘菌研究を通して見る心と未来」(文:古田ゆかり、写真:水谷充)」
- 9) 中垣 俊之 : 指著「粘菌 偉大なる単細胞が人類を救う」が入試問題に利用された 2016年04月01日 「平成28年度愛知工業大学入学試験問題(国語)、平成28年度大分県立看護科学大学一般入試(総合問題)、平成28年度神奈川県立平塚高校入学者選抜試験(特色検査問題)。」
- 10) 黒田茂 TBS 別冊アサヒジャーナル(2016年7月3日)研究紹介

**h. ポスドク・客員研究員など**

該当なし

**i. 修士学位及び博士学位の取得状況**

修士学位 (0)

博士学位 (1) :

- 1) 博士一名 秋田大 Study on biological transport network utilizing plasmodium of *Physarum polycephalum* (モジホコリ変形体を用いた生物学的輸送ネットワークの研究)

## 実験数理研究分野

## 新概念コンピューティング研究分野

客員教授 山岡 雅直（京大院、博士(情報学)、2016年6月～）

### 1. 研究目標

実験数理研究分野と新概念コンピューティング研究分野は一体で研究を行っており、これまでのコンピュータの性能向上を担ってきた半導体の微細化が終焉を迎える、コンピュータの性能が向上しなくなる近い将来に向けて、新しい動作概念を用いたコンピューティング手法の開発をめざす。特に、自然現象の創発現象を用いた新概念コンピューティングを題材にし、これまでのコンピューティング手法では実現できなかった計算価値を生み出すことをめざす。

新概念コンピューティングの実用化に向けては、実際の社会課題を抽出するアプリケーションレイヤの技術と、抽出した課題を新概念コンピューティングハードウェアで動作させるためのソフトウェアレイヤ、さらには計算機そのものの性能を向上する計算機レイヤの技術が必要となる。これらのレイヤの技術開発には、数理分野の知識が必要となると考えられる。まず、社会課題から実際にコンピューティング技術を適用するアプリケーションを抽出し、自然現象にマッピングするためには、数理モデル化の技術が必要となり、本研究分野ではこの数理モデル化を行う技術開発を行う。

また数理モデル化により自然現象にマッピングされた結果は通常は社会一般の形をとるため複雑なネットワーク構造をとっている。一方で、現在の実装技術を考えると新しい概念のコンピューティング技術を実現するハードウェアでは、大規模化や高性能化に向けて規則的なネットワーク構造しか表現できず、そこにモデル化した結果との乖離が生まれる。そこで、社会の複雑なネットワーク構造から規則的なグラフへの課題を埋め込みことによって、複雑な社会問題を新しいコンピューティング技術でとくことが可能となる。よって、本研究分野では、このネットワーク構造を埋め込むためのグラフ埋め込み技術の開発を行う。

さらに、新しい概念のコンピューティング技術では、そのコンピューティング原理自体が数理科学の原理に基づいており、この性能を向上させるためには数理科学的な解析が必要となる。たとえば、自然現象の収束動作を用いたコンピューティング技術では、その収束動作をどのようにしてコンピュータ上に再現するかは大きくコンピュータの性能に影響する。この収束動作を数理的な李トンに基づいて解析し、それを実際のハードウェア上に再現することが必要となる。本研究分野では、こういった数理化学に基づい

たコンピューティングの動作原理の改善もめざす。

このように、本研究分野では、数理科学を用いて、実社会に役立つ情報科学の技術を確立することをめざす。

### 2. 研究成果

2016年度は本研究分野の立ち上げとして、新概念コンピューティング技術に必要な技術における実際の課題抽出とその課題を解決するために必要な連携体制の構築を行った。今年度は、新概念コンピューティングのメインターゲットとして、磁性体の振る舞いをあらわすイジングモデルを自然現象として用いたイジング計算機、または、アニーリングマシンと呼ばれるコンピュータを設定した。イジング計算機では、組合せ最適化問題と呼ばれる、パラメータの最適な組合せを求める処理を高性能に実行することが可能である。組合せ最適化問題は、今後の社会システムのさまざまな分野に使われると考えられており、社会的な波及効果が大きい。このイジング計算機に必要な各技術を抽出したのが今年度の主な成果となる。本章では、イジング計算機に必要な技術を抽出した結果について概説する。

#### 2.1 アプリケーションレイヤ

アプリケーションレイヤでは、実社会の課題から実際に新概念のコンピューティング技術で解くための課題の抽出を行った。

現在、世の中の情報科学分野でもっともホットなのが人工知能(AI)に関するアクティビティである。AIは、さまざまな分野に適用されている。AIの処理で、コアとなるのが学習技術であり、教師あり学習や教師なし学習、強化学習などさまざまな種類の学習が使われている。AIの適用分野が広がることで、学習処理するためのデータが増大し、したがって処理能力に対しても高性能化したいという要求があがってくる。

ここでイジング計算機を用いると、ブースティングと呼ばれる学習に必要な処理が加速できることがわかっている。ブースティングとは、学習に必要な高性能は分類器を単純な分類器の組合せで構成する技術である。この単純な分類器の最適な組合せを求める部分にイジング計算機を適用することが可能となる。

よって、アプリケーションレイヤの技術開発として、このブースティング技術を高性能化することを目的とする。

#### 2.2 ソフトウェアレイヤ

イジング計算機でもっとも必要とされるソフトウェア技術としては、複雑なネットワーク構造を持つイジングモデルを規則的な構造を持つイジング計算機のハードウェア上に再現する技術が必要となる。この技術は、グラフ埋め込み技術と呼ばれている。よって、効率的にグラフ埋め込みを行う技術は、ソフトウェア処理の時間を短縮してイジング計算機の性能を向上するとともに、イジング計算機での

リソースを圧縮することが可能となり、二重の意味で新しいコンピューティング技術の性能向上に貢献する。

よって、このレイヤでは、このグラフ埋め込み技術を効率化する課題に取り組む。

## 2.2 計算機レイヤ

イジング計算機での処理は、アニーリング、または、焼きなましと呼ばれる処理が肝となる。これは、ある一定のエネルギーLANDSCAPEを持ったイジングモデルのエネルギー最小となる状態を探索する動作となる。このアニーリング動作では、エネルギーLANDSCAPEを解析し、その形によって最小の状態を探索する過程を変えることによって、効率的にエネルギーの低い状態を探索することができる。

その一例としては、エネルギーLANDSCAPEの山の高さを定量的に知ることによって、山が高い場合にはそれを超えるためのエネルギーを与え、その山が低い場合には与えるエネルギーを小さくすることでアニーリング動作の収束性を高めることが可能である。

よって、本レイヤでは、このエネルギーLANDSCAPEを解析する技術の開発をめざす。

## 3. 今後の研究の展望

2016年度は、新概念コンピューティング技術としてイジング計算機にしばり、3つの技術レイヤで開発していくべき技術ターゲットを定めた。2017年度は、それぞれのターゲットニットって必要な連携先と議論することで、これらの課題を達成する。より特定的には、アプリケーションレイヤに関しては、機械学習分野の知見が必要となるため、情報科学分野との連携により、イジング計算機へのブースティング技術の適用をめざす。ソフトウェアレイヤおよび計算機レイヤに関しては、数理科学の知見が必要となるため、数理科学分野との連携によりグラフ埋め込み技術の開発とイジングモデルのエネルギーLANDSCAPEの解析技術の開発を行う。

2016年度は、これらの課題を抽出する際に、各研究分野との連携も始めており、2017年度はそのつながりを生かして各技術開発を加速する。

## 4. 資料

### 4.1 学術論文（査読あり）

該当なし

### 4.2 学術論文（査読なし）

該当なし

### 4.3 総説・解説・評論等

該当なし

### 4.4 著書

該当なし

### 4.5 特許（発明者：特許番号、特許名、出願年月日）

該当なし

### 4.6 講演

#### a-d. 招待講演

該当なし

#### e. 研究会・シンポジウム・ワークショップなど（学会以外）

- 1) 山岡雅直：「新概念コンピューティングの潮流創生に向けた取り組み」、第1回日立北大ラボの問題発掘セミナー（2016-07）
- 2) 山岡雅直：「組合せ最適化問題に適した新概念イジングコンピューティング」、統数研・数学協働プログラム、情報セキュリティにおける数学的方法とその実践（2016-12）

### 4.7 シンポジウムの開催

該当なし

### 4.8 共同研究

#### a. 所内共同研究

該当なし

#### b. 民間等との共同研究

- 1) 株式会社 日立製作所との新概念コンピューティングに関する共同研究。

#### c. 委託研究

該当なし

#### d. 国際共同研究

該当なし

### 4.9 予算獲得状況（研究代表者、分類、研究課題、期間）

該当なし

### 4.10 受賞

該当なし

### 4.11 社会教育活動

該当なし

**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、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して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、笛木両教授のグループは、高分子の3次元加工や電子線リソグラフィー法を用いた2次元金属構造体のトップダウン加工技術については世界トップレベルの技術を持っている。さらに、高分子の改質や光化学反応など光反応性物質に関する知識と経験も深く、近年では、光子-分子間の結合を4～5桁増強できるという成果を発表している。本連携研究室

では、これら2つのグループが持つ技術を相補的に活用し、両者が共同で研究を実施することで、ナノの構造体を使って光を自在に操る技術を付加した従来とは全く異なる原理に基づく超高率光電変換デバイスの実現を目指す。

このような研究を効率良く実行するには、材料物性の知識だけでも、また純粋な光学技術の知識だけでもだめで、電磁気学的理論解析技術、光学材料合成技術、マイクロ／ナノ加工技術、量子光学理論などさまざまな分野の技術を融合させることが必要である。理研田中メタマテリアル研究室が持つナノ光学に関する知識と経験に、北大電子研グリーンフォトニクス研究室、光システム物理研究室の光機能材料、光化学反応、トップダウン型加工技術等を融合・連携させ、これを新しい光エネルギー変換デバイスの高効率化といったテーマに応用して理論解析と実験を通してその有効性を実証する。

