

研究活動

北海道大学電子科学研究所

令和2年度

— 点検評価報告書 —

Research Activities

Research Institute for Electronic Science
Hokkaido University

2020-2021

はじめに

2020年、令和2年は新型コロナウイルスが全人類に多大な影響をもたらした年として歴史に刻まれることになるでしょう。社会のあらゆる活動が制限される中、大学における研究活動も大幅に制限されました。日本では令和2年1月に最初の新型コロナウイルス感染者が確認された後、北海道内でもその感染者数が増加したことをうけ、全国に先立ち緊急事態宣言（令和2年2月28日～3月19日）が発出されました。感染拡大が全国に広がったことで全都道府県に向けて緊急事態宣言（令和2年4月16日～25日）が発出されたことをうけ、北海道大学は“新型コロナウイルス感染拡大防止のための北海道大学の行動指針（BCP）”を制定し、行動指針は4月17日からはレベル2、4月20日からはレベル3、6月1日からはレベル2、7月10日からはレベル1、11月18日からはレベル2と感染拡大の状況に応じて定められてきました。行動指針レベル3では研究活動が最も制限され、多くの教職員に対し在宅勤務等が命ぜられ、研究室内への立ち入りは著しく制限されたため、研究はストップせざるを得ませんでした。レベル2以下になったことで、感染拡大に最大配慮することで研究活動が許可され、研究を再開することができました。年度初めからレベル3になったため、授業の開講は5月の大型連休明けにずれ込み、かつ原則オンラインで実施されました。また、感染拡大の防止のために国内の移動の自粛が求められたことにより、国内外の学会は軒並み中止されましたが、年度の後半からはオンラインで開催されるようになり、研究成果の発表の場はかろうじて維持されました。それに合わせて、研究打合せは対面ではできなくなったものの、オンラインで対応することでコミュニケーションをはかってきました。世界各国ではほぼ同時に新型コロナウイルスの感染が拡大したため、どの国も入国を制限したことで、日本からの海外渡航はできなくなりました。このことは留学生への影響が大きく、令和2年10月に入学したにもかかわらず、日本に入国できない留学生が出てきました。その大半はこれを執筆している現在も自国での待機を余儀なくされ、入国が許可されるのを待っています。現時点で日本は新型コロナウイルスの感染者数の第5波の真っただ中にいます。一日も早い新型コロナウイルスの終息を祈るばかりです。

このような状況下でも令和2年度も電子科学研究所はITを駆使しながら多くの人々とコミュニケーションを図り研究を進めてきました。電子科学研究所は超短波研究所の創立（昭和16年、1943年）から令和2年で喜寿（77歳）を迎えました。光と数理を横糸、物質と生命を縦糸とする基盤研究分野、ならびに附属グリーンナノテクノロジー研究センター、附属社会創造数学研究センター、ニコニイメージングセンターとの融合により複合領域ナノサイエンス研究を創出することで、新しい電子科学の開拓をめざすとともに、時代の要請を的確に掴み、機動的な組織運営を図りながら、質と量の両方が高い研究活動を推進してきました。新型コロナウイルスによる災禍が重なり、多くの国民が先行きの不透明感や不安定性を実感している現在、電子科学研究所は複合領域ナノサイエンスを通じてグロー

バルな社会課題や“北大近未来戦略 150”を含む北海道大学のミッションに対して関与、貢献することが重要だと考えています。

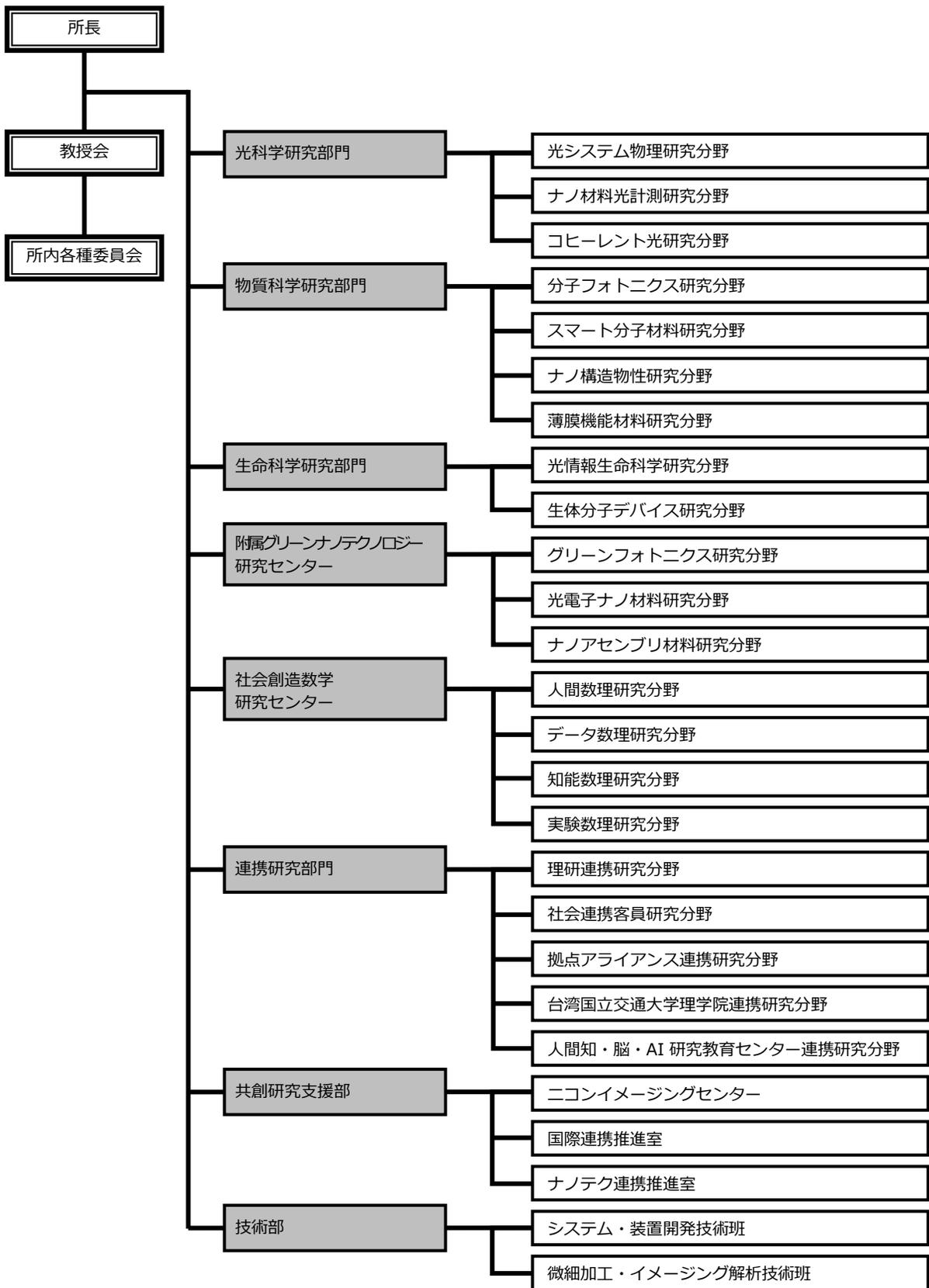
学際領域研究を推進するために、国内外の研究組織と共同研究体制を整備してきました。平成 19 年度からは、電子科学研究所と東北大学多元物質科学研究所、東京工業大学科学技術創成研究院化学生命科学研究所（旧資源化学研究所）、大阪大学産業科学研究所、九州大学先導物質化学研究所がネットワークを組むことで附置研究所間連携を開始し、平成 28 年度からは概算要求事業「人・環境と物質をつなぐイノベーション創出ダイナミック・アライアンス」事業として幅広い分野の研究資源を動的かつ濃密に集約した共同研究を展開することで、明確なターゲットを指向した人と環境と物質とを繋ぐイノベーション実現を目指しています。海外に目を転じますと、電子科学研究所はこれまでに海外教育研究機関と 15 の連携協定を結んでいます。平成 30 年度には台湾国立交通大学理学院と共同研究教育センターを設置し、アライアンスを組む 5 研究所と台湾 2 機関 2 部局（国立交通大学理学院（現・国立陽明交通大学理学院）と中央研究院応用科学研究センター）からなる 5 + 2 アライアンスとして国際連携を推し進めています。また、平成 31 年度から、学術振興会研究拠点形成事業(Core-to-Core Program)「1 分子・1 粒子レベルの細胞間コミュニケーション解明のための先端研究拠点の確立」を開始し、連携拠点であるベルギーのルーバン大学とオーストラリアのメルボルン大学と持続的な協力関係を確立して、世界的水準の研究交流拠点を構築しながら、次世代の中核を担う若手研究者の育成をめざしています。

北海道大学が掲げるミッションを果たすために、平成 30 年度に開始した概算要求事業(機能強化促進分)「最先端フォトニクス材料・デバイスを支えるナノテク整備事業」(電子科学研究所、工学研究院、理学研究院、地球環境科学研究院、情報科学研究院)を運営することで学内共同研究を加速しています。また平成 31 年度に開始した概算要求事業「フォトエキサイトニクス研究拠点-光励起状態制御の予測と高度利用」(理学研究院、遺伝子病制御研究所)に参画することで遺伝子病制御研究所との密な連携を通じて生命医科学分野における北海道大学の研究力向上に貢献しています。

アライアンス 5 研究所を取りまく研究者コミュニティー全体の研究力を高めることを目的として、アライアンス 5 研究所が組織した物質・デバイス領域共同研究拠点が、平成 22 年度に文部科学省に認定されました。数多くの国内外の研究者からの共同研究を受け入れることで研究者の要請に応えています。また、平成 24 年度から開始されたナノテクノロジープラットフォーム事業にグリーンナノテクノロジー研究センターが中心となり参画することで、日本のナノテクノロジー研究の発展に貢献しています。

この「研究活動」は自己点検報告書であると共に、外部の第三者による評価を受けることを目的として、令和 2 年度の各研究部門・分野ならびに附属施設の研究成果を中心に研究活動をまとめたものです。令和 2 年度末に行われました第 6 回外部評価の内容とあわせて、関係各位には、忌憚のないご批判・ご批評を賜りますようお願い申し上げます。

北海道大学電子科学研究所長 居城邦治



目次

巻頭言
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	12

物質科学研究部門

分子フォトンクス研究分野	18
スマート分子材料研究分野	24
ナノ構造物性研究分野	30
薄膜機能材料研究分野	37

生命科学研究部門

光細胞生理研究分野	48
生体分子デバイス研究分野	50

附属グリーンナノテクノロジー研究センター

グリーンフォトンクス研究分野	58
光電子ナノ材料研究分野	64
ナノアセンブリ材料研究分野	69

附属社会創造数学研究センター

人間数理研究分野	78
データ数理研究分野	90
知能数理研究分野	101

共創研究支援部

ニコンイメージングセンター	108
国際連携推進室	111
ナノテク連携推進室	112

II. 各種データ

II-1. 研究成果公表に関する各種の統計表	116
II-2. 予算	117
II-3. 外国人研究者の受入状況	119
II-4. 修士学位及び博士学位の取得状況	120

III. 研究支援体制

III-1. 技術部	124
III-2. 学術情報	125

IV. 資料

IV-1. 沿革	128
IV-2. 建物	131
IV-3. 現員	131
IV-4. 教員の異動状況	132
IV-5. 構成員	133

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、プラズモニック分光、強結合光反応制御、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 田口敦清 (阪大院、工博、2019.4~)
助教 Christophe Pin (University of Bourgogne
Franche-Comte、Ph.D、2016.10~)
その他のメンバー
修士課程 大塚涼平、砂場侑司、西川洋平、土井敬介、
馬場亮佑

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、微小球や金属ナノ構造、ランダム構造、テーパファイバ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、単一分子・単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

(b) 計算機逆設計手法を活用した新奇ナノフォトニック構造の創生

本研究では、数理的な最適化理論に基づく計算機自動設計法（トポロジー最適化）を、ナノフォトニック構造の設計に応用し、新奇ナノフォトニック構造の探索や新たな光機能をもたらすナノフォトニックデバイスの実現を目的としている。

ふたつの物体をナノスケールの間隔にまで近づけると、相対する物体表面上の近接場が互いに結合し、巨大な電場がナノサイズの空間に局在する。この光学現象はギャップモードと呼ばれており、光を、その波長よりも小さいナノ空間に閉じ込める効果的なアンテナ構造として広く知られている。

本研究では、円偏光の左右回転方向に対して異なる結合効率を示す、いわゆる、円二色性の効果を示すギャップアンテナ構造を導出した。

最適化計算で得られた3次元構造の一例を図2(B)に示す。構造の最上面にギャップアンテナが形成され、左右のアームが円偏光の回転方向に応じて渦巻き状に伸びている。さらに、構造内部をz軸に沿ってみると、アームがスロープ状に変化しながら短くなっている様子がわかる。この構造で得られるギャップ部の電場強度を、汎用電磁場解析手法である有限差分時間領域(FDTD)法で計算すると、右回り円偏光に対しては $I_R=153.9$ 、左回り円偏光に対しては $I_L=21.8$ となった。これからギャップ部の電場強度に対する異方性因子として、 $g=2(I_R-I_L)/(I_R+I_L)=1.5$ という大きな値が得られた。これより、トポロジー最適化によって得られたギャップ構造は極めて大きな円二色性を示すことが期待される。

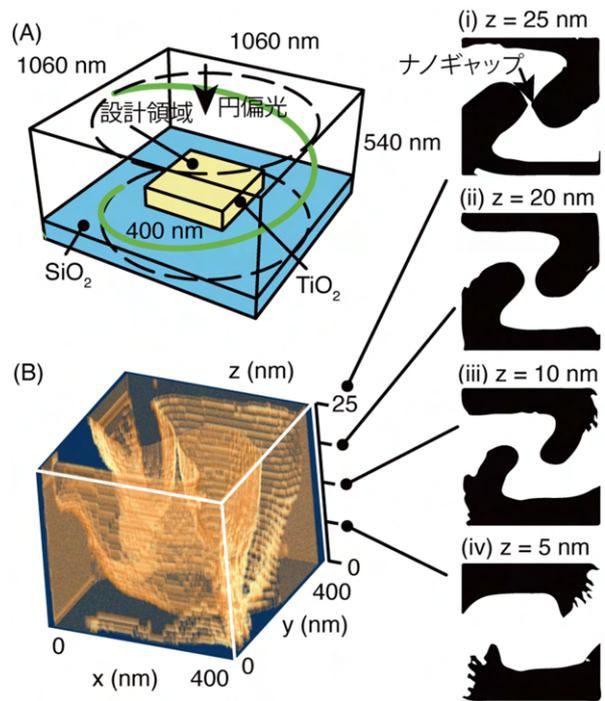


図1 三次元トポロジー最適化により得られたナノギャップアンテナ構造。入射場は円偏光。(A)最適化計算空間の模式図。SiO₂基板上に黄色で示す設計領域を配置。設計領域の寸法は400 X 400 X 100 nm³とし、材料はTiO₂と空気。入射光は波長532 nmの右回り円偏光でNA 0.25で最適化領域上面に集光される。(B)最適化計算の収束後に得られたナノアンテナ構造の3次元レンダリング、および、代表的なレイヤーのTiO₂分布の図示。黒色部がTiO₂が存在する部分で、白色部は空気。見やすくするためにz軸方向に引き延ばして表示。

ギャップアンテナ構造はこれまでも多くの研究があるが、すべて鏡像対称性を有するものに限定されており、直線偏光を入射するのが常識であった。今回得られたギャップアンテナのように、らせん状の構造を持つギャップアンテナは我々の知る限り過去に報告例がない。本研究で見つかったキラリティを有するギャップアンテナという新しい構造により、円偏光を用いた光エレクトロニクスデバイスや情報通信、円偏光発光素子の新たな展開に繋がること期待される。

(a) Design of a plasmonic nanoantenna with trapped nano-particle's position-dependent scattering properties

When an incident laser beam interacts with a gold nanostructure, it may excite localized surface plasmon resonances, which are collective oscillations of free electrons located close to the gold surface. Then, both the optical evanescent field and the light scattered to the far-field depend on the spatial and spectral properties of the excited localized surface plasmon resonances and their interference. As a consequence, gold nanostructures act as optical nanoantennas capable of confining the incident light on a nanoscale and radiating the scattered light into specific directions. In this work, we designed a plasmonic nanostructure that combines both phenomena to optically trap nanoparticles and monitor their position with respect to the center

of the trap. This novel approach may provide an efficient way to monitor the motion of non-fluorescent nanoparticles inside plasmonic traps.

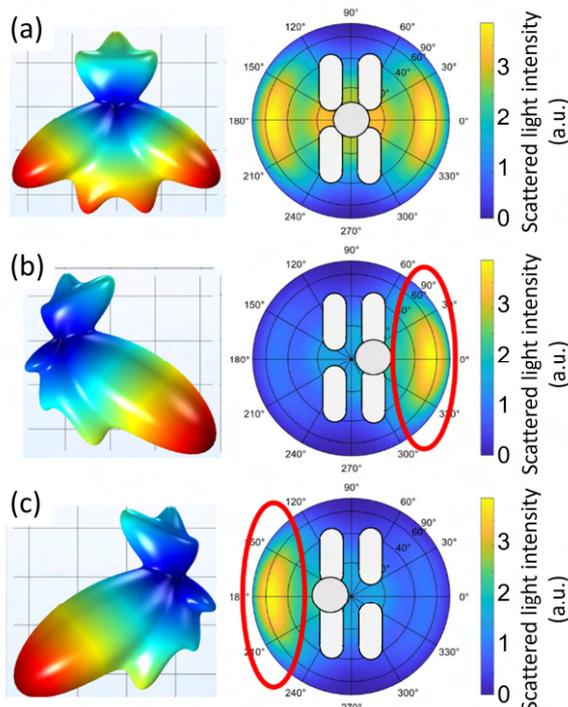


図1 Simulated scattered light radiation pattern of the plasmonic nanoantenna when a 100nm-large gold nanoparticle is trapped (a) at the center, (b) above the right side and (c) above the left side of the nanostructure.

3. 今後の研究の展望

本研究分野は、2019年度からスタッフが大幅に入れ替わり、教授と新スタッフを中心とした新しい体制のもと、活動を行っている。研究テーマとしても、これまで精力的に進めてきたナノマニピュレーション、プラズモニクス、ナノフォトニクスをベースとした研究課題に加えて、紫外フォトニクス、分子光操作、ナノフルイディスク等への展開も視野に入れながら新しいプロジェクトの企画を進めている。光物理分野における新しい領域を切り拓く挑戦的な研究に今後とも取り組んでいく。

4. 資料

4.1 学術論文 (査読あり)

- 1) H. Fujiwara, K. Yamauchi, T. Wada, H. Ishihara and K. Sasaki: "Optical selection and sorting of nanoparticles according to quantum mechanical properties", *Sci. Adv.*, 7(3): eabd9511- (2021)
- 2) Y. Cao, X. Shi, T. Oshikiri, S. Zu, Y. Sunaba, K. Sasaki and H. Misawa: "Near-field engineering for boosting the photoelectrochemical activity to a modal strong coupling structure", *Chem. Commun.*, 57(4): 524-527 (2021) 【電子研内共著】
- 3) A. Taguchi, A. Nakayama, R. Oketani, S. Kawata and K.

Fujita: "Multiphoton-Excited Deep-Ultraviolet Photolithography for 3D Nanofabrication", *ACS Appl. Nano Mater.*, 3(11): 11434-11441 (2020)

- 4) T. Wada, H. Fujiwara, K. Sasaki and H. Ishihara: "Proposed method for highly selective resonant optical manipulation using counter-propagating light waves", *Nanophotonics*, 9(10): 3335-3345 (2020)
- 5) T. Arikawa, T. Hiraoka, S. Morimoto, F. Blanchard, S. Tani, T. Tanaka, K. Sakai, H. Kitajima, K. Sasaki and K. Tanaka: "Transfer of orbital angular momentum of light to plasmonic excitations in metamaterials", *Sci. Adv.*, 6(24): 1977- (2020)
- 6) C. An-Chieh, H. Niinomi, T. Omatsu, S. Ishida, K. Sasaki and T. Sugiyama: "Plasmonic Manipulation-Controlled Chiral Crystallization of Sodium Chlorate", *J. Phys. Chem. Lett.*, 11(11): 4422-4426 (2020)

4.2 学術論文 (査読なし)

- 1) C. Pin*, H. Fujiwara, T. Suzuki and K. Sasaki: "Photothermal energy conversion in plasmonic nanogap antennas: Application to localized ZnO growth for nanophotonics", *Proc. SPIE*, 11522(1152203) (2020)
- 2) C. Pin*, R. Otsuka and K. Sasaki: "Optical transport and sorting of fluorescent nanodiamonds inside a tapered glass capillary", *Proc. SPIE*, 11522(115220N) (2020)
- 3) C. Pin, H. Fujiwara, T. Suzuki and K. Sasaki: "Photothermal energy conversion in plasmonic nanoantennas as a new path for the local growth of ZnO in nanophotonic devices", *Proc. SPIE*, 11696(11696H) (2021)
- 4) 2.C. Pin, R. Otsuka and K. Sasaki: "Nanodiamond optical sorting at the femtonewton scale inside a tapered glass capillary", *Proc. SPIE*, 11637(11637Q) (2021)

4.3 総説・解説・評論等

- 1) 藤原 英樹、石原 一、笹木 敬司: 「光の力でナノ粒子を選別・分離する」、*化学工業*、*化学工業社*、72(2): 124-129 (2021)
- 2) 田口 敦清、中山 篤志、藤田 克昌: 「添加材不要の二光子重合造形: 進展する材料拡大と空間分解能の向上」、*化学工業*、*化学工業社*、72(2): 124-129 (2021)

4.4 著書

該当なし

4.5 特許

該当なし

4.6 講演

a. 招待講演 (国際学会)

- 1) K. Sasaki*: "Nano-Material Optical Manipulation and Structural Order Control", *Optics Seminars OIST*, オンライン, Japan (2020-12)
- 2) K. Sasaki*: "Optical manipulation toward material sciences", *Optics & Photonics Japan 2020 OSJ-OSA-OSK Joint Symposia on Optics*, オンライン, Japan (2020-11)

b. 招待講演 (国内学会)

c. 一般講演 (国際学会)

- 1) C. Pin*, R. Otsuka and K. Sasaki : “Nanodiamond optical sorting at the femtonewton scale inside a tapered glass capillary”, SPIE Photonics West, Microfluidics, BioMEMS, and Medical Microsystems XIX, オンライン, United States of America (the) (2021-03)
- 2) C. Pin*, H. Fujiwara, T. Suzuki and K. Sasaki : “Photo-thermal energy conversion in plasmonic nanoantennas as a new path for the local growth of ZnO in nanophotonic devices”, SPIE Photonics West, Advanced Fabrication Technologies for Micro/Nano Optics and Photonics XIV, オンライン, United States of America (the) (2021-03)
- 3) Y. Sunaba* and K. Sasaki : “Analysis on spatial distribution of Poynting vectors for multimer plasmonic fields”, The 21st RIES-Hokudai International Symposium “間” [ma], オンライン, Japan (2020-12)

d. 一般講演 (国内学会)

- 1) 砂場 侑司*, 笹木 敬司 : 「金属ナノ多量体の局在プラズモン場による多重極子遷移の解析」, 2021年第68回応用物理学会春季学術講演会, オンライン, Japan (2021-03)
- 2) C. L. Pin*, R. Otsuka and K. Sasaki : “Optical manipulation and sorting of sub-100nm nanodiamonds inside a tapered glass capillary”, 2021年第68回応用物理学会春季学術講演会, オンライン, Japan (2021-03)
- 3) 西川 洋平*, 田口 敦清, 笹木 敬司 : 「可視パルス光を用いた重合開始剤不要の二光子重合装置の構築」, 第56回応用物理学会北海道支部/第17回日本光学会北海道支部合同学術講演会, オンライン, Japan (2021-01)
- 4) 砂場 侑司*, 笹木 敬司 : 「金属多量体プラズモン場におけるポインティングベクトルの空間分布解析」, Optics & Photonics Japan 2020, オンライン, Japan (2020-11)
- 5) C. L. Pin* : “Optical trapping, transport and printing of a nanoparticle to be deposited on a plasmonic nanogap antenna”, 2020年第81回応用物理学会秋季学術講演会, オンライン, Japan (2020-09)

e. 研究会・シンポジウム・ワークショップなど (学会以外)

- 1) 笹木 敬司* : 「局在プラズモン場の角運動量とナノマニピュレーション」, 「光の軌道角運動量の発生機構と物質相互作用の理解」研究会, ハイブリット開催, 千葉大学, Japan (2021-3)
- 2) 田口 敦清* : 「深紫外ラマン顕微鏡の現在と未来」, 「2020年度日本分光学会北海道支部シンポジウム」, オンライン, Japan (2021-1)
- 3) 笹木 敬司* : 「光圧操作の基礎と応用」, 分子研研究会, オンライン, Japan (2020-12)

4.7 シンポジウムの開催

- 1) A. Taguchi : “SPIE Optics & Photonics Digital Forum, UV and Higher Energy Photonics: From Materials to Applications”, Zoom (Zoom United States of America (the)) (2020年08月24日~2020年09月04日)

4.8 共同研究

a. 所内共同研究

- 1) 笹木 敬司, 三澤 弘明(電子科学研究所) : 「プラズモニックナノ構造体による高効率光反応システム」, 2018年度~, プラズモニックナノ構造体による高効率光反応システム

b. 民間等との共同研究

該当なし

c. 委託研究

- 1) 三澤 弘明, 福井 孝志, 西井 準治, 笹木 敬司, 村越 敬, 上野 貢生, 松尾 保孝(低炭素社会構築に向けた研究基盤ネットワーク整備事業(文部科学省)) : 「光アンテナ搭載高効率光電変換システム研究拠点の整備構想」, 2010年度~, ハブ拠点との連携によって, 低炭素社会に貢献する次世代太陽光発電のための新規な光電変換材料およびデバイス研究を推進することを目的とする。
- 2) 田口 敦清(北海道大学情報基盤センター) : 「GPUアクセラレーターを活用した高速逆計算によるナノフォトニックデバイスの設計」, 2020年度, ナノフォトニック構造の設計手法に関する研究を情報基盤センターとの共同研究により行う。
- 3) K. Sasaki and T. Omatsu(千葉大学) : “円偏光局在場を用いた塩素酸ナトリウムのキラル結晶化”, 2019年度~, 円偏光局在場を用いた塩素酸ナトリウムのキラル結晶化
- 4) 3. 笹木 敬司, 田中 嘉人(東京大学) : 「スピン・軌道角運動量転写の理論解析」, 2019年度~, スピン・軌道角運動量転写の理論解析
- 5) 笹木 敬司, 森田 隆二(北海道大学工学研究院) : 「高精度光渦場形成技術の開発および光操作への応用」, 2017年度~, 高精度光渦場形成技術の開発および光操作への応用

d. 国際共同研究

- 1) K. Sasaki and M. Gu(RMIT Univ.(AUS)) : “3D ナノプリンティング技術を用いたナノファイバグレーティングの作製”, 2017年度~, 3D ナノプリンティング技術を用いたナノファイバグレーティングの作製

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, 基盤研究 A 一般, プラズモニックナノ渦場を用いた分子光ダイナミクス制御, 2018~2020年度
- 3) 三澤 弘明, 特別推進研究, ナノ共振器-プラズモン強結合を用いた高効率光反応システムの開拓とその学理解明, 2018~2022年度
- 4) 田口 敦清, 基盤研究 A 一般, 二光子重合造形の深紫外領域への展開と応用, 2020~2022年度

b. 大型プロジェクト・受託研究

- 1) 田口 敦清(科学技術振興機構) : 「深紫外顕微鏡対物レンズの開発」, 2020~2021年度, 2990千円, 深紫外光学顕微鏡の反射型対物レンズの設計と試作を行う。

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) 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～2022年03月31日）
- 2) 田口 敦清：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04月01日～現在）
- 3) 笹木 敬司：科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業（さきがけ）領域アドバイザー（2017年04月12日～2023年03月31日）
- 4) 笹木 敬司：日本学術会議 ICO(International Commission for Optics)分科会委員（2017年10月02日～2023年09月30日）
- 5) 笹木 敬司：日本学術会議連携会員（2017年10月02日～2023年09月30日）
- 6) 笹木 敬司：日本学術会議北海道地区会議運営協議会委員（2017年11月24日～2023年09月30日）
- 7) 笹木 敬司：科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業（CREST）領域アドバイザー（2019年06月01日～2023年03月31日）
- 8) 田口 敦清：科学研究費委員会専門委員（2020年12月01日～2021年11月30日）

b. 国内外の学会の役職

- 1) 田口 敦清：日本分光学会紫外フロンティア分光学会・幹事（2018年02月24日～現在）
- 2) 2. 田口 敦清：SPIE Optics & Photonics: UV and Higher Energy Photonics, Chair（2018年09月01日～現在）
- 3) 3. 田口 敦清：SPIE.COS Photonics Asia, Program Committee（2019年04月01日～現在）
- 4) 4. 田口 敦清：応用物理学会北海道支部・幹事（2020年04月01日～現在）
- 5) 5. 田口 敦清：応用物理学会プログラム委員（2020年09月10日～現在）

c. 兼任・兼業

- 1) 笹木 敬司：電気通信大学 レーザー次世代研究センター 共同研究員（2008年04月01日～2022年03月31日）

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) 全学共通、令和2年度全学教育科目、笹木 敬司、2020年04月01日～2020年06月30日
- 2) 工学部、光工学、笹木 敬司、2020年04月01日～2020年09月30日
- 3) 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、2020年04月01日～2021年03月31日
- 4) 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、2020年04月01日～2021年03月31日
- 5) 工学部、電磁気学、田口 敦清、2020年10月01日～2021年03月31日
- 6) 工学部、電気電子工学実験V、田口 敦清、2020年10月01日～2021年03月31日
- 7) 情報科学研究科、光情報システム学特論、田口 敦清、

2020年10月01日～2021年03月31日

- 8) 情報科学研究科、光情報システム学特論、笹木 敬司、2020年10月01日～2021年03月31日
- 9) 情報科学研究科、電子情報工学演習II、笹木 敬司、2020年10月01日～2021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）

g. 新聞・テレビ等の報道

- 1) 藤原 英樹、クリストフ ルイ マリ パン、笹木 敬司: 「ナノサイズ金属-半導体ハイブリッド構造を作製」、JETI, 68(6): 15-17 (2020)

h. ポスドク・客員研究員など

- 1) 藤原 英樹（北海学園大学）
- 2) 煮雪 亮（北海道科学大学高等学校）

i. 修士学位及び博士学位の取得状況

修士学位：3人

- 1) 大塚 涼平、情報科学研究院、修士(情報科学)、テーパーキャピラリーを用いた光圧によるナノ粒子の輸送と選別
- 2) 砂場 侑司、情報科学研究院、修士(情報科学)、ナノ光渦場とナノ物質の相互作用に関する研究
- 3) 西川 洋平、情報科学研究院、修士(情報科学)、Dナノ加工のための可視パルス光を利用した2光子重合加工装置の構築