### 2. 研究成果

波長よりも薄い金属構造のみで、光を効率よく捕捉・吸収するメタマテリアルを作製した。特定の金属ナノ構造には複数の表面プラズモンの励起モードが存在する。この中で伝搬光によって直接励起できるプラズモンモードはブライトプラズモンモードと呼ばれ、一方直接励起できないモードはダークプラズモンモードと呼ばれる。ダークプラズモンモードは光で励起できないので、反対にそのプラズモンのエネルギーが光放射によって失われることはない。すなわち、ダークプラズモンモードには放射ロスがない分だけ、ブライトプラズモンモードと比較して長寿命でQ値が高くなり、そのエネルギーは金属のオーミックなロスなどによって失われることになる。この特性を利用すると、光を効率よく金属構造内部に捕捉することができる。しかし、ダークプラズモンは直接には励起できないので、本研究室では、ブライトプラズモンを保持する湾曲金ナノロッドとダークプラズモンモードを保持する直線金ナノロッドとが強く相互作用するようにナノメートルの間隔で配置したハイブリッドな金ナノ構造を作製して、湾曲金ナノロッドのブライトプラズモンを介して、直線金ナノロッドのダークプラズモンを励起する構造を作製した。実験では、実際にシリコン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10 nm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照射すると、ブライトプラズモンの励起によって波長800 nmを中心とする波長帯域に吸収ピークを持つ光吸収バンドが現れるが、同時に直線状ナノロッドにダークモードプラズモンが励起されるので、吸収バンド内の一部の波長の光が吸収されずに透過するプラズモン誘起透明化現象(PIT)を観測することができた。この結果から、湾曲金ナノロッドと直線状ナノロッドをハイブリッド化した金属構造では、通常では励起できないダークプラズモンモードを選択的に励起できることを実験的に明らかにできた。また、PIT状態

にある金属構造中に励起されているプラズモンモードを光電子顕微鏡を用いて可視化することにも成功した。

### 3. 今後の研究の展望

今回の成果では、金を用いてナノ構造を作製したため、その動作波長は赤色～近赤外域に限定されたが、今後はさらに高いプラズマ周波数をもつアルミニウムを用いて、可視から紫外域におけるダークプラズモンの励起実験を行う予定である。

## 4. 資料

### 4.1 学術論文（査読あり）

- 1) Y-H Chen, C-C Chen, A. Ishikawa, M-H Shiao, Y-S Lin, C-N Hsiao, H-P Chiang, and T. Tanaka, "Interplay of mutual electric and magnetic couplings between three-dimensional split-ring resonators," *Opt. Express* **25**, pp. 2909–2917 (2017).
- 2) A. Abumazwed, W. Kubo, C. Shen, T. Tanaka, and A. G. Kirk, "Projection method for improving signal to noise ratio of localized surface plasmon resonance biosensors," *Biomedical Optics Express* **8**, pp. 446–459 (2016).
- 3) R. Mudachathi and T. Tanaka, "Broadband plasmonic perfect light absorber in the visible spectrum for solar cell applications," *Adv. Nat. Sci.: Nanosci. Nanotech.* (in printing) (2016).
- 4) Y. Yokota, K. Ueno, H. Misawa, and T. Tanaka, "Spectroscopic Properties of Gold Curvilinear Nanorod Arrays," *Photonics* **3**, p.18 (2016).

### 4.2 学術論文（査読なし）

該当なし。

### 4.3 総説・解説・評論等

- 1) 田中, "光メタマテリアルの今," *光技術コンタクト* **54**, pp. 4–10 (2016).

### 4.4 著書

- 1) 田中拓男, "光メタマテリアル入門," 丸善出版 (株) (2016).

### 4.5 特許（発明者：特許番号、特許名、出願年月日）

- 1) Takuo Tanaka and Atsushi Ishikawa, "Metamaterial Absorbers for Infrared Detection of Molecular Self-Assembled Monolayers," PCT/JP2016/70199 (2016.7.7).
- 2) 杉田丈也, 田中拓男, "可視光メタマテリアル用の単位共振器および共振器アレイ", 特願2016-091854 (2016.4.28).

- 3) 杉田丈也, 田中拓男, "反射角度制御可透明材", 特願2016-089567 (2016.4.27).
- 4) 杉田丈也, 田中拓男, "反射角度制御可透明材", 特願2016-088577 (2016.4.26).

### 4.6 講演

#### a. 招待講演（国際学会）

- 1) Takuo Tanaka, "Metamaterial absorber for molecular detection and identification," SPIE Photonics West 2017 LASE (The Moscone Center, SanFrancisco, USA) (2017.1.31) (2017).
- 2) Takuo Tanaka, "Metamaterial absorber and its application for attomole level molecular detection," Global Nanophotonics 2016 (2016.11.30) (2016).
- 3) Takuo Tanaka, "Dark metamaterials and their application for attomole molecular detection," 8th International Workshop on Advanced Materials Science and Nanotechnology 2016 (IWAMSN2016) (2016.11.8) (2016).
- 4) Takuo Tanaka and Atsushi Ishikawa, "3D Metamaterial absorber for attomole molecular detection," SPIE Optics+Photonics 2016 (SanDiego ConventionCenter, SanDiego, USA) (2016.8.28) (2016).
- 5) Takuo Tanaka, "Metamaterial absorber and its application for attomole molecular detection," The 1st A3 Metamaterials Forum (Tohoku Univ., Sendai, Miyagi, Japan) (2016.7.5) (2016).
- 6) Takuo Tanaka and Atsushi Ishikawa, "Metamaterial infrared absorber and its application for attomole detection of organic molecules," 2016 MRS Spring Meeting & Exhibit (Phoenix, Arizona, USA), pp. 88–89 (2016.4.1) (2016).

#### b. 招待講演（国内学会）

- 1) 田中拓男, "吸収メタマテリアルを用いた自己組織化单分子膜の赤外検出," 2016 年真空・表面科学合同講演会 (名古屋国際会議場) (2016.12.1) (2016).
- 2) 田中拓男, "赤外吸収メタマテリアルとその赤外分光法への応用," 分子キラリティー研究センターシンポジウム (千葉大学) (2016.11.25) (2016).
- 3) 田中拓男, "赤外吸収メタマテリアル," 第 6 回 可視赤外線観測装置技術ワークショップ (国立天文台三鷹) (2016.11.24) (2016).
- 4) 田中拓男, "3 次元赤外メタマテリアルとその応用," 第 131 回 日本学術振興会 第 142 委員会「メタマテリアルによるフォトニクス」(member only) (東京理科大, 東京) (2016.9.9) (2016).

#### c. 一般講演（国際学会）

- 1) Renilkumar Mudachahi and Takuo Tanaka, "High contrast structural colour printing with arrays of plasmonic

- nano antennas," SPIE Photonics West 2017 Plasmonic nanostructures 1 (The Moscone Center, SanFrancisco, USA) (2017.2.1) (2017).
- 2) Thu H. H. Le and Takuo Tanaka, "Nanofluidics: an emerging platform for metamaterials-based nano-spectroscopy and biosensors," The 1st RIKEN-nCOMS Joint Symposium and RIKEN Metamaterials Symposium 2016, pp. 11–16 (2016.12.12) (2016).
  - 3) Renilkumar Mudachathi and Takuo Tanaka, "Plasmonic metamaterials and their functionalization for possible applications," The 1st RIKEN-nCOMS Joint Symposium and RIKEN Metamaterials Symposium 2016, pp. 85–90 (2016.12.12) (2016).
  - 4) Shuhei Hara, Atsushi Ishikawa, and Takuo Tanaka, "Metamaterial Infrared Absorber for Surface-Enhanced Molecular Detection and Identification," Global Nanophotonics 2016 (2016.11.30) (2016).
  - 5) Thu Hac Huong Le and Takuo Tanaka, "NANOFLUIDIC DEVICES WITH METAMATERIALS EMBEDDED FOR ULTRA-SENSITIVE INFRARED ABSORPTION SPECTROSCOPY," 8th International Workshop on Advanced Materials Science and Nanotechnology 2016 (IWAMSN2016) (2016.11.10) (2016).
  - 6) Renilkumar Mudachathi and Takuo Tanaka, "Broadband Plasmonic Perfect Light Absorber in the Visible Spectrum for Solar Cell Applications," 8th International Workshop on Advanced Materials Science and Nanotechnology 2016 (IWAMSN2016) (2016.11.9) (2016).
  - 7) Nguyen Thanh Tung and Takuo Tanaka, "Infrared metamaterial absorbers," 8th International Workshop on Advanced Materials Science and Nanotechnology 2016 (IWAMSN2016) (2016.11.8) (2016).
  - 8) Nguyen Thanh Tung and Takuo Tanaka, "Infrared metamaterial perfect absorbers: Design, fabrication, and characterizations," 3rd International Conference on Advanced Materials and Nanotechnology (ICAMN2016) (2016.10.3) (2016).
  - 9) Maria Vanessa Balois, Norihiko Hayazawa, Francesca Celine Catalan, Satoshi Kawata, Takuo Tanaka, Taka-aki Yano, and Tomohiro Hayashi, "Temperature determination at the nanoscale via tip-enhanced THz-Raman spectroscopy," Near-Field Optics, Nanophotonics, and Related Techniques (NFO-14) (Act City Hamamatsu, Shizuoka, Japan) (2016.9.6) (2016).
  - 10) Yi-Hao Chen, Che-Chin CHen, Cheng Hung Chen, Ching-Fu Chen, Takuo Tanaka, and Din Ping Tsai, "Self-assembly three dimensional perfect absorber," SPIE Optics+Photonics 2016 (SanDiego ConventionCenter, SanDiego, USA) (2016.8.31) (2016).
- 1 1) Shuhei Hara, Atsushi Ishikawa, Takuo Tanaka, Yasuhiko Hayashi, and Kenji Tsuruta, "Controlled Fano resonances via symmetry breaking in metamaterials for high-sensitive infrared spectroscopy," SPIE Optics+Photonics 2016 (SanDiego ConventionCenter, SanDiego, USA) (2016.8.30) (2016).
  - 1 2) Thu Le and Takuo Tanaka, "Design of plasmonic metamaterials for novel photothermal spectroscopy," SPIE Optics+Photonics 2016 (SanDiego ConventionCenter, SanDiego, USA) (2016.8.28) (2016).
  - 1 3) Toru Kanazawa, Tomohiro Amemiya, Vikrant Upadhyaya, Atsushi Ishikawa, Kenji Tsuruta, Takuo Tanaka, Yasuyuki Miyamoto, "Effect of the HfO<sub>2</sub> Passivation on HfS<sub>2</sub> Transistors," 16th International Conference On Nanotechnology (IEEE NANO 2016) (Sendai, Miyagi, Japan) (2016.8.25) (2016).
  - 1 4) Maria Vanessa Balois, Norihiko Hayazawa, Francesca Celine Catalan, Satoshi Kawata, Takuo Tanaka, Taka-aki Yano, and Tomohiro Hayashi, "Temperature determination at the nanoscale via tip-enhanced Raman spectroscopy," 5th Advanced Lasers and Photon Sources (ALPS' 16) (Pacifico Yokohama, Yokohama, Japan) (2016.5.19) (2016).
  - 1 5) Renilkumar Mudachathi, Takuo Tanaka, and Manoj M. Varma, "Engineering the photonic band gap for simultaneous multi-parametric sensing," The Optics & Photonics International Congress 2016 (Pacifico Yokohama, Yokohama, Japan) (2016.5.19) (2016).

#### d. 一般講演（国内学会）

- 1) Thu Hac Huong Le and Takuo Tanaka, "Nanofluidic device embedded with metamaterials for ultra-sensitive infrared absorption spectroscopy and its application," 日本化学会 第 97 春季年会 (慶應義塾大学 日吉キャンパス) (2017.3.16) (2017).
- 2) 雨宮 智宏, 山崎 理司, 金澤 徹, 平谷 拓生, 顧之, 石川 篤, 西山 伸彦, 田中 拓男, 浦上 達宣, 荒井 滋久, "メタマテリアルフィルムを用いた近赤外光学迷彩の理論解析," 第 64 回応用物理学会春季学術講演会 (パシフィコ横浜, 横浜, 神奈川) (2017.3.14) (2017).
- 3) 金澤徹, Upadhyama Vikrant, 雨宮智宏, 石川 篤, 鶴田健二, 田中拓男, 宮本恭幸, "HfO<sub>2</sub> パッシベーションによる HfS<sub>2</sub>FET の特性改善," 第 77 回応用物理学秋季学術講演会 (2016.9.15) (2016).
- 4) Maria Balois, Norihiko Hayazawa, Francesca Celine Catalan, Satoshi Kawata, Takuo Tanaka, Takaaki Yano, and Tomohiro Hayashi, "Tip-enhanced THz-Raman spectroscopy: an all-optical method for precise determination and control of local temperature at the na-

- noscale,” 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会 (2016.9.16) (2016).
- 5) 久保若奈, 田中拓男, “プラズモンによる二酸化バナジウムの可逆的相変化操作,” 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会 (2016.9.15) (2016).
- 6) 藤原太郎, 朴 貞子, 彌田智一, 鎌田香織, 奥村泰志, 田中拓男, “珪藻をテンプレートとした金ナノホールチップ,” 第 77 回応用物理学会秋季学術講演会 (2016.9.15) (2016).
- 7) Takuo Tanaka, “Activity report of Innovative Photon Manipulation Research Team,” Advisory Council of RIKEN Center for Advanced Photonics (Closed) (2016.8.1) (2016).
- e. 研究会・シンポジウム・ワークショップなど(学会以外)
- 1) 日本語の場合はこのフォントで。スタイルは任意。
  - 2) If the talk was performed in English, please use this font. The style is any.

#### 4.7 シンポジウムの開催

- 1) 田中拓男, “赤外吸収メタマテリアルとその赤外分光法への応用,” 分子キラリティー研究センターシンポジウム (千葉大学) (2016.11.25) (2016).
- 2) Renilkumar Mudachathi and Takuo Tanaka, “Ink Free Full Colour Printing with Sub-micron Metal Structures,” バイオテンプレート研究会 第 5 回講演会 (2016.11.18) (2016).
- 3) Thu Hac Huong Le, and Takuo Tanaka, “Novel Nanofluidic Device Embedded with Metamaterials for Ultra-sensitive Infrared Spectroscopy,” バイオテンプレート研究会 第 5 回講演会 (2016.11.18) (2016).
- 4) Yukie Yokota and Takuo Tanaka, “Plasmonic Coupling of Gold Curvilinear Nanorod Dimers at Different Distances,” バイオテンプレート研究会 第 5 回講演会 (2016.11.18) (2016).
- 5) Maria Vanessa Balois, Norihiko Hayazawa, and Takuo Tanaka, “Characterization of nanomaterials via micro-Raman and THz-Raman spectroscopy,” バイオテンプレート研究会 第 5 回講演会 (2016.11.18) (2016).
- 6) Taro Fujiwara, Teiko Park, Tomokazu Iyoda, Kaori Kamata, Yasushi Okumura, and Takuo Tanaka, “Diatom-Biotemplated Gold Nanohole Array Tip,” バイオテンプレート研究会 第 5 回講演会 (2016.11.18) (2016).
- 7) 田中拓男, “赤外吸収メタマテリアルとその応用,” 第 13 回 エクストリーム・フォトニクス研究会 (2016.11.15) (2016).

#### 4.8 共同研究

- a. 所内共同研究  
該当なし.
- b. 民間等との共同研究  
該当なし.
- c. 委託研究  
該当なし.
- d. 国際共同研究  
該当なし.

#### 4.9 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  
該当なし.
- b. 大型プロジェクト・受託研究  
該当なし.

#### 4.10 受賞

該当なし.

#### 4.11 社会教育活動

##### a. 公的機関の委員

- 1) 田中拓男 : 光産業技術振興協会動向調査委員会委員 (2008年4月1日～)
- 2) 田中拓男 : 日本学術振興会第151委員会企画委員 (2010年4月1日～)
- 3) 田中拓男 : 日本学術振興会第187委員会企画委員 (2012年10月1日～)

##### b. 国内外の学会の役職

- 1) 田中拓男 : 公益社団法人応用物理学会代議員第54期 (2015年2月1日～)

##### c. 兼任・兼業

該当なし.

##### d. 外国人研究者の招聘

該当なし.

##### e. 北大での担当授業科目(対象、講義名、担当者、期間)

該当なし.

##### f. 北大以外での非常勤講師(対象、講義名、担当者、期間)

該当なし.

##### g. 新聞・テレビ等の報道

該当なし.

##### h. ポスドク・客員研究員など

該当なし

##### i. 修士学位及び博士学位の取得状況

該当なし.

## 拠点アライアンス連携研究分野

客員教授 村田隆（都立大院、理博、2015.10～）  
技術補佐 木村京子

### 1. 研究目標

多細胞生物の個体の内部の細胞活動の可視化は生物学の大きな目標の一つである。個体の内部で起こる細胞の活動を分子レベルで可視化できれば、個体の活動と細胞内分子動態を関連づけて理解することができる。生物の構成分子を蛍光分子で標識する方法は、特定の分子を特異的に標識できるため広く用いられているが、蛍光分子を励起する光が生物組織に吸収されてしまうため、多くの細胞が重なる多細胞生物の内部を観察することは困難を伴う。近赤外超短パルスレーザを用いた2光子励起法は、生物組織の吸収の少ない近赤外光を励起光とするため、生物個体の内部を観察する方法として近年普及してきた。しかしながら、顕微鏡の分解能は光の波長に比例するため、この方法で細胞内の細かい構造を観察するのは限界がある。

2光子顕微鏡の高解像化のための様々な試みが行われている。その一つが共焦点スピニングディスクの導入である。マイクロレンズアレイとピンホールを備えた共焦点スピニングディスクの導入により、2光子励起法で通常の1光子励起法と同様の空間分解能が得られることが理論的および実験的に示されている。本研究分野では、2光子励起法と共に共焦点スピニングディスクの組み合わせに着目し、実際の生物研究に有用な顕微鏡を構築すること、更なる高解像化を行うことを目指す。最終的な目標は、多細胞組織の内部の細胞活動の可視化である。この目標を達成するため、電子研・光細胞生理研究分野およびニコンイメージングセンターの協力を得て光学系の構築と撮像素子の最適化を行い、光学系に適した蛍光標識の導入と評価を組み合わせることにより、生物材料側と光学系側の改善を連携させて研究を進めている。

顕微鏡の評価に適した生物材料として、植物の培養細胞を用いている。この材料はマウス等のモデル動物と異なり迅速に新しい蛍光標識を導入できること、生物材料による光の吸収を評価するのに充分な厚みがあること、常に安定して材料供給が行えることの条件を満たしている。村田客員教授の所属する基礎生物学研究所の研究室において蛍光標識を遺伝的に導入するためのDNA構築を行い、電子研において培養細胞の育成と顕微鏡評価を行っている。植物は我々動物と異なる道筋で進化してきたため、植物細胞の利用は顕微鏡の評価に有用なだけでなく、生物学的に重要な知見をもたらすことも期待される。