ナノ材料光計測研究分野

教授 雲林院 宏(東北大院、博(理学)、2015年7月～)

准教授 平井 健二(京大院、博(工学)、2017年12月～)

助教 猪瀬 朋子(阪大院、博(理学)、2015年10月～2020年9月)

大学院生

博士後期課程 山口和志, Zhang Qiang, Wen Han, Tian Ya, Feng Guillin

修士課程 明石大輝、石田拓都、杉岡祥治、中尾佑輔、村杉拓、Li Jiangrao、石川紘人、小川達哉、小島悠、北川泰成、島田航

学部生 斎藤浩哉、長橋篤志、本田勇輝、山口大輔、大森健司、籠橋みのり、佐々木郁人、渡邊琴巳

1. 研究目標

本研究分野では、有機から無機まで、様々なナノ材料を化学的手法により合成し、その光特性を調べ、その光特性を最大限に利用した高感度センサー基板や、新たな光学顕微鏡法を開発している。また、これらナノ構造や新たな光学顕微鏡法を用いて、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。

2. 研究成果

光共振器の中では、共振器モードと分子振動が強く相互作用し、振動強結合とよばれる状態になる。振動強結合状態では、分子と光子の波動関数が混成したポラリトンが形成され、上枝と下枝に分裂したラビ分裂が観測される。振動強結合の状態では、分子のポテンシャルエネルギー曲面が変化することが理論的に予測されており[1, 2]、共振器中の分子は特異な反応性を示す[3]。近年、溶媒分子の振動強結合によって、加溶媒分解反応の速度が変調することが報告されている[4]。溶媒分子の振動強結合によって、加溶媒分解反応の活性化エントロピーが大きく変化しており、溶媒分子の振動強結合は、結晶化などの多様な溶液プロセスに応用できることを示唆している。

結晶化における重要な問題の一つに、同一の構成要素から複数の結晶相が得られる、結晶多形がある。例えば、抗炎症薬のインドメタシンは 例えば、抗炎症剤のインドメタシンは結晶化条件によって3つの結晶構造をとる。インドメタシンの薬効は結晶構造に依存する。血流内でのインドメタシンの溶解速度は結晶構造によって異なるため、薬効も結晶構造は薬効にも影響を与える。

また、金属イオンと有機配位子の自己集合によって得られる有機金属構造体 (MOF: metal-organic framework) [5] においても、結晶多形がみられる。金属イオンと有機配位子の組み合わせによって、様々なMOFが合成できる一方、同一の構成要素から複数種のMOFが得られる。MOFは多孔性材料であり、ガス吸蔵、ガス分離、分子検出などに用いられるが、複数種のMOFの混在は、材料物性の低下に繋がるため、選択的な結晶化方法が望まれている。MOFの結晶化では、用いる溶媒によって得られる結晶構造が変化することが知られている。本研究では、溶媒分子の分子振動と光共振器の強結合が、MOFの結晶多形に与える影響を調べた(図1)。

最初に、光共振器外でMOFの結晶化を行った。硝酸亜鉛六水和物と2-メチルイミダゾール (Hmeim) を MilliQ に溶解させ、室温で2時間静置した。析出した結晶粒子は遠

心沈降で回収し、溶媒除去と溶媒添加を繰り返すことで洗浄した。洗浄後の結晶を走査型電子顕微鏡 (SEM) で観察すると、切頂八面体の ZIF-8 ($[\text{Zn}(\text{meim})_2]_n$) と花びら型の ZIF-L ($[\text{Zn}(\text{meim})_2(\text{Hmeim})_n]$) [6] が 74:26 の割合で確認された(図2a)。一方、同様の水溶液を光共振器中に入れ、水分子のOH伸縮振動が強結合した状態で静置すると、切頂八面体の結晶のみが得られた(図2b)。顕微ラマン分光測定により、この切頂八面体の結晶は ZIF-8 であり、溶媒分子の振動強結合下では、選択的に ZIF-8 が結晶化することが示唆された。

比較実験として、光共振器となっていない反射ミラーの上で結晶化を行うと、ZIF-8とZIF-Lの混合物が得られた。また、反射面ミラーのない閉鎖空間ではZIF-8とZIF-Lの混合物が得られた。これらの実験結果から、光共振器の反射ミラーの表面や閉鎖空間はZIF-8とZIF-Lの選択性に寄与していないことが明らかとなった。さらに、ミラー間の距離を調整し、分子振動と共振器が強結合しない条件で結晶化を行うと、ZIF-8とZIF-Lの混合物が得られた。これらの実験結果より、溶媒分子の振動強結合下では、MOFの結晶化の選択性が変化することが示唆された。[7]

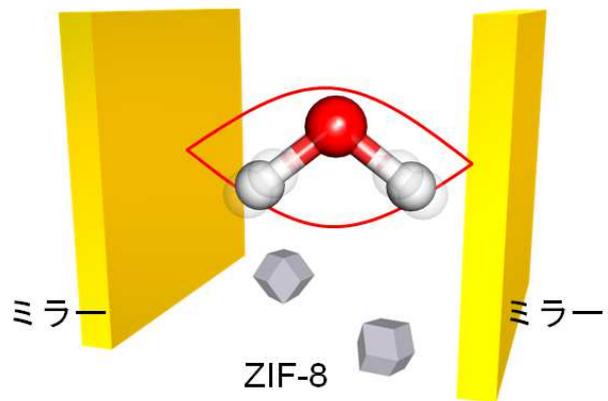


図1 Schematic illustration of Fabry-Perot (FP) optical cavity consisting of two parallel mirrors. The cavity mode is strongly coupled with OH stretching vibration of water included in FP cavity.

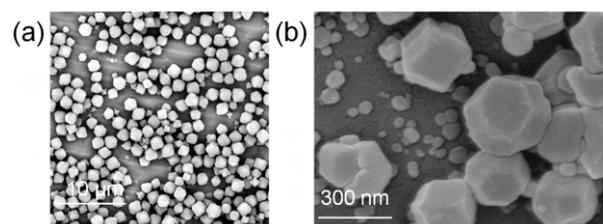


図2 Scanning electron microscopic images of crystals (a) formed in free solution (b) and under vibrational strong coupling.

3. 今後の研究の展望

水分子のOH伸縮振動を強結合させると、水溶液中での結晶化が変化することがわかった。今回の実験では、原理実証のためにMOFを用いたが、結晶多形は様々な分子群で見られる現象である。例えば、抗炎症剤のインドメタシンでは結晶多形の制御が重要であり、結晶化の制御方法として展開できることが期待される。振動強結合下における選択的結晶化のメカニズムは様々な可能性が考えられる。最近では、物質-光相互作用の項を導入した

Born-Oppenheimer 近似の計算により、振動強結合下における分子のポテンシャルエネルギーを計算する方法が進展している。今後、選択的結晶化の理解を深めるために、理論化学的なアプローチも必要になると考えられる。本研究は、振動強結合が様々な溶液プロセスに適応できる可能性を示唆する結果である。この光学現象を利用した機能性材料の合成や物性制御への応用に繋げていく。

References

- [1] Johannes Flick, Heiko Appel, Michael Ruggenthaler, Angel Rubio, 'Cavity Born-Oppenheimer Approximation for Correlated Electron-Nuclear-Photon Systems', *J. Chem. Theory Comput.* 2017, 13, 4, 1616-1625.
 - [2] Javier Galego, Clàudia Climent, Francisco J. Garcia-Vidal, Johannes Feist, 'Cavity Casimir-Polder Forces and Their Effects in Ground-State Chemical Reactivity', *Phys. Rev. X* 9, 021057
 - [3] Anoop Thomas, Jino George, Atef Shalabney, Marian Dryzhakov, Sreejith J. Varma, Joseph Moran, Thibault Chervy, Xiaolan Zhong, Eloise Devaux, Cyriaque Genet, James A. Hutchison, Thomas W. Ebbesen, 'Ground-State Chemical Reactivity under Vibrational Coupling to the Vacuum Electromagnetic Field', *Angew. Chem. Int. Ed.* 2016, 55, 11462-11466
 - [4] Jyoti Lather, Pooja Bhatt, Anoop Thomas, Thomas W. Ebbesen, 'Cavity Catalysis by Cooperative Vibrational Strong Coupling of Reactant and Solvent Molecules', *Angew. Chem. Int. Ed.* 2019, 58, 10635-10638.
 - [5] Susumu Kitagawa, Ryo Kitaura, Shin-ichiro Noro, 'Functional Porous Coordination Polymers', *Angew. Chem. Int. Ed.* 2004, 43, 2334-2375.
 - [6] Kyo Sung Park, Zheng Ni, Adrien P. Côté, Jae Yong Choi, Rudan Huang, Fernando J. Uribe-Romo, Hee K. Chae, Michael O'Keefe, Omar M. Yaghi, 'Exceptional chemical and thermal stability of zeolitic imidazolate frameworks' *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, 2006, 103, 10186-10191.
 - [7] Kenji Hirai, Hiroto Ishikawa, James A. Hutchison, Thibault Chervy, Hiroshi Uji-i, 'Selective Crystallization via Vibrational Strong Coupling' *ChemRxiv*, DOI: 10.26434/chemrxiv.13191617.v2
- ## 4. 資料
- ### 4.1 学術論文 (査読あり)
- 1) Kenji Hirai, Hiroshi Uji-i, 'Polariton Chemistry in Cavity Vacuum Fields', *Chem. Lett.* 2021, 50, 727-732.
 - 2) Monica Ricci, Beatrice Fortuni, Raffaele Vitale, Qiang Zhang, Yasuhiko Fujita, Shuichi Toyouchi, Gang Lu, Susana Rocha, Tomoko Inose, Hiroshi Uji-i, 'Gold-Etched Silver Nanowire Endoscopy: Toward a Widely Accessible Platform for Surface-Enhanced Raman Scattering-Based Analysis in Living Cells', *Analytical Chemistry*, 2021, 93, 12, 5037-5045.
 - 3) Kazushi Yamaguchi, Kohei Otomo, Yuichi Kozawa, Motosuke Tsutsumi, Tomoko Inose, Kenji Hirai, Shunichi Sato, Tomomi Nemoto, Hiroshi Uji-i, 'Adaptive Optical Two-photon Microscopy for Surface-profiled Living Biological Specimens', *ACS Omega*, 2021, 6, 1, 438-447.
 - 4) Kazuki Umemoto, Hinako Ebe, Ryota Sato, Junya Enomoto, Naoaki Oshita, Taisei Kimura, Tomoko Inose, Takahiro Nakamura, Takayuki Chiba, Satoshi Asakura, Hiroshi Uji-i, Akito Masuhara, 'Simple Production of Highly Luminescent Organometal Halide Perovskite Nanocrystals Using Ultrasound-Assisted Bead Milling', *ACS Sustainable Chemistry Engineering*. 2020, 8, 16469-16476.
 - 5) Mathias Wolf, Kenji Hirai, Shuichi Toyouchi, Edward Fron, Wannes Peters, Steven D. Feyter, Hiroshi Uji-i, 'Label-free visualization of heterogeneities and defects in metal-organic frameworks using nonlinear optics', *Chem. Commun.*, 2020, 56, 13331-13334.
 - 6) Guofeng Zhang, Susana Rocha, Gang Lu, Haifeng Yuan, Hiroshi Uji-i, George Floudas; Klaus Müllen; Liantuan Xiao, Johan Hofkens, Elke Debroye*, 'Spatially and temporally resolved heterogeneities in a miscible polymer blend', *ACS Omega*, 2020, 5, 23931-23939.
 - 7) Ryo Ohtani, Kenichi Kawano, Masanao Kinoshita, Saeko Yanaka, Hikaru Watanabe, Kenji Hirai, Shiroh Futaki, Nobuaki Matsumori, Hiroshi Uji-i, Masaaki Ohba, Koichi Kato, Shinya Hayami, 'Pseudo-membrane jackets: Two-dimensional coordination polymers achieving visible phase separation in cell membrane', *Angew. Chem. Int. Ed.* 2020, 59, 17931-17937.
 - 8) Qiang Zhang, Han Wen, Kiri Watanabe, Ibuki Kotani, Monica Ricci, Beatrice Fortuni, Anh Thi Ngoc Dao, Akito Masuhara, Kenji Hirai, Hitoshi Kasai, Tomoko Inose, and Hiroshi Uji-i, 'Low-Cytotoxic Gold-Coated Silver Nanoflowers for Intracellular pH Sensing', *ACS App. Nano. Mater.* 2020, 3, 8, 7643-7650.
 - 9) Farsai Taemaitree, Beatrice Fortuni, Yoshitaka Koseki, Edward Fron, Susana Rocha, Johan Hofkens, Hiroshi Uji-i, Tomoko Inose, Hitoshi Kasai, 'FRET-based intracellular investigation of nanoprodugs toward highly efficient anticancer drug delivery', *Nanoscale*, 2020, 12, 16710-16715.
- ### 1 0) Kenji Hirai, James A. Hutchison, Hiroshi Uji-i, 'Recent Progress in Vibropolaritonic Chemistry', *ChemPlusChem*, 2020, 56, 9651-9654.
- ### 1 1) Kangwei Xia, Wei-Yi Chianga, Cesar Javier Lockhart de la Rosa, Yasuhiko Fujita, Shuichi Toyouchi, Haifeng Yuan, Jia Sua, Hiroshi Masuhara, Stefan De Gendt, Steven De Feyter, Johan Hofkens, Hiroshi Uji-i, 'Photo-Induced Electrodeposition of Metallic Nanostructures on Graphene', *Nanoscale*, 2020, 12, 11063-11069.
- ### 1 2) Monica Ricci, Martin G.T.A. Rutten, Shuichi Toyouchi, Sepa Nanayakkara, Beatrice Fortuni, Raffaele Vitale, Susana Rocha, Daniela A. Wilson, Johan Hofkens, Kei Saito, Hiroshi Uji-i, 'Two-Photon Induced [2+2] Cycloaddition of Bis-thymines: a Biocompatible and Reversible Approach', *ACS Omega*, 2020, 5, 20, 11547-11552.
- ### 1 3) Junya Ohyama, Airi Hirayama, Nahoko Kondou, Hiroshi Yoshida, Masato Machida, Shun Nishimura, Kenji Hirai, Itsuki Miyazato, Keisuke Takahashi, 'Data science assisted investigation of catalytically active copper hydrate in zeolites for direct oxidation of methane to methanol using H₂O₂', *Scientific Reports* 2021, 11, 2067.
- ### 4.2 学術論文 (査読なし)

該当なし

4.3 総説・解説・評論等

- 1) 小関良卓, Farsai Taemaitree, Beatrice Fortuni, Susana Rocha, 雲林院宏, 猪瀬朋子, 笠井均 「ナノ・プロドラッグ: 新たな抗がん薬輸送システムの細胞内挙動」, 月刊「細胞」, 2020, 52 (13), 769-7557.
- 2) 平井健二「光共振器で化学反応を制御 —量子ゆらぎと有機反応の接点」, 月刊化学2020年6月号, 12-15.

4.4 著書

該当なし

4.5 特許

該当なし

4.6 講演

a. 招待講演 (国際学会)

該当なし

b. 招待講演 (国内学会)

- 1) “ラビ分裂を用いた化学反応制御”, 平井健二, JST・触媒学会 共催オンライン公開シンポジウム, May 24, 2020.
- 2) “量子ゆらぎを利用した有機反応と自己集合”, 平井健二, 第四回“光”機到来! Q コロキウム, July 30, 2020.
- 3) “Reaction and Crystallization under Vibrational Strong Coupling”, Kenji Hirai, 化学系学協会東北大会, September 26, 2020.

c. 一般講演 (国際学会)

該当なし

d. 一般講演 (国内学会)

- 1) “Tip-enhanced Raman spectroscopy on chemically unzipped carbon nanoribbon”, Shoji Sugioka, Shuichi Toyouchi, Shinnosuke Hara, Tomoko Inose, Kenji Hirai, Yasuhiko Fujita, Hirofumi Tanaka, Hiroshi Uji-i, 第81回 応用物理学会 秋季学術講演会, September 10, 2020.
- 2) “Deposition of gold nanoparticles on silver nanowires for nano-heat source”, Yusuke Nakao, Syuichi Toyouchi, Kenji Hirai, Tomoko Inose, Hiroshi Uji-i, 第81回 応用物理学会 秋季学術講演会, September, 11, 2020.
- 3) “Low invasive nanowires gene delivery system”, Takuto Ishida, Tomoko Inose, Kenji Hirai, Hiroshi Uji-i, 第81回 応用物理学会 秋季学術講演会, September, 11, 2020.

e. 研究会・シンポジウム・ワークショップなど (学会以外)

- 1) “Length controlled AFM-AgNW probes for tip-enhanced Raman Scattering”, Jiangtao Li, Han Wen, Tomoko Inose, Kenji Hirai, Hiroshi Uji-i, The 21st RIES-Hokudai International Symposium, December, 10, 2020.
- 2) “Multicolour photochromic fluorescence of fluorophores

introduced in metal-organic frameworks”, Taisei Kitagawa, Kenji Hirai, Tomoko Inose, Hiroshi Uji-i, The 21st RIES-Hokudai International Symposium, December, 10, 2020.

- 3) “Selective surface-enhanced Raman scattering by coating of metal-organic framework on metal nanowires”, Taku Murasugi, Kenji Hirai, Tomoko Inose, Hiroshi Uji-i, The 21st RIES-Hokudai International Symposium, December, 10, 2020.
- 4) “Site-specific gold nanoparticles deposition on silver nanowire for nano-heat source”, Yusuke Nakao, Syuichi Toyouchi, Kenji Hirai, Tomoko Inose, Hiroshi Uji-i, The 21st RIES-Hokudai International Symposium, December, 10, 2020.
- 5) “Gold nanostructures-deposited Silver Nanowires for the Cytosolic and Nuclear pH Sensing”, Qiang Zhang, Monica Ricci, Jiangtao Li, Takuto Ishida, Han Wen, Haruka Kojima, Tomoko Inose, Shuichi Toyouchi, Yasuhiko Fujita, Kenji Hirai, Beatrice Fortuni, Hiroshi Uji-i, The 21st RIES-Hokudai International Symposium, December, 10, 2020.
- 6) “Low invasive gene delivery by using silver nanowires”, Takuto Ishida, Tomoko Inose, Kenji Hirai, Hiroshi Uji-i, The 21st RIES-Hokudai International Symposium, December, 10, 2020.
- 7) “End-shape engineering on metal nanowires”, Taiki Akashi, Tomoko Inose, Shuichi Toyouchi, Kenji Hirai, Hiroshi Uji-i, The 21st RIES-Hokudai International Symposium, December, 10, 2020.
- 8) “Nanoscale characterisation of carbon nanomaterials using tip-enhanced Raman spectroscopy”, Han Wen, Tomoko Inose, Shoji Sugioka, Jiangtao Li, Kenji Hirai, Hiroshi Uji-i, The 21st RIES-Hokudai International Symposium, December, 10, 2020.
- 9) “Tip-enhanced Raman spectroscopy on chemically unzipped carbon nanoribbon”, Shoji Sugioka, Tomoko Inose, Shinnosuke Hara, Shuichi Toyouchi, Kenji Hirai, Yasuhiko Fujita, Hirofumi Tanaka, Hiroshi Uji-i, The 21st RIES-Hokudai International Symposium, December, 10, 2020.

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

東レリサーチセンター

c. 委託研究

東レリサーチセンター

d. 国際共同研究

- 1) Prof. Steven De Feyter, KU Leuven, Belgium
- 2) Prof. Johan Hofkens, KU Leuven, Belgium

- 3) Prof. Susana Rocha, KU Leuven, Belgium
- 4) Prof. Paul Murvaney, University of Melbourne, Australia
- 5) Dr. James A. Hutchison, University of Melbourne, Australia
- 6) Prof. Virginia Martínez-Martínez, Universidad del País Vasco, Spain.
- 7) Prof. Loredana Latterini, University of Perugia, Italy
- 8) Prof. Maurilio Sampaolesi, KU Leuven, Belgium
- 9) Prof. Paolo Samoli, University of Strasbourg, France
- 10) Prof. Gang Lu, Nanjing Tech University, China
- 11) 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

- 1) 雲林院宏、基盤研究(B)、ナノ粒子型薬輸送システムの単一細胞レベル解析、2017~2020年度
- 2) 雲林院宏、挑戦的研究(萌芽)、プラズモン導波路を用いたリモート励起探針増強蛍光の開発、2020~2021年度
- 3) 平井健二、基盤研究(B)、レーザー加熱による機能性材料の3次元合成、2018~2020年度
- 4) 平井健二、挑戦的研究(萌芽)、配位自己集合を用いた量子ドットレーザーの開発、2020~2022年度
- 5) 猪瀬朋子、基盤研究(C)、原子層ヘテロ接合部の超高空間分解能振動情報・発光特性解析、2020~2022年度
- 6) 猪瀬朋子、国際共同研究強化(B)、サイト選択的化学吸着によるグラフェンナノリボンのバンドギャップアクティブ制御、2019~2023年度

b. 大型プロジェクト・受託研究

- 1) 平井健二、JST さきがけ研究、ラビ分裂による化学反応操作法の確立、2018~2021年度
- 2) 雲林院宏、1分子・1粒子レベルの細胞間コミュニケーション解明のための先端研究拠点の確立、研究拠点形成事業、2019~2024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

- 1) 平井健二、JST さきがけ研究員(兼任)
- 2)

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、応用物性工学、雲林院宏、平井健二 2020年10月5日~2019年11月24日
- 2) 情報科学院、ナノマテリアル特論、雲林院宏、平井健二、猪瀬朋子、2020年6月17日~2020年7月29日
- 3) 工学部、生体医工学基礎・医用工学概論、平井健二、2020年12月1日~2021年01月26日
- 4) 工学部、生体情報工学演習II、平井健二、2020年10月5日~2021年1月25日
- 5) 工学部、生体情報工学実験II、平井健二、2020年10月1日~2021年1月22日

f. 北大以外での非常勤講師(対象、講義名、担当者、期間)

Department of Chemistry, KU Leuven, Belgium, Complex Inorganic and Hybrid Materials, 2021年2月1日~2021年06月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

該当なし

i. 修士学位及び博士学位の取得状況

修士学位：5人

- 1) 明石大輝、情報科学院：修士(情報学)、金被覆銀ナノワイヤーTERSプローブの開発
- 2) 石田拓都、情報科学院：修士(情報学)、低侵襲ナノワイヤーを用いた単一細胞への物質導入法の開発
- 3) 杉岡祥治、情報科学院：修士(情報学)、探針増強ラマン分光法によるアンジップグラフェンナノリボンの評価
- 4) 中尾佑輔、情報科学院：修士(情報学)、銀ナノワイヤー上における金ナノ粒子析出とナノ熱源としての利用
- 5) 村杉拓、情報科学院：修士(情報学)、金属有機構造体を被覆した金属ナノワイヤーによる選択的表面増強ラマン散乱

博士学位：1人

- 1) 山口和志、情報科学院：博士(情報学)、2光子顕微鏡法を用いた補償光学による生体組織深部の可視化解析

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 鈴木明大 (阪大院、工博、2016.4～)
技術補佐員 新井田雅学 (2015.12～)
事務補佐員 山崎涼子 (2014.7～2019.7, 2020.2～2021.3)

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の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

X線自由電子レーザー (XFEL) を用いた複雑系生体粒子等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) 法の構築を進めている。XFEL がフェムト秒オーダーのパルス幅を持つことを利用して、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マイクロ液体封入アレイ (MLEA) の作製には、文科省ナノテクノロジープラットフォーム事業で運用されている北大のクリーンルーム内の微細加工装置群を利用している。

XFEL での測定は破壊型であるが、再現可能な構造を持つ粒子に対しては、多数の粒子からのコヒーレント回折パターンを取得して、データ解析することにより、3D イメージングや新規の動的イメージングに道が開かれる。測定では、SACLA との共同研究により開発した100 nm 集光システムと試料チャンバーを一体化したナノビームコヒーレント回折イメージング装置 (MAXIC-S) を利用した。

数値シミュレーションやデータ解析においては、新型コロナウイルス対策を目的として優先的な試行的利用が開始されたスーパーコンピュータ「富岳」も活用した (令和2年度「富岳」試行的利用課題 (利用準備課題)、課題名「XFEL

分子レベルイメージングの実現に向けた計算基盤整備」、課題代表者：西野吉則)。

MAXIC-S を用いた測定で対象とする数十ナノメートルサイズの試料粒子からの回折シグナルは極めて微弱なため、試料以外からのバックグラウンド散乱を従来よりも格段に低減させる必要がある。XFEL を用いた単粒子イメージングに向けて、溶液試料の保持技術の開発を、「SACLA 基盤開発プログラム」で進めた (課題名「XFEL 単粒子イメージングに向けた溶液試料保持技術のフィージビリティ調査」)。

また、複雑系生体分子等を試料環境を制御して保持する MLEA の半自動組立装置を電子研技術部と共同で開発し、論文発表した (T. Kimura *et al.*, Rev. Sci. Instrum. (2020))。図1に MLEA の半自動組立装置の写真を示す。

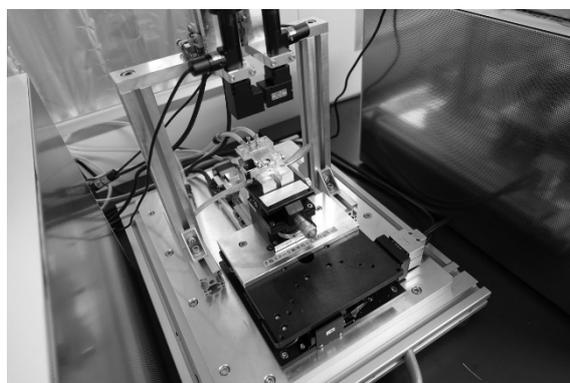


図1 複雑系生体分子等を試料環境を制御して保持するマイクロ液体封入アレイ (MLEA) の半自動組立装置

(b) X線自由電子レーザーを用いた燃料電池触媒材料の無損傷ナノレベル観察

XFEL を用いた燃料電池触媒材料の無損傷ナノレベル観察を、令和2年度に採択された NEDO「燃料電池等利用の飛躍的拡大に向けた共通課題解決型産学官連携研究開発事業」の PEFC 評価解析プラットフォームの一環として開始した。令和2年度は、計算機シミュレーションにより XFEL による触媒粒子の理想的なイメージングで得られるイメージコントラストをまずは検証した。数値シミュレーションの結果、触媒粒子が真空中にある場合にはアイオノマーとカーボンを識別することは困難であるが、触媒粒子を溶媒に分散させることにより、アイオノマーとカーボンを画像から直接識別することが可能であることが示された。この結果を受けて、SACLA を用いたイメージング実験を実施した。実験では、アイオノマーで被覆した白金担持カーボンを試料として用いた。乾燥状態の触媒粒子と触媒粒子を1-プロパノールに分散させた溶液に対して測定を行った。乾燥試料は、触媒インクを窒化シリコン薄膜に滴下し、自然乾燥させ準備した。溶液試料の保持には、北大で独自開発した試料環境制御チップを用いた。光子エネルギー4 keV の100 nm 集光 XFEL を試料に照射して XFEL 回折パターンを計測し、位相回復計算により試料像を再構成した。例として、図2

に乾燥状態の触媒粒子からの XFEL 回折パターンと簡易的に行った再構成像を示す。再構成像には白金触媒と解釈できる、多くの白い輝点が見られる。再構成のピクセルサイズは1.37 nm である。

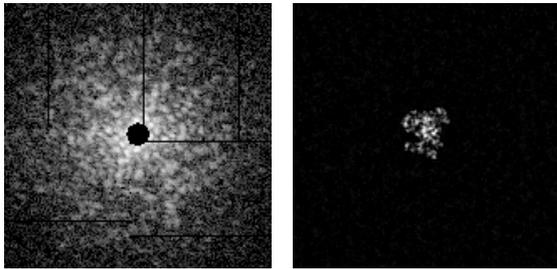


図2 乾燥状態の燃料電池触媒粒子の SACLA における観察例。(左) XFEL 回折パターンと (右) 再構成試料像

(c) ヘテロダイン干渉を用いた X 線自由電子レーザーを用いたインフルエンザウィルスの観察

結晶化されていない微小な生物試料の X 線散乱能は極めて小さく、散乱シグナルが検出限界を下回ると観察できなくなる。この困難を克服する試みとして、弱散乱体である試料粒子と強散乱体である金ナノ粒子のヘテロダイン干渉を利用したシグナル増強を XFEL における生物試料イメージングに初めて適用し、インフルエンザウィルスの PCXSS 測定を行った (C. F. Huang *et al.*, AIP Adv. (2020))。

(d) 動的結晶構造解析の高感度化に向けた研究

動的結晶構造解析の高感度化に向けた、低バックグラウンド試料ホルダの開発を、令和2年度に採択された科研費新学術領域研究(公募班)(課題名「高感度動的結晶構造解析のための超低バックグラウンド試料セル」、研究代表者:鈴木明大)の一環として進めた。

X 線入射窓には、窒化ケイ素 (SiN) 膜が広く利用されている。フォトリソグラフィによる作製工程を改良することで、SiN 膜の厚さを従来の1/4である50 nm まで薄くしても安定的に試料ホルダを作製できた。X 線レーザー計測の結果、SiN 膜の薄膜化により、SiN 膜由来のバックグラウンド散乱を1/3程度に抑制できた(図3)。さらに、原子間力顕微鏡による観察により、試料ホルダごとのバックグラウンド散乱のばらつきが、SiN 膜の表面粗さに起因することを確認した。さらなる低バックグラウンド化に向けて、この結果を試料ホルダ作製の改善にフィードバックする。

SiN 膜に加えて、薄く強靱なグラフェン膜にも着目している。X 線計測では、市販のグラフェン膜にはない $\phi 10 \mu\text{m}$ を超えるフリースタANDING領域が求められる。グラフェン膜の合成条件や転写条件を探索した結果、 $\phi 17 \mu\text{m}$ のフリースタANDINGを実現した。さらに、バックグラウンド散乱の原因になるグラフェン表面のコンタミネーションの構造と元素組成を、走査型電子顕微鏡で分析した。

新学術領域内の共同研究者とともに、SPring-8 理研ビームライン BL29XUL において、真空かつクライオ環境でタ

ンパク質結晶を測定できる装置を立ち上げ、装置を構成する各種光学素子のアライメント手順を確立した。

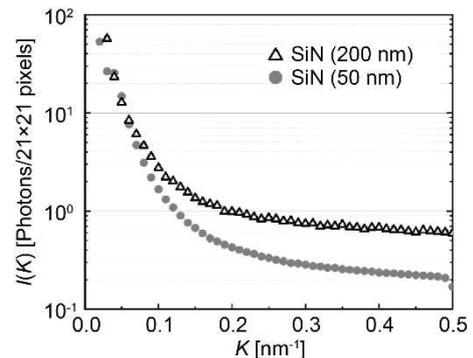


図3 SACLA で測定した異なる厚さの SiN 膜のバックグラウンド散乱。高周波数領域において薄膜化の効果が顕著である。

(e) 大開口回転体ミラーを用いた軟 X 線タイコグラフィ

大開口回転体ミラーを利用した X 線タイコグラフィの性能向上を目指した研究を、令和2年度に採択された科研費若手研究(課題名「大開口回転体ミラーとマルチスライス法による厚い試料の3次元軟 X 線イメージング」、研究体表者:鈴木明大)の一環として進めた。