## 2. 研究成果

### 2.1 顕微鏡の解像度向上

共焦点顕微鏡の分解能はピンホール径に依存する。ピンホールを大きくすると分解能は落ちるが蛍光の取得効率は上がるため、生物試料の観察においては蛍光の明るさと求める分解能に依存してピンホール径を変えられることが望ましい。しかしながら、共焦点スピニングディスクを用いたシステムでは、ピンホール径を観察中に変更することは装置の分解を伴うため不可能だった。我々は顕微鏡の内蔵拡大系の挿入によりピンホールを小さくするのと同様の効果が得られることを発見した(図1)。内蔵拡大系の挿入は観察中でも容易なため、ピンホール径変更と同様の操作が試料の状況に応じて可能となった。さらに、内蔵拡大系の精度向上と顕微鏡鏡体全体の透過率向上のため、新しい鏡体を導入した。

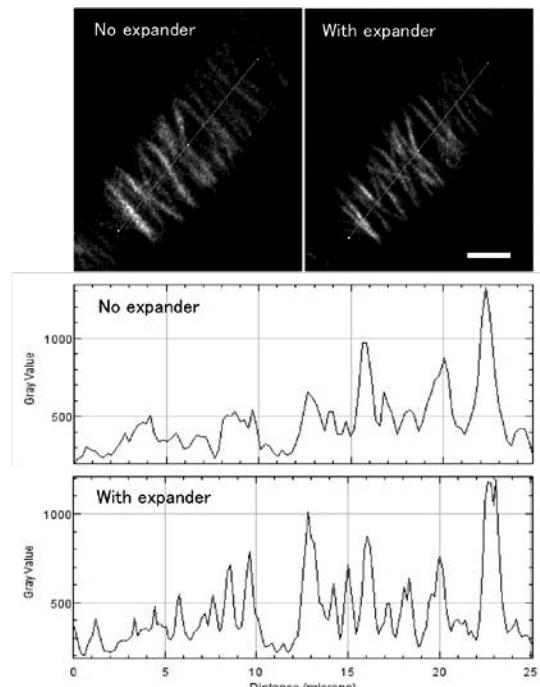


図1 mCitrineで標識したタバコ細胞微小管。同一細胞で拡大系なし(No expander)、あり(With expander)を比較した。スケールバーは5 μm。下のグラフは図中の細線上の輝度を示す。

### 2.2 プローブ評価

蛍光タンパク質の改良は年々進み、量子収率や光安定性が改善された新しい蛍光タンパク質が次々と報告されている。2016年に報告された高輝度の黄緑色蛍光タンパク質mClover3、高光安定性の赤色蛍光タンパク質mRuby3が使用可能か評価した。mClover3-CenH3融合タンパク質、mRuby3-CenH3融合タンパク質を発現する培養細胞株を作り1040 nm励起条件で観察を行ったところ、mClover3は安定した観察が可能だったが、mRuby3は予想に反して早く退色した。1光子励起と2光子励起の違いが原因と考えられる。

赤色系蛍光タンパク質の多くは光退色が早いため使用できないものが多かったが、その理論的背景は不明だった。我々は、様々な蛍光タンパク質を評価した結果、2光子励起スペクトルと励起レーザーの波長の関係から退色を予測できる可能性を見いだしており、検討を進めている。

### 2.3 細胞ダイナミクス解析への応用

タバコ培養細胞を用いて、細胞分裂の染色体の動き、分裂後の微小管の再構築過程を解析した。市販の顕微鏡では、円筒形の細胞を円筒の側面方向から撮影する場合、細胞の裏側円周を撮影することは光の散乱や吸収のため難しく、生きている細胞の全周を微小管が識別できる画質で連続撮影することはできなかった。新たに構築した2光子励起スピニングディスク共焦点顕微鏡を用いることにより細胞表層に沿って並ぶ微小管列の構築過程を細胞全周撮影することに成功した(図2)。

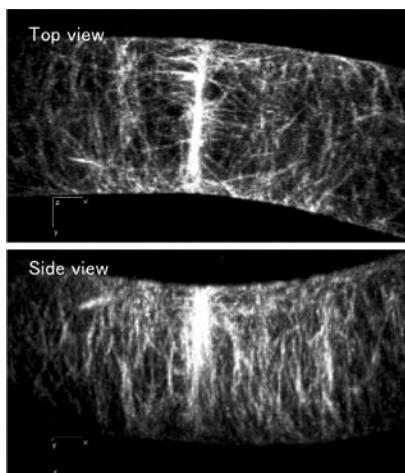


図2 微小管構築中(細胞分裂直後)のタバコ培養細胞の上面像(Top view)と側面像(Side view)。

### 3. 今後の研究の展望

本年度に行った改良により、我々が構築した2光子励起スピニングディスク共焦点顕微鏡は一般ユーザーの研究利用に充分な性能を持った。更なる解像度の向上手段として、1分子検出に基づく超解像観察、画像処理によるデコンボリューションなどが考えられる。1分子検出については、現状ではS/Nが不足しており、より明るい蛍光タンパク質が必要と考えられる。一方、デコンボリューション演算に必要な画質の画像は現在の顕微鏡仕様で撮影可能と思われる所以、今後試みていきたい。

顕微鏡の多プローブ対応については、mCherryとYFPによる2標識観察をすでに達成している。今後は励起光の波長切り替えにより3標識観察を目指す計画である。

### 4. 資料

#### 4.1 学術論文(査読あり)

- 1) Li, C., Sako, Y., Imai, A., Nishiyama, T., Thompson, K., Kubo, M., Hiwatashi, Y., Kabeya, Y., Karlson, D., Wu, S.-H., Ishikawa, M., Murata, T., Benfey, P. N., Sato, Y., Tamada, Y., Hasebe, M. (2017) A Lin28 homologue reprograms differentiated cells to stem cells in the moss *Physcomitrella patens*. *Nat. Comm.* 8, 14242.

### 4.6 講演

#### d. 一般講演(国内学会)

- 1) 村田隆, 大友康平, 日比輝正, 中山博史, 根本知巳, 長谷部光泰(2016) 紡錐体形成機構のマルチカラー3D タイムラプス解析 日本植物学会第80回大会、沖縄コンベンションセンター、宜野湾、2016年9月16日

#### e. 研究会・シンポジウム・ワークショップなど(学会以外)

- 1) 村田隆 2光子スピニングディスク共焦点顕微鏡によるマルチカラー4Dイメージング 第5回レーザー学会「レーザーバイオ医療」技術専門委員会、北海道大学、2016年7月8日
- 2) 村田隆 タバコ培養細胞における紡錐体形成 第11回細胞運動研究会、山口大学、2016年9月3日
- 3) 村田隆 植物の紡錐体形成過程のイメージングによる解析 植物細胞骨格研究会-PlantCytoskeleton2016-、東京大学、2016年11月18日
- 4) 村田隆 多点走査型2光子共焦点顕微鏡によるマルチプローブイメージング ファイブスター・アソシエーション・ダイナミックアライアンスG3 北海道大学ニコンイメージングセンター 2016年度公開シンポジウム - 多様な生命機能の可視化解析と操作技術の展開 -、北海道大学、2016年12月1日
- 5) Takashi Murata, Kohei Otomo, Kentaro Kobayashi, Hiroshi Nakayama, Mitsuyasu Hasebe, Tomomi Nemoto. Development of multipoint scanning 2-photon confocal microscopy and its application in Alliance CORE laboratory. The 17th RIES-Hokudai international symposium on ju. Dec.13, 2016. Sapporo.
- 6) Takashi Murata, Kohei Otomo, Hiroshi Nakayama, Tomomi Nemoto, Mitsuyasu Hasebe. 3-Dimensional analyses of microtubule organization in cortical arrays of plant cells. The 1st ABI-S Symposium. Towards the future of advanced bioimaging for life sciences. Feb. 19, 2017. Okazaki, Japan

### 4.11 社会教育活動

#### b. 国内外の学会の役職

- 1) 村田隆:日本細胞生物学会編集委員(2017.1.1~2018.12.31)

## 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～）  
助教 大友康平（東北大院、博士(薬学)、2012.06～）  
博士研究員 堤元佐（北大院、博士(生命科学)、2016.09～2017.03）  
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、蛍光バイオイメージング技術の難しさがある。

ニコンイメージングセンターは、最新の光学顕微鏡を利用できる施設として、平成17年にニコンインステック社をはじめとした多数の協賛企業の協力による寄附研究部門として設立された。平成24年度の研究所の改組に伴い、現在は研究支援部の一部門として活動している。

特に最近は、生命科学の分野においてイメージングの果たす重要性は高くなる一方で、イメージング機器の多様化・先端化と最新鋭のイメージング機器の高額化、操作技術の高度化、あるいは画像解析技術の高度化により、個々の大学等の研究機関で優れた機器の整備・運用はますます困難となってきた。当センターは、平成28年4月より開始された文部科学省・科学研究費助成事業の「先端バイオイメージング支援プラットフォーム（ABiS）」にも参画して、先端イメージング機器を運用する国内機関と更なる連携を取り、生命科学を幅広く包括した先端イメージングの支援を開始した。

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り、特に近年では委託分析も開始したため、遠方の大学や企業の研究者の委託観察にも対応している。専任スタッフが機器操作やソフトウェアの利用方法などを説明することにより、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、一方で利用者の視点に基づく機器等の詳細な要望を受けることができる。

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、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。

1. 最先端の顕微鏡とイメージング関連機器を設置し、基礎研究の環境を提供する。
2. 顕微鏡に馴染みのない研究者からハイエンドユーザーまで、さまざまなレベルに合わせて顕微観察法のトレーニングコースを行う。
3. 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。
4. 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。
5. イメージングに関する最先端の研究、関連技術などを、積極的に紹介する。

### 2. 活動成果

#### (a) 利用実績（平成28年4月～平成29年3月）

平成28年度の延べ利用人数・利用時間は、524人・2357時間に達した。平成24年度～27年度の利用（平成24: 261名・1297時間、平成25: 404名・2356時間、平成26: 534名・1820時間、平成27: 651名・2933時間）と比較すると、27年度は超解像顕微鏡のデモ機を1年間設置し、非常に多くの利用があつたため、昨年度と比較するとやや少なくなっているものの、年を追うごとに概ね着実に利用が増加していることがうかがえる（図1）。また平成28年度に当センターを利用した研究者の所属の内訳を、図2に示す。当研究所内の利用が多くなるのは当然ではあるが、一方で学内の多くの学部等からの利用、学外研究者からの利用も多い。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数件あつたためである。

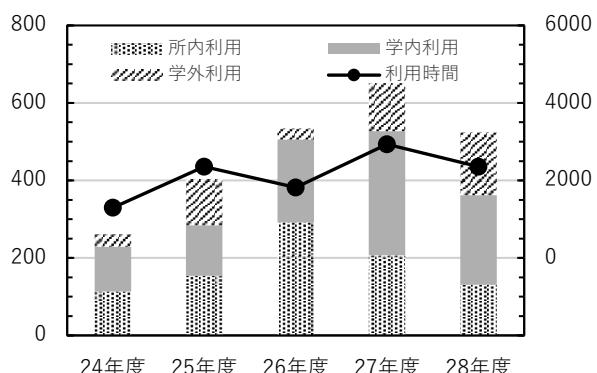


図1. 平成24年度以降のイメージングセンター利用状況

このように当センターは、主に所内の研究者が使うだけの施設には留まらず、幅広い範囲の研究者の利用があるが、近年に学会や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9報の論文が学術誌に掲載された。

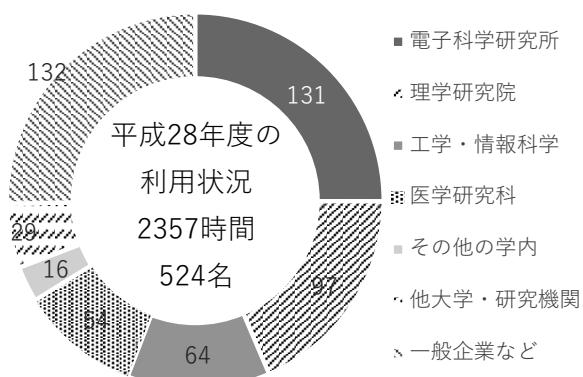


図2. 平成28年度の利用者所属の内訳

#### (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28年度は、合計22件の利用問い合わせがあり、27名の研究者に操作指導を行った。

平成26年度に、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、28年度は他大学ならびに他の研究法人を含めて、5件の研究テーマに基づく利用があった。

現在の運営・活動体制となってからは、ニコンインスティック社などとの共催で「蛍光イメージングミニシンポジウム」を始めとする各種学術講演会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の講演を通じて、研究者と関連メーカーの双方がフィードバックをし合える環境を定期的に提供し続けている。

### 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

#### 4.2 総説・解説・評論等

- 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）pp. 235–241. 2016. （光細胞生理と共に著）

- 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., pp: 189–214, 2016. (光細胞生理と共に著)
- 大友康平、根本知己 “in vivo ナノ構造の可視化のための二光子励起レーザー走査型顕微鏡の超解像化,” レーザー研究, 44, 658–662, 2016. (光細胞生理と共に著)

#### 4.5 講演

##### a. 招待講演

###### i) 学会

- K. Otomo, T. Nemoto, “Novel multiphoton microscopy by manipulating parameters of laser light”, the 23rd Pacific Science Congress. Academia Sinica, Taipei, Taiwan (2016-06). (光細胞生理と共に著)

###### ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- K. Otomo, T. Nemoto, “Improving “in vivo” two-photon microscopy imaging in living mouse brain”, Academia Sinica Imaging Center Workshop, Academia Sinica, Taipei, Taiwan (2016-06). (光細胞生理と共に著)
- 大友康平「2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」東北大学 学際フロンティア研究所 主催 第一回フロンティアバイオイメージング研究会、東北大学 学際科学フロンティア研究所 1階 大セミナー室、仙台 (2016-07). (光細胞生理と共に著)
- 大友康平、根本知己「二光子顕微鏡法の高解像化、高速化」第四回アライアンス若手研究交流会、北海道大学、札幌 (2016-11) (光細胞生理と共に著)

###### iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 大友康平、川上良介、根本知己：“新しい技術の導入による二光子励起蛍光顕微鏡の高度化” 第五回 関西光科学研究所セミナー、木津 (2016-06). (光細胞生理と共に著)
- 大友康平「新規光学技術によるレーザー走査型顕微鏡の高度化と生物学応用」生化学若手の会、生物物理若手の会 合同企画 蛍光イメージングセミナー～基礎から応用まで～、北海道大学 理学部 5号館 2階 5-205、札幌 (2016-07). (光細胞生理と共に著)
- M. Tsutsumi, K. Kobayashi, K. Otomo and T. Nemoto “NIC@Hokkaido University and our recent works” Nikon Imaging Center Director’s Meeting, Boston, USA (2016-10.) (光細胞生理と共に著)

##### b. 一般講演

###### i) 学会

- 1) 山中祐実, 日比輝正, 大友康平, 小澤祐市, 根本知己: “トップハット型レーザービームを用いた多点走査型2光子顕微鏡の開発”, 日本顕微鏡学会第72回学術講演会、仙台 (2016-04). (光細胞生理と共に著)
- 2) 村田隆、大友康平、日比輝正、中山博史、根本知己、長谷部光泰「紡錘体形成機構のマルチカラー3D タイムラプス解析」日本植物学会第80回大会、沖縄コンベンションセンター、那覇 (2016-09) (光細胞生理と共に著)
- 3) M. Izumi, K. Otomo, S. Nakamura, J. Hidema, T. Nemoto, H. Ishida “Live cell imaging analysis of piecemeal autophagy for chloroplast degradation in *Arabidopsis* leaves”, 第58回日本植物生理学会年会. 鹿児島 (2017-03) (光細胞生理と共に著)

#### ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) T. Murata, K. Otomo, K. Kobayashi, H. Nakayama, M. Hasebe, T. Nemoto “Development multipoint scanning 2-photon confocal microscopy and its application in Alliance CORE laboratory”, the 16th RIES International Symposium, Sapporo (2016-12).
- 3) Y. Yamanaka, T. Hibi, Y. Kozawa, K. Otomo, A. Tanabe, N. Hashimoto, T. Nemoto “Pancreatic cells imaging utilizing multi-point scanning two-photon microscopy”, the 16th RIES International Symposium, Sapporo (2016-12). (光細胞生理と共に著)
- 4) T. Murata, K. Otomo, H. Nakayama, T. Nemoto, M. Hasebe “3-Dimensional analyses of microtubule organization in cortical arrays of plant cells”, The 1st ABiS Symposium Towards the Future of Advanced Bioimaging for Life Sciences, Okazaki (2017-02).
- 5) Y. Yamanaka, K. Otomo, T. Hibi, Y. Kozawa, A. Tanabe, T. Hori, H. Nakayama, N. Hashimoto, S. Sato and T. Nemoto “Development of multi-point scanning two-photon microscopy and application for *in vivo* imaging of pancreas”, The 1st ABiS Symposium Towards the Future of Advanced Bioimaging for Life Sciences, Okazaki (2017-02). (光細胞生理と共に著)
- 6) M. Tsutsumi, K. Kobayashi, K. Otomo, Y. Matsuo and T. Nemoto “Imaging Support in Nikon Imaging Center at Hokkaido University”, The 1st ABiS Symposium Towards the Future of Advanced Bioimaging for Life Sciences, Okazaki (2017-02).
- 7) 大友康平, 山中祐実, 後藤亜衣, 渡邊裕貴, 根本知己「多点走査型二光子顕微鏡の技術開発と生物学応用」第2回北大・部局横断シンポジウム、札幌 (2017-03). (光細胞生理と共に著)
- 8) 堤元佐, 小林健太郎, 大友康平, 松尾保孝, 根本知己「ニコンイメージングセンターにおけるイメージング支援」第2回北大・部局横断シンポジウム、札幌 (2017-03).

#### 4.8 シンポジウムの開催

##### b. 一般のシンポジウム

- 1) 第五回蛍光イメージングミニシンポジウム、参加者30名、北海道大学(2016-9).
- 2) 平成28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71名、北海道大学(2016-12).