タイコグラフィは、結像レンズが不要な走査型のイメージング技術である。多数の2次元回折パターンで構成されるデータセットにフーリエ位相回復を適用することで試料像が得られる。回転体ミラーは、試料の上流に設置する照明光学系として利用する。回転体ミラーの開口数が試料像に与える影響を、計算機によって網羅的に調べた。その結果、試料に入射する光子数が同じであっても、回転体ミラーの開口数を大きくすることで、試料像の質が向上することが示唆された。さらに、SPring-8の BL25XU において開発した大開口回転体ミラーを照明光学系に用いたタイコグラフィ装置によって、X 線磁気円二色性 (XMCD) 測定を行った。試料には、SiN 薄膜上に蒸着した Pt/Co 多層膜を用いた。回折パターンの高空間周波数領域に現れる回転体ミラーの反射ビームに、XMCD コントラストに起因する強度変動が確認できた(図4)。

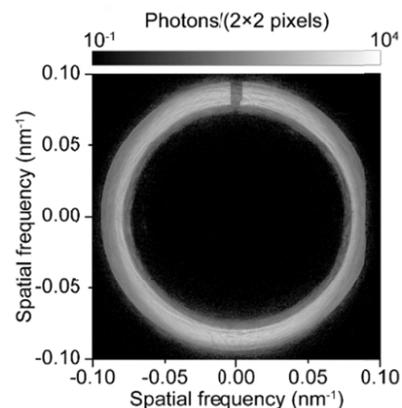


図4 回転体ミラーを照明光学系に用いて取得した Pt/Co 多層膜からのコヒーレント回折パターンの例。ドーナツ状の反射ビーム領域にのみ信号が存在することが分かる。

3. 今後の研究の展望

当研究分野では XFEL 施設 SACLA や大型放射光施設 SPring-8を利用したイメージング研究を推進している。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継続させる。学術研究に加えて、新たに開始した NEDO のプロジェクトも通じて、産業界と連携した研究を今後さらに発展させる。また、動的結晶構造解析の高感度化に向けて、本格的にタンパク質結晶を測定する。さらに、高開口数回転楕円集光ミラーを用いた軟 X 線タイコグラフィーに関して、応用研究への展開を目指す。

4. 資料

4.1 学術論文 (査読あり)

- 1) T. Kimura, A. Suzuki, Y. Yang, Y. Niida, A. Nishioka, M. Takei, J. Wei, H. Mitomo, Y. Matsuo, K. Niikura, K. Ijro, K. Tano, M. Yabashi, T. Ishikawa, T. Oshima, Y. Bessho, Y. Joti and Y. Nishino: "Micro-liquid enclosure array and its semi-automated assembling system for x-ray free-electron laser diffractive imaging of samples in solution", Review of Scientific Instruments, 91: 083706 (2020)
- 2) C. Huang, W. Chang, T. Lee, Y. Joti, Y. Nishino, T. Kimura, A. Suzuki, Y. Bessho, T. Lee, M. Chen, S. Yang, Y. Hwu, S. Huang, P. Li, P. Chen, Y. Tseng, C. Ma, T. Hsu, C. Wong, K. Tono, T. Ishikawa and K. S. Liang: "XFEL coherent diffraction imaging for weakly scattering particles using heterodyne interference", AIP Adv., 10: 055219 (2020)

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、鈴木 明大、折笠 有基、山重 寿夫: 「X 線自由電子レーザーを用いた自動車用ナノマテリアルの無損傷イメージング」、オプトロニクス、39(460): 158-162 (2020)

4.4 著書

該当なし

4.5 特許

該当なし

4.6 講演

a. 招待講演 (国際学会)

- 1) Y. Nishino*: "Feasibility Study on Solution Sample Holding Technique for XFEL Based Single-particle Imaging", SACLA Users' Meeting 2021, オンライン, Japan (2021-03)

- 2) A. Suzuki*: "Biological imaging: Short-and long-term requirements from users for hard X-ray beamlines ", SACLA Users' Meeting 2021, オンライン, Japan (2021-03)
- 3) Y. Nishino*: "Radiation-Damage-Free Nanoimaging using Femtosecond X-ray Laser", A3 Foresight & 5 Star Alliance Joint Workshop on Organic/Inorganic Hybrid Nano Materials and Bio Imaging, オンライン, Japan (2020-12)
- 4) A. Suzuki*: "Micro-liquid enclosure array for X-ray laser diffractive imaging of samples in solution", A3 Foresight & 5 Star Alliance Joint Workshop on Organic/Inorganic Hybrid Nano Materials and Bio Imaging, オンライン, Japan (2020-12)
- 5) Y. Nishino*: "Controlled Environment Nano-Imaging Free From Radiation Damage by X-ray Laser Diffraction", Current Topics in Emergent Materials and Devices, Hsinchu, Taiwan (Province of China) (2020-09)

b. 招待講演 (国内学会)

- 1) 鈴木 明大*: 「SPring-8/SACLA を利用したコヒーレント回折イメージング」、第 12 回日本放射光学会若手研究会「放射光若手スクール」、京都府, Japan (2021-03)
- 2) 鈴木 明大*: 「回転体ミラーによる軟 X 線ナノビームを用いた磁区構造解析技術」、ISSP Workshop 2021、オンライン, Japan (2021-03)

c. 一般講演 (国際学会)

該当なし

d. 一般講演 (国内学会)

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) A. Suzuki*, T. Kimura, Y. Yang, Y. Niida, A. Nishioka, M. Takei, J. Wei, H. Mitomo, Y. Matsuo, K. Niikura, K. Ijro, K. Tono, M. Yabashi, T. Ishikawa, T. Oshima, Y. Bessho, Y. Joti and Y. Nishino: "Micro-liquid enclosure array for X-ray laser diffractive imaging", The 21st RIES-HOKUDAI International Symposium 間, オンライン, Japan (2020-12)
- 2) 鈴木 明大*: 「高感度動的結晶構造解析のための超低バックグラウンド試料セル」、令和 2 年度 新学術領域研究「高速分子動画」シンポジウム、兵庫県, Japan (2020-10)

4.7 シンポジウムの開催

- 1) 西野 吉則: 「COVID-19 パンデミックを契機として考える日本の結晶学の現状と今後」、オンライン(2020 年 11 月 29 日)

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) 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) 西野 吉則(トヨタ自動車株式会社): 「2020 年度 SACLA 産業利用推進プログラム「次世代エネルギー材料の無損傷ナノキャラクタリゼーション」」、2020

年度、X線自由電子レーザー施設 SACLA を用いて次世代エネルギー材料の無損傷ナノキャラクタリゼーションを目指した研究を行う。

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) 鈴木 明大、新学術領域研究、高感度動的結晶構造解析のための超低バックグラウンド試料セル、2020～2021 年度
- 2) 鈴木 明大、若手研究、大開口回転体ミラーとマルチスライス法による厚い試料の 3 次元軟 X 線イメージング、2020～2021 年度

b. 大型プロジェクト・受託研究

- 1) 西野 吉則(NEDO): 「担体構造・アイオノマー被覆状態の解析」、2020～2022 年度、X 線自由電子レーザー施設 SACLA を用いたコヒーレント回折イメージングにより燃料電池用触媒材料評価を実施する。

4.10 受賞

該当なし

4.11 社会教育活動

a. 公的機関の委員

- 2) 西野 吉則: 日本学術会議連携会員 (2017 年 10 月 01 日～現在)
- 3) 西野 吉則: 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 06 月 16 日～現在)
- 4) 西野 吉則: 公益財団法人 新世代研究所 バイオ単分子研究会 委員長 (2015 年 04 月 01 日～現在)
- 5) 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

- 6) 西野 吉則: SACLA ユーザー協同体 評議員 (2013 年 05 月 01 日～現在)
- 7) 西野 吉則: X線結像光学研究会 幹事 (2015年12月16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) 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、2020 年 11 月 30 日～2021 年 02 月 03 日
- 2) 工学部、応用光学 II、西野 吉則、2020 年 10 月 01 日

～2021 年 03 月 31 日

- 3) 工学部、生体情報工学実験 II、鈴木 明大、2020 年 10 月 01 日～2021 年 03 月 31 日
- 4) 全学共通、環境と人間「ナノテクノロジーが拓くバイオサイエンスの新潮流」、西野 吉則、2020 年 08 月 07 日
- 5) 情報科学研究科、ナノイメージング特論、西野 吉則、2020 年 04 月 01 日～2020 年 06 月 12 日
- 6) 工学部、生体情報工学実験 I、鈴木 明大、2020 年 04 月 01 日～2020 年 09 月 30 日
- 7) 工学部、情報エレクトロニクス演習(電気回路)、鈴木 明大、2020 年 04 月 01 日～2020 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) 西野 吉則、National Chiao Tung University Center for Emergent Functional Matter Science、Controlled Environment Nano-Imaging Free From Radiation Damage by X-ray Laser Diffraction、2020 年 09 月 21 日
- 2) 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線顕微鏡法、2020 年 6 月 18 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人

博士学位: 0人

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。

分子フォトンクス研究分野

教授 BIJU Vasudevan Pillai (Kerala大学、Ph.D.化学、2016.2～)

准教授 高野 勇太 (筑波大学、博士(理学)、2017.4～)

助教 柚山 健一 (奈良先端大、博士(工学)、2016.10～2020.6)、SUBRAMANYAM Palyam (Indian Institute of Technology Hyderabad、Ph.D.化学、2020.12～)

事務補助員 藤井 敦子

博士研究員 岡本 拓也 (大阪市立大学、博士(理学)、2020.4～)、Devika Sasikumar (北海道大学、博士(環境科学)、2020.4～2020.6)

博士課程 Lata Chouhan, Bhagya Lakshmi, Md Shahjahan, Sachith Mahesha, Jeladhara Sobhanan

修士課程 Hanjun Zhao, Danyang Chen, Feijun Xu, Zhijing Zhang (環境科学院)

1. 研究目標

本研究分野は、半導体量子ドットおよび有機分子材料における新規光学特性と量子効果を利用した有機・無機フォトンクス材料の開発と、それらを利用したレーザー光学技術の開発および細胞工学向け応用利用技術の開発を目標としている(図1)。

新たなフォトンクス材料やレーザー光学技術開発は、高性能の発光性材料や光発電材料、医療向けの光検知試薬や光治療薬、レーザー加工技術における技術革新やブレークスルーをもたらすことが期待される。

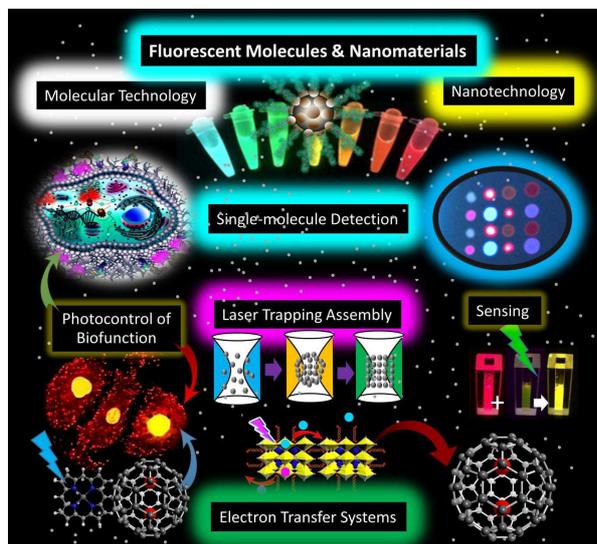


図1 本研究分野の研究概要

2. 研究成果

半導体性ナノ結晶は、ナノサイズの量子効果に基づく特異な発光性を有することが知られており、新規発光材料や、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

れているフォトンクス材料である。なかでも量子効果を発現するナノスケールサイズ (<20 nm) の半導体性量子ドット (ナノ結晶) は、ユニークな発光特性や電子・正孔輸送特性を持つため、次世代材料として研究が盛んに行われている。また一方、ペロブスカイト型結晶は、比較的安価な原料を元に、極めて高い電子・正孔輸送特性や発光性を有するために、近年特に注目を集めている半導体性材料である。

われわれのグループは、種々のペロブスカイト型ナノ結晶において1分子レベルで光学特性観察を行うことによって、その実用化に向けて有用な知見を発見してきている。

一例として、イオン的大きく電子的な欠陥がペロブスカイトおよびそのデバイスの安定性と耐久性に与える悪影響を明らかにした(図2)【資料4.1-1】。ペロブスカイト型結晶の欠陥は、内在的なものや、酸素、水分、光などの環境因子によって生じるもので、ペロブスカイトの構造や特性を崩壊させる化学反応を引き起こすだけでなく、ペロブスカイト量子ドットやナノクリスタルに望ましくないフォトルミネッセンスブリンキング (明滅) を誘発する。今回の我々の研究により、MAPbBr₃および MAPbI₃ペロブスカイト量子ドットにおいてハロゲン化物前駆体 (MABr および MAI) を用いて空孔を充填して欠陥補修することで、ハロゲン化物空孔による非放射性励起子再結合およびフォトルミネッセンスブリンキングをリアルタイムに抑制できることを見出した。また、ハロゲン化物の空孔充填により、量子ドットのフォトルミネッセンス量子効率と寿命が向上することがわかった。

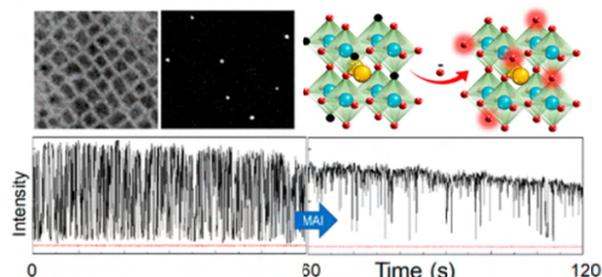


図2 ペロブスカイトナノ結晶におけるフォトルミネッセンスブリンキングのリアルタイム抑制【資料 4.1-1】

また、レーザートラッピング技術を応用した、ペロブスカイト材料改変技術の開発も行った(図3)【資料4.1-2】。ハロゲン化物ペロブスカイトのバンドギャップを調整できるアニオン交換反応は、ハロゲン化物の空孔を介したイオンの移動によって進行する。交換反応は、結晶をハロゲン化物前駆体溶液で処理することで均一に進行する。我々の研究では近赤外レーザーの集光ビームを利用照射しながらハロゲン化物空孔を充填することで、結晶の特定部位で局所的に反応が抑制できることを見出した。結晶の特定部位のハロゲン化物空孔の密度を制御することで、結晶中の電荷キャリアの非放射性再結合の速度を制御することができる

ことを見出した。このレーザーを用いた遠隔操作によるハロゲン化物空洞充填は、ペロブスカイト型の高品質な光電変換素子やオプトエレクトロニクス素子の設計・作成において、結晶品質やフォトルミネッセンスの局所的な制御に役立つと考えられる。

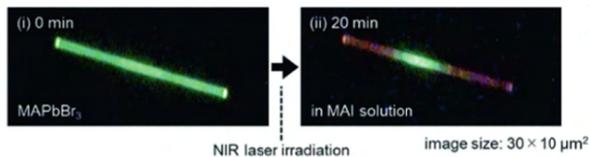


図3 レーザートラッピング技術を用いた、ペロブスカイト結晶における部分的材料改変【資料 4.1-2】

一方、光機能性分子の開発により細胞膜機能の光制御技術の確立も行っている。光の中でも、特に近赤外光（NIR光）を用いた細胞活動の制御は、生体組織への浸透性が高いという利点があるため、生きた細胞を操作する技術として期待されている。我々の研究により、膜電位の近赤外光制御を実現する π 拡張型 porphyrin-fullerene 連結分子を設計・合成した【資料4.1-4】。親水性のトリメチルアンモニウム部位を有する本開発分子は、NIR 光による分子内電荷分離を介して PC12細胞の膜電位を変化させることに成功した。

その他にも、ナノ材料の生体応用に向けた毒性の解明や薬物担体としての開発も行っている。重金属を用いるペロブスカイトや量子ドットなどの半導体ナノ材料は、光電変換、光電子デバイス、生体分析、光線治療、消費者向け健康製品などに応用するために生産量が増加している。しかし同時に、これら新規材料が潜在的に有するナノ毒性に関する懸念が生じている。われわれは研究により、光照射に伴う、重金属ベースの人工ナノ材料の健康と環境への影響の一部を明らかにした(図4)【資料4.1-5】。具体的に、サブミクロレベルの Pb^{2+} または Cu^{2+} が H1650細胞に対して、 Cd^{2+} に比べて深刻な細胞毒性や遺伝子毒性を引き起こさないことを示した。しかし、サブマイクロレベルの Pb^{2+} にさらされたモデル神経細胞(PC12)では、細胞増殖と DNA 損傷が検出された。今回の結果と文献の報告から、 Pb^{2+} の細胞増殖および遺伝子毒性は、DNA 修復酵素の不活性化、 Ca^{2+} 依存性キナーゼの活性化、ミトコンドリアへの Ca^{2+} 流入の増加、酸化ストレスが原因であると考えられる。したがって、ナノ材料の健康への影響を理解するためには、 Pb^{2+} や他の重金属イオンからなるナノ粒子を用いた酸化ストレスの *in vitro* および *in vivo* 研究の重要性が明らかとなった。

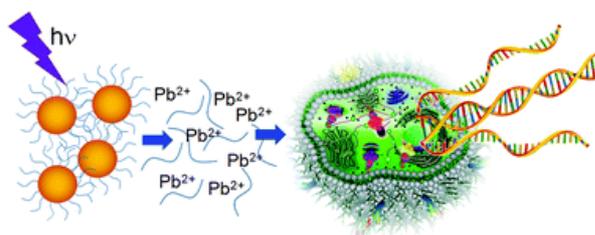


図4 重金属を用いたペロブスカイトや量子ドットなどの半導体ナノ材料における、光照射に伴う細胞毒性の解明研究【資料 4.1-5】

これら金属ベースのナノ材料と異なり、炭素ベースのナノ材料（カーボンナノマテリアル）は、生体毒性のほとんど無いナノ医療向け材料として期待され、近年研究が進められている。しかしカーボンナノチューブやカーボンナノホーンは、液体中での凝集性が強いことがしばしば問題となるため、薬剤として利用するためには、凝集性を制御した上での医療向け材料応用が必要となる。われわれの研究は、医薬品として承認されているある種の薬剤が、本来の薬効を発揮すると同時に、カーボンナノ材料の分散を助けるという二重の機能を持っていることを明らかにした(図5)【資料4.1-6】。ドラッグ/ナノカーボン複合体は、ドラッグデリバリーに応用できる可能性があるため、本研究成果は余計な分散材を用いない効果的な薬剤開発につながる知見である。

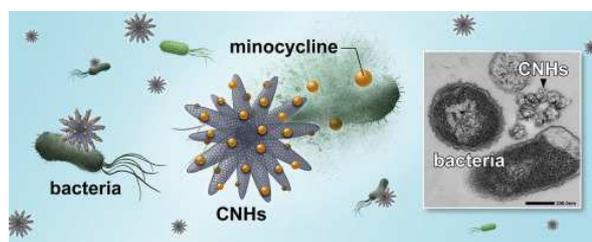


図5 医薬品承認されている薬剤による、カーボンナノ材料の分散と薬効発揮の二重機能性の発見【資料 4.1-6】

以上のように我々は、半導体量子ドットや有機化合物、カーボンナノマテリアルをベースとしたフォトンクス材料の開発を基に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を見出してきている。

3. 今後の研究の展望

今後も、ペロブスカイト型結晶や半導体量子ドット、各種有機分子についての新規合成手法の開発から基礎物性解明、応用利用についての包括的研究の遂行を行う。そして、新規発光性材料の発見や細胞間コミュニケーションの新規解明を目指したプローブ材料の開発および利用技術開発を行う。以上を通して、ナノ材料分野や生物有機化学、光物理学にわたって応用可能な革新的光学分子材料の開発技術基盤の探索と構築を行っていく。

4. 資料

4.1 学術論文 (査読あり)

- 1) L. Chouhan, S. Ito, E. M. Thomas, Y. Takano, S. Ghimire, H. Miyasaka, V. Biju: “Real-Time Blinking Suppression of Perovskite Quantum Dots by Halide Vacancy Filling”, *ACS Nano*, ACS, 12(2): 2831-2838 (2021)
- 2) M. Shahjahan, K. Yuyama, T. Okamoto, V. Biju: “Heterojunction Perovskite Microrods Prepared by Re-

mote-Controlled Vacancy Filling and Halide Exchange”, *Adv.Mater. Technol.*, Wiley, 6: 2000934 (2021)

- 3) P. Subramanyam, D. Melepurath, R. S. Sai, H. Misawa, V. Biju and C. Subrahmanyam: “A Photoanode with Plasmonic Nanoparticles of Earth Abundant Bismuth for Photoelectrochemical Reactions”, *Nanoscale Advances*, Royal Society of Chemistry, 2: 5591-5599 (2020) 【電子研内共著】
- 4) Y. Takano, K. Miyake, J. Sobhanan, V. Biju, N. V. Tkachenko and H. Imahori: “Near-infrared light control of membrane potential by an electron donor-acceptor linked molecule”, *Chemical Communications*, 56: 12562-12565 (2020)
- 5) J. Sobhanan, P. Jones, R. Kohara, S. Sugino, M. Vacha, C. Subrahmanyam, Y. Takano, F. Lacy and V. Biju: “Toxicity of Nanomaterials Due to Photochemical Degradation and the Release of Heavy Metal Ions”, *Nanoscale*, Royal Society of Chemistry, 12: 22049-22058 (2020)
- 6) Y. Maeda, E. Hirata, Y. Takano, N. Sakaguchi, N. Ushijima, A. Saeki, S. Kimura, K. Shibata, M. Yudasaka and A. Yokoyama: “Stable aqueous dispersions of carbon nanohorns loaded with minocycline and exhibiting antibacterial activity”, *Carbon*, Elsevier, 166: 36-45 (2020).

4.2 学術論文 (査読なし)

- 1) K. Yuyama, I. M. Jahidul and V. Biju: “Spatio-temporally-controlled synthesis of lead halide perovskite crystals by laser trapping”. *Proceedings of the Optical Manipulation and Structured Materials Conference 2020*, International Society for Optics and Photonics, 11522: 115220M (2020).

4.3 総説・解説・評論等

- 1) L. Chouhan, S. Ghimire, C. Subrahmanyam, T. Miyasaka and V. P. Biju: “Synthesis, optoelectronic properties and applications of halide perovskites”, *Chemical Society Reviews*, Royal Society of Chemistry, 49(10): 2869-2885 (2020)
- 2) P. Kumar, J. Sobhanan, Y. Takano, V. Biju: “Molecular recognition in the infection, replication, and transmission of COVID-19-causing SARS-CoV-2: an emerging interface of infectious disease, biological chemistry, and nanoscience”, *NPG Asia Mater. Nature Springer*, 13: 14 (2021).

4.4 著書

- 1) S. Ghimire, L. Chouhan, V. P. Biju: 「The Confinement and Migration of Charge-Carriers in Lead Halide Perovskites in Photosynthetic Responses in Molecules and Molecular Aggregates」, *The Confinement and Migration of Charge-Carriers in Lead Halide Perovskites in Pho-*

tosynthetic Responses in Molecules and Molecular Aggregates, Nature Springer (2020)

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*: “Semiconductor Nanocrystals: The Promises and Challenges in the Nanoworld”, MATCON 2021, web, India (2021-03)
- 2) V. P. Biju*: “Semiconductor Nanocrystals: The Promises and Challenges in the Nanoworld”, Scientific Symphoria 2020, web, India (2020-05)

b. 招待講演 (国内学会)

- 1) 高野 勇太*, 山田 勇磨: 「革新的3次元細胞培養デバイスを利用した 高性能ミトコンドリア標的型光がん治療薬の開発」, 第6回北海道大学部局横断シンポジウム、北海道大学 Web 上, Japan (2020-10)

c. 一般講演 (国際学会)

- 1) S. B. Bhagya Lakshmi* and V. Biju: “Single Particle Electroluminescence Blinking Revealing Switching Between the Emitting and Quenching Sites in MAPbBr₃ Perovskites”, 21st RIES-HOKUDAI international symposium, 北海道大学 Web 上, Japan (2020-12)
- 2) J. Sobhanan *, Y. Takano and V. Biju: “Multimodal Detection of Circulating Tumor Cells Using Multifunctional Silica Particles”, 21st RIES-HOKUDAI international symposium, 北海道大学 Web 上, Japan (2020-12)
- 3) L. Chouhan* and V. Biju: “Real-time Suppression of Photoluminescence Blinking in Lead Halide Perovskite Quantum Dots”, 21st RIES-HOKUDAI international symposium, 北海道大学 Web 上, Japan (2020-12)
- 4) T. Okamoto*, M. Shahjahan, S. B. Bhagya Lakshmi and V. Biju: “An Evaluation of Shape-dependent Kinetics of Defect Filling in Organolead Halide Perovskites”, 21st RIES-HOKUDAI international symposium, 北海道大学 Web 上, Japan (2020-12)
- 5) F. Xu*, T. Okamoto, M. Shahjahan and V. Biju: “Defect-dependent amplified emission from a lead halide perovskite”, 21st RIES-HOKUDAI international symposium, 北海道大学 Web 上, Japan (2020-12)
- 6) H. Zhao*, D. Sasikumar, Y. Takano and V. Biju: “Fluorescence detection of singlet oxygen by a rhodamine 6G-anthracene conjugate”, 21st RIES-HOKUDAI international symposium, 北海道大学 Web 上, Japan (2020-12)
- 7) Z. Zhang*, S. Ghimire and V. Biju: “Mechanically Controlled Photoluminescence of Formamidinium Lead Bromide Perovskite Quantum Dots by Making and Breaking As-

semblings”, 21st RIES-HOKUDAI international symposium, 北海道大学 Web 上, Japan (2020-12)

- 8) M. Shahjahan*, K. Yuyama and V. Biju : “Heterojunction Perovskite Microrods Prepared by Remote-controlled Vacancy Filling and Halide Exchange”, The 21st RIES-HOKUDAI International symposium, 北海道大学 web, Japan (2020-12)
- 9) M. B. Sachith*, S. Ghimire, Y. Takano and V. Biju: “Electron Transfer from Perovskite Films Controlled by Controlling the Diffusion of Photogenerated Charge Carriers”, The 21st RIES-HOKUDAI International symposium, 北海道大学 web, Japan (2020-12).
- 1 0) K. V. Seshaiyah, L. Chouhan, V. Biju, and S. S. K. Raavi: “SPR induced photoluminescence quenching in quantum MAPbBr₃-QD/TiO₂ interface”, Optical Devices and Materials for Solar Energy and Solid-state Lighting, Optical Society of America, USA (2020-07).
- 1 1) J. Sobhanan, Y. Takano, V. Biju: “Gravity Separation and Microspectroscopic Detection of Circulating Tumor Cells in the Blood”. MATERIALS FOR THE MILLENNIUM MATCON 2021), Cochin University, India (2021-03).
- 1 2) V. Biju: “The Tale of Two Quantum Dots: Photoluminescence Blinking vs. Photochemical Stability”. MATERIALS FOR THE MILLENNIUM MATCON 2021), Cochin University, India (2021-03).
- 1 3) V. Biju: “The Tale of Two Nanocrystals: Fluorescence Blinking and Stability of Single Particles”. Advanced Materials Conference Series, International Association of Advanced Materials (IAAM), Sweden (2021-03).
- 1 4) V. Biju: “Semiconductor Nanocrystals: the Promises and Challenges in the Nanoworld”. Scientific Symphoria 2020, Marivanos College, India (2020-05).

d. 一般講演 (国内学会)

- 1) Z. Zhang*, S. Ghimire and V. Biju : “ペロブスカイト量子ドットからの凝集誘起調整可能発光”, The 101st Annual Meeting Meeting of the Chemical Society of Japan, web, Japan (2021-03)
- 2) M. B. Sachith*, Y. Takano and V. Biju : “Trapping Photogenerated Charge Carriers in Perovskite Nanocrystal Films by Doping with Electron Scavengers”, The 101st Annual Meeting Meeting of the Chemical Society of Japan, web, Japan (2021-03)
- 3) J. Sobhanan *, Y. Takano and V. Biju : “Multimodal Detection of Circulating Tumor Cells Using Multifunctional Silica Particles”, The 101st Annual Meeting Meeting of the Chemical Society of Japan, web, Japan (2021-03)
- 4) M. B. Sachith*, L. Chouhan and V. Biju : “Optically-controlled halide vacancy filling in perovskite microcrystals”, 2020 年 web 光化学討論会, web, Japan (2020-09)

- 5) S. B. Bhagya Lakshmi*, Y. Takano and V. Biju : “Electroluminescence intermittency and spectral fluctuations of MAPbBr₃ perovskite single particles”, 2020 年 web 光化学討論会, web, Japan (2020-09)
- 6) L. Chouhan*, Y. Takano, S. Ito, H. Miyasaka and V. Biju : “Photoluminescence Blinking Suppression in Lead Halide Perovskite Quantum Dots Revealed by Single-molecule Spectroscopy”, 2020 年 web 光化学討論会, web, Japan (2020-09)
- 7) M. B. Sachith*, L. Chouhan and V. Biju : “Doping-induced carrier dynamics in lead halide perovskite films”, 2020 年 web 光化学討論会, web, Japan (2020-09)
- 8) Z. Zhang*, S. Ghimire and V. Biju : “Reversibly controlled Photoluminescence of formamidinium lead bromide perovskite quantum dots by making and breaking assemblies”, 2020 年 web 光化学討論会, web, Japan (2020-09)
- 9) D. Chen*, Y. Takano, Y. Myamada, N. Kirkwood, P. Mulvaney and V. Biju : “A mitochondria targeting liposomal nanocarrier encapsulating highly-luminescent and stable quantum dots”, 2020 年 web 光化学討論会, web, Japan (2020-09)
- 1 0) T. Okamoto*, M. Shahjahan, S. B. Bhagya Lakshmi and V. Biju : “An Evaluation of Shape-dependent Defect Distribution in Organolead Halide Perovskites”, 2020 年 web 光化学討論会, web, Japan (2020-09)
- 1 1) F. Xu*, Shahjahan, T. Okamoto and V. Biju : “Defect-dependent amplified emission from lead halide perovskites”, 2020 年 web 光化学討論会, web, Japan (2020-09)
- 1 2) Y. Takano*, D. Sasikumar and V. Biju : “High efficiency photothermal conversion of 9-substituted acridinium using photo-induced metastable betaine”, 2020 年 web 光化学討論会, web, Japan (2020-09)

e. 研究会・シンポジウム・ワークショップなど (学会以外)