## 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（筑波大院、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～）  
教授 雲林院 宏（東北大院、理博、2015.7～）  
教授 BIJU Vasudevan Pillai (Kerala 大学、PhD(Chemistry)、2016.2～)  
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4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として、共同研究を行った。具体的には、かねてより電子科学研究所のいくつかの研究室と共同研究を行っ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）を中心に、協力関係の強化および包括的なネットワーク作りを重点とした研究活動の推進に尽力した。来年度の日本学術振興会先端拠点形成事業の獲得を視野に、引き続き戦略的かつ組織的な体制作りを目指していく。

#### (b) トップランナーとの協働体制の構築

「創基150周年に向けた近未来戦略」に掲げるビジョン「世界の課題解決に貢献する北海道大学」の達成に向け、世界の課題解決に資するグローバル人材の育成を目的として北海道大学が実施する、Hokkaido サマー・インスティテュート 2017 (HSI2017) 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、世界の第一線で活躍する優れた教育研究業績や活動歴を有する外国人研究者に授業を実施していただく機会を得た。実際の実施期間は来年度だが、これまでトップランナーとの協働教育機会拡大支援事

業等で実績を築いてきたリヨン高等師範学校の Arezki Boudaoud 教授、アカデミアシニカ（台湾）の Bi-Chang Chen 研究員の招へいに係る予算を獲得できた。また、優れた教育研究業績を有する外国人研究者又は教員について、一定期間、本学に招へいし、本学における教育研究の発展及び国際化の推進並びに国際競争力の強化を図る目的で北海道大学が実施する外国人招へい教員制度を利用し研究者2名を招へいた。国際連携推進室の小松崎室長が担当教員としてプリートム・ナグ特任助教（アメリカ国際大学バングラデシュ（バングラデシュ））を、国際連携推進室の委員である雲林院教授が担当教員としてホフケンス・ヨハン特任教授（ルーヴァン大学理学部（ベルギー王国））を招へいし、ナグ特任助教が11か月間、ヨハン特任教授が5か月間それぞれ滞在した。



資料 1. Hokkaido サマー・インスティテュート 2017 (HSI2017) 案内。

#### (c) 第17回 RIES-HOKUDAI 国際シンポジウム「柔」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。2016年度は国際連携推進室の委員である上野准教授が委員を担当し、本学の支援の下、the 1st International Symposium of Dynamic Alliance for Open Innovation Bridging Human, Environment and Materials (Five-Star Alliance)との共催により12月13・14日、シ

ヤトレーゼ・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、国内では大阪大学、東北大学、千葉大学、東邦大学、岡崎統合バイオサイエンスセンターなどから、海外では Nanyang Technological University (シンガポール)、Seoul National University (韓国)、Academia Sinica (台湾)、National Tsing-Hua University (台湾)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。また、ポスター発表を行った本学の大学院生、若手研究者の中からポスター賞の授与などを行い、新たな国際連携推進を促した。

### 3. 今後の研究の展望

電子科学研究所における国際的なネットワークを構築するうえで、海外から見て、電子科学研究所がどのような国際連携活動をしているのかを情報発信していくことが肝要であろう。そのうえで、学術協定をすでに締結しているいくつかの海外研究機関とのより強固な協力関係の構築、実質が伴った新たな学術協定の締結、先端拠点形成事業などの新たな研究資金の調達などを通して、電子科学研究所のもつ国内ネットワークと海外の研究組織ネットワークが連携するプログラムなどをサポートしていく。国際共同研究を展開している教授4-5名がコアとなり、戦略的かつ多角的に国際連携推進室の充実をさらに図っていきたい。

### 4. 資料

2016年度は外国人招へい教員制度などを利活用して、関係の深い海外の研究者を電子研に招へいした。

1. Preetom Nag助教、Bangladesh、アメリカ国際大学バングラデシュ(2016年5月01日～2017年3月31日)
2. Sulimon Sattari氏、USA、University of California, Merced(2016年5月28日～9月11日)
3. Johan Hofkens教授、Belgium、ルーベン大学理学部(2016年6月01日～10月31日)
4. Kevin Mitchell 准教授、USA、University of California, Merced(2016年8月14日～19日)
5. Srihari Keshavamushy教授、India、Indian Institute of Technology Kanpur(2016年11月7日～11日)
6. Patrick Senet教授、France、CNRS-Universite de Bourgogne(2016年11月13日～17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 細井浩貴 (2012.9～)

### 1. 研究目標

ナノテク連携推進室はグリーンイノベーションやライフイノベーションといった社会的課題を解決するための学術研究、技術・産業創出には欠かせない超微細加工やナノ領域の構造解析・分析といったナノテクノロジーの利用を支援する組織となっている。通常、ナノテクノロジーを利用・活用するためにはクリーンルームのような特殊環境や最新鋭の大型設備を有し、かつ運用するための知識と経験が無くてはならないが、単独の研究室や研究者だけで実現することは困難になりつつある。そこで、ナノテクノロジー連携推進室では電子研技術部と協力しながら電子研オープンファシリティー機器（共用化装置）に関する運営、学内外からのナノテクノロジー研究の相談窓口としての機能を担っている。加えて、平成24年7月よりスタートした文部科学省が行う全国的なナノテクノロジー装置共用化プログラムである「ナノテクノロジープラットフォーム」事業についても業務実施者として参画している。北海道大学は微細構造解析プラットフォーム、微細加工プラットフォーム事業の実施機関として名を連ねることとなったが、ナノテクノロジープラットフォーム事業は全学事業として創成研究機構・ナノテクノロジー連携研究推進室が担っており、電子科学研究所ナノテク連携推進室はその一部として工学研究院（ナノ・マイクロマテリアル分析研究室、光電子分光分析研究室、超高压電子顕微鏡室）、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28年4月～平成28年3月）

平成28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86件、うち、40%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95件、こちらも40%以上を学外への支援として実施した。昨年度より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250件以上、論文掲載が100件以上であった。

#### (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い、第三回微細加工プラットフォーム最優秀貢献賞を受賞している。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) 先端研究基盤共用促進事業（新たな共用システム導入支援プログラム） -マテリアル分析・構造解析共用ユニット (Material Analysis and Structure Analysis Open Unit : MASAOU) -

先端研究基盤共用促進事業は競争的研究費の改革と連携し、第5期科学技術基本計画期間において共用体制の集中的改革を進めていくため、共用システム（体制）を導入、構築することを目的として実施される事業である。北海道大学においては、本事業において4拠点が採択され、新たな知見やノウハウにより現在のオープンファシリティシステムを発展させ、より良い研究環境の整備を目指していくこととなっている。電子科学研究所は工学研究院（全学共用施設のナノ・マイクロマテリアル分析研究室、高エネルギー

超強力X線回折室、光電子分光分析研究室）と連携し、マテリアル分析・構造解析共用ユニット（Material Analysis and Structure Analysis Open Unit : MASAOU）に採択された。X線関連分析装置を中心とした機器群を運営し、専任コーディネータによる受付相談から、試料作製、観察・測定、さらに評価・解析までの一貫したサポート体制の下で、組成分析・構造解析、組織・表面解析、電子状態解析など、マテリアル研究を広範かつ総合的に支援を実施した。企業との連携セミナーやナノテクノロジープラットフォーム事業との連携を行うことで学外研究者へも大きく門戸を開いた支援活動に当たっている。

#### （d）設備運用状況

平成28年度からはマテリアル分析・構造解析共用ユニットにおいて、X線光電子分光装置、赤外分光光度計、紫外可視近赤外分光光度計、X線回折装置（薄膜対応、粉末対応）などを支援装置とした。導入経費において赤外分光光度計や紫外可視近赤外分光光度計は新しいPCへの更新を実施し、ユーザーが使いやすい環境を整備した。また、X線回折装置については2次元検出器の保守を実施している。また、ナノテクノロジープラットフォーム事業では利用頻度の高い原子層堆積装置の予備チャンバーやドライポンプの導入、スパッタ装置へのカソード追加を実施することでユーザーの利便性を大幅に向上させた。さらに収差補正電子顕微鏡については電子エネルギー損失分光装置（EELS）の制御PCを更新することにより、最新のGatan製ソフトウェアによる計測・分析が実現できる環境を整備した。このソフトウェア環境を利用する事で企業との連携セミナーを実施した他に、環境セルを用いた分析支援を実施するに至っている。

### 3. 今後の研究の展望

ナノテク連携室は文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム事業、新共用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28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、平井悠司 「バイオミメティック表面形状が生み出す機能～微細加工による撥水・親水材料創出～」、微細加工プラットフォーム バイオ&計測実践セミナーⅢ、産総研（2016-10）
- 2) 松尾保孝 「ナノテクノロジープラットフォーム 支援力向上への取り組み」、北大NMR共用プラットフォームシンポジウム、北大（2017-1）
- 3) 松尾保孝、平井悠司 「微細加工で創出するバイオミメティック表面形状～超撥水・超親水の機能実現～」、HiNTセミナー（2016年度第5回）兼第20回産総研北海道センター講演会、R&Bパーク札幌大通サテライト（HiNT）（2017-2）

#### 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～2021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25年	平成26年	年度 部門等		平成27年	平成28年
光科学 研究部門	欧 文	21 (21)	9(7)	光科学 研究部門	欧 文	18(18)	16(16)
	邦 文	0	5		邦 文	0	0
物質科学 研究部門	欧 文	11 (10)	23(18)	物質科学 研究部門	欧 文	14(14)	31(31)
	邦 文	0	3		邦 文	1(1)	0
生命科学 研究部門	欧 文	5 (3)	17(17)	生命科学 研究分野	欧 文	10(10)	5(5)
	邦 文	2	1		邦 文	1(1)	0
数理科学 研究部門	欧 文	16 (16)	14(14)*	附属社会創造 数学研究センター	欧 文	28(25)	27(27)
	邦 文	1 (1)	1		邦 文	2(1)	1
グリーンナノテクノ ロジー研究センター	欧 文	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)	25(24)
	邦 文	1	0		邦 文	0	0
計	欧 文	78 (75)	85(78)	計	欧 文	108(105)	104(103)
	邦 文	4 (1)	10(2)		邦 文	4(3)	1

( )内の数はレフェリー付き。

\*出版済のもの。客員研究分野は除外した。

### 2. 総覧、解説、評論等及び著書数

年度 部門等		平成25年	平成26年	年度 部門等		平成 27 年	平成 28 年
光科学 研究部門	総説等	4	1	光科学 研究部門	総説等	8(2)	6
	著 書	0	2		著 書	0	0
物質科学 研究部門	総説等	1	2	物質科学 研究部門	総説等	2(1)	3
	著 書	2 (1)	2(1)		著 書	0	0
生命科学 研究部門	総説等	4 (1)	4(2)	生命科学 研究部門	総説等	9(3)	4
	著 書	0	1		著 書	0	3(2)
数理科学 研究部門	総説等	1 (1)	2(1)	数理科学 研究部門	総説等	11	5(1)
	著 書	2 (1)	1		著 書	0	1(1)
グリーンナノテクノロジー 研究センター	総説等	3	2	グリーンナノテクノロジー 研究センター	総説等	1	1
	著 書	2	0		著 書	2	0
計	総説等	13 (2)	11(3)	計	総説等	31(6)	19(1)
	著 書	5 (2)	6(1)		著 書	2	4(3)