- 1) M. B. Sachith*, S. Ghimire, Y. Takano and V. Biju : “Distance dependent trapping of photogenerated charge carriers in perovskite nanocrystal films”, 日本化学会北海道支部 2021 年冬季研究発表会, web, Japan (2021-01)
- 2) S. B. Bhagya Lakshmi and V. Biju : “Single Particle Electroluminescence Blinking Revealing Real-time Switching Between Emitting and Quenching Sites in MAPbBr₃ Perovskites”, 日本化学会北海道支部 2021 年冬季研究発表会, web, Japan (2021-01)
- 3) M. Shahjahan*, K. Yuyama and V. Biju : “Site specific halide vacancy filling in perovskite microcrystals by optical trapping”, 日本化学会北海道支部 2021 年冬季研究発表会, web, Japan (2021-01)
- 4) L. Chouhan* and V. Biju : “Photoluminescence blinking in

lead perovskites assisted by halide vacancy”, 日本化学会北海道支部 2021 年冬季研究発表会, web, Japan (2021-01)

- 5) M. B. Sachith*, S. Ghimire and V. Biju : “Long range diffusion and precise confinement of charge carriers in lead halide perovskite nanocrystal films”, 第6回北海道大学部局横断シンポジウム, web, Japan (2020-10)
- 6) J. Sobhanan*, Y. Takano and V. Biju : “Cytotoxicity and Genotoxicity of Engineered Nanomaterials due to the Release of Heavy Metal Ions”, 第6回北海道大学部局横断シンポジウム, web, Japan (2020-10)
- 7) 窪田 文佳*, 山田 勇磨, サトリアルディ -, 高野 勇太, 真栄城 正寿, 原島 秀吉 : 「癌光治療を可能とするミトコンドリア標的型ナノキャリアの構築及び機能評価」, 日本薬学会北海道支部第 147 回例会, 北海道大学薬学部, (2020-05)
- 8) V. P. Biju* : “Fundamentals and applications of semiconductor quantum dots”, Seminar, 群馬高専 web, Japan (2020-06)

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

- 1) ナノアセンブリ研究分野 (P I : 中村貴義教授) との、新規半導体ナノ結晶の X 線構造解析による新規開発半導体材料の構造解明。
- 2) ナノ材料計測研究分野 (P I : 雲林院宏教授) との、細胞間コミュニケーションの解明に受け光機能性材料開発と分光測定

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) 台湾国立交通大学の増原教授、杉山副教授と光トラッピング技術に関する共同研究。
- 2) インド Mahatma Gandhi 大学の Raju Francis 教授と量子ドットを用いた新規ポリマー材料開発。
- 3) フィンランド Tampere 大学の Nicolai Tkachenko 教授と分子の光励起ダイナミクスに関する研究。

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, 基盤研究 B 一般, Defect-free, Highly-luminescent and Non-blinking Perovskite Nanocrystals, 2019~2022 年度

b. 大型プロジェクト・受託研究

- 1) 高野 勇太, ノーステック財団 (ノースタレント補助金)、カーボンナノホーン複合化による光治療デメンタ

ルインプラント材料の開発、2020 年度

- 2) 袖山 健一、CREST 共同研究者、光渦が拓く超解像スピンジェット技術、2019~2022 年度

4.10 受賞

- 1) 岡本 拓也、2020年度第2回「物質・デバイス共同研究賞」、2020年8月
- 2) 高野 勇太、最優秀講演賞、第6回北海道大学部局横断シンポジウム、2020年10月
- 3) Jeladhara Sobhanan、Best poster award in The 21st RIES-HOKUDAI International Symposium、2020年12月
- 4) 岡本 拓也、井上研究奨励賞、2020年12月
- 5) S. B. Bhagya Lakshmi、101st CSJ Annual Spring Meeting (2021) Student Presentation、2021年3月
- 6) V. Biju, IAAM Medal, International Association of Advanced Materials (IAAM), Sweden, 2021年3月

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) Biju Vasudevan Pillai : 日本化学会北海道支部幹事
- 2) 高野 勇太 : FNTG学会ナノカーボンバイオシンポジウム運営委員

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)

- 1) 地球環境科学研究科、環境物質科学基礎論 II、高野 勇太、2020年4月01日~2020年08月31日
- 2) 地球環境科学研究科、光電子科学特論 I、Vasudevan Pillai Biju、高野 勇太、2020年10月1日~2021年03月31日
- 3) 地球環境科学研究科、環境物質科学特別講義 III、V. Biju、2020年10月1日~2020年3月31日
- 4) 地球環境科学研究科、環境物質科学特別講義 IV、V. Biju、高野 勇太、2020年10月1日~2020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

該当なし

h. ポスドク・客員研究員など

- 1) 岡本 拓也 (日本学術振興会特別研究員、2020年4月~)
- 2) Devika Sasikumar (学術研究員、2020年4月~2020年6月)

i. 修士学位及び博士学位の取得状況

修士学位 : 1 人

- 1) Hanjun Zhao、環境科学院 : 環境科学、Development of

Rhodamine6G-Anthracene Linked Molecules for Spatio-temporal Detection of Singlet Oxygen

博士学位：0人

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～)
准教授 Yuna KIM (Yonsei University、工博、2011.8～)
助教 松尾和哉 (京都大院、工博、2015.6～)
事務補助員 小林恵美 (2019.1～2021.1)
学生
博士課程 Sampreeth THAYYIL、Shariful HAQUE、
THAZHATHETHIL Shakkeeb
修士課程 植田海透、斉嘉俊、林潤澤、湯谷真也、
許楚晗
学部生 水島岳、森美紀

1. 研究目標

生体内では、DNA、タンパク質、糖、脂質などが、生体内外の刺激を受け、分子構造、集合状態、他の分子との相互作用を変化させることで結果的に情報を処理して、何らかの最終的な化学的または物理的变化として出力を行う、いわゆる「スマート分子」として働いている。われわれは、スマート分子を合成によって創成することを目的として、光等の刺激によって構造変化を示す分子の合成、分子構造変化によって誘起される分子集合状態や他の分子との相互作用の変化の解析を行っている。具体的には、光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) *Cis*-active 光制御型 CENP-E 阻害剤の開発

近年、光スイッチを薬剤に導入した光薬理学ツールの開発が盛んに行われている。「光」は時空間制御能に優れ、その卓越したリモート操作性や可逆性、スイッチング能などから、生体機能をピンポイントに操作するために汎用される非侵襲的な外部刺激である。これまでに、当研究室では、光刺激によって可逆的な *trans*-*cis* 光異性化反応を示すアゾベンゼン誘導体を利用し、光制御型三リン酸誘導体 (基質アナログ) や光制御型阻害剤を開発することで、モータータンパク質キネシンやミオシンの動きを光制御することに成功した。最近では、細胞分裂時、特に細胞分裂の前中期に機能するモータータンパク質 CENP-E (Centromere-associated protein E) を光で制御できる阻害剤1により、細胞分裂を光操作する手法を報告した (図1a)。

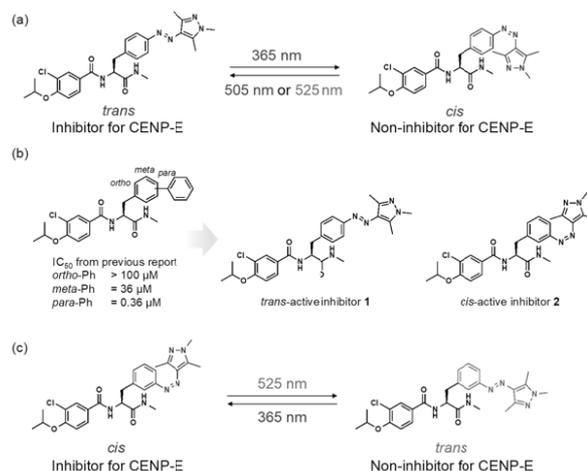


図1 (a) 以前開発した光制御型CENP-E阻害剤1 (*trans*-active inhibitor)の光応答性、(b)今回開発した*cis*-active光制御型CENP-E阻害剤2の光応答性

これまでに我々が開発した光薬理学ツールの多くは、熱力学的に安定な *trans* 体で、基質や阻害剤として機能し、*metastable* な *cis* 体では機能しなかった。そのため、光照射する前の「初期状態」で、生体機能を変化させてしまう。初期状態では機能せず、光照射によって初めて機能する光薬理学ツールは、光トリガーで生体機能を精密に操作できるため、理想的であると考えられる。

そこで、本研究では、*trans*-active な CENP-E 阻害剤1を基盤として、構造活性相関研究を基にした合理的分子設計により、*cis*-active な光制御型 CENP-E 阻害剤2を開発した。過去の CENP-E 阻害剤における構造活性相関結果 (S. D. Knight *et al.* *ACS Med. Chem. Lett.* **2010**, *1*, 30.) から、phenylalanine 誘導体の phenyl 基周辺の立体構造が、CENP-E 阻害能に大きく影響することが考えられた (図1b)。この情報から、アゾピラゾール部位が *para* 位に導入された1では、*trans* 体において、CENP-E との結合サイトと優位に相互作用するが、*cis* 体では立体的に不利になると考えられた。そこで、アゾピラゾール部位を *meta* 位に導入した2を設計した (図1c)。2は、*trans* 体では立体的に不利となり、折れ曲がった *cis* 体では CENP-E との結合サイトとうまく相互作用すると考えた。

実際に、2を化学合成し、その光応答性を UV-Vis スペクトルにより検討した (図2)。光照射前には、アリルアゾピラゾール誘導体に特徴的な、よく分離した π - π^* 遷移および n - π^* 遷移が観測された。また、365, 405, 430, 450, 505, 525 nm の光を照射したところ、それぞれの光定常状態におけるスペクトルが観測され、特に365 nm の光照射時には95%の *cis* 体が確認され、525 nm の光照射では93%の *trans* 体が確認された。以上から、365 nm と 525 nm の光を利用することで、ほぼ定量的な *cis*-*trans* 光異性化反応を呈し、これは何度でも繰り返すことができた (図2b)。

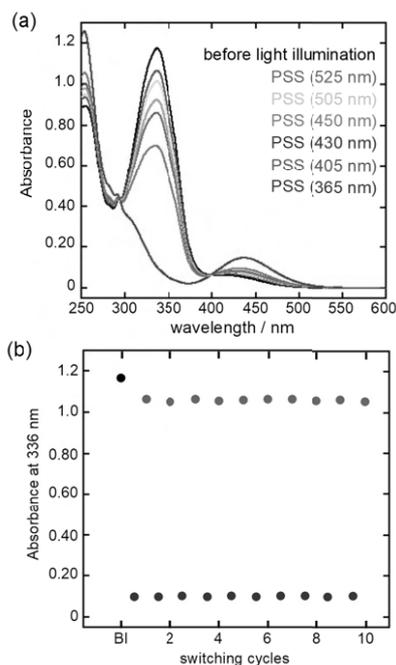


図2 (a) 2における光照射依存的な吸収スペクトル変化、(b) 2に365 nmおよび525 nmの光を繰り返し照射した際の吸光度変化

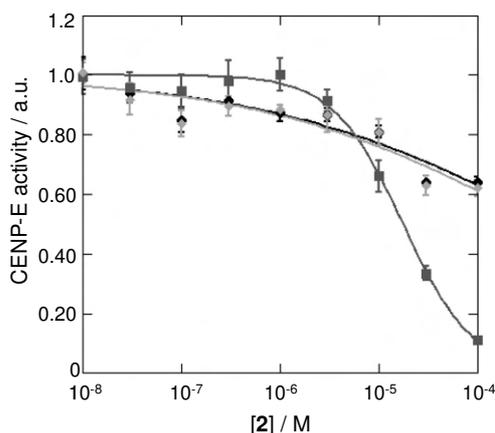


図3 2によるCENP-E ATPase活性の阻害能評価 (●: 光照射無し、■: 365 nmの光照射時、◆: 525 nmの光照射時)

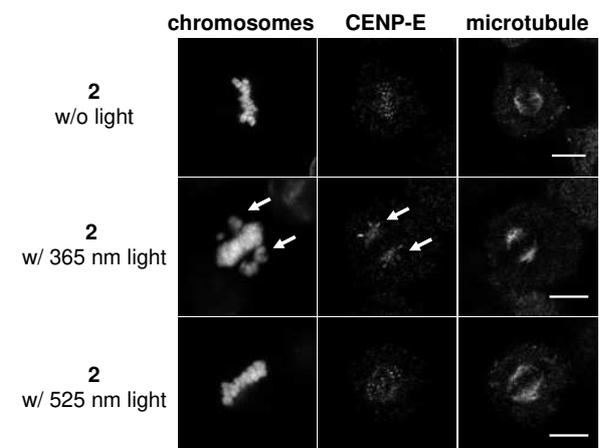


図4 HeLa細胞における染色体およびCENP-Eの局在変化の光制御 (免疫染色により、染色体: DAPI、CENP-E: anti-CENP-E antibody、微小管: Anti-alpha-Tubulin Antibodyで染色した。) Scale bar: 5 μm. 矢印は、ミス配置した染色体あるいはCENP-Eを示す。

次に、精製 CENP-E を利用した *in vitro* ATPase assay を行った (図3)。CENP-E は ATP を加水分解することで得られる化学的エネルギーを動きへと変換できるモータータンパク質である。そのため、2 の存在下、CENP-E の ATPase 活性を測定することで、CENP-E 阻害能を評価した。光照射前および525 nm の光照射時の *trans* 体が優先する条件では、50%阻害濃度 (IC₅₀) は100 μM 以上であったのに対し、365 nm の光照射によって誘起される *cis* 体優先条件では、IC₅₀ = 18 μM と阻害効果を示した。以上から、2 は、*in vitro* の系において、*cis*-active な CENP-E 阻害剤であることが確認できた。

また、CENP-E は、分裂期細胞において複製された染色体を紡錘体極から赤道面へと運搬する役割を持つ。そのため、CENP-E が活性な状態では、染色体および CENP-E の局在は赤道面と一致するが、CENP-E が阻害されると、それらの一部は、紡錘体極に蓄積される。そこで、100 μM の 2 の存在下、HeLa 細胞を用いて、染色体および CENP-E の局在を、免疫染色法により確認した (図4)。その結果、光照射しない時あるいは 525 nm の光照射時 (*trans* 体優先条件) には、染色体および CENP-E の局在は赤道面に一致していた。これに対し、365 nm の光照射時 (*cis* 体優先条件) には、一部の染色体および CENP-E は紡錘体極付近で観察された (図4 矢印部分)。以上から、2 は細胞内でも機能する *cis*-active な CENP-E 阻害剤であることが確認できた。

得られた *cis*-active な光制御型 CENP-E 阻害剤 2 の阻害能は高くないため、染色体の動きをダイナミックに制御するなどの実践的な使用には向いていない。そこで、今後は、更なる構造活性相関を展開し、阻害能を向上させることを目指す。

(b) 糖鎖環状アゾベンゼン構造を持つ液晶用光応答性キラル添加剤

新規光応答性キラルドーパントとして糖を含む大環状アゾベンゼン誘導体 (図1) を導入したコレステリック液晶 (CLC) を用いて、紫外線 (365 nm) ・可視光 (510 nm) 照射によるらせん液晶構造の可逆的な動的制御に初めて成功した。特に、紫外線照射によるトランス体からシス体への光異性化の過程により、11.9 μm⁻¹ の初期状態のねじり力が、光定常状態で 72.3 μm⁻¹ まで

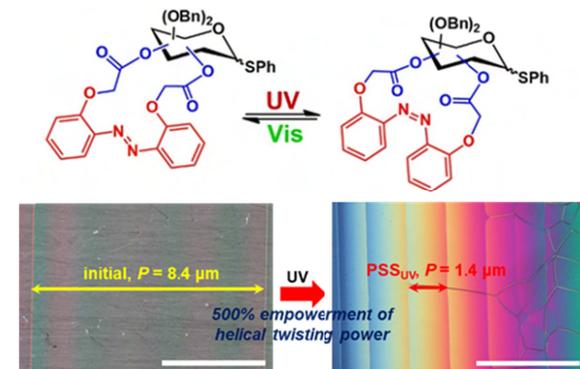


図1 糖を含む大環状アゾベンゼン誘導体の光異性化 (上) およびカルノーセルで観察した CLC らせん周期の長さの

光制御 (下)

で増幅した。結果的に、1/6程度のらせん周期の長さの短縮(図1、ネマティック液晶のZLI-1132に1wt%ドーブ)あるいはらせんねじれ力の最大500%の増加が観察された。この結果は、density functional theory(DFT)法による分子構造最適化・エネルギー計算で、アゾベンゼン部位のトランス体からシス体への光異性化が、C-N=N-Cのねじれ角を減少させ、かつ環サイズの縮小を誘起することが確認できた。このような分子構造の変化は、分子内および分子間-超分子相互作用を効果的に増強し、ドーパント分子の糖ユニットからのキラリティー伝達に非常に有利な形状がシス体で得られることが示唆され、実験結果をうまく説明した。また、このCLC薄膜上において、紫外光と可視光を交互に照射することによる液晶のダイナミックな再配向により、微小物体の1方向の回転運動を連続的に実現することができた。(図2)

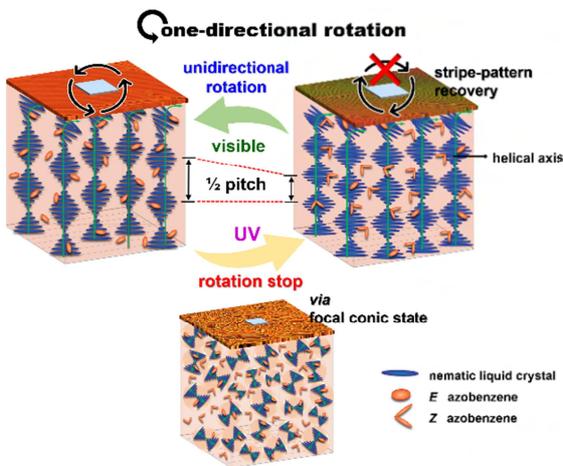


図2 光誘起 E-Z 異性化反応におけるキラル液晶の再配向およびミクロン物体の紫外線-可視光照射による可逆的な一方向回転運動を示す模式図

3. 今後の研究の展望

光応答性CENP-E阻害剤については、光照射によって初めて阻害効果が発揮される化合物を合成することができた。これにより、光照射するまでは全く細胞に影響を与えないのでより使いやすい分子ツールになったと言える。ただ、今回の化合物でも、阻害効果のスイッチングに紫外光を当てなくてはならず、また、状態をもとに戻すために緑色光を照射する必要がある。紫外光は一般に細胞毒性を示すし、このように2つの波長の光を用いる場合には細胞内部の限定した場所にだけ当てることは技術的に困難である。今後は、1波長の可視光のみを用いて、光を当てている間のみ阻害効果が変化する光応答性阻害剤を開発する予定である。光があたっていない場所では、自発的に阻害効果がもとに戻ることで細胞内の1部分のみの阻害剤の状態を変化させることが可能となり、染色体を選んで制御できる可能性がある。

液晶系分子機械の研究では、糖を主骨格に含む大環状アゾベンゼンで、トランスからシスへの光異性化反応でキラル添加剤としてのねじり力が増大する現象が見られた。このねじり力の大きさの変化の方向は、従来の多くのアゾベンゼン系キラル添加剤とは逆方向である。このように新規な振る舞いを見せる光応答性キラル添加剤を用いても、「光誘起ねじり力変化が大きいキラル添加剤を用いた場合、光異性化反応の正方向と逆方向の過程を繰り返すことで、テク

スチャーおよび液晶表面上にのせた小物体の連続一方向回転が起こる」という説が正しいということが確認されたことは意義深い。今後は、一定の光照射条件下で、連続一方向回転が起こる液晶分子機械を構築したい。そのためには、これまでに観察されているトランス-シス異性体比のみによって液晶の状態が決まるのではなく、異性体比の変化の方向によってテクスチャーが変化する現象をうまく使いたい。

4. 資料

4.1 学術論文 (査読あり)

- 1) S. Haque, T. Kikukawa, N. Tamaoki, "Photoisomerization of azobenzene units drives the photochemical reaction cycles of proteorhodopsin and bacteriorhodopsin analogues", *Org. Biomol. Chem.*, 18, 6312-6327 (2021)
- 2) Y. Kim, H. Ohmagari, A. Saso, N. Tamaoki, M. Hasegawa: "Electrofluorochromic Device Based on a Redox-Active Europium (III) Complex", *ACS Appl. Mater. Interfaces*, 12 (41) 46390-46396 (2020)
- 3) Y. Kim, N. N. Mafy, S. Maisonneuve, C. Lin, N. Tamaoki, J. Xie: "Glycomacrocycle-Based Azobenzene Derivatives as Chiral Dopants for Photoresponsive Cholesteric Liquid Crystals", *ACS Appl. Mater. Interfaces*, 12 (46) 52146-52155 (2020)
- 4) J. Qi, Y. Kim, K. Takahashi, K. Aoki, I. Hisaki, T. Nakamura, N. Tamaoki: "A Series of Bisamide-Substituted Diacetylenes Exhibiting a Terminal Alkyl Odd/Even Parity Effect on Mechanoactivated Photopolymerization", *Chem. Eur. J.*, 27 (11) 3832-3841 (2021) 【電子研内共著】
- 5) A. Hori, Y. Kim, K. Tahara, T. Kadoya, J. Yamada, K. Kubo: "Unique Solvatochromic Behavior of Unsymmetrical Platinum-Dithiolene Complexes Coordinated by 4,4'-Dinonyl-2,2'-Bipyridine", *Eur. J. Inorg. Chem.*, 2021 (11) 1023-1027
- 6) Y. Sagara, K. Takahashi, T. Nakamura, N. Tamaoki, "Mechanical and thermal stimuli-induced release of toluene included in luminescent crystals as one-dimensional solvent channels", *J. Mater. Chem. C*, 8, 10039-10046 (2020) 【電子研内共著】
- 7) Y. Sagara, K. Takahashi, A. Seki, T. Muramatsu, T. Nakamura, N. Tamaoki, "Two-step mechano-responsive luminescence and mechanical stimuli-induced release of small molecules exhibited by a luminescent cyclophane", 9(5), 1671-177 (2020) 【電子研内共著】

4.2 学術論文 (査読なし)

該当なし

4.3 総説・解説・評論等

- 1) 玉置 信之:「メカノリソグラフィ法: 圧力を情報媒体とする新しい微細加工技術の提案」, *プラスチック*, 71(7): 42-4 (2021)
- 2) 松尾 和哉:「細胞の骨組みの光操作」, *化学*, 76: 63-

4.4 著書

該当なし

4.5 特許

- 久保和也、キムユナ、堀葵、特願2021-51935、「エレクトロクロミックデバイス」、2021.03.26

4.6 講演**a. 招待講演 (国際学会)**

該当なし

b. 招待講演 (国内学会)

- 松尾 和哉*：「細胞分裂を操作する光薬理学ツール」、日本薬学会 第 141 年会、オンライン、2021 年 3 月。

c. 一般講演 (国際学会)

該当なし

d. 一般講演 (国内学会)

- 福島 寛也、森 健介、相良 剛光、小門 憲太、中村 貴義、玉置 信之、中野 英之：「シアノスチルベン系アモルファス分子材料の発光と光反応」、日本化学会 第 101 春季年会、オンライン開催 (2021-03)
- 福島寛也、相良剛光、玉置信之、中野英之：「シアノスチルベン骨格を有する新規発光性アモルファス分子材料の創製」、第 69 回高分子学会年次大会、オンライン開催 (2020-05)
- 福島寛也、森健介、相良剛光、玉置信之、中野英之：「シアノスチルベン骨格を有する新規発光性アモルファス分子材料の創製」、2020 年光化学討論会、オンライン開催 (2020-09)
- 福島寛也、森健介、相良剛光、玉置信之、中野英之：「シアノスチルベン骨格を有する新規発光性アモルファス分子材料の創製」、第 69 回高分子討論会、オンライン開催 (2020-09)
- 福島寛也、森健介、相良剛光、玉置信之、中野英之：「シアノスチルベン骨格を有する新規アモルファス分子材料の創製」、第 10 回 CSJ 化学フェスタ 2020、オンライン開催 (2020-10)
- 福島寛也、森健介、相良剛光、玉置信之、中野英之：「シアノスチルベン系アモルファス分子材料の発光と光反応」、第 39 回固体・表面光化学討論会、オンライン開催 (2020-11)
- 福島寛也、森健介、相良剛光、小門憲太、中村貴義、玉置信之、中野英之：「シアノスチルベン系アモルファス分子材料の発光と光反応」、第 55 回高分子学会北海道支部発表会、オンライン開催 (2021-01)
- 松尾 和哉、Noushaba N. Mafy、比留間 翔太、上原 亮太、玉置 信之*：「モータータンパク質が駆動する分裂期染色体の光操作」、第 14 回バイオ関連化学シンポジウム 2020、オンライン、2020 年 9 月。
- 弓野瑞季、キムユナ、角屋智史、山田順一、久保和也：「2,2'-ビピリジン誘導体とジチオレン配位子をもつ平面四配位型非対称白金錯体の電子状態と伝導材

料への応用」、日本化学会 第 101 春季年会、オンライン開催 (2021-03)

- 荒田園巳、井上智仁、キムユナ、角屋智史、山田順一、久保 和也：「脱プロトン化した 2-フェニルピリジンとビス (アルキルチオ) -TTF-ジチオレン配位子をもつ非対称型金(III)錯体の構造相転移」、日本化学会 第 101 春季年会、オンライン開催 (2021-03)

e. 研究会・シンポジウム・ワークショップなど (学会以外)

- 松尾 和哉*：「染色体の動きを光操作するケミカルツールの開発」、令和二年度 新学術領域研究「高速分子動画」シンポジウム、淡路夢舞台国際会議場、兵庫、2020 年 10 月。
- 松尾 和哉*：「細胞分裂における光薬理学的アプローチ」、第 6 回「高速分子動画」オンラインセミナー、オンライン、2021 年 3 月。
- Y. Kim: “Electrofluorochromic device: a versatile tool to control luminescence of redox-active emitters”, The 3rd Australia-Belgium-Japan joint symposium on excitonics and cellular communication, online (zoom), 2021.03.23
- J. Qi, Y. Kim, K. Takahashi, K. Aoki, I. Hisaki, T. Nakamura, N. Tamaoki: “Terminal alkyl odd-even parity affecting mechano-photoresponsive property of bisamide-substituted diacetylenes”, The 21st RIES- HOKUDAI International Symposium, online, 2020.12.5
- J. Jiao, S. Maisonneuve, Y. Kim, J. Xie: “Synthesis, photochromic and chiroptical properties of photoswitchable glycomacrocycles”, 5th NanoSynergistics Workshop, Paris, France 2020.11.16

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**

- ナノアセンブリ材料研究分野の高橋助教と機械的刺激応答性の結晶材料に関して密接に共同共同研究を行った。
- 薄膜機能材料研究分野 Cho 助教と圧力に応答する熱伝導性を示す結晶材料に関して密接に共同共同研究を行った。

b. 民間等との共同研究

- Yuna KIM、長谷川美貴 (青山学院大学)：「レドックス活性なユロピウム(III)錯体の酸化還元的発光制御」
- Yuna KIM、久保和也 (兵庫県立大学)：「非対称白金錯体エレクトロクロミック材料の開発」

c. 委託研究

該当なし

d. 国際共同研究

- 1) Y. Kim and J. Xie : “Glycomacrocycle-based azobenzene derivatives as chiral dopants for photoresponsive cholesteric liquid crystals”, PPSM, ENS Paris-Saclay, フランス

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) 玉置 信之、基盤研究 B、光異性化反応によるモータータンパク質の駆動の試み、2018~2020 年度
- 2) 松尾 和哉、若手研究(代表)、「モータータンパク質が駆動する細胞分裂の光操作法」、2019-2020 年度
- 3) 松尾 和哉、新学術領域研究 公募班(代表)、「タンパク質のリガンド結合・解離過程の高速分子動画」、2020-2021 年度
- 4) 松尾 和哉、国際共同研究強化(B)(分担)、「少数細胞の分裂異常が個体機能を喪失させる原理の解明」2、019-2023 年度
- 5) Yuna Kim、基盤研究 B(分担)、シクロファン型超分子メカノフォアの開拓と高分子材料への応用展開、2018~2021 年度
- 6) Yuna KIM、基盤研究 C(代表)、選択反射特性を光・電場で自在制御できるマイクロ液晶球体、2019~2021 年度
- 7)

b. 大型プロジェクト・受託研究

- 1) 玉置 信之(公益財団法人小笠原科学技術振興財団): 「圧力誘起光重合性の機構の解明とそれを利用する新規微細加工技術 “メカノリソグラフィ法”の開拓」、2019~2021年度
- 2) 松尾 和哉、JSTA-STEP(トライアウト)(代表)、「可視光で細胞分裂を操作するシステムの開発」、2020-2021 年度
- 3) 松尾 和哉、稲盛財団 2021 稲盛研究助成(代表)、「光細胞工学法の開拓」、2020-2022 年度
- 4) 松尾 和哉、光科学技術研究振興財団 研究助成(代表)、「革新的ケミカルツールによる光細胞治療」、2020-2022 年度
- 5) 松尾 和哉、上原記念生命科学財団 研究奨励金(代表)、「細胞内構造体を光操作する分子ツールの開発」、2020-2022 年度
- 6) Yuna Kim、公益財団法人マツダ財団研究助成、光・電場に鋭敏に応答するコレステリック液晶マイクロカプセルの創製、2018~2020 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

- 1) Yuna KIM: Advisory board, Industrial R&D Project Planning and Verification Team, Korea Institute for Advancement of Technology, Korea (2018.11~present)

b. 国内外の学会の役職

- 1) 松尾 和哉 : 日本化学会 生体機能関連化学部会 若手会幹事 (2018年3月1日~現在)

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)

- 1) 理学部、生物系の熱力学、玉置 信之、2020年4月~2020年6月
- 2) 生命科学学院、生命融合科学概論、玉置 信之、2020年4月22日
- 3) 全学共通、全学教育科目「環境と人間」ナノテクノロジーが拓く光・マテリアル革命、玉置信之、2020年5月4日
- 4) 生命科学学院、生命物質科学特論(分子組織科学)、玉置 信之、2020年11月
- 5) 一般教育演習(フレッシュマンセミナー)、光で探るナノの世界、松尾 和哉、2020年1学期
- 6) 期間大学院共通、Communicating Your Research, Yuna KIM (2020-4~2020-9)
- 7) 全学共通、あなたの研究を伝えよう:生物学研究の発表と論文執筆の技術、Yuna KIM、2020年9月27日~2020年11月29日

f. 北大以外での非常勤講師(対象、講義名、担当者、期間)

- 1) 北海道札幌啓成高等学校、Hokkaido International Science Fair 2021、Yuna KIM、2020.3.12

g. 新聞・テレビ等の報道

- 1) 2020/10/21 北海道大学・青山学院大学ウェブサイトのニュース公開:「高導電性酸化還元型レアアースを用いたデバイスの開発にはじめて成功~新たな仕組みによる発光色調変換型デバイス開発への貢献に期待~」