( )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25年	平成26年	年度 部門等		平成27年	平成28年
光科学 研究部門	国際学会	35(14)	13(7)	光科学 研究分門	国際学会	26(8)	23(11)
	国内学会	39(6)	23(3)		国内学会	39(21)	29(1)
物質科学 研究部門	国際学会	13(6)	12(4)	物質科学 研究部門	国際学会	36(10)	21(10)
	国内学会	36(3)	25(3)		国内学会	34(6)	29(6)
生命科学 研究部門	国際学会	8(3)	13(7)	生命科学 研究部門	国際学会	23(3)	26(10)
	国内学会	19(9)	45(13)		国内学会	19(3)	38(17)
数理科学 研究部門	国際学会	22(8)	28(9)	附属社会 創造数学 研究センター	国際学会	26(20)	39(9)
	国内学会	41(6)	35(6)		国内学会	35(9)	28(11)
グリーンナノテクノロジー 研究センター	国際学会	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)	35(24)
	国内学会	45(4)	55(5)		国内学会	42(0)	35(4)
計	国際学会	114(38)	110(41)	計	国際学会	175(55)	144(64)
	国内学会	173(28)	181(30)		国内学会	169(39)	159(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 25 年度	平成 26 年度	平成 27 年度	平成 28 年度
業務費	137,446	128,162	155,177	120,230
科学研究費補助金	269,062(61)	192,260(61)	262,325(59)	273,367(74)
その他の補助金	18,748(7)	4,396(3)	5,450(2)	7,500(2)
寄附金	22,993(16)	36,958(18)	29,877(14)	23,957(19)
受託事業等経費	329,456(31)	306,421(27)	266,215(20)	252,471(25)
(受託研究費)	291,264(18)	280,205(14)	249,835(13)	236,716(15)
(共同研究費)	38,192(13)	26,216(13)	16,380(7)	15,755(10)
合計	777,705(115)	668,197(109)	719,044(95)	677,525(120)

( ) 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 25 年度	平成 26 年度	部門等	平成 27 年度	平成 28 年度
光科学 研究部門	科学研究費補助金	47,457(9)	14,600(3)	光科学 研究分野	44,700(5)	93,000(8)
	その他の補助金	0	0		0	0
	寄 附 金 I	3,815(7)	3,252(5)		9,997(5)	4,084(2)
	寄 附 金 II	0	1,000(1)		0	0
	受託事業等経費	135,581(4)	81,090(4)		74,989(4)	49,389(1)
	(受託研究費)	135,581(4)	81,090(4)		64,950(3)	49,389(1)
	(共同研究費)	0	0		10,039(1)	0
	小 計	186,853(20)	99,942(13)		129,686(14)	146,473(11)
物質科学 研究部門	科学研究費補助金	69,700(9)	30,300(7)	物質科学 研究分野	55,100(6)	51,500(14)
	その他の補助金	8,000(2)	0		0	0
	寄 附 金 I	0	4,570(4)		3,200(2)	12,000(7)
	寄 附 金 II	1,750(4)	0		600(1)	1,200(1)
	受託事業等経費	1,000(1)	5,000(3)		0	13,491(3)
	(受託研究費)	0	0		0	11,843(1)
	(共同研究費)	1,000(1)	5,000(3)		0	1,648(2)
	小 計	80,450(16)	39,870(14)		58,900(9)	78,191(25)
生命科学 研究部門	科学研究費補助金	30,200(7)	47,300(10)	生命科学 研究分野	52,400(6)	44,800(8)
	その他の補助金	400(1)	296(1)		0	0
	寄 附 金 I	3,000(1)	9,300(1)		1,200(2)	3,873(5)
	寄 附 金 II	1,122(1)	0		0	0
	受託事業等経費	36,152(8)	56,445(5)		22,162(4)	20,961(3)
	(受託研究費)	34,895(5)	55,180(2)		21,382(2)	20,181(1)
	(共同研究費)	1,257(3)	1,265(3)		780(2)	780(2)
	小 計	70,874(18)	113,341(17)		75,762(12)	69,634(16)
数理科学 研究部門	科学研究費補助金	56,442(19)	35,660(25)	附属社会 創造数学 研究 センター	54,585(23)	46,270(24)
	その他の補助金	0	2,000(1)		0	0
	寄 附 金 I	11,106(1)	12,191(2)		13,380(1)	0
	寄 附 金 II	0	0		0	0
	受託事業等経費	61,210(4)	70,463(4)		125,495(7)	103,172(11)
	(受託研究費)	58,035(2)	67,763(3)		122,885(5)	94,383(7)
	(共同研究費)	3,175(2)	2,700(1)		2,610(2)	8,789(4)
	小 計	128,758(24)	120,314(32)		193,460(31)	149,442(35)

部門等	研究費	平成 25 年度	平成 26 年度	部門等	平成 27 年度	平成 28 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	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)	29,750(17)
	その他の補助金	972(1)	0		0	0
	寄附金 I	1,200(1)	2,000(1)		500(2)	0
	寄附金 II	1,000(1)	3,050(3)		1,000(1)	2,800(4)
	受託事業等経費	75,278(12)	75,192(10)		27,268(4)	53,923(5)
	(受託研究費)	43,018(6)	57,941(4)		24,317(2)	49,385(3)
	(共同研究費)	32,260(6)	17,251(6)		2,951(2)	4,538(2)
	小計	136,513(28)	136,542(25)		78,718(24)	86,473(26)
その他	科学研究費補助金	7,200(4)	8,100(5)	その他	5,590(2)	8,047(3)
	その他の補助金	9,376(3)	2,100(1)		5,450(2)	7,500(2)
	寄附金 I	0	1,595(1)		0	0
	寄附金 II	0	0		0	0
	受託事業等経費	20,235(2)	18,231(1)		16,301(1)	11,535(2)
	(受託研究費)	19,735(1)	18,231(1)		16,301(1)	11,535(2)
	(共同研究費)	500(1)	0		0	0
	小計	36,811(9)	30,026(8)		27,341(5)	27,082(7)

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

年 部門等	平成 27 年度	平成 28 年度
光科学研究部門	2	7
物質科学研究部門	3	9
生命科学研究部門	0	1
附属社会創造数学研究センター	5	8
附属グリーンナノテクノロジー 研究センター	12	13
計	22	38

## 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28年度

##### 情報科学研究科

- 大村 竜矢: 金ナノディスク周期構造における四重極子プラズモンの格子共鳴
- 小野里尚記: 「色と導電性の可逆変化を利用する新しいメモリ素子の室温作製」
- 鈴木雄喜: 「コバルト酸ストロンチウム薄膜を活性層とする磁性・導電性記憶素子の改善」
- 山口 和志: マウス生体脳深部における単一神経線維破断法の確立
- 澤柳 博輝: 拡散電位を制御したプラズモン太陽電池の構築と光電変換特性(Fabrication and photoelectric conversion properties of plasmonic solar cells with controlled diffusion potential)
- 増永 梨合花: プラズモン誘起水分解における半導体/金界面の影響の評価(Interface effects between semiconductor and gold on plasmon-induced water splitting)
- 楊 曉龍: Plasmonic photoelectric conversion using gold nanoparticles loaded TiO<sub>2</sub> photoelectrode with 3D photonic lattices(金ナノ粒子を担持した3次元フォトニック格子酸化チタン光電極のプラズモン誘起光電変換特性)

##### 生命科学院

- 鈴木 重明: DNA分子が誘起する金ナノロッドのキラルプラズモン特性

##### 総合化学院

- 木下 拓也: リン酸塩ガラス中のプロトン伝導機構

##### 環境科学院

- 西出 大輔: 欠損型ポリオキソメタレートを配位子とする多核金属錯体の構造と磁性

##### 理学院 数学専攻

- 片山 渉: 多相環境における界面運動の近似解法
- 篠毛 崇章: Traveling pulse solutions in a point mass model of diffusing particles

### II-4-2) 博士学位

#### 平成28年度

##### 情報科学研究科

- 烹雪 亮: ランダムレーザーの発振モード制御に関する研究
- Krishna Khakurel: Apodized illumination coherent difraction microscopy for imaging non-isolated objects
- 一本嶋佐理: 新規2光子励起顕微鏡法を用いた表皮の恒常性維持に関する研究
- 田辺綾乃: 透過型液晶デバイスを用いたレーザー走査型蛍光顕微鏡における波面収差補正に関する研究
- Ahmed Esmail Kamal Shalan: Optimization of nanoarchitectures for high-performance planar perovskite solar cells(高性能ペロブスカイト太陽電池に向けたナノ構造の最適化)

##### 生命科学院

- Amrutha A S: Structure-Property Relationship Studies of the Photoresponsive Inhibitors of Kinesin-Microtubule Motor System
- 魏 金建: Dynamic Process of Gold Nanoparticle Assembly using Fluorinated Surface Ligands in Solutions(溶液中におけるフッ素化リガンド分子修飾金ナノ粒子の動的な自己集合プロセスに関する研究)
- 南原 克行: Studies of Cellular Uptake of Surface-engineered Triangular-shaped Gold Nanoparticles(表面修飾三角形金ナノプレートの細胞取り込みに関する研究)