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: 3人

- 1) 植田海透、生命科学学院生命融合科学コース:生命科学修士、「外部刺激に応答するミオシン阻害剤の開発」
- 2) 齊嘉俊、生命科学学院生命融合科学コース:生命科学修士、「アミド置換ジアセチレン誘導体の圧力誘起光反応における末端アルキル鎖の炭素数偶奇の影響」
- 3) 林潤澤;生命科学学院生命融合科学コース:生命科学修士、「モータータンパク質を駆動するためのヘミインジゴ型光応答性高エネルギー化合物の合成の試み」

博士学位：1人

- 1) Shariful Haque、生命科学院、生命科学博士、” Driving the photochemical reaction cycle of proteorhodopsin and bacteriorhodopsin anaogues by photoisomerization of azo chromophores”

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 黄倉侑人 (M2)
- 小森至瑠 (M2)
- 余 佳興 (M2)
- 周 子凌 (M2)
- 森島一輝 (M1)
- 洪 性百 (M1)
- 王 瀟涵 (M1)
- 成瀬貴彦 (B4)

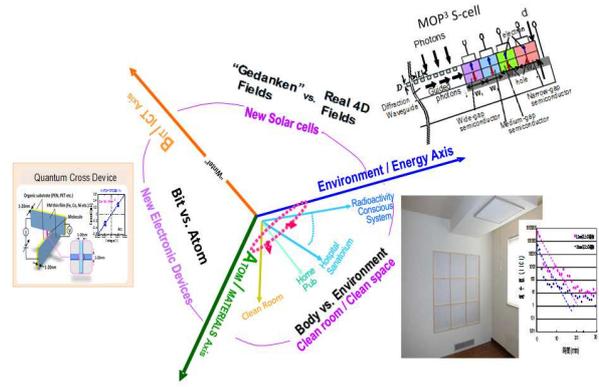


図1. ABE²空間における多角的な展開

1. 研究目標

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SEMBル系を含め、広くボトムアップ系に期待が集まっている。しかしながら、両系は未だに専ら独立で、トップダウン、ボトムアップ両系の間に橋渡しする事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、新しい量子機能・高機能デバイス、光電変換システム創出を目指した研究を実験と理論の両面から進めている。

SDGs (Sustainable Development Goals : 持続可能な開発目標) の観点からも、視点をアトム(Atom)・ビット(Bit)・エネルギー(Energy)/環境(Environment)空間 [ABE²空間] において、今後ナノテク・ナノサイエンス分野で得られる新しい効果や機能を既存のSiベースのITインフラ構造と接続し相乗効果を引出し、最終的にナノとマクロを結合して、新しいエネルギー・環境科学技術を実現することを目指している(図1)。

次世代デバイスの作製に向け、極限高清浄環境を実現するクリーンユニットシステムプラットフォーム(CUSP)を利用して、特に次世代高機能メモリーや、高効率の光電変換素子創製を目標としている。特に、空間的な機能縮退を解消することで効率的な太陽光発電と低環境負荷の高清浄環境が実現できる。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SEMBル系を含め、広くボトムアップ系に期待が集まっている。しかしながら、両系は未だに専ら独立で、トップダウン、ボトムアップ両系の間に橋渡しすることは極めて重要である。当研究室では、デバイススペースのアプローチとツールベースのアプローチにより上記の課題に取り組む

ことで、新しい高機能デバイスやシステムを効率的に創出すること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

(a1) 新型高効率光電変換システム

本来、熱力学限界に迫り得るはずの太陽電池の究極の高効率化、及び無人飛行体(UAV)・無人地上車(UGV)等への効率的な光無線給電(パワービーミング)は、未だ実現していない。本研究では、図2に示すように、光を収穫(ハーベスト)する部分(受光部)とこの光を電力化する光電変換部(発電部)を空間的に分離し、2次元的に接続する(2-Dimensional PhotoReceptoConversion Scheme: 2DPRCS)というアイデアに拠って、発電と給電という今までは独立して議論されることの多かった2つの分野が遭遇してきた困難や目標が一気に解決することを目指している。具体的には、①集光システムによる太陽電池の高効率化という課題と、②ビームふらつきに強い光無線給電(レーザーパワービーミング)を可能とするという2つの大きな目標を同時に実現する(図1参照)。これらを支える全く新しい導

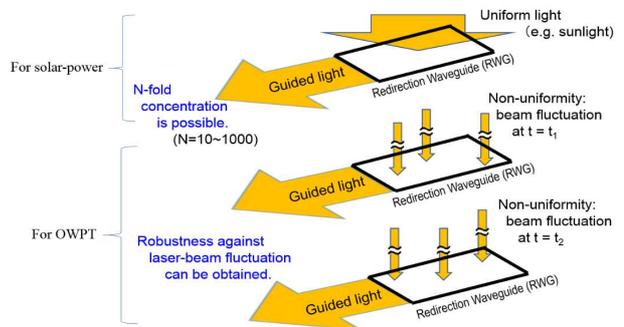


図2. 2-Dimensional PhotoReceptoConversion Scheme: 2DPRCS)による一様光(太陽光)の集光システム(上段)と、レーザービーム光のふらつきに強い光無線給電システム(中段、下段)の概念図

波路として、光進行方向が定義する軸に関してその前後反転に対する対称性を持たない非対称導波路を提案し、3次元空間伝搬光の効率的な2次元光化(3D-2D転換)を実現する。この新しい導波路は無色で、窓に貼り付けたり、建築物の屋根や側壁材として景観を損なうことなく全面に用いることができ、ZEB(zero-energy building)やZEH(zero-energy house)等近未来社会を支える基幹技術となる。

空間反転(左右)非対称性を持つ非対称導波路構造の作製法として、円柱側面を利用する方法や、樹脂をベースとした材料の延伸と型押しを併用して作製するシステムの検討を進めている。この導波路端にフォトン・フォトキャリア直交型の太陽電池を結合して総合的に最適なシステムへとつなげることで、高い光電変換効率の実現を目指す。この導波路端には、在来型のタンデムセルやエッジ入射型太陽電池を結合することもできる。今後、より多角的に最適なシステムへと進化させることで高い光電変換効率の実現が期待される。

(a2) 極限高浄環境 (Clean Unit System Platform: CUSP) の展開

高浄環境技術クリーンユニットシステムプラットフォーム(CUSP)は、孤立・閉鎖系であり内気がフィルタを何度も通過するため浄化度が高い。

捕集効率 γ が0.9程度の市販の空気清浄機でも、高い到達浄化度が得られ、 $\gamma=1$ の理想的な場合と比べ、 $1/\gamma \sim 1.1$ と僅か10%しか劣らない高浄化度が得られる。しかも内部の浄化後は無負荷運転となるためフィルタの寿命が極めて長く、維持コストが安く、又“省エネ”上の優位性を持つ。CUSP技術を基に、新型コロナ等感染症対策として、必要な、時・期間・場所に、直ちに設置できる可搬型高浄空間を創出した。

・第一に、ベッドや布団を内包し、患者を守る内外等圧のテント式CUSPであり、クラス100級の浄化度を実現した(図3参照)。

・第二に、医療従事者と患者間のインタラクションを守

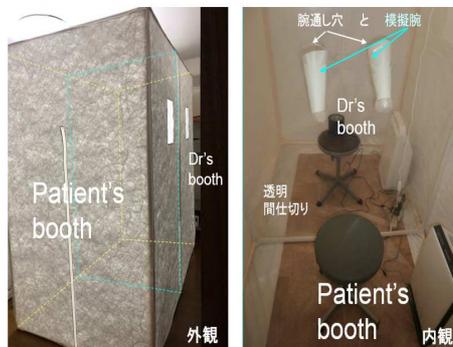


図3 内外等圧の連結CUSPブース(Connected CUSP Booths: CCB)。左はCCBの外観、右は同内観(手前が患者ブースで奥側が医師ブース)。医師ブースでは、患者ブースで発生する塵埃・菌が約千分の一に

る(医療従事者と患者間の“隔離性”を担保する)内外等圧の結合CUSPブース(CCB)であり、医師ブースでは患者ブースで発生したエアロゾルを約3桁低減する。

・第三に、内外等圧性により、新型コロナをうつさず・うつされない(相互感染リスクゼロ)の究極の防護服CUBSの作製に成功した(原子炉等作業にも展開できる)。

具体的には、孤立・閉鎖系高浄環境CUSP技術を進化させて、T-CUS、CCB、CUBSのトリプルセーフティシステムを実現した。特に、CUBS防護服内では、呼吸時のエアフローFが、防護服面で包まれる内部と外界との間での出入りする事が無いことにより、使用者は外界の新型コロナウイルスを吸いこむ事がなく、また逆に、内部から周りに菌を撒き散らす事も完全に抑止できる。有用薬剤ミストを利用して、上記CUSPシステムを繰り返し安全に利用するための消毒法も見出した。外出時に新型コロナをうつされず、またうつもしない理想的な相互感染防止力により、医療従事者はもとより、一般市民を含む社会全体に安心と安定をもたらさうる孤立・閉鎖系要素技術の開発に成功した。

(b) 物性理論

2次の高次トポロジカル絶縁体の弱い相の発見

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を行い、物理学への新しい知見を得ることを目的としている。その中でトポロジカル絶縁体の特異なバンド構造を利用した新奇なスピンドバイスの提案ならびにスピン軌道相互作用の非可換ゲージ場の側面を活かしたデバイスの検討を行うことにより、スピントロニクスなどの工学にも寄与することを目指している。今年度の成果は以下のものである。今年度は2018年にF Schindlerが提案した2次の高次トポロジカル絶縁体のハミルトニアンに異方性ホッピングを加えて拡張したモデルを研究した。その結果、ハミルトニアンが記述する系においては、強い相以外に弱い相と呼べる状態を発見した。検討したハミルトニアン。ここで、 $t_z=t$ とすれば、F Schindlerのモデルと一致する。

$$H(\mathbf{k}) = H_{\text{host}}(\mathbf{k}) + H_{\text{mass}}(\mathbf{k}),$$

$$H_{\text{host}}(\mathbf{k}) = \left(M + t \sum_{i=x,y} \cos k_i + t_z \cos k_z \right) \tau_z \otimes \sigma_0 + \Delta_1 \sum_{i=x,y,z} \sin k_i \tau_x \otimes \sigma_i,$$

$$H_{\text{mass}}(\mathbf{k}) = \Delta_2 (\cos k_x - \cos k_y) \tau_y \otimes \sigma_0.$$

すなわち、z軸方向に異方性を入れたモデルになっている。

このハミルトニアンの H_{host} の部分は、Wilson-Dirac型の

1次のトポロジカル絶縁体になっており、その相図を解析すると図4のようになる。ここで、STI相に対して、質量項を導入するとやはり2次のトポロジカル絶縁体の強い相になるが、ではWTI相に対して、質量項を導入した場合はどうなるであろうか？それは自明ではなかった。WTI相に対して、質量項を導入した場合におけるWilsonループは既存の解釈では、トリビアル相になってしまうが、それでも電子状態を描画してみるとヒンジに電子が集中しており、トポロジカルに見える。そこで、1次の弱い相と同じであると考えて、Wilsonループを巻き付き数で見ないで、解釈を変更すると図5の相図が得られる。これらの結果から、1

次の強い相に基づき、それに質量項を入れて2次の相を作ると2次の強い相が発現し、1次の弱い相に基づき、それに質量項を入れて2次の相を作ると2次の弱い相が出来ることを発見した。特に、K群を用いた分類では、この種の弱い相は発見できない。図6は、弱い2次のトポロジカル絶縁体の電子密度分布である。1次の異方性ホッピングによって周期的な変調構造が見られる。強い相では、この変調構造は見られず、一様なヒンジになっている。

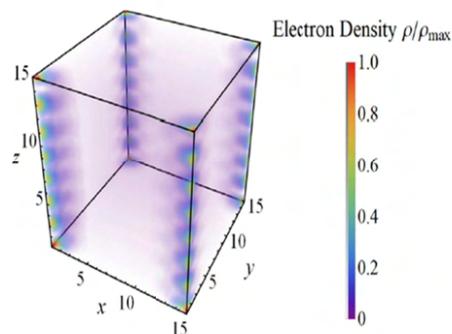


図6: 2次 TI の弱い相の電子密度分布

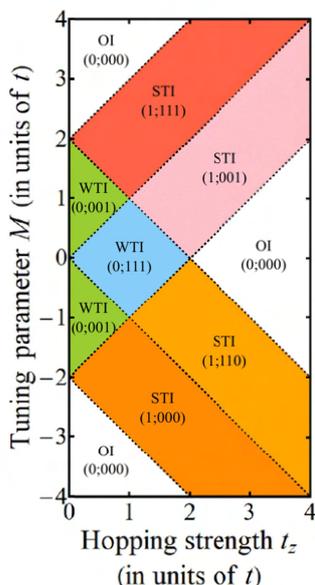


図4: Wilson-Dirac 型の1次のトポロジカル絶縁体の相図

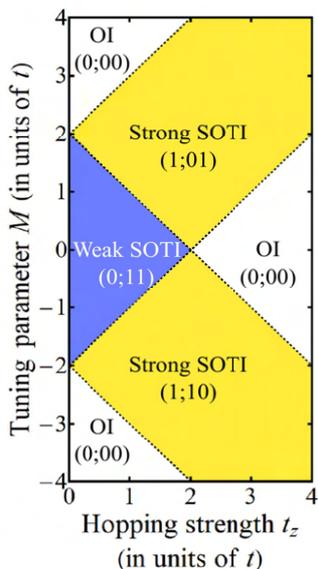


図5: 2次のトポロジカル絶縁体の相図

3. 今後の研究の展望

SDGs (Sustainable Development Goals: 持続可能な開発目標) の観点からも、デバイススペース並びにプラットフォームベースでトップダウン-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。後者では、CUSP清浄環境の医療展開も視野に入れる。前者では、高効率の太陽電池を目指し、新しいリディレクション導波路の作製と共に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を実現して、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。また上記新型導波路の光無線給電応用も図る。新型太陽電池においては、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を得られる。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。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、熱はげ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する。特に、空間的な機能縮退を解消することで効率的な太陽光発電と低環境負荷の高清浄環境を実現してゆく。

物性理論の方からは、トポロジカル絶縁体の概念が最近進化し、高次トポロジカル絶縁体という概念が議論されている。今年度は、F.Schindler等のモデルの拡張を行い、弱い1次のトポロジカル絶縁体を元に2次のトポロジカル絶縁体を構築した。その結果、2次のトポロジカル絶縁体の相は1次の相を引き継ぐことがわかった。来年度はトポロジカル半金属のワイル半金属の磁気伝導率やカイラルアノマリについて研究を進める。一方、低次元電子のシステムにスピン軌道相互作用と電子間斥力が同時に働く場合において、1電子スペクトラムやスピン圧縮率や電荷圧縮率にどのような変化が定量的に現れるかも基礎理論として検討する予定である。アトム(Atom)・ビット(Bit)・エネルギー(Energy)/

環境(Environment)空間 [ABE²空間] において、AB平面では、次世代の高機能電子デバイスを、またBE平面では、フォトン・フォトキャリア直交型高効率太陽電池を、そしてAE平面では、プラットフォームベースのアプローチとして、廉価にして高性能である CUSP 技術を展開し、“Clean space for all of us” の観点で製造環境としてはもとより、医療や養護・療養環境としてもCUSPの機能性を高め、社会へのフィードバックへとつなげていく。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ろう。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、デバイススペ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。

4. 資料

4.1 学術論文 (査読あり)

- 1) A. Ishibashi, Y. Okura and N. Sawamura: “Lifting Off Spatial Degeneracy of Functions, Where Does It Lead Us for Photovoltaic Device Systems?”, *Energies*, 13: 5234-1-5234-16 (2020)
- 2) 羽山 広文、石垣 祐里奈、石橋 晃、松田 順治: 「ガス交換ユニットを用いた拡散換気システムの性能検証」、*クリーンテクノロジー*, 30: 68-73 (2020)
- 3) K. Morishima and **K. Kondo**: "A Comparison of Magneto-conductivities between Type-I and Type-II Weyl Semimetals", *J. Appl. Phys.* 129 125104 -1-125104 -11 (2021).
- 4) S. Komori, and **K. Kondo**: "A proposal of strong and weak phases in second-order topological insulators", *Journal of Physics Communications* 4, 125005-1-125005-12 (2020).

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、Liang Sheng-Fu、安武 正弘 : 特願 2021-39791、「生物体の健康状態分析システムおよび生物体の健康状態分析方法」、2021年3月12日
- 2) 石橋 晃 : 特願2021-023700、「防護閉空間システム」、2021年2月17日
- 3) 石橋 晃、松岡 隆志 : 特願2020-204678、「光電変換装置」、2020年12月10日
- 4) 石橋 晃 : 特許第6763614号、光導波装置、「光電変換装置、建築物、電子機器及び発光装置」、特許登録

2020年8月18日石橋 晃 : 特願2019-543728、「光導波装置、光電変換装置、建築物、電子機器、移動体および電磁波導波装置」、2020年02月28日

・国際特許

- 1) A. Ishibashi, T. Etoh, N. Noguchi and J. Matsuda : 中国特許 CN110691946 B, “Building and method for controlling gas molecule concentration in living and/or activity space in building”, 特許登録 2020年11月27日
- 2) A. Ishibashi and F. Ishibashi : US 10,677,483, “Wall, system of highly clean rooms, production method thereof and construction”, 特許登録2020年6月9日
- 3) A. Ishibashi, T. Etoh, N. Noguchi and J. Matsuda : US 2020/0171427 AI, “Building and method for controlling gas molecule concentration in living and/or activity space in building”, 2020年6月4日

4.6 講演

a. 招待講演 (国際学会)

b. 招待講演 (国内学会)

- 1) 石橋 晃*、安武 正弘、松田 順治 : 「孤立・閉鎖系高
清浄環境 CUSP の新型コロナ等感染症対策への応用」、
2020年度ダイナミック・アライアンス合同 Web 分科会、
大阪大学、Japan (2020-11)

c. 一般講演 (国際学会)

- 1) A. Ishibashi* and N. Sawamura : “Two Dimensionally Connected Photorecepto-conversion Scheme (2DPRCS) for High Efficiency Solar Cells and Optical Wireless Power Transmission ”, The 2nd Optical Wireless and Fiber Power Transmission Conference, Yokohama, Japan (2020-04).
- 2) X. Hong*, J. Yu, Y. Okura, N. Sawamura and A. Ishibashi : “For Fabrication of Waveguides in Multi-stripped Orthogonal Photon-Photocarrier Propagation Solar Cell(MOP3SC) System”, The 21st RIES-Hokudai International Symposium, Sapporo, Japan (2020-12)
- 3) X. Wang*, Z. Zhou, M. Yasutake and A. Ishibashi : “Clean Unit System Platform (CUSP) and developing connected CUSP Booths (CCB)”, The 21st RIES-Hokudai International Symposium, Sapporo, Japan (2020-12)
- 4) 黄倉 侑人*、余 佳興、周 子凌、王 瀟涵、安武 正弘、石橋 晃 : 「新型太陽電池プロセス、及び新型コロナ対応プラットフォームとしての孤立閉鎖系清浄環境 Clean Unit System Platform (CUSP)」、第15回再生可能エネルギー世界展示会&フォーラム (Renewable Energy 2020)、東京ビッグサイト(東京都)、Japan (2020-12)
- 5) 余 佳興*、黄倉 侑人、澤村 信雄、石橋 晃 : 「2次元的に接続された受光・発電分離型光電変換スキームに向けて」、第15回再生可能エネルギー世界展示会&フォーラム (Renewable Energy 2020)、東京ビッグサイト(東京都)、Japan (2020-12)
- 6) K. Morishima* and **K. Kondo**: “A Study of Magnetoresistance in Type-I and Type-II Weyl Semimetals”, The 65th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials (MMM2020), Online, USA (2020-11).
- 7) S. Komori and **K. Kondo**: “Magnetotransport Characteristics in Second-order Weyl Semimetals”, The 65th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials (MMM2020), Online, USA (2020-11).
- 8) K. Morishima* and **K. Kondo**: “An Effect of Inclination of

Weyl Cone on Magnetoconductivities of Weyl semimetals”, The 21th RIES-HOKUDAI International Symposium “ma”, Virtual Conference Online, Sapporo, Japan (2020-12).

- 9) K. Komori* and **K. Kondo**: “Exotic Electronic Structures and Magnetotransport Phenomena of Second-Order Weyl Semimetals”, The 21th RIES-HOKUDAI International Symposium “ma”, Virtual Conference Online, Sapporo, Japan (2020-12).
- 10) K. Komori* and **K. Kondo**: “A Weak Phase of Second-Order Topological Insulators”, The 4th International Symposium for The Core Research Cluster for Spintronics, Online, Sendai, Japan (2021-2).
- 11) **d. 一般講演 (国内学会)**
《口頭発表》
 - 1) 余 佳興*, 洪 性百, 澤村 信雄, 石橋 晃: 「スペクトル分割多接合設計に対する非対称導波路結合方式の優位性」、日本応用物理学会 2021年春季大会、オンライン開催、Japan (2021-03)
 - 2) 王 瀟涵*, 周 子凌, 余 佳興, 安武 正弘, 石橋 晃: 「Clean Unit System Platform (CUSP) and Connected CUSP Booth (CCB)」、日本応用物理学会 2021年春季大会、オンライン開催、Japan (2021-03)
 - 3) 石橋 晃*: 「「縮退」解消がもたらす新しいエネルギー・環境系とミニマルファブシステムのシナジー可能性」、令和2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)、Japan (2020-11)
 - 4) 石垣 祐里奈*, 羽山 広文, 森 太郎, 石橋 晃, 松田 順治: 「ガス交換ユニットを用いた拡散換気システムの性能検証」、2020年度日本建築学会大会学術講演会、千葉大学、千葉、Japan (2020-09)
 - 5) 小森 至瑠*, **近藤 憲治**: “2次のType-II Weyl 半金属で現れるFermi Arc”、2020年日本物理学会秋大会、オンライン (2020-09) .
 - 6) 森島 一輝*, **近藤 憲治**: “Type-I 及びType-II ワイル半金属における磁気抵抗効果の違いに関する研究”、2020年日本物理学会秋大会、オンライン (2020-09) .
 - 7) 小森 至瑠*, **近藤 憲治**: “2次のワイル半金属のエキゾチックな電子状態に関する研究”、第6回北海道大学部局横断シンポジウム、オンライン (2020-10) .
 - 8) 森島 一輝*, **近藤 憲治**: “ワイル半金属の磁気伝導率とワイルコーンの傾きの効果”、第6回北海道大学部局横断シンポジウム、オンライン (2020-10) .
 - 10) 小森 至瑠*, **近藤 憲治**: “2次のWeyl半金属の電子状態と磁気輸送特性に関する研究”、第25回半導体におけるスピン工学の基礎と応用 (PASPS-25)、オンライン (阪大) (2020-11) .
 - 11) 森島 一輝*, **近藤 憲治**: “低エネルギー領域におけるType-I及びType-IIワイル半金属の磁気抵抗効果”、第25回半導体におけるスピン工学の基礎と応用 (PASPS-25)、オンライン (阪大) (2020-11) .

《ポスター発表》

- 12) 松田 順治*, 石橋 晃: 「新型ウィルスや、インフルエンザ対策にお役立ち!!」、ビジネスEXPO「第34回 北海道 技術・ビジネス交流会」、アクセスサッポロ(札幌市)、Japan (2020-11)
- 13) X. Wang*, Z. Zhou, C. Chiu, T. Hsieh, S. Liang and A. Ishibashi: “Clean Unit System Platforms and Developing Connected CUSP Booths”, The 6th Hokkaido University Cross-departmental Symposium 第6回北海道大学部局横断シンポジウム、Hokkaido University, Japan (2020-10)

- 14) X. Hong*, J. Yu, Y. Okura, N. Sawamura and A. Ishibashi: “Exploration for Photon-Photocarrier Propagation Properties of Waveguide Based on Polydimethylsiloxane”, The 6th Hokkaido University Cross-departmental Symposium 第6回北海道大学部局横断シンポジウム、Hokkaido University, Japan (2020-10)

e. 研究会・シンポジウム・ワークショップなど (学会以外)

- 1) **近藤憲治(北大)**、齋藤秀和(産総研)、高梨弘毅(東北大)、土井正晶(東北学院大)、長浜太郎(北大)、水上成美(東北大)(五十音順): 「イマドキの磁性材料開発と理論設計」、**第76回スピントロニクス専門研究会(オンライン)**(2020年9月25日)

4.7 シンポジウムの開催

4.8 共同研究

a. 所内共同研究

- 1) 近藤 憲治-寺本 央、「特異点論を用いたトポロジカル絶縁体の分類と有効ハミルトニアンへの導出」

b. 民間等との共同研究

- 1) 研究代表者: 松岡 隆志(東北大学金属材料研究所)、研究分担者: 石橋 晃: 物質・デバイス領域共同研究 展開研究A 「ラテラル方向に組成の傾斜したInGaAlN層に基づくマルチストライプ フォトン・フォトキャリア 直交型太陽電池の研究」
- 2) 研究代表者: 松田 順治、研究分担者: 石橋 晃、安武 正弘、物質・デバイス領域拠点・ダイナミックアライアンス: 「清浄環境CUSPのコロナ対策応用の検討」、2020年度
- 3) 研究代表者: 榎本 良治(東京大学宇宙線研究所)、研究分担者: 石橋 晃: 物質・デバイス領域共同研究(基盤共同研究) 「放射線検出器 γ I と清浄環境CUSPの結合の展開」、2020年度
- 4) 研究代表者: 安武 正弘(日本医科大学)、研究分担者: 石橋 晃: 物質・デバイス領域共同研究(基盤共同研究) 「新清浄環境技術Clean Unit System Platform (CUSP)の健康増進・医療応用に関する研究」、2020年度

c. 委託研究

d. 国際共同研究

- 1) A. Ishibashi, S. Liang(台湾国立成功大学): “清浄環境CUSPを利用した睡眠解析実験”, MOST(台湾)

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: 植村 哲也、研究分担者: **近藤憲治**
科学研究費助成事業(基盤研究(B)) 17,550千円: 「スピン軌道トルクによるハーフメタル強磁性体磁化制御とそのデバイス応用」
- 2) 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（基盤研究(B)）17,550千円：
「ワイルド半金属を用いた電流誘起スピン軌道トルクの解明とそのデバイス応用」

b. 大型プロジェクト・受託研究

- 1) 研究代表者: 石橋 晃、研究分担者: 安武 正弘(国立研究開発法人日本医療研究開発機構 AMED) : AMEDウイルス等感染症対策技術開発事業【基礎研究支援】「ウイルス等感染症患者用高浄閉空間システムの飛躍的高機能化」、2020年度、12700千円
- 1) 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) : 200千円 : 「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. Liang Sheng-Fu、石橋 晃 : 2019年度物質・デバイス共同研究賞「清浄部屋CUSPを利用した睡眠品質の数値解析の検討(基盤共同研究)」(物質・デバイス領域共同研究拠点/ダイナミック・アライアンス事業本部) 2020年04月

4.11 社会教育活動

a. 公的機関の委員

- 1) 石橋 晃: 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)
- 2) 石橋 晃: 産業技術総合研究所客員研究員(ファブシステム研究会委員)

b. 国内外の学会の役職

- 1) 石橋 晃 : レーザー学会光無線給電技術専門委員会委員
- 2) Akira Ishibashi : 第3回Optical Wireless Power Transmission Conference, Program Committee
- 3) Kenji Kondo: Editorial Board Member for Scientific Reports (published by Nature Publishing Group) (2014-06-present)
- 4) 近藤憲治: 磁気学会:スピントロニクス専門研究会 世話人

c. 兼任・兼業

- 1) 石橋晃: シーズテック株式会社(北海道大学発ベンチャーカンパニー)技術担当取締役(CTO) (2007-04-現在)

d. 外国人研究者の招聘

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 I、石橋 晃、2020年10月1日～2021年3月31日
- 2) 理学部、物理外国語演習、石橋 晃、2020年10月01日～2021年03月31日
- 3) 理学院: 現代物理学(分担)、石橋 晃、2020年4月1日～2020年9月30日
- 4) 全学教育: 環境と人間「ナノテクノロジー」(分担)、石橋

晃、2020年4月1日～2020年9月30日

- 5) 全学教育: 現代物理学入門(分担)、石橋 晃、2020年4月1日～2020年9月30日
 - 6) 理学部、物理外国語文献講読II、近藤 憲治、2020年4月1日～2020年8月31日
 - 7) 理学院、物理学特別研究I、近藤 憲治、2020年4月1日～2021年3月31日
 - 8) 理学院、物理学論文輪講、近藤 憲治、2020年4月1日～2021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

テレビ

- 1) 松田 順治、石橋 晃 : 北海道放送(HBC) 今日ドキッ 2021年1月7日「テント式CUSP、連結CUSPブース(CCB)の紹介」
- 2) 松田 順治、石橋 晃 : STV ニュース 2021年1月4日「T-CUSP、連結CUSPブース(CCB)の紹介」
- 3) 松田 順治、石橋 晃 : テレビ北海道(TVh) 5時ナビニュース 17:00- 2020年11月25日「連結CUSPブース(CCB)の紹介」

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 (4人)

- 1) 黄倉 侑人, 物性物理学専攻, 修士(理学),
主査: 石橋 晃
論文タイトル「導波路結合 受光・発電分離型光電変換素子に向けた光進行方向変換層の研究」
- 2) 余 佳興, 物性物理学専攻, 修士(理学),
主査: 石橋 晃
論文タイトル「スペクトル分割型多接合型に対する非対称導波路結合方式の優位性と当該導波路作製のための準備」
- 3) 周 子凌, 物性物理学専攻, 修士(理学),
主査: 石橋 晃
論文タイトル「クリーンユニットシステムプラットフォーム(CUSP)とその派生アプリケーションの開発」
- 4) 小森至瑠, 物性物理学専攻, 修士(理学),
主査: 近藤憲治
論文タイトル「高次トポロジカル物質のエキジティックな電子状態に関する理論研究」

博士学位 (0人)

○卒論指導

- 1) 成瀬貴彦, 物理学科, 学士(理学),
主査:近藤 憲治

卒論タイトル「A Comparison of the Velocities of
Skyrmion Motions in between the Ferromagnets
and the Antiferromagnets」

○修士論文主査

1. 黄倉 侑人:「導波路結合 受光・発電分離型光電変換素子に向けた光進行方向変換層の研究」
2. 周 子凌:「クリーンユニットシステムプラットフォーム (CUSP) とその派生アプリケーションの開発」
3. 余 佳興:「スペクトル分割型多接合型に対する非対称導波路結合方式の優位性と当該導波路作製のための準備」