- 秋田大: Study on biological transport network utilizing plasmodium of *Physarum polycephalum* (モジホコリ変形体を用いた生物学的輸送ネットワークの研究)

#### 総合化学院

- 三澤 貴浩: Studies on Electrical Conduction Characteristics of Metal/Molecule/Metal Nanoscale Junction Device (金属/分子/金属ナノスケール接合素子の電気伝導特性に関する研究)

#### 環境科学院

- 大島 雄: 動的構造を有する超分子結晶のデザインと物性 Design and physical properties of supramolecular crystals with dynamic structure

II-4-3) 大学院生在籍数

研究科名 年	修 士			博 士		
	平成26年	平成27年	平成28年	平成26年	平成27年	平成28年
理 学 院	13	11	8	6	4	5
工 学 研 究 科	0	0	0	0	0	0
環 境 科 学 院	5	2	3	3	3	1
情 報 科 学 研 究 科	23	21	21	10	12	12
生 命 科 学 院	4	3	0	10	8	9
地 球 環 境 科 学 生 命 科	0	0	0	0	0	0
総 合 化 学 院	8	6	5	4	5	7
計	53	43	37	33	32	34



### **III. 研究支援体制**

### III-1. 技術部

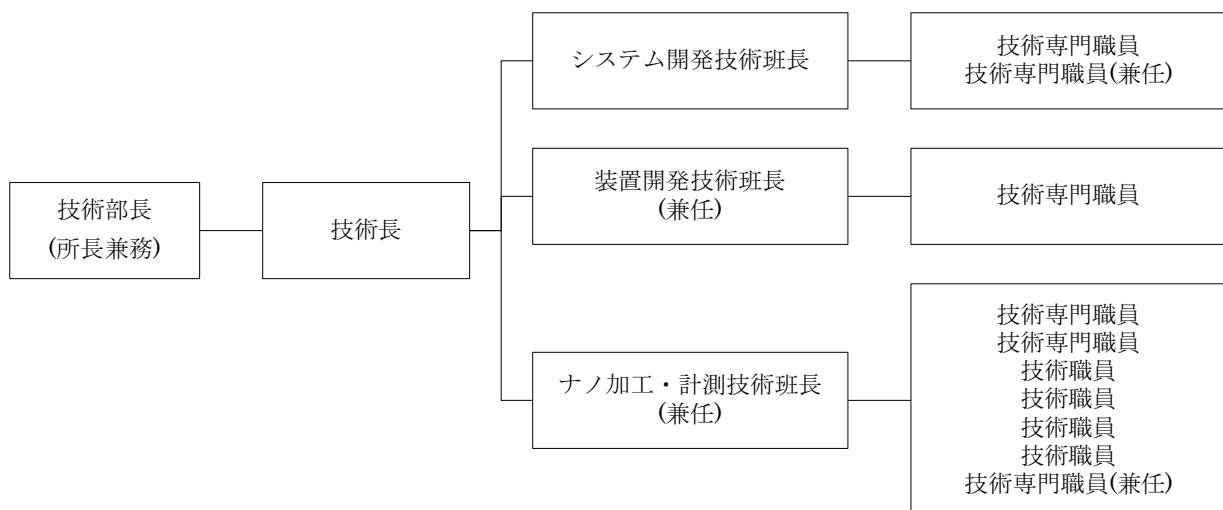
技術部はシステム開発技術班、ナノ加工・計測技術班、装置開発技術班からなる。

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などを行っている。

ナノ加工・計測技術班はクリーンルーム及び共用設備の維持管理、利用指導、ナノ加工計測を行っており、それらに関する技術相談も受けている。また、ニコンイメージングセンターへの技術支援も行っている。

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。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。また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25年*	平成26年*	平成27年*	平成28年*
和 書	5,666	5,670	5,777	5,311
洋 書	17,516	17,519	17,558	17,222
計	23,182	23,189	23,335	22,533

#### 2. 所蔵雑誌種類数

年 度	平成25年*	平成26年*	平成27年*	平成28年*
和雑誌	107	107	106	107
洋雑誌	387	387	388	387
計	494	494	494	494

#### 3. 購入雑誌受入種類数

年 度	平成25年*	平成26年*	平成27年*	平成28年*
和雑誌	48	48	43	41
洋雑誌	8	6	6	4
計	56	54	49	45

#### 4. 学外文献複写数

年 度	平成25年*	平成26年*	平成27年*	平成28年*
依頼	34	87	20	12
受付	88	137	127	96

\* 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、21,000タイトルを超える電子ジャーナルの利用が可能で、フルテキストを閲覧・購読できる。

また、情報検索端末からはインターネットを通じ、北海道大学で導入している学術文献データベースを利用することができる。利用できるデータベースの種類は豊富で、“Web of Science” “SciFinder” といった著名な文献書誌・抄録データベースや、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“PubMed” “CiNii Articles” 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～平成29年3月31日	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27年4月	太田 信廣
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 <sup>2</sup>	延面積 m <sup>2</sup>	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28年度）

（3月末日現在）

職名	人數
教 授	15(7)
准 教 授	12
講 師	0
助 教	23
特任教授	1
特任准教授	1
特任講師	1
特任助教	5
教員小計	58(7)
技術部	10
合 計	68(7)

（ ）内の数字は客員で外数

#### IV-4. 教員の異動状況（平成28年度）

○転入状況

所属部門	職名	氏名	採用年月日	前職
光科学研究	助教	鈴木 明大	H28. 4. 1	大阪大学博士後期課程
生命科学研究	助教	大友 康平	H28. 4. 1	電子科学研究所特任助教
グリーンナノテクノロジー研究センター	助教	石 旭	H28. 4. 1	電子科学研究所博士研究員
グリーンナノテクノロジー研究センター	助教	孫 泉	H28. 4. 1	創成研究機構特任助教
物質科学研究	助教	柚山 健一	H28. 10. 1	台湾国立交通大学約聘助理研究員

○転出状況

所属部門	職名	氏名	退職年月日	転出先
社会創造数学研究センター	助教	寺本 央	H28. 6. 15	日立製作所客員主任研究員
社会創造数学研究センター	准教授	李 振風	H28. 9. 30	ストックホルム大学准教授
光科学研究	特任准教授	辻見 裕史	H29. 3. 31	なし
物質科学研究	助教	片瀬 貴義	H29. 3. 31	東京工業大学准教授
生命科学研究	准教授	新倉 謙一	H29. 3. 31	日本工業大学教授
グリーンナノテクノロジー研究センター	准教授	熊野 英和	H29. 3. 31	新潟大学教授
グリーンナノテクノロジー研究センター	助教	久保 和也	H29. 3. 31	兵庫県立大学准教授
社会創造数学研究センター	助教	GINDER ELLIOTT ABRAHAM	H29. 3. 31	明治大学准教授

(29. 3. 31)

## IV-5. 構成員 (平成28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

#### ナノ材料光計測研究分野

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
助教	鈴木 明大
特任助教	于 健

### 物質科学研究部門

#### 分子フォトニクス研究分野

教授	BIJU VASUDEVAN PILLAI
助教	袖山 健一

#### 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
助教	大友 康平
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

### 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	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	浅羽 雅晴 (科学技術振興機構)

#### 客員教授

永山 國昭  
(総合研究大学院大学)

#### 客員教授

村田 隆  
(自然科学研究機構)

#### 新概念コンピューティング研究分野

#### 客員教授

山岡 雅直  
(株)日立製作所

#### 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	孫凱
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

#### 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
助教	西村 吾朗
特任助教	TAYLOR JAMES NICHOLAS
特任助教	PREETOM NAG

#### 知能数理研究分野

教授	中垣 俊之
准教授	佐藤 勝彦
助教	黒田 茂

#### 実験数理研究分野

助教	MARKO JUSUP
----	-------------

#### 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

助教(兼) 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	平 田 康 史
装置開発技術班	
班 長	平 田 康 史
技術職員	武 井 将 志
システム開発技術班	
班 長	伊 豐 谷 陽 一
技術専門職員	今 村 逸 子
技術専門職員（兼）	小 林 健 太 郎
ナノ加工・計測技術班	
班 長（兼）	平 田 康 史
技術専門職員	笠 睦 晴 也
技術専門職員（兼）	今 村 逸 子
技術専門職員	小 林 健 太 郎
技術職員	遠 藤 礼 晓
技術職員	大 西 広 広
技術職員	中 野 和 佳 子
技術職員	平 井 直 美

契約職員・短時間勤務職員

博士研究員	楊 影
"	SANCHELA ANUP KUMAR
"	堤 元 佐
"	越 智 里 香
"	須志田 隆 道
"	PRIETO MORENO KERNEL ENRIQUE
学術研究員	PIN CHRISTOPHE LOUIS MARIE
"	山 口 由 美 子
"	熊 本 淳 一
非常勤研究員	PIN CHRISTOPHE LOUIS MARIE
"	KANTHYAPPA RAJANNA SUNILKUMAR
研究支援推進員	坪 井 惠
"	伊 藤 春 奈
"	森 朋 惠 和 子
事務補佐員	山 田 美 洋 和 子
"	本 久 洋 和 惠
"	遠 藤 元 和 惠
"	本 元 舞
"	須々田 明 季
技術補佐員	奥 原 亜 季 敏
"	因 帆 英 敏
"	出 羽 真 樹 子
事務補助員	山 崎 涼 子
"	藤 井 敦 子
"	田 山 紘 子
"	大 森 素 子
"	春 日 さ と 子
"	佐 藤 恵 美
"	浦 田 絵 美
"	富 澤 ゆ かり
"	五十嵐 知 実
技術補助員	澤 柳 博 輝
"	増 永 梨 合 花
"	金 子 美 奈
"	石 田 麻 衣 子
"	木 村 京 子

(平成28年3月末日現在)