薄膜機能材料研究分野

教授 太田裕道 (東工大, 博士(工学), 2012.9~)
准教授 山ノ内路彦 (東北大, 博士(工学), 2014.5~
2020.8)
助教 Hai Jun Cho (トロント大, Ph.D, 2018.4~)
ポスドク 張 雨橋 (JSPS Fellow, 博士(情報科学),
2019.4~), 張 習 (2020.10~)
事務補助員 石野松美 (2019.5~)
博士課程 魏 冕, キム ゴウン (情報科学研究科), 楊
倩, 吳 宇璋 (情報科学院), 陳 斌杰
特別研究学生 梁 豆豆 (USTB, 中国)
修士課程 龔 李治坤, 高嶋佑伍, 吳 礼奥, 酒井貴樹,
藤本卓嗣 (情報科学院)
研究生 于 睿
学部学生 大倉拓真, 権 寧河, 小林竜也, 佐藤理央,
劉 耀名 (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」、「透明酸化物半導体」、「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) 熱電変換材料の開発

熱を電力に変える「ゼーベック効果」と、電流で冷やす「ペルチェ効果」に代表される、金属や半導体などの導体が示す、熱⇄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WO₃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(H_xWO₃)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

SrCoO_{2.5}は、磁石にならない絶縁体だが、酸素中で加熱して酸化するか、電気化学的に酸化すると、ペロブスカイト型の結晶構造を有するSrCoO₃に変化し、電気が良く流れる強磁性金属になることが知られている。このように、遷移金属酸化物をうまく利用することで、光透過率と電気伝導度、磁性と電気伝導度を切替え、記憶するデバイスが実現できると考えられる。遷移金属酸化物にとって、H⁺イオン(プロトン)は強力な還元剤、OH⁻イオンは強力な酸化剤として働くので、電気化学反応を利用すれば上記デバイスは実現可能だが、電解液などの液体を用いなければならないという課題がある。当研究分野では、ナノ多孔質ガラスのナノ孔に自然に導入される水を電解液の代わりに使い、様々な機能性酸化物の光・電気・磁気特性を切替えることに成功した。

(c) 透明酸化物半導体

ITO(スズ添加酸化インジウム)に代表される透明導電性酸化物は、古くから液晶テレビや有機ELテレビの透明電極として利用されている。一般的には、スパッタリング法などでガラス基板上に作製されたセラミックスのような多結晶薄膜が用いられている。当研究室では、透明導電性酸化物を、透明酸化物半導体として利用可能にするための研究を行っている。具体的には、積層構造の作製を可能にし、高いキャリア移動度を実現するための高品質エピタキシャル薄膜の作製と、製造コストを下げ、実用化が可能な材料にするために、室温下で高品質アモルファス薄膜を作製する研究を行っている。高品質薄膜化することで、化合物半導体で実現されてきたダイオードやトランジスタが実現した。当研究室では、こうした透明酸化物半導体薄膜の作製と物性計測について、基礎から応用まで、幅広く研究している。

(d) スピントロニクスデバイスの開発

スピントロニクスデバイスを構成素子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は、低消費電力なエレクトロニクスの実現のために注目されている。そのようなスピントロニクスデバイスへの情報書き込み動作には電氣的な磁化方向の制御が不可欠であり、現状、この動作に比較的大きな電力を要することが応用上の課題の一つとなっている。そこで、従来から用いられている強磁性金属にはない特異な電氣的・磁氣的な性質を示す酸化物、及び酸化物積層構造に着目し、これらを利用した電氣的磁化方向制御の高効率化に関する研究に取り組んでいる。特に、酸化物、及び酸化物積層構造を用いて、近年、高速かつ低消費電力な電氣的磁化反転手法として期待されているスピン軌道相互作用に基づいたスピン軌道トルクについての研究を進めている。

2. 研究成果

(a) 金属酸化物における過去最高の室温熱電変換性能指数

熱電素子は、材料のSeebeck効果により温度差を電気に変

換できることから、廃熱の再資源化で注目され、SDGsにおける「手頃な価格のクリーンエネルギー」を実現するソリューションとして注目を集めている。テルル化ビスマスなどのカルコゲン元素を含む熱電材料は、室温で大きな性能指数 ZT (~ 0.8)を示すが、毒性や熱・化学安定性の点でSDGs実現には不向きである。酸化物ベースの材料は環境適合性の点で魅力的であり、中でも $\text{Na}_{0.75}\text{CoO}_2$ などの層状酸化物は、層状構造に沿って大きな性能を示すが、熱伝導率が大きい ($\sim 7 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$) ため、室温における ZT が小さい (~ 0.03) という問題がある。本研究では、「結晶の CoO_2 層間イオンを重元素に置換することで低熱伝導率化できる」という独自の材料設計指針に従い、 $\text{Na}_{0.75}\text{CoO}_2$ エピタキシャル薄膜の Na^+ イオンを Ba^{2+} イオンに交換した $\text{Ba}_{1/3}\text{CoO}_2$ エピタキシャル薄膜を作製し、その熱電特性を計測した。その結果、熱伝導率は $3.3 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ に減少し、性能指数 ZT は $\text{Na}_{0.75}\text{CoO}_2$ の4倍に相当する0.11 (室温)に増強することができた。この ZT は再現可能な酸化物の室温の値としては最高値である (図1)。[Yugo Takashima et al., *J. Mater. Chem. A* (2020)] (北大プレスリリース)

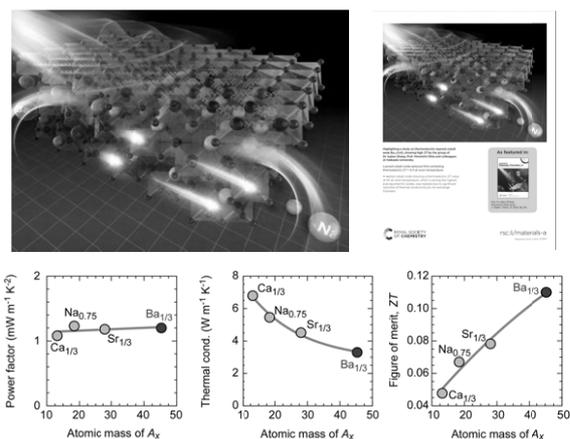


FIG. 1 | (upper) A layered cobalt oxide showing a thermoelectric ZT value of 0.11 at room temperature, which is among the highest ever reported for oxides, was realized due to significant reduction of thermal conductivity by ion exchange treatment. (lower) Thermoelectric properties of $A_x\text{CoO}_2$ films at room temperature.

(b) 「電気は通すが熱は通さない」一次元原子欠陥ワイヤを導入した酸化タングステンエピタキシャル薄膜

高電子伝導と低熱伝導の共存など、異常な電子伝導と熱伝導を示す材料は、熱電変換などの効率的な熱管理システムを実現するために本質的に重要である。点欠陥または層を導入することは、熱伝導率を低下させる効果的な方法として知られているが、高電子伝導と低熱伝導の共存は、電子とフォノンが不純物、欠陥、および境界によって同時に散乱されるため、依然として困難である。本研究では、正確に制御された酸素雰囲気下で LaAlO_3 基板上にヘテロエ

ピタキシャル成長した酸素欠乏酸化タングステン (WO_x) 膜 ($2.7 < x < 3.0$) で、高電子伝導と低熱伝導が同時に共存できることを明らかにした。結晶学的解析により、得られた WO_x 膜は面内方向に1D 原子欠陥トンネルを含み、 x の減少とともに欠陥密度が増加することが分かった。 WO_x 薄膜の面直方向の熱伝導率は x の減少とともに劇的に減少したが、電気伝導率はキャリア電子の増加により大幅に増加し、 $x < 2.9$ の場合に高電子伝導と低熱伝導が共存した (図2)。これはアモルファス[G. Kim, H. Ohta et al., *J. Phys. Chem. C* (2019)]や多結晶 WO_x では見られない現象である。この発見は、熱電材料などの効率的な熱管理材料を設計するのに役立つだろう。[Gwoon Kim et al., *ACS Appl. Mater. Interfaces* (2021)]

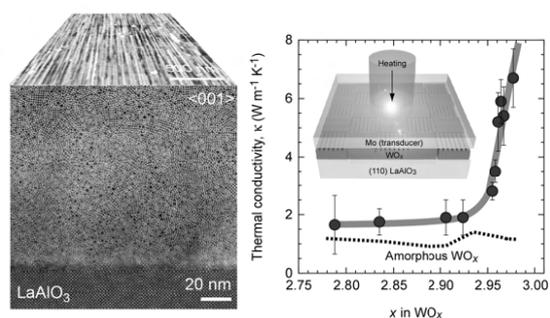


FIG. 2 | (left) HAADF-STEM image and topographic AFM image of a WO_x film with 1D atomic defect tunnels. (right) Oxygen deficiency dependence of thermal conductivity of WO_x films with 1D atomic defect tunnels.

(c) 深紫外線を透過する透明なトランジスタを実現

ウイルスや細菌などの目に見えない小さな生体分子を高感度で検出するツールの一つとして、バイオセンサーが挙げられる。半導体トランジスタの活性層にウイルスや細菌のDNAが付着すると、トランジスタを流れる電流が変化する。バイオセンサーでは、このときの電流の変化を利用してウイルスや細菌を検出する。現在のバイオセンサーでは、半導体シリコンを活性層とするトランジスタが利用されている。バイオセンサーからウイルスや細菌を除去するためには、殺菌灯などの深紫外線を照射する必要があるが、シリコンのバンドギャップが小さい (1.1 eV) ため、トランジスタ動作中に殺菌灯を照射すると、シリコンの電子が光励起され、動作が不安定になる。この問題を解決するためには、活性層の材料を現在のシリコンから深紫外線を透過する半導体に変えれば良い。

深紫外線を透過する半導体候補として酸化ガリウムや電子ドープアルミン酸カルシウムが知られているが、これらの半導体は導電率が低く、薄膜トランジスタの性能も十分ではないという問題があった。本研究では、3000 S/cmの高い導電率を示し、バンドギャップが4.6 eVと大きなスズ酸ストロンチウム (SrSnO_3) を活性層とした薄膜トランジスタを作製し、そのトランジスタ特性と光透過特性を調べた。

材料の組み合わせなどの最適化を経て得られたトランジスタは、明確なトランジスタ特性を示すだけでなく、電極を含まない状態で波長260 nmの深紫外線を50%以上透過する(図3)。本研究の深紫外線透明トランジスタは、殺菌灯の深紫外線を照射した状態でも動作する、新しいタイプのバイオセンサーの原型になると期待される。[Mian Wei et al., *Adv. Electron. Mater.* (2020)] (北大プレスリリース)

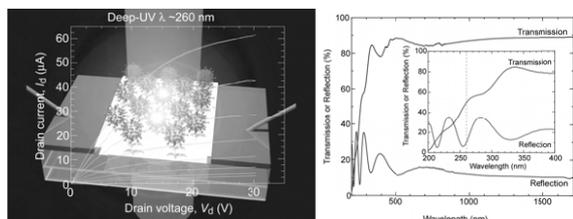


FIG. 3 | (left) Transistor characteristic curves and schematic image of the DUD-TFT based biosensor. (right) Optical transmission and reflection spectra of the SrSnO₃ film.

(d) 常識を覆す！多結晶よりも熱が伝わりにくい単結晶を発見

熱伝導率が低い低熱伝導セラミックは、耐熱材料などの熱バリアコーティング剤として重要な材料である。電気絶縁体であるセラミックの熱伝導は、原子の振動の伝播で起こるため、結晶の界面で大きく減衰する。一般に、結晶の方向が揃っていない多結晶には多くの界面が含まれているため、多結晶は単結晶よりも低い熱伝導率を示す。セラミックをさらに低熱伝導率化するためには、複数のセラミックスを数 nm の周期で積層する「超格子」構造が有用だが、超精密な薄膜作製手法によって数 nm ずつ交互に積層する必要があり、大面積化に不向きで、時間がかかるため、実用的ではないという問題がある。本研究では、結晶固有の「自然超格子」と呼ばれる数 nm 周期で二種類の成分が積み重なった構造を有するセラミック、InGaO₃(ZnO)_m (*m* は自然数)に着目した。本研究では、反応性固相エピタキシャル成長法と呼ばれる手法によって様々な *m* 値の InGaO₃(ZnO)_m 単結晶薄膜を作製し、超格子に直交方向、平行方向の熱伝導率の比較をするとともに、結晶の方向が揃っていない多結晶の熱伝導率との比較も行った。

初めに、作製した InGaO₃(ZnO)_m 単結晶薄膜の熱伝導率(室温)を、厚さ1nmあたりの境界の数に対してプロットした。超格子に直交方向の熱伝導率は、厚さ1nmあたり0.5から0.6枚の境界があるときに熱伝導率は極小(約1 W m⁻¹ K⁻¹)になることが分かった。超格子に平行方向と多結晶はほぼ同様の振る舞いを示し、極小値は約3 W m⁻¹ K⁻¹であった。単結晶であるにも関わらず、超格子に直交方向の熱伝導率は多結晶の1/3しかなく、非常に低熱伝導率であることが分かった(図4)。この発見は、単結晶内の異なる成分間の層状の境界が熱伝導を著しく低減することを示唆してお

り、耐熱材料などの熱バリアコーティング剤としての低熱伝導材料を設計するための大きな指針を与えると期待され

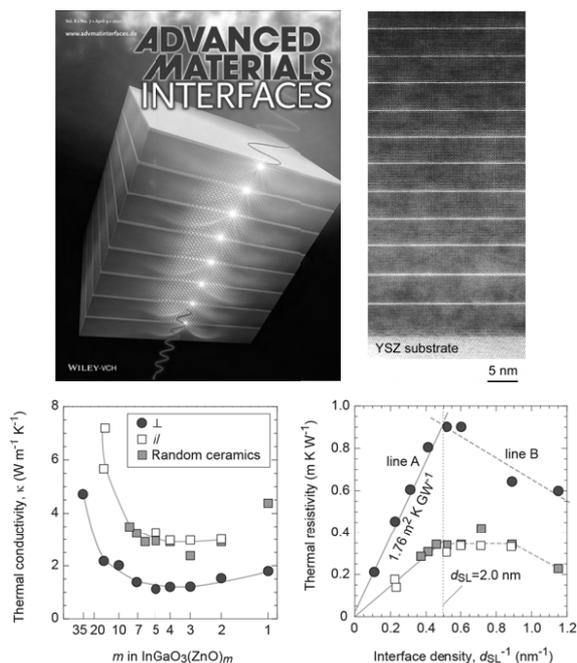


FIG. 4 | (upper) Single crystal InGaO₃(ZnO)_m film. (lower) Thermal conductivity and thermal resistivity of InGaO₃(ZnO)_m films at room temperature.

る。[Hai Jun Cho et al., *Adv. Mater. Interfaces* (2021)]

(e) PT/SrRuO3積層構造におけるスピン軌道トルクと磁壁の相互作用

スピン軌道トルク(SOT)による磁壁(DW)移動を利用したスピントロニクスデバイスは高速動作が可能であり、次世代のメモリーやロジックへの応用が期待されている。高磁気異方性の強磁性体を用いることによりそれらの高密度化が期待されるが、狭い磁壁(DW)が形成されるそのような強磁性体においては、SOTと磁化反転の際に形成されるDWの相互作用は明らかになっていない。本研究では、3 nm 程度の狭いDWを有する強磁性酸化物SrRuO₃と重金属Ptの積層構造において、SOTとDWの相互作用を調べた。

パルスレーザー堆積法を用いて、ミスカット角~2°のSrTiO₃(001)基板上に膜厚8 nmのSrRuO₃薄膜を成膜した後、電子線蒸着法を用いて膜厚5 nmのPt薄膜を成膜した。続いて、フォトリソグラフィとArイオンミリングを用いてチャネル幅5 μmのホールバー形状素子に加工した。そして、チャネルに電流を印加した状態で、チャネル方向に一定の面内方向磁場H_xを印加しながら、膜面垂直方向の磁場H_zを掃引し、磁化の垂直成分を反映する横抵抗R_{yx}の変化を測定した。

ヒステリシスループ(R_{yx}-μ₀H_z)の中心は、電流とH_xの方向が平行(反平行)な時、左(右)方向にシフトした。これらのヒステリシスループのシフトは、面内磁場のもとで、Pt層中のスピンホール効果に起因したSOTが磁化反転の際に形成されるDWに有効垂直磁場として作用したと考えると

説明できる。また、DW に作用する有効磁場の大きさから求めた Pt 中の有効スピンホール角は、先行研究と矛盾しない。これらの結果から、狭い DW に対しても SOT は有効に作用すると考えられる。本研究結果は、スピン軌道トルクを利用した微細なスピントロニクスデバイスに関する重要な知見を与えるものである。

3. 今後の研究の展望

2020年度に見出した、超構造を有する酸化タングステンや構造転移を伴う金属-絶縁体転移を起こす物質の熱伝導率に注目している。熱伝導を電氣的に制御する、熱のトランジスタの開発を行う。また、酸化物としては最高の熱電変換性能指数を示す $\text{Ba}_{1/3}\text{CoO}_2$ については、高温での性能指数を計測すると同時に、大型のバルク単結晶を作製し、熱電性能を詳細に調べたい。スピントロニクスデバイスについては、山ノ内准教授の異動に伴い、中止した。なお、機能的酸化物の薄膜化・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) Yuqiao Zhang*, Hai Jun Cho, Kenyu Sugo, Masashi Mikami, Sungmin Woo, Myung-Chul Jung, Yao-Hua Zhuang, Bin Feng, Yu-Miin Sheu*, Woosuck Shin, Woo Seok Choi, Myung Joon Han, Yuichi Ikuhara, and Hiromichi Ohta*, “Low thermal conductivity of SrTiO_3 - LaTiO_3 and SrTiO_3 - SrNbO_3 thermoelectric oxide solid solutions”, **J. Am. Ceram. Soc.** 104, 4075-4085 (2021).
- 2) Hai Jun Cho*, Yuzhang Wu, Yuqiao Zhang, Bin Feng, Masashi Mikami, Woosuck Shin, Yuichi Ikuhara, Yu-Miin Sheu, Keiji Saito, and Hiromichi Ohta*, “Anomalous Low Heat Conduction in Single-Crystal Superlattice Ceramics Lower than Randomly Oriented Polycrystals”, **Adv. Mater. Interfaces** 8, 2001932 (2021).
- 3) Doudou Liang*, Bin-jie Chen, Bin Feng, Yuichi Ikuhara, Hai Jun Cho, and Hiromichi Ohta*, “Optimization of Two-Dimensional Channel Thickness in Nanometer-Thick SnO_2 -Based Top-Gated Thin-Film Transistors using Electric Field Thermopower Modulation: Implications for Flat-Panel Displays”, **ACS Appl. Nano Mater.** 3, 12427-12432 (2020).
- 4) Mian Wei*, Hai Jun Cho, and Hiromichi Ohta*, “Tuning of the optoelectronic properties for transparent oxide semiconductor ASnO_3 by modulating the size of A-ions”, **ACS Appl. Electron. Mater.** 2, 3971-3976 (2020).
- 5) Keisuke Nakamura, Tomoya Oshikiri, Kousei Ueno, Hiromichi Ohta, and Hiroaki Misawa*, “Hot-carrier Separation Induced by the Electric Field of a p-n Junction Between Titanium Dioxide and Nickel Oxide”, **Chem. Lett.** (2020).
- 6) Tianshu Zhai, Rongbin Wang, Takayoshi Katase, Frances Quigley, Hiromichi Ohta, Patrick Amsalem, Norbert Koch, and Steffen Duhm*, “Substrate-independent energy-level pinning of an organic semiconductor provides versatile hole-injection electrodes”, **ACS Appl. Electron. Mater.** 2, 3994-4001 (2020).
- 7) Kaito Kanahashi, Yong-Young Noh, Won-Tae Park, Hoichang Yang, Hiromichi Ohta, Hisaaki Tanaka,* and Taishi Takenobu*, “Charge and thermoelectric transport mechanism in donor-acceptor copolymer films”, **Phys. Rev. Res.** 2, 043330 (2020).
- 8) Yugo Takashima, Yu-qiao Zhang*, Jiake Wei, Bin Feng, Yuichi Ikuhara, Hai Jun Cho, and Hiromichi Ohta*, “Layered cobalt oxide epitaxial films exhibiting thermoelectric $ZT=0.11$ at room temperature”, **J. Mater. Chem. A** 9, 274-280 (2021).
- 9) Hiroaki Nakade, Eita Tochigi, Bin Feng, Yukio Nezu, Hiromichi Ohta, Naoya Shibata, and Yuichi Ikuhara, “Fabrication and characterization of tetragonal yttria-stabilized zirconia single-crystalline thin film”, **J. Am. Ceram. Soc.** 104, 1198-1203 (2021).
- 10) Dou-dou Liang*, Binjie Chen*, Hai Jun Cho, and Hiromichi Ohta*, “Thickness Optimization toward High-Performance Bottom-Gated Transparent Tin Dioxide Thin-Film Transistor”, **ACS Appl. Electron. Mater.** 2, 3454-3458 (2020).
- 11) Ichiro Terasaki, Isuzu Sano, Kosuke Toda, Shuji Kawasaki, Akitoshi Nakano, Hiroki Taniguchi, Hai Jun Cho, Hiromichi Ohta, and Fumihiko Nakamura, “Non-equilibrium steady states in the Mott insulator Ca_2RuO_4 ”, **J. Phys. Soc. Jpn.** 89, 093707 (2020).
- 12) Fabian Krahl, Yuzhang Wu, Hai Jun Cho*, Maarit Karpinen, and Hiromichi Ohta*, “Spontaneous generation of carrier electrons at the interface between polycrystalline ZnO and amorphous InGaZnO_4 ”, **Adv. Electron. Mater.** 6, 2000404 (2020).
- 13) Gowoon Kim*, Bin Feng, Yu-Miin Sheu, Hai Jun Cho, Yuichi Ikuhara, Hiromichi Ohta*, “Coexistence of high electron conduction and low heat conduction in tungsten oxide epitaxial films with 1D atomic defect tunnels”, **ACS Appl. Electron. Mater.** 2, 2507-2513 (2020).
- 14) Qian Yang, Joonhyuk Lee, Bin Feng, Yuichi Ikuhara, Gowoon Kim, Hai Jun Cho, Hyoungjeen Jeon*, and Hiromichi Ohta*, “Unusually large thermopower change from $+330 \mu\text{V K}^{-1}$ to $-185 \mu\text{V K}^{-1}$ of brownmillerite $\text{SrCoO}_{2.5}$ ”, **ACS Appl. Electron. Mater.** 2, 2250-2256 (2020).
- 15) Kohei Fujiwara*, Miho Kitamura, Daisuke Shiga, Yasuhiro Niwa, Koji Horiba, Tsutomu Nojima, Hiromichi Ohta, Hiroshi Kumigashira, and Atsushi Tsukazaki, “Insulator-to-Metal Transition of Cr_2O_3 Thin Films via Isovalent Ru^{3+} Substitution”, **Chem. Mater.** 32, 5272 (2020).
- 16) Mian Wei*, Lizhikun Gong*, Dou-dou Liang*, Hai Jun Cho*, and Hiromichi Ohta*, “Fabrication and Operating Mechanism of Deep-UV Transparent Semiconducting SrSnO_3 -based Thin Film Transistor”, **Adv. Electron. Mater.** 6, 2000100 (2020).
- 17) M. Timpel, M. V. Nardi, B. Wegner, G. Ligorio, L. Pasquali, M. Pätzl, S. Hecht, H. Ohta, and N. Koch, “Oligothiophene-based Phosphonates for Interfacial Engineering of Ultraflat Transparent Conductive Oxides”, **Adv. Mater. Interfaces** 7, 1902114 (2020).

- 1 8) Dou-dou Liang*, Yu-qiao Zhang, Hai Jun Cho, and Hiromichi Ohta*, "Electric field thermopower modulation analyses of the operation mechanism of transparent amorphous SnO₂ thin-film transistor", **Appl. Phys. Lett.** 116, 143503 (2020).

4.2 学術論文 (査読なし)

- 1) Hai Jun Cho*, Koichi Sato, Mian Wei, Gowoon Kim, and Hiromichi Ohta*, "Effect of lattice distortions on the electron and thermal transport properties of transparent oxide semiconductor Ba_{1-x}Sr_xSnO₃ solid solution films", arXiv:2002.11308
- 2) Dou-dou Liang*, Yu-qiao Zhang, Hai Jun Cho, and Hiromichi Ohta*, "Electric field thermopower modulation analyses of the operation mechanism of transparent amorphous SnO₂ thin-film transistor", arXiv:2003.10096

4.3 総説・解説・評論等

- 1) 太田裕道, "安心・安全な熱電変換材料を目指してー優れた変換性能をもつ層状酸化物 Ba_{1/3}CoO₂", 化学 Vol. 76, No. 6 68-69 (2021). (2021.6.1)
- 2) 太田裕道, "過去最高の室温熱電変換性能を示す酸化物の実現", クリーンエネルギー 30 (3), 46-49 (2021). (2021.3.10)
- 3) 太田裕道, "エレクトロクロミック素子の開発最前線ー遷移金属酸化物の多彩な物性変化を利用してー", 學士會會報 947, 81-85 (2021). (2021.3.1)

4.4 著書

- 1) 該当なし

4.5 特許

- 1) Hiromichi Ohta, Takaki Onozato, WO 2020/137328 A1, "Electrochromic Transistor, Electronic Curtain, Information Display/Storage Device, and Anti-Glare Mirror", published July 2, 2020

4.6 講演

a. 招待講演 (国際学会)

- 1) 該当なし

b. 招待講演 (国内学会)

- 1) 太田裕道, "金属酸化物薄膜の熱電能・熱伝導", 2021年 第68回 応用物理学会春季学術講演会, シンポジウム「ニューノーマル時代のDXを進めるIoT用創エネルギー材料・デバイス研究の新展開」, online, 2021.3.16-19 (Invited)

c. 一般講演 (国際学会)

- 1) Y. Zhang, H.J. Cho, K. Sugo, M. Mikami, S. Woo, M.-C. Jung, Y.-H. Zhuang, B. Feng, Y.-M. Sheu, W. Shin, W.S. Choi, M.J. Han, Y. Ikuhara, and H. Ohta, "Branching of Electrical and Thermal Conductivities in La- and Nb-substituted SrTiO₃", Virtual Conference on Thermoelectrics (VCT 2020), online event, July 21-23, 2020. (口頭)
- 2) Yugo Takashima, Yu-qiao Zhang, Jiake Wei, Bin Feng, Yuichi Ikuhara, Hai Jun Cho, and Hiromichi Ohta, "Fabrication and Characterization of Ba_{1/3}CoO₂ Epitaxial

Films Exhibiting Thermoelectric $ZT = 0.12$ at Room Temperature", THE 27th INTERNATIONAL WORKSHOP ON ACTIVE-MATRIX FLAT PANEL DISPLAYS AND DEVICES (AM-FPD20), September 1-4, 2020. (口頭)

- 3) Lizhikun Gong, Mian Wei, Dou-dou Liang, Hai Jun Cho, and Hiromichi Ohta, "Fabrication and Operating Mechanism of Deep-UV Transparent Semiconducting SrSnO₃-based Thin Film Transistor", THE 27th INTERNATIONAL WORKSHOP ON ACTIVE-MATRIX FLAT PANEL DISPLAYS AND DEVICES (AM-FPD20), September 1-4, 2020 (口頭)

- 4) Hiromichi Ohta, Hai Jun Cho, Yugo Takashima, Takaki Onozato, "Suppression of Anisotropic Heat Conduction in Ion-substituted Layered Cobalt Oxides", Pacific Rim Meeting on Electrochemical and Solid State Science (PRIME 2020), online, October 4-9, 2020. (口頭)

- 5) Gowoon Kim, Bin Feng, Yu-Miin Sheu, Hai Jun Cho, Yuichi Ikuhara, and Hiromichi Ohta, "High Electron and Low Heat Transports of 1D Atomic Defect Tunnels Stabilized in Tungsten Oxide Epitaxial Films", Pacific Rim Meeting on Electrochemical and Solid State Science (PRIME 2020), Honolulu, online, October 4-9, 2020. (口頭)

- 6) Dou-dou Liang, Yu-qiao Zhang, Hai Jun Cho, and Hiromichi Ohta, "Electric field thermopower modulation analyses of the operation mechanism of transparent amorphous SnO₂ thin-film transistor", Pacific Rim Meeting on Electrochemical and Solid State Science (PRIME 2020), online, October 4-9, 2020. (口頭)

- 7) Qian Yang, Hai Jun Cho, Hyoungeen Jeon, Hiromichi Ohta, "Electrochemical Manipulation of the Electron Transports of SrCoO_x Epitaxial Films", Pacific Rim Meeting on Electrochemical and Solid State Science (PRIME 2020), online, October 4-9, 2020. (口頭)

- 8) Shun-ichiro Ito, Kaito Kanahashi, Hisaaki Tanaka, Hiroshi Ito, Hiromichi Ohta, and Taishi Takenobu, "Structure and Charge Transport Analyses in Ionic-Liquid-Gated Conducting Polymer Thin Films with 2D-Ordered Crystallites", 33rd International Microprocess and Nanotechnology Conference (MNC2020), online, November 9-12, 2020.

- 9) Gowoon Kim, Bin Feng, Yuichi Ikuhara, Yu-Miin Sheu, Hai Jun Cho, and Hiromichi Ohta, "Phonon-Glass and Electron-Crystal Behavior of WO_x Films containing 1D Atomic Defect Tunnels", Electronic Materials and Applications 2021 (EMA2021), virtual, Jan. 19-22, 2021.

- 1 0) Qian Yang, Joonhyuk Lee, Hyoungeen Jeon, Bin Feng, Yuichi Ikuhara, Hai Jun Cho, and Hiromichi Ohta, "Solid-state Electrochemical Protonation / Oxidation of SrCoO_x Films", Electronic Materials and Applications 2021 (EMA2021), virtual, Jan. 19-22, 2021.

d. 一般講演 (国内学会)

- 1) 高嶋佑伍, Yuqiao Zhang, Jiake Wei, Bin Feng, 幾原雄一, Hai Jun Cho, 太田裕道, "層状酸化物 Ba_{1/3}CoO₂ エピタキシャル薄膜の作製と熱電特性", 応用物理学会 KOSEN SC 第1回 VR学術講演会, オンライン, 2020年7月3日. (口頭)

- 2) 太田裕道, 高嶋佑伍, 小野里尚記, ジョヘジュン, "イオン置換を施した層状コバルト酸化物 A_xCoO₂ の異方的熱伝導率", 日本セラミックス協会 第33回秋

- 季シンポジウム, オンライン, 2020年9月2日-4日.
(口頭)
- 3) Doudou Liang, Binjie Chen, Hai Jun Cho, Hiromichi Ohta, "Electric Field Thermopower Modulation Analyses of the Channel Thickness for SnO₂ Thin Film Transistors", 2020年 第81回応用物理学会秋季学術講演会, オンライン予定, 2020年9月8日-11日. (口頭)
 - 4) Qian Yang, Bin Feng, Yuichi Ikuhara, Hyoungjeen Jeon, Hai Jun Cho, Hiromichi Ohta, "Solid-State Electrochemical Protonation/Oxidation of Oxygen Sponge SrCoO_{2.5} Films", 2020年 第81回応用物理学会秋季学術講演会, オンライン予定, 2020年9月8日-11日. (口頭)
 - 5) 伊藤駿一郎, 中嶋大志, 金橋魁利, 田中久暁, 太田裕道, 竹延大志, "側鎖変調されたポリチオフェンドープ膜の構造と伝導特性", 2020年 第81回応用物理学会秋季学術講演会, オンライン予定, 2020年9月8日-11日. (口頭)
 - 6) 龔李治坤, 魏冕, 梁豆豆, Hai Jun Cho, 太田裕道, "深紫外透明 SrSnO₃ 薄膜トランジスタの作製と熱電能電界変調", 日本金属学会 2020年秋期(第167回)講演大会, オンライン, 2020年9月15日-18日. (口頭)
 - 7) 高嶋佑伍, 張雨橋, 魏家科, 馮斌, 幾原雄一, Hai Jun Cho, 太田裕道, "層状酸化物 Ba_{1/3}CoO₂ エピタキシャル薄膜の作製と熱電特性", 日本金属学会 2020年秋期(第167回)講演大会, オンライン, 2020年9月15日-18日. (口頭)
 - 8) 藤本卓嗣, ジョヘジュン, 太田裕道, "新しい透明酸化物半導体 La ドープ BaSnO₃ 薄膜 -微細構造, 化学結合状態, 電子輸送特性に及ぼす熱処理の影響-", 第5回 北海道大学 部局横断シンポジウム-新世代の融合研究を目指して-, 北海道大学, 2020年10月19日 (ポスター)
 - 9) Gowoon Kim, Bin Feng, Yuichi Ikuhara, Yu-Miin Sheu, Hai Jun Cho, and Hiromichi Ohta, "Heat and Electron Transports of 1D Atomic Defect Tunnels Stabilized in WO_x Films", 薄膜材料デバイス研究会 第17回研究会「薄膜デバイスの原点」, November 5-6, 2020. (ポスター)
 - 10) Qian Yang, Joonhyuk Lee, Hyoungjeen Jeon, Bin Feng, Yuichi Ikuhara, Hai Jun Cho, and Hiromichi Ohta, "Electrochemical Protonation / Oxidation of SrCoO_{2.5} Films using CAN as the Solid Electrolyte", 薄膜材料デバイス研究会 第17回研究会「薄膜デバイスの原点」, November 5-6, 2020. (ポスター)
 - 11) 高嶋佑伍, 張雨橋, 魏家科, 馮斌, 幾原雄一, Hai Jun Cho, 太田裕道, "室温で $ZT = 0.11$ を示す Ba_{1/3}CoO₂ エピタキシャル薄膜の作製と評価", 薄膜材料デバイス研究会 第17回研究会「薄膜デバイスの原点」, 2020年11月6日. (口頭, Zoom) スチューデントアワード
 - 12) Gowoon Kim, Bin Feng, Yuichi Ikuhara, Yu-Miin Sheu, Hai Jun Cho, and Hiromichi Ohta, "Heat and electron transports of 1D atomic defect tunnels stabilized in tungsten oxide epitaxial films", 令和2年度 日本セラミックス協会 東北北海道支部 研究発表会, online, November 13-14, 2020. (口頭) 優秀発表賞
 - 13) Binjie Chen, Gowoon Kim, Hai Jun Cho, and Hiromichi Ohta, "Metal-to-insulator transition temperature reduction of VO₂ films by inserting TiO₂ layers", 令和2年度 日本セラミックス協会 東北北海道支部 研究発表会, online, November 13-14, 2020. (口頭)
 - 14) 藤本卓嗣, ジョヘジュン, 太田裕道, "La ドープ BaSnO₃ 薄膜の微細構造, 化学結合状態, 電子輸送特性に及ぼす熱処理の影響", 令和2年度 日本セラミックス協会 東北北海道支部 研究発表会, online, November 13-14, 2020. (口頭)
 - 15) 張雨橋, 高嶋佑伍, 魏家科, 馮斌, 幾原雄一, ジョヘジュン, 太田裕道, "室温で熱電変換性能指数 $ZT = 0.11$ を示す層状コバルト酸化物エピタキシャル薄膜", 第14回物性科学領域横断研究会, オンライン, 2020年12月4日-5日 (口頭)
 - 16) キムゴウン, フウビン, リュサンギョン, ジンヒョンジン, ジョヘジュン, 幾原雄一, 太田裕道, "酸化タングステンエピタキシャル薄膜中で安定化された1次元原子欠陥トンネルの異方性電子輸送", 第14回物性科学領域横断研究会, オンライン, 2020年12月4日-5日 (口頭)
 - 17) 佐々野駿, 石川亮, 太田裕道, 柴田直哉, 幾原雄一, "(Li,La)TiO₃ 対称傾角粒界における原子・電子構造とリチウムイオン伝導性", 第14回物性科学領域横断研究会, オンライン, 2020年12月4日-5日 (口頭) 若手奨励賞
 - 18) G. Kim, B. Feng, S. Ryu, H. Jeon, H.J. Cho, Y. Ikuhara, and H. Ohta, "Anisotropy in the electrical conductivity of oxygen deficient WO_x with 1D atomic defect tunnels", 第56回 応用物理学会北海道支部/第17回日本光学会北海道支部合同学術講演会, online, 2021.1.9-10.
 - 19) M. Wei, H.J. Cho, and H. Ohta, "Optoelectronic properties of La-doped CaSnO₃-SrSnO₃-BaSnO₃", 第56回 応用物理学会北海道支部/第17回日本光学会北海道支部合同学術講演会, online, 2021.1.9-10.
 - 20) Q. Yang, J. Lee, H. Jeon, B. Feng, Y. Ikuhara, H.J. Cho, and H. Ohta, "Realization of SrCoO₂ epitaxial films by electrochemical reduction using YSZ solid electrolyte", 第56回 応用物理学会北海道支部/第17回日本光学会北海道支部合同学術講演会, online, 2021.1.9-10.
 - 21) Binjie Chen, Gowoon Kim, Hai Jun Cho, and Hiromichi Ohta, "Modulation of the Metal-to-Insulator Transition Behavior of VO₂ Epitaxial Films by Insertion of TiO₂ Layers", 第56回 応用物理学会北海道支部/第17回日本光学会北海道支部合同学術講演会, online, 2021.1.9-10.
 - 22) 藤本卓嗣, ジョヘジュン, 太田裕道, "水素還元 La ドープ BaSnO₃ エピタキシャル薄膜のキャリア移動度向上", 第56回 応用物理学会北海道支部/第17回日本光学会北海道支部合同学術講演会, online, 2021.1.9-10.
 - 23) Binjie Chen, Gowoon Kim, Hai Jun Cho, and Hiromichi Ohta, "Modulation of the Metal-to-Insulator Transition Behavior of VO₂ Films", 2021年 第68回 応用物理学会春季学術講演会, online, 2021.3.16-19.
 - 24) Gowoon Kim, Bin Feng, Yu-Miin Sheu, Sangkyun Ryu, Hyoungjeen Jeon, Hai Jun Cho, and Hiromichi Ohta, "Thermoelectric Properties of Tungsten Oxide Films with 1D Atomic Defect Tunnels", 2021年 第68回 応用物理学会春季学術講演会, online, 2021.3.16-19.
 - 25) Mian Wei, Hai Jun Cho, and Hiromichi Ohta, "Band Engineering of Transparent Oxide Semiconductor ASnO₃ (A = Ba, Ca, and Sr)", 2021年 第68回 応用物理学会

春季学術講演会, online, 2021.3.16-19.

- 2 6) Q. Yang, J. Lee, H. Jeon, J. Wei, B. Feng, Y. Ikuhara, H.J. Cho, and H. Ohta, “Electrochemical Redox reaction of SrCoO_{2.5} films using YSZ oxide ion conductor”, 2021 年 第 68 回 応用物理学会春季学術講演会, online, 2021.3.16-19.
 - 2 7) Xi Zhang, Gowoon Kim, Qian Yang, Hai Jun Cho, and Hiromichi Ohta, “Electrochemical modulation of superconducting properties in YBa₂Cu₃O_{7-δ} Films”, 2021 年 第 68 回 応用物理学会春季学術講演会, online, 2021.3.16-19.
 - 2 8) Y. Zhang, Y. Takashima, L. Wu, H.J. Cho, and H. Ohta, “Temperature Dependence of Thermoelectric Properties of Ba_{1/3}CoO₂ Epitaxial Films”, 2021 年 第 68 回 応用物理学会春季学術講演会, online, 2021.3.16-19.
 - 2 9) Y. Wu, H.J. Cho, Y. Zhang, B. Feng, M. Mikami, W. Shin, Y. Ikuhara, Y. Sheu, K. Saito, and H. Ohta, “Anomalous Low Heat Conduction in Single-Crystal Superlattice Ceramics Lower than Randomly Oriented Polycrystals”, 2021 年 第 68 回 応用物理学会春季学術講演会, online, 2021.3.16-19.
 - 3 0) Hai Jun Cho, Youngha Kwon, Yuzhang Wu, and Hiromichi Ohta, “Anisotropic Heat Conduction of Coherent Phonons in Superlattices”, 2021 年 第 68 回 応用物理学会春季学術講演会, online, 2021.3.16-19.
 - 3 1) 藤原宏平, 北村未歩, 志賀大亮, 丹羽尉博, 堀場弘司, 野島 勉, 太田裕道, 組頭広志, 塚崎 敦, “Ru 置換 Cr₂O₃ 薄膜における絶縁体金属転移と Ru³⁺ 状態”, 2021 年 第 68 回 応用物理学会春季学術講演会, online, 2021.3.16-19.
- e. 研究会・シンポジウム・ワークショップなど (学会以外)**
- 1) Binjie Chen, Gowoon Kim, Hai Jun Cho, and Hiromichi Ohta, “Reduction of Metal-to-Insulator Transition Temperature of VO₂ Films by Inserting TiO₂ Layers”, The 21st RIES-Hokudai International Symposium 間 [ma], online, December 10-11, 2020 (poster).
 - 2) Gowoon Kim, Bin Feng, Sangkyun Ryu, Hai Jun Cho, Hyungjeon Jeon, Yuichi Ikuhara, and Hiromichi Ohta, “Large Anisotropy of Electron Transport in Oxygen Deficient Tungsten Oxide Epitaxial Films with 1D Atomic Defect Tunnels”, The 21st RIES-Hokudai International Symposium 間 [ma], online, December 10-11, 2020 (poster). Poster Award
 - 3) Qian Yang, Joonhyuk Lee, Hyungjeon Jeon, Bin Feng, Yuichi Ikuhara, Hai Jun Cho, and Hiromichi Ohta, “Electrochemical Redox Control of SrCoO_x Epitaxial Films using YSZ as the Solid Electrolyte”, The 21st RIES-Hokudai International Symposium 間 [ma], online, December 10-11, 2020 (poster). Poster Award
 - 4) Takashi Fujimoto, Hai Jun Cho, and Hiromichi Ohta, “Effect of heat treatment on the microstructure, electron transport properties and chemical bonding states of La-doped BaSnO₃ films”, The 21st RIES-Hokudai International Symposium 間 [ma], online, December 10-11, 2020 (poster).
 - 5) Yuqiao Zhang, Hai Jun Cho and Hiromichi Ohta, “Electron and heat transport properties of BaTiO₃ - BaNbO₃ solid solution epitaxial films”, The 21st RIES-Hokudai International Symposium 間 [ma], online, December

10-11, 2020 (poster).

4.7 シンポジウムの開催

- 1) オーガナイザー：北岡諭, 吉田英弘, 松永克志, 柴田直哉, 太田裕道, 阿部真之, “機能コア構造解析に基づく材料科学の新展開”, 日本セラミックス協会 第33回秋季シンポジウム オーガナイザー, 北海道大学札幌キャンパス, 2020 年 9 月 2 日-4 日

4.8 共同研究

a. 所内共同研究

- 1) キム准教授、玉置教授 (スマート分子材料研究分野) のグループとの共同研究成果が **J. Mater. Sci.** 誌に掲載された。
- 2) 三澤教授 (グリーンナノテクノロジー研究分野) のグループとの共同研究成果が **Chem. Lett.** 誌に掲載された。

b. 民間等との共同研究

- 1) 太田裕道、市光工業
- 2) 山ノ内路彦、イムラ・ジャパン

c. 委託研究

- 1) 該当なし

d. 国際共同研究

- 1) ドイツ・フンボルト大学ベルリン校の N. Koch 教授との共同研究成果が **Adv. Mater. Interfaces** 誌に掲載された。
- 2) 韓国・釜山大学の Hyungjeon Jeon 准教授との共同研究成果が **ACS Appl. Electron. Matter.** 誌に掲載された。
- 3) 台湾・国立交通大学 (現・国立陽明交通大学) の Yu-Miin Sheu 助教との共同研究成果が **ACS Appl. Electron. Matter.** 誌に掲載された。
- 4) フィンランド・Aalto 大学の Maarit Karppinen 教授との共同研究成果が **Adv. Electron. Mater.** 誌に掲載された。
- 5) ドイツ・フンボルト大学ベルリン校の N. Koch 教授らとの共同研究成果が **ACS Appl. Electron. Matter** 誌に掲載された。
- 6) 韓国・釜山大学の Hyungjeon Jeon 准教授との共同研究成果が **ACS Appl. Matter. Interfaces** 誌に掲載された。
- 7) 台湾・国立交通大学 (現・国立陽明交通大学) の Yu-Miin Sheu 助教との共同研究成果が **Adv. Mater. Interfaces** 誌に掲載された。
- 8) 台湾・国立交通大学 (現・国立陽明交通大学) の Yu-Miin Sheu 助教、韓国・成均館大学の Woo Seok Choi 准教授らとの共同研究成果が **J. Am. Ceram. Soc.** 誌に掲載された。

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)、「熱電材料の高 ZT 化に向けたナノ周期平行平板構造の熱伝導率解明」、2017~2020 年度
- 2) 太田裕道 (代表)、新学術領域研究 (研究領域提案型) 領域番号 6103 「機能コアの材料科学」(領域代表者:

松永克志 教授・名古屋大学) 19H05791 界面制御による高機能薄膜材料創製 (研究代表者) 2019 年度～2023 年度

- 3) 山ノ内路彦 (代表)、基盤研究(B)、「ワイル点を有する強磁性体における電流誘起磁壁移動」、2020～2022 年度

b. 大型プロジェクト・受託研究

- 1) 山ノ内路彦、東芝メモリ「傾斜磁気異方性強磁性体におけるスピン軌道トルク磁化反転」2019年1月～2020年3月

4.10 受賞

- 1) Binjie Chen, 発表奨励賞 (2021. 3. 25), Binjie Chen, Gowoon Kim, Hai Jun Cho, and Hiromichi Ohta, “Modulation of the Metal-to-Insulator Transition Behavior of VO₂ Epitaxial Films by Insertion of TiO₂ Layers”, 第 56 回 応用物理学会北海道支部/第 17 回日本光学会北海道支部合同学術講演会, online, 2021. 1. 9-10
- 2) 張 雨橋, 第 50 回 北海道大学 電子科学研究所 松本・羽鳥奨学賞 (2021. 2. 18)
- 3) Gowoon Kim, Poster Award, (2020. 12. 11), Gowoon Kim, Bin Feng, Sangkyun Ryu, Hai Jun Cho, Hyoungjeen Jeon, Yuichi Ikuhara, and Hiromichi Ohta, “Large Anisotropy of Electron Transport in Oxygen Deficient Tungsten Oxide Epitaxial Films with 1D Atomic Defect Tunnels (P59)”, The 21st RIES-Hokudai International Symposium 間 [ma], online, December 10-11, 2020 (poster).
- 4) Qian Yang, Poster Award, (2020. 12. 11), Qian Yang, Joonhyuk Lee, Hyoungjeen Jeon, Bin Feng, Yuichi Ikuhara, Hai Jun Cho, and Hiromichi Ohta, “Electrochemical Redox Control of SrCoO_x Epitaxial Films using YSZ as the Solid Electrolyte (P44)”, The 21st RIES-Hokudai International Symposium 間 [ma], online, December 10-11, 2020 (poster).
- 5) キムゴウン, 優秀発表賞, (2020. 11. 14) Gowoon Kim, Bin Feng, Yuichi Ikuhara, Yu-Miin Sheu, Hai Jun Cho, and Hiromichi Ohta, “Heat and electron transports of 1D atomic defect tunnels stabilized in tungsten oxide epitaxial films (1A03)”, 令和 2 年度 日本セラミックス協会東北北海道支部 研究発表会, 2020 年 11 月 14 日
- 6) 高嶋佑伍, 薄膜材料デバイス研究会スチューデントアワード, (2020. 11. 6) 高嶋佑伍, 張 雨橋, 魏 家科, 馮 斌, 幾原雄一, Hai Jun Cho, 太田裕道, “室温で ZT = 0. 11 を示す Ba_{1/3}CoO₂ エピタキシャル薄膜の作製と評価”, 薄膜材料デバイス研究会 第 17 回研究会「薄膜デバイスの原点」, 2020 年 11 月 6 日. (口頭, Zoom)

4.11 社会教育活動

a. 公的機関の委員

- 1) 該当なし

b. 国内外の学会の役職

- 1) 太田裕道、日本熱電学会：評議員 (2018. 9-2020. 8)
- 2) 太田裕道、日本セラミックス協会東北・北海道支部：幹事 (令和2年度)

c. 兼任・兼業

- 1) 該当なし

d. 外国人研究者の招聘

- 1) なし

e. 北大での担当授業科目 (対象、講義名、担当者、期間)

- 1) 工学部情報エレクトロニクス学科、電子デバイス工学、太田裕道、2020 年 4 月～7 月.
- 2) 工学部情報エレクトロニクス学科、応用数学 II、山ノ内路彦、2020 年 4 月～6 月.
- 3) 工学部情報エレクトロニクス学科、電気電子工学実験 I、II、III (分担)、太田裕道、山ノ内路彦、Hai Jun Cho、2020 年 4 月～8 月.
- 4) 全学教育科目、フレッシュマンセミナー、Hai Jun Cho、2020 年 4 月～2021 年 9 月.
- 5) 全学教育科目「環境と人間」ナノテクノロジーが拓く光・マテリアル革命 (分担)、太田裕道、2020 年 6 月 5 日.
- 6) 工学部情報エレクトロニクス学科、電気電子工学実験 IV、V (分担)、Hai Jun Cho、2020 年 10 月～2021 年 2 月.
- 7) 工学部情報エレクトロニクス学科、電気電子工学実験基礎 (分担)、Hai Jun Cho、2020 年 10 月～2021 年 2 月.
- 8) 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、2020 年 11 月～2021 年 3 月.
- 9) 大学院、電子材料学特論 (分担)、太田裕道、山ノ内路彦、2020 年 12 月～2021 年 2 月.

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) OPTRONICS ONLINE, “北大、DUVを透過する透明トランジスタを実現” (2020.6.16)
- 2) fabcross for エンジニア, “深紫外線を透過する透明な薄膜トランジスタを作製——殺菌灯照射下でも動作可能な新バイオセンサーへの応用に期待 北海道大学” (2020.6.17)
- 3) e.x.press, “深紫外線を透過する透明なトランジスタを実現” (2020.6.24)
- 4) Nanotechnology Platform Japan, “深紫外線を透過する透明なトランジスタを実現 ～全く新しいバイオセンサー～” (2020.7.3)
- 5) 日経産業新聞, “紫外線に強いトランジスタ” (2020.7.28)
- 6) “次世代機能性薄膜の動向(1)～電気・電子機能薄膜～ 4-8. 国立大学法人北海道大学”, Yano E plus 151, 42 (2020).
- 7) fabcross for エンジニア, “過去最高の熱電変換性能指数を示す層状コバルト酸化物を実現——安定で実用的な熱電変換材料として期待 北海道大学” (2020.11.04)
- 8) マイナビニュース, “北大、室温において過去最高クラスの熱電変換性能を持つ物質を実現” (2020.11.04)

- 9) ニコニコニュース, “北大、室温において過去最高クラスの熱電変換性能を持つ物質を実現” (2020.11.04)
- 1 0) ノシー, “北大、室温において過去最高クラスの熱電変換性能を持つ物質を実現” (2020.11.04)
- 1 1) 日本の研究.comニュース, “【注目プレスリリース】金属酸化物における過去最高の室温熱電変換性能指数—安定で実用的な熱電変換材料の実現に大きな期待— / 北海道大学” (2020.11.04)
- 1 2) Mapionニュース, “北大、室温において過去最高クラスの熱電変換性能を持つ物質を実現” (2020.11.04)
- 1 3) 楽天Infoseek News, “北大、室温において過去最高クラスの熱電変換性能を持つ物質を実現” (2020.11.04)
- 1 4) NEWS Collect, “北大、室温において過去最高クラスの熱電変換性能を持つ物質を実現” (2020.11.04)
- 1 5) gooニュース, “北大、室温において過去最高クラスの熱電変換性能を持つ物質を実現” (2020.11.04)
- 1 6) BOGLOBEニュース, “北大、室温において過去最高クラスの熱電変換性能を持つ物質を実現” (2020.11.04)
- 1 7) Phys.org, “Researchers develop layered cobalt oxide with a record-setting thermoelectric figure of merit” (2020.12.23)
- 1 8) EurekAlert!, “Record-setting thermoelectric figure of merit achieved for metal oxides” (2020.12.22)
- 1 9) AZO Materials, “New Layered Cobalt Oxide Exhibits Highest-Ever Thermoelectric Figure of Merit” (2020.12.23)
- 2 0) FLORIDA NEWS TIMES, “Researchers are developing layered cobalt oxide with a record thermoelectric figure of merit” (2020.12.24)
- 2 1) Newsbeez.com, “The researchers are developing layered cobalt oxide with a record-breaking thermoelectric figure of merit” (2020.12.24)
- 2 2) Asia Research News, “Record-setting thermoelectric figure of merit achieved for metal oxides” (2020.12.24)
- 2 3) fooshya.com, “Researchers develop layered cobalt oxide with a record-setting thermoelectric determine of advantage” (2020.12.23)
- 2 4) BrightSurf Science News, “Record-setting thermoelectric figure of merit achieved for metal oxides” (2020.12.22)
- 2 5) Science Magazine, “Record-Setting Thermoelectric Figure Of Merit Achieved For Metal Oxides” (2020.12.23)
- 2 6) The Human Exosome Project, “Record-setting thermoelectric figure of merit achieved for metal oxides” (2020.12.22)
- 2 7) ZENITH NEWS, “Researchers develop layered cobalt oxide with a record-setting thermoelectric figure of merit” (2020.12.23)
- 2 8) X-MOL, “Layered cobalt oxide epitaxial films exhibiting thermoelectric $ZT = 0.11$ at room temperature” (2020.10.13)
- 2 9) TIMES NEWS EXPRESS, “Record-setting thermoelectric figure of merit achieved for metal oxides” (2020.12.22)
- 3 0) iEmpresarial, “Record-setting thermoelectric figure of merit achieved for metal oxides” (2020.12.26)
- 3 1) Nanotechnology Now, “Record-setting thermoelectric figure of merit achieved for metal oxides” (2020.12.29)
- 3 2) Health Medicine Network, “Record-setting thermoelec-

tric figure of merit achieved for metal oxides”

- 3 3) Bioengineer.org, “Record-setting thermoelectric figure of merit achieved for metal oxides” (2020.12.23)
- 3 4) Nanowerk, “Record-setting thermoelectric figure of merit achieved for metal oxides” (2020.12.23)
- 3 5) Science Codex, “Record-setting thermoelectric figure of merit achieved for metal oxides” (2020.12.22)
- 3 6) MIRAGE, “Record-setting thermoelectric figure of merit achieved for metal oxides” (2020.12.23)
- 3 7) AlphaGalileo, “Record-setting thermoelectric figure of merit achieved for metal oxides” (2020.12.23)
- 3 8) OPTRONICS ONLINE, “北大ら、多結晶より熱が伝わりにくい単結晶を発見”, 2021年2月16日

h. ポスドク・客員研究員など

- 1) 張 雨橋 (JSPS Fellow)、張 習 (電子研 非常勤研究員)

i. 修士学位及び博士学位の取得状況

修士学位：2人

- 1) 高嶋佑伍、情報科学院: 修士 (情報科学)、層状コバルト酸化物 $Ba_{1/3}CoO_2$ エピタキシャル薄膜の作製と熱電特性
- 2) 龔 李治坤、情報科学院: 修士 (情報科学)、Fabrication and Characterization of Deep Ultraviolet Transparent Oxide Semiconductor $SrSnO_3$ Thin Film Transistor

博士学位：0人

生命科学研究部門

研究目的

本研究部門では、高速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がります。

光情報生命科学研究分野

教授 三上秀治 (東大院、博(理)、2020.6~)

1. 研究目標

当研究分野では、光技術と情報技術を融合した新技術を創出して生命科学の新たな展開を生み出すことを目標としており、さらに研究成果の実用化・事業化を通じた社会還元も目指している。特に、生体試料の観察に欠かせない蛍光顕微鏡や生体を光で操作する光遺伝学のための高速光制御技術、さらに撮像データから情報を最大限に引き出すデータ解析技術を開拓することにより、これまでは捉えることが困難であったさまざまな生命活動のダイナミクスを捉え、生命科学の進展に貢献することに注力する。本年度は研究分野を新設したことから上記目標のための研究環境の整備を主に行いつつ、3D撮像方式の一種であるライトシート顕微鏡を土台とした、超高速3D蛍光顕微鏡技術の開発を主に行った。

2. 研究成果

従来よりも圧倒的に高速な1,000ボリューム/秒での撮像が可能な超高速ライトシート顕微鏡を設計、開発した。高速化のためのアイデアとして、イメージセンサーでの撮像1回あたり複数枚の2D スライス像を撮像可能な像スキャン法を考案し、これを実装するライトシート顕微鏡光学系を構築した(図1)。これにより、現時点で400ボリューム/秒での生体試料の3D 蛍光撮像に成功した(図2)。撮像速度はスキャナデバイスにより制限されており、現在実装されているスキャナをより高速なスキャナに置き換えることで1,000ボリューム/秒を上回る速度で撮像が可能である。

さらなる高速化を達成するためのソフトウェア技術として、深層学習を用いた画像の解像度向上の技術開発に取り組んだ。本技術は低解像度の入力画像に対して高解像度画像を出力するものであり、より少ないデータ量から所望の画像を構築できるため、カメラのデータレートで制限される撮像速度の限界を上回ることが可能である。本研究では細胞の蛍光画像を多数用意し、低解像度と高解像度の画像をセットで深層学習機に学習させ、20x20ピクセルの画像から80x80の高解像度画像の生成が可能であることを示した。これは16倍の解像度向上、すなわち16倍の高速化が可能であることを意味する。

上記の技術開発と並行して、開発技術の応用先の探索を行った。当初は自由行動する線虫の神経系の観察を主眼に置いていたが、膜電位イメージングや光遺伝学との組み合わせをはじめとする様々な応用先が見出され、開発技術が生命科学の幅広い分野で適用されることが見込まれる。

3. 今後の研究の展望

上記の開発技術につき、目標となる1,000ボリューム/秒を達成するために装置の改良を行うとともに、多色励起・観察対応などの改良により汎用性を高める。

上記開発技術は幅広い応用展開が見込まれるため、ニコ

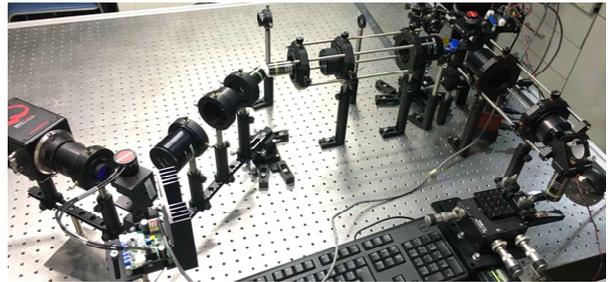


図1 超高速3D蛍光顕微鏡。

ンイメージングセンターにおいて共用化を行い、学内のみならず全国からの利用者を募る体制にする。同時に、個別のニーズに合わせた改良も並行して行う。

一方で、ライトシート顕微鏡の原理にもとづく性能限界も明らかになってきた。今後、より多くの生命科学のニーズに応えられるよう、全く異なる原理による新規計測技術の開発も行っていく。

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

該当なし

4.6 講演

a. 招待講演 (国際学会)

該当なし

b. 招待講演 (国内学会)

該当なし

c. 一般講演 (国際学会)

該当なし

d. 一般講演 (国内学会)

- 1) 三上 秀治、「オプトメカニカル画像走査による高速ライトシート顕微鏡 High-speed light-sheet microscopy using optomechanical image scanning」、第58回日本生

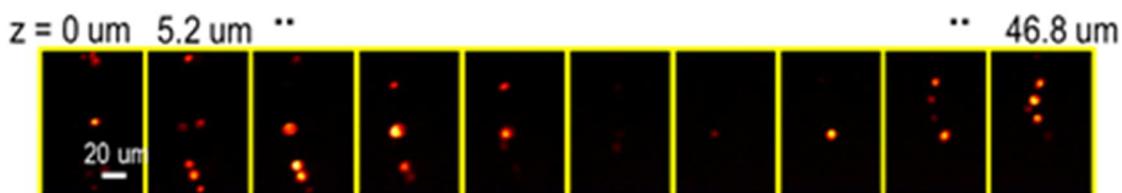


図2 超高速3D蛍光顕微鏡で撮像したクラミドモナスの自家蛍光画像。

物物理学学会年会、オンライン開催、Japan (2020-09)

e. **研究会・シンポジウム・ワークショップなど（学会以外）**

- 1) 三上 秀治、「超高速蛍光イメージング顕微鏡の基礎から生命科学への応用まで」、2020 年度第 4 回光機能研究会、Web 講演会、Japan (2020-08)
- 2) 三上 秀治、「高速蛍光イメージングが未来の生命科学を切り拓く」、第 6 回 北大・部局横断シンポジウム、Web 開催、Japan (2020-10)
- 3) 三上 秀治、「蛍光顕微鏡の技術革新が未来の生命科学を切り拓く」、先端顕微鏡技術セミナー、オンライン開催、Japan (2020-11)
- 4) 三上 秀治、「超高速蛍光イメージングから広がる未来のバイオフォトンクス」、光塾 2020、オンライン開催、Japan (2020-12)
- 5) H. Mikami, “High-speed fluorescence imaging: toward integration of photonics, informatics, and life sciences”, 21st RIES-Hokudai International Symposium, オンライン開催, Japan (2020-12)
- 6) 三上 秀治、「高速蛍光顕微鏡の現在と未来」、日本顕微鏡学会 超高分解能顕微鏡法分科会 2020 年度研究会 「超高時間分解能顕微鏡の進展と展望」、オンライン開催、Japan (2021-02)
- 7) 三上 秀治、「高速蛍光顕微鏡技術の最前線から見えてきた未来のバイオイメージング」、ABiS Symposium 先端バイオイメージングの現在そして未来 ～我が国の研究戦略～、オンライン開催、Japan (2021-02)
- 8) 三上 秀治、「生命科学・医学の未来を照らす最先端光学顕微鏡の開発」、第 3 回フォトエキサイトクス研究拠点 研究会 ～ 光励起状態制御の予測と高度利用～、Web 開催、Japan (2021-03)

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

ニコソイメージングセンター

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

- 1) 三上 秀治、国立研究開発法人 科学技術振興機構 さきがけ、「生命活動をリアルタイムに追跡する超高速

3D 蛍光顕微鏡」、2017～2020 年度

- 2) 三上 秀治、公益財団法人 上原記念生命科学財団、「包括的リアルタイム 3D 神経系観察・制御法の開発」、2020～2022 年度
- 3) 三上 秀治、公益財団法人 光科学技術研究振興財団、「4D 光観察・光操作の融合による包括的神経系制御法の開発」、2020～2022 年度

4.10 受賞

- 1) 三上 秀治、第 5 回応用物理学会フォトニクス奨励賞 「“Virtual-freezing fluorescence imaging flow cytometry” Nature Communications, vol.11,1162 (2020)」(応用物理学会) 2021 年 03 月

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) The 12th International Conference on Optics-photonics Design & Fabrication, Program Committee
- 2) SPIE Photonics West BiOS “High-Speed Biomedical Imaging and Spectroscopy VI”, Program Committee

c. 兼任・兼業

- 1) 国立研究開発法人科学技術振興機構、個人型研究者 (2020.6.1～2021.3.31)

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）

- 3) 工学部、生体工学概論、三上 秀治、2020 年 10 月 01 日～2021 年 03 月 31 日
- 4) 情報科学研究科、脳神経科学特論、三上 秀治、2020 年 10 月 22 日～2021 年 02 月 03 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

該当なし

i. 修士学位及び博士学位の取得状況

修士学位：該当なし

博士学位：該当なし

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 三友秀之（東工大院、博（工）、2011.4～）
助教 与那嶺雄介（東工大院、博（工）、2018.4～）
院 生
博士課程 MBA Joshua、熊 坤
修士課程 関澤侑祐、岡田直大、楊 婧妍
 杉山亮、豊川知怜、蔣 子睿、Cheah Wei Jie
学部生 神内風汰、
研究生 木 桜棋

1. 研究目標

生命現象の本質は、生体分子と呼ばれる有機化合物(アミノ酸、糖、脂質、ビタミン、補酵素、ホルモン、タンパク質、核酸など)の自己組織化による複合体形成と化学反応との協奏現象である。自己組織化による創発の基礎的研究は、エネルギーを極力使わない微細加工技術として注目されており、材料開発への応用において重要である。近年、分子の代わりにナノ・マイクロメートルサイズの構造体を疑似巨大分子として用いた「分子を超えた自己組織化」の理解・応用が求められている。本研究分野ではプラズモン共鳴現象に基づく蛍光やラマン散乱の増強などを示す金のナノ粒子の自己組織化による集合体形成の制御法の開発ならびに新奇な物理現象の発見をめざしている。令和2年度は、(a) 温度に反応して集合する金ナノ粒子の反応温度の制御、(b) DNA ブラン基板を利用した金ナノロッドの動的構造制御システムの構築、(c) 安定同位体標識と共鳴ラマンイメージングによる藻類の色素生産プロセス追跡、において顕著な成果をあげたので報告する。

2. 研究成果

(a) 温度に反応して集合する金ナノ粒子の反応温度の制御
金ナノ粒子の集合化を制御する手法はこれまで広く研究されてきた。中でも、外部刺激や環境変化(熱、pH、光など)によってその集合化を制御する手法が注目されている。我々はこれまでに、アルキル基を有するオリゴエチレングリコール (OEG) 誘導体で覆われた球状金ナノ粒子は昇温に伴い表面修飾分子の脱水和が起り集合化すること、また、このとき粒子表面の曲率が小さい(粒径が大きい)ほど低い温度で集合化することを見いだしてきた。ポリエチレングリコールは生体適合性も高く、粒子等の分散安定性や血中滞留性を高めることができる物質としてよく知られているが、オリゴエチレングリコールを有するアルカンチール分子で自己組織化膜を形成することでも同様の機能が期待できるため、この温度応答性OEG被覆金ナノ粒子はバイオ応用に向いていると期待されている。バイオ応用の観点から、反応温度を体温付近で“精密に”制御可能にする

ことが望まれた。これまでの研究より、粒子表面に修飾する分子の疎水性や粒子表面の曲率によって反応温度が変わることが明らかになってきたが、粒子の曲率を精密に制御することは難しい。そこで、本研究では、OEG誘導体で被覆した球状金ナノ粒子の温度応答性を表面修飾分子のデザインにより精密に制御する方法の開発に取り組んだ(図1)。

まず、リガンド分子の疎水性に着目し、異なる温度応答性を示す末端にメチル基を有するリガンド分子(C1-EG6)とエチル基を有するリガンド分子(C2-EG6)を異なる比率で混合して修飾し、動的ラマン測定から集合化温度を決定した(図2A)。その結果、集合化温度は32°C (C2-EG6 100%)から64°C (C1-EG6 100%)の間で比率に応じて変化した(図2B赤●)。次に、脱水和挙動を示すOEG部位の局所密度に着目し、温度応答性リガンド(C2-EG6)とオリゴエチレングリコール (OEG)部分の長さの短い非温度応答性リガンド(HO-EG2)を混合して温度応答性リガンド分子の局所密度を変えた。その結果、混合比に応じて集合化する温度が徐々に変化することが確認された(図1B右、図2B青■)。一方で、末端にOH基を有するOEG長さが等しいHO-EG6を混合した場合、少量でも大きな集合化温度の上昇が確認された(図2B緑▲)。これらの違いは、OEG部位の局所密度によって温度応答が制御できたことを示している。

本研究の成果は、バイオ応用の観点から有用な材料であるオリゴエチレングリコールの物性を制御する新しい手法としても画期的であり、様々な医用応用への展開が期待される。

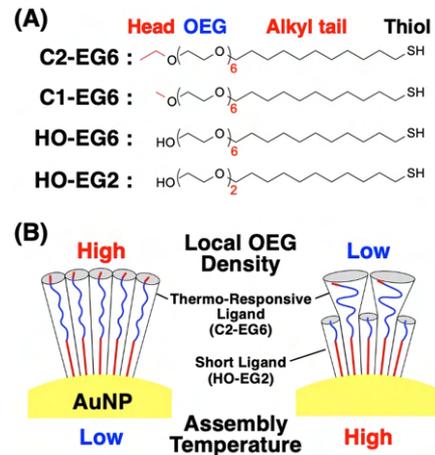


図1. (A) 表面修飾に用いたリガンド分子の化学構造式と (B) OEG 長さの異なるリガンド分子の混合による OEG の局所密度の制御のイメージ

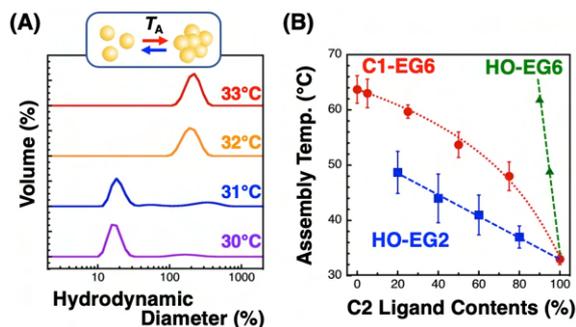


図2. (A) 金ナノ粒子の温度に依存した流体力学半径の変化(集合化), (B) C2-EG6リガンドと各種リガンドを混合して被覆した金ナノ粒子 (15 nm) の集合化温度

(b) DNA ブラシ基板を利用した金ナノロッドの動的構造制御システムの構築

金属ナノ粒子で起こる局在表面プラズモン共鳴 (LSPR) は、粒子の大きさや形状に依存し、棒状の金ナノ粒子 (金ナノロッド) 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 LSPR (L-LSPR) は、短波長側の Transverse LSPR (T-LSPR) よりも高い光応答性を示し、その形状により波長を制御可能であることなどから、その応用が広く検討されている。一方で、異方性ナノ粒子の L-LSPR を効果的に利用するには、粒子の向きや集合状態など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を作製する方法などが報告されているが、粒子の密度と配向を適切に制御可能な技術はほとんどなかった。我々はこれまで、DNAを片末端で固定化した基板 (DNAブラシ) を足場として利用することで、金ナノロッドの静電的な吸着現象により簡便に広範囲で金ナノロッドが垂直配向固定化されたアレイを作製する手法を開発してきた (図3a)。この垂直配向化金ナノロッドアレイはソフトマターであるDNAブラシを鋳型にしているため、外部刺激 (環境変化) によって配向を動的に変えることが可能であると期待された。そこで、溶液のpHを変化させ、金ナノロッド-DNA間の相互作用を調整した結果、金ナノロッドの配向を可逆的に制御できることが明らかになった。そこで、本研究では、塩濃度を変化させたときの金ナノロッドの配向変化を調べ、金ナノロッドアレイの配向制御のメカニズムの解明に取り組んだ (図3b)。

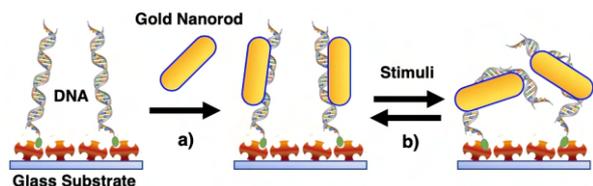


図3. DNA固定化基板を足場とした垂直配向化金ナノロッドアレイ作製 (a) と刺激に応答した配向変化 (b) の模式図

既報の方法により、短軸が約10 nm、長軸が約34 nmの大

きさの金ナノロッドを調製し、カチオン性およびノニオン性の表面修飾リガンドを任意の比率で混合し、表面修飾を行った。DNAブラシ基板にカチオン性金ナノロッドを吸着させ、バッファー交換により溶液のpHや塩濃度を変え、スペクトル測定により吸着した金ナノロッドの配向を評価した。pHを7.6から4.0まで変えると、800 nm付近のL-LSPRの増大が観察された (図4A)。このpH変化における段階的なスペクトルの変化は表面電位の変化と相関するため、金ナノロッド-DNA間の静電相互作用の制御により金ナノロッドの配向変化が誘起されたと考えられる。具体的には、pHの低下によって粒子表面のカチオン電荷量が増え、DNAとより強い (安定な) 静電相互作用を形成したことが、DNAブラシの構造を変化させ、金ナノロッドの配向を変化させたと推察された。一方で、塩濃度を変えた場合、塩濃度が高くなるとL-LSPRのピークが増大した。塩濃度が高い条件では、金ナノロッドとDNA間の静電相互作用は弱くなるため、pH変化の系とは異なるメカニズムで金ナノロッドの配向変化が誘起されたと考えられる。この金ナノロッドの配向変化のメカニズムは複雑でまだ理解しきれていないが、本システムは様々な外部環境の変化により金ナノロッドの配向の動的な制御が可能であることが明らかになった。

一般的に、分子が配向すると偏光特性が発現する。この分子の配向 (偏光特性) が外部刺激で制御可能になることで、液晶モニタのような光機能性材料へと発展的に展開されてきた。そのため、今後、この金ナノロッドアレイの配向を外部刺激によりアクティブに制御可能にすることで、より高度な機能性を有するプラズモニクデバイスへの展開が期待される。

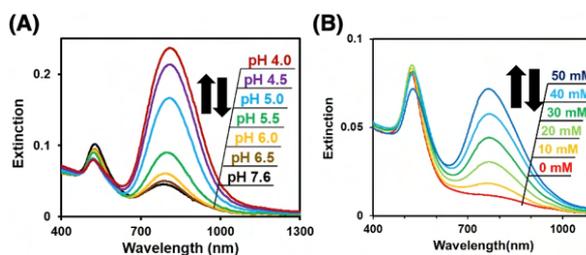


図4. (A) DNAブラシ基板上に固定化した金ナノロッドのpHに依存した消光スペクトルの変化と (B) 塩濃度に依存した消光スペクトルの変化

(c) 安定同位体標識と共鳴ラマンイメージングによる藻類の色素生産プロセス追跡

ヘマトコッカス (*Haematococcus lacustris*) は淡水性の単細胞藻類で、生育に不適な環境条件で誘導すると、細胞内にアスタキサンチン (AXT) と呼ばれる有用カロテノイドを貯め込む。AXTは微弱な蛍光しか示さない一方で、共鳴ラマン分光法により、ラマンシグナルを著しく増大できる。また、AXTの炭素を安定同位体¹³Cに置換すると、共鳴ラマンスペクトルが低波数シフトするため、¹³C標識したAXTを識別できる。本研究では、¹³C-二酸化炭素をプロー

ブとして用い、ヘマトコッカス細胞に炭素固定により取り込ませ、新たに生成した ^{13}C -AXT を共鳴ラマンイメージングで可視化することで、AXT 代謝プロセスの時間情報を探索した。

まず、 $^{13}\text{CO}_2$ 雰囲気下で AXT 誘導したヘマトコッカス細胞の AXT スペクトルは、通常の ^{12}C -AXT スペクトルと比較して、各ピークが低波数側へシフトした（最大で 32 cm^{-1} ; v_1 ピーク: 図 5 c)。これは、AXT 中の炭素原子が、より重い ^{13}C に置換されたことで、分子結合の振動数が低下したことに起因する。この結果から、 $^{13}\text{CO}_2$ が炭素固定により細胞内に取り込まれ、引き続き代謝により AXT の炭素原子が ^{13}C に置換されたことが分かった。次に、このピークシフトの違いを利用し、両者のスペクトル (図 5 c) を基底として用いて、マッピング測定を行った。得られた画像を赤 (^{13}C) と緑 (^{12}C) で色別した結果、両者を明確に見分けられた (図 5 b)。このような判別は光学顕微鏡では困難であり (図 5 a)、安定同位体とラマンイメージングを組み合わせた測定の有利性が示された。

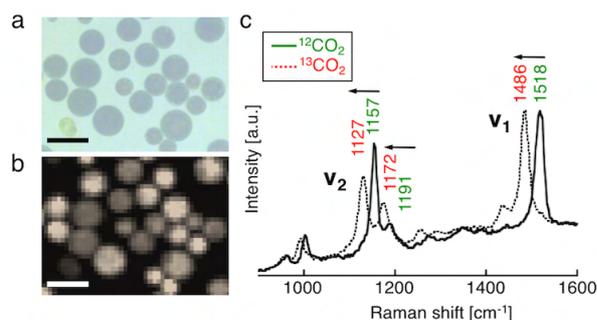


図5. ^{13}C -および ^{12}C -AXT を蓄積したヘマトコッカス細胞の共鳴ラマンイメージング。(a) 光学顕微鏡画像。(b) 共鳴ラマン画像。(c) 共鳴ラマンスペクトル。スケールバー: $40\ \mu\text{m}$ 。

続いて、AXT 誘導時間は一定とし、 $^{13}\text{CO}_2/^{12}\text{CO}_2$ の切替えのタイミングを様々に変え、共鳴ラマンイメージの変化を比較した。具体的には、合計の AXT 誘導時間 24 h の内、 $^{13}\text{CO}_2$ インキュベーション時間を徐々に延長し ($12, 15, 18, 21, 24\text{ h}$)、その差分変化を比較した (図 6 a)。各時間において、ランダムに選択した細胞の共鳴ラマンスペクトル (v_1 および v_2 ピーク) は、 ^{13}C -AXT (赤色) と ^{12}C -AXT (緑色) との、二峰性のスペクトルを示し、両者の強度は様々な比率を示した (代表的な4スペクトル: 図 6 b)。それに伴って、 ^{12}C -および ^{13}C -AXT が併存する細胞は、赤と緑のグラデーション色で表された (例: cell 2: 黄色; cell 3: オレンジ; 図 6 b)。この結果は、 $^{13}\text{CO}_2/^{12}\text{CO}_2$ の切替えに追従して、 100% の ^{12}C からなる AXT が、速やかに形成されたことを示している。AXT は低分子化合物であるため、切替え操作 ($<15\text{ min}$) よりも短い時間で、炭素固定 \rightarrow AXT 変換のプロセスを完了することが示唆された。このように、一定期間内の $^{13}\text{CO}_2/^{12}\text{CO}_2$ 培養の長さを変えて差分変化を比較することで、炭素固定 \rightarrow AXT 変換の活発な時間帯や、各細胞の個体差を

可視化することが可能であった。本手法は AXT を高効率に生産する細胞を選別する、基盤技術になると期待できる。

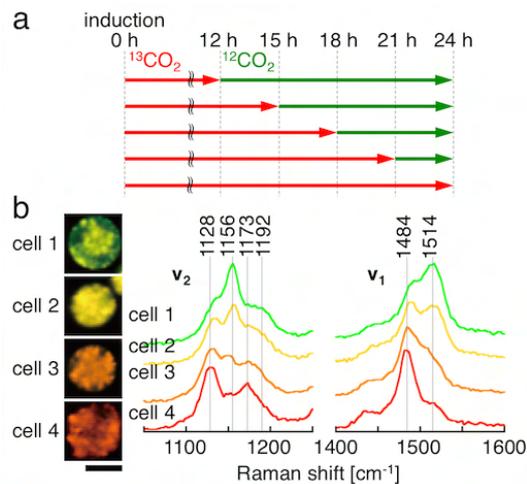


図6. (a) $^{13}\text{CO}_2/^{12}\text{CO}_2$ 切替え培養のタイムライン。(b) ^{13}C -と ^{12}C -AXT を含有するヘマトコッカス細胞の共鳴ラマン画像およびスペクトル。スケールバー: $20\ \mu\text{m}$ 。

3. 今後の研究の展望

自然界に広く見ることのできる自己組織化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単に作り出す技術は省エネルギー型微細加工技術として注目されている。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自己組織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いる。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進展させている。今後はここで構築した自己組織化による集合体の機能をシミュレーションも含めさらに検証し、自己組織化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) T. Kimura, A. Suzuki, Y. Yang, Y. Niida, A. Nishioka, M. Takei, J. Wei, H. Mitomo, Y. Matsuo, K. Niikura, K. Ijro, K. Tano, M. Yabashi, T. Ishikawa, T. Oshima, Y. Bessho, Y. Joti and Y. Nishino: "Micro-liquid enclosure array and its semi-automated assembling system for x-ray free-electron laser diffractive imaging of samples in solution", *Review of Scientific Instruments*, 91: 083706 (2020) 【電子研内共著】
- 2) K. Sano, T. Yuki, Y. Nomata, N. Nakayama, R. Iida, H. Mitomo, K. Ijro and Y. Osada: "Intra-helical Interactions in α -Helical Coiled-Coil Determine the Structural Stability of Tropomyosin", *Biochemistry*, 59(23): 2194-2202 (2020)

- 3) Y. Sekizawa, H. Mitomo, M. Nihei, S. Nakamura, Y. Yonamine, A. Kuzuya, T. Wada and K. Ijro: "Reversible Changes in the Orientation of Gold Nanorod Arrays on Polymer Brushes", *Nanoscale Advances*, 2: 3798-3803 (2020)
- 4) S. Nakamura, H. Mitomo, Y. Yonamine and K. Ijro: "Salt-Triggered Active Plasmonic Systems Based on the Assembly/Disassembly of Gold Nanorods in a DNA Brush Layer on a Solid Substrate", *Chemistry Letters*, 49(7): 749-752 (2020)
- 5) Y. Yonamine, K. Hiramatsu, T. Ideguchi, T. Ito, T. Fujiwara, Y. Miura, K. Goda and Y. Hoshino, "Spatiotemporal monitoring of intracellular metabolic dynamics by resonance Raman microscopy with isotope labeling", *RSC Advances*, 10, 16679-16686 (2020).
- 6) K. Xiong, H. Mitomo, X. Su, Y. Shi, Y. Yonamine, S. Sato and Kuniharu Ijro: "Molecular configuration-mediated thermo-responsiveness in oligo(ethylene glycol) derivatives attached on gold nanoparticles", *Nanoscale Advances*, 3, 3762-3769 (2021)

4.2 学術論文 (査読なし)

該当なし

4.3 総説・解説・評論等

- 1) H. Mitomo and K. Ijro: "Controlled Nanostructures Fabricated by the Self-assembly of Gold Nanoparticles via Simple Surface Modifications", *The Bulletin of the Chemical Society of Japan*, 94(4), 1300-1310 (2021)
- 2) 三友 秀之、居城 邦治: 「金ナノ粒子自己組織化カプセルを用いたドラッグデリバリーシステムの開発」、*週刊 医学のあゆみ*, 275(13): 1293-1299 (2020)
- 3) S. Nakamura, H. Mitomo and K. Ijro: "Assembly and Active Control of Nanoparticles using Polymer Brushes as a Scaffold", *Chemistry Letters*, 50: 361-370 (2021)

4.4 著書

- 1) 居城 邦治: 「バイオミメティクス・インフォマティクスを支えるナノテクノロジー」、バイオミメティクス・エコミメティクス ー持続可能な循環型社会へ導く技術革新のヒントー、シーエムシー出版: 195-201 (2021)
- 2) 三友 秀之: 「持続型工業の創成に向けて: ナノ材料とバイオミメティクス」、バイオミメティクス・エコミメティクス ー持続可能な循環型社会へ導く技術革新のヒントー、シーエムシー出版: 279-289 (2021)

4.5 特許

該当なし

4.6 講演

a. 招待講演 (国際学会)

該当なし

b. 招待講演 (国内学会)

該当なし

c. 一般講演 (国際学会)

該当なし

d. 一般講演 (国内学会)

- 1) 三友 秀之*、石 軼尔、与那嶺 雄介、居城 邦治: 「Thermo-Responsive Assembly of Gold Nanoparticles Depending on Oligo(ethylene glycol) Density at Their Surfaces」、第 69 回高分子学会年次大会(中止)、福岡国際会議場、福岡県福岡市(2020-05)
- 2) 与那嶺 雄介*、ンバ ジョシュア、星野 友、三友 秀之、居城 邦治: 「藻類由来カロテノイドを用いた高感度ラマンプローブの多色化」、第 69 回高分子学会年次大会(中止)、福岡国際会議場、福岡県福岡市 (2020-05)
- 3) 熊 坤*、三友 秀之、与那嶺 雄介、居城 邦治: 「シクロデキストリンの包接作用を利用した金ナノ粒子の曲率依存的な自己集合化」、第 69 回高分子学会年次大会(中止)、福岡国際会議場、福岡県福岡市 (2020-05)
- 4) 関澤 祐侑*、三友 秀之、中村 聡、与那嶺 雄介、居城 邦治: 「DNA ブラシに吸着した金ナノロッドの pH 応答型配向変化」、ナノ学会第 18 回大会(中止)、横浜国立大学、神奈川県横浜市 (2020-07)
- 5) 三友 秀之*、関澤 祐侑、中村 聡、与那嶺 雄介、居城 邦治: 「DNA ブラシ基板上での金ナノロッドの pH 応答型配向変化」、第 30 回バイオ・高分子シンポジウム、東京工業大学(オンライン開催)、東京 (2020-07)
- 6) 三友 秀之*、熊 坤、石 軼尔、与那嶺 雄介、居城 邦治: 「金ナノ粒子表面のオリゴエチレングリコールの局所密度を利用した温度応答性制御」、第 69 回高分子討論会、岩手大学(オンライン開催)、岩手県盛岡市 (2020-09)
- 7) 与那嶺 雄介*、ンバ ジョシュア、星野 友、三友 秀之、居城 邦治: 「藻類由来カロテノイドを用いた多色ラマンイメージング試薬の開発」、第 69 回高分子討論会、岩手大学 (オンライン開催)、岩手県盛岡市 (2020-09)
- 8) 熊 坤*、三友 秀之、与那嶺 雄介、居城 邦治: 「シクロデキストリンの包接作用を利用した金ナノ粒子の曲率依存的な集合体の創製」、第 71 回コロイドおよび界面化学討論会、岩手大学(オンライン開催)、岩手県盛岡市 (2020-09)
- 9) 堀合 理子*、谷地 昶拓、松原 正樹、三友 秀之、村松 淳司、蟹江 澄志: 「金ナノロッドをコアとした液晶性有機無機ハイブリッド dendrimer の合成」、第 71 回コロイドおよび界面化学討論会、岩手大学 (オンライン開催)、岩手県盛岡市 (2020-09)
- 10) 関澤 祐侑*、三友 秀之、中村 聡、与那嶺 雄介、居城 邦治: 「DNA ポリマーブラシを用いた金ナノロッド配向変化」、第 55 回高分子学会北海道支部研究発表会(オンライン開催) (2021-01)
- 11) 岡田 直大*、与那嶺 雄介、三友 秀之、居城 邦治: 「DNA 伸長酵素を用いた高感度蛍光プローブの開発」、第 55 回高分子学会北海道支部研究発表会(オンライン開催) (2021-01)
- 12) 豊川 知怜*、三友 秀之、関澤 祐侑、与那嶺 雄介、居城 邦治: 「GNR 固定化 DNA ブラシを用いた細胞表面分析基板の創製」、第 55 回高分子学会北海道支部研究発表会(オンライン開催) (2021-01)
- 13) 神内 風汰*、三友 秀之、熊 坤、与那嶺 雄介、居城 邦治: 「温度応答性金ナノ粒子の表面物性が集合化に及ぼす影響」、第 55 回高分子学会北海道支部研究発表会(オンライン開催) (2021-01)

- 1 4) 堀合 理子*, 谷地 起拓, 松原 正樹, 三友 秀之, 村松 淳司, 蟹江 澄志:「液晶性有機デンドロン修飾金ナノロッドの自己組織化と光学特性制御」日本化学会第 101 回春季年会、東京理科大 (オンライン)、東京 (2021-03)
- 1 5) 与那嶺 雄介*, ジョシュア ンバ, 星野 友, 三友 秀之, 居城 邦治:「藻類由来ラマンイメージング色素の安定同位体標識による多色」、日本化学会 第 101 春季年会(オンライン開催) (2021-03)
- 1 6) 熊 坤*, 三友 秀之, 石 軼尔, 与那嶺 雄介, 居城 邦治:「オリゴエチレングリコール系分子での表面修飾による金ナノ粒子集合体の温度応答性の制御」、日本化学会 第 101 春季年会(オンライン開催) (2021-03)
- 1 7) 岡田 直大*, 与那嶺 雄介, 三友 秀之, 居城 邦治:「DNA 伸長酵素を用いた高感度蛍光プローブの開発」、日本化学会 第 101 春季年会(オンライン開催) (2021-03)
- 1 8) 関澤 祐侑*, 三友 秀之, 中村 聡, 与那嶺 雄介, 居城 邦治:「DNA 高分子ブラシを利用した pH 依存的な金ナノロッド配向変化」、日本化学会 第 101 春季年会(オンライン開催) (2021-03)
- 1 9) 孫 杜紅*, 齋藤 結大, 七分 勇勝, 三友 秀之, 居城 邦治, 小西克明:「フッ素化エチレングリコール配位子で保護した Au₂₅ クラスターの合成」、日本化学会第 101 春季年会(オンライン開催) (2021-03)

e. 研究会・シンポジウム・ワークショップなど (学会以外)

- 1) X. Kun*, H. Mitomo, Y. Yonamine and K. Ijro: “Curvature-Dependent Assembly Formation of Gold Nanoparticles Using Cyclodextrin Inclusion”, The 21st RIES-Hokudai International Symposium, オンライン, Japan (2020-12)

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

- 1) 三友 秀之, 居城 邦治 (西野 吉則, 鈴木 明大 (コヒーレント光研究分野)):「金ナノ粒子集合体の構造解析」、

b. 民間等との共同研究

- 1) 居城 邦治 (千歳科学技術大学(木村一須田 廣美)):「ヒメマスの骨代謝、骨強度と骨質に関する検討」、2020 年度物質・デバイス領域共同研究 基盤共同研究
- 2) 居城 邦治 (日本工業大学(佐野 健一)):「ナノ構造体を利用した細胞透過性 DDS 担体の開発」、2020 年度物質・デバイス領域共同研究 基盤共同研究
- 3) 居城 邦治 (北見工業大学(渡邊 眞次)):「フェノール性水酸基を利用した酸化鉄-ポリイミド複合微粒子の合成」、2020 年度物質・デバイス領域共同研究 基盤共同研究
- 4) 三友 秀之 (慶応義塾大学(齋木 敏治)):「アルキル鎖間相互作用を利用した金ナノ粒子複合体形成機構の解明」、2020 年度物質・デバイス領域共同研究 基盤共同研究
- 5) 居城 邦治 (関西大学(葛谷 明紀)):「非天然 DNA アナログを用いた DNA 分子機械の構築と基板上固定

化」、2020 年度物質・デバイス領域共同研究 展開共同研究 A

- 6) 三友 秀之 (慶応義塾大学(中山 牧水)):「金ナノ粒子表面と応答性ポリマー間相互作用の温度スイッチング」、2020 年度物質・デバイス領域共同研究 次世代若手
- 7) 居城 邦治, 三友 秀之 (神戸大学(江原 靖人)):「新型コロナウイルス (COVID-19) を高感度で検出するデバイスの作製」、2020 年度物質・デバイス領域共同研究 COVID-19 共同研究
- 8) 三友 秀之 (千歳科学技術大学(木村一須田 廣美)):「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」、2020 年度物質・デバイス領域共同研究拠点
- 9) 三友 秀之 (北海道大学 (佐藤敏文)):「“超”重合法の創成—高機能性高分子材料の“超”高効率合成法の開発—」創成特定研究事業

c. 委託研究

該当なし

d. 国際共同研究

- 1) K. Ijro (Adnrew Pike (Newcastle University (GBR))): “Development of Conducting DNA” (2007 年-)
- 2) K. Ijro (National Chiao Tung University, Taiwan): “Development of Nanoparticle Devices” (2013 年-)
- 3) 居城 邦治 (王 國慶 (中国海洋大学)(CHN))):「金ナノワイヤーで覆われた金ナノプレートの表面解析と表面増強ラマン散乱による細胞イメージング」、2020 年度 物質・デバイス領域共同研究 基盤共同研究

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) 居城 邦治, 基盤研究 S (分担)、局在プラズモンシートによる細胞接着ナノ界面の超解像度ライブセルイメージング(分担)、2019~2023 年度
- 2) 三友 秀之, 基盤研究 B (代表)、三角形ナノプレートと脂質膜への誘導システムによる超高感度バイオセンサーの創製、2018~2020 年度
- 3) 三友 秀之, 基盤研究 A (分担)、ナノ粒子コア型ハイブリッドデンドリマーの異方的形状動的变化に基づく協奏機能の誘起、2019~2022 年度
- 4) 三友 秀之, 基盤研究 B (分担)、ナノスケール光サーモメトリーの開発と表面熱物性計測の新展開、2020~2022 年度
- 5) 与那嶺 雄介, 基盤研究 C (代表)、合成高分子アシストによる機能強化タンパク質の開発、2018~2020 年度

b. 大型プロジェクト・受託研究

- 1) 三友 秀之 (泉科学技術振興財団):「薬剤送達システムへの展開を志向した金ナノ粒子正多面体カプセルの創製」、2019-2020 年度、公益財団法人泉科学技術振興財団研究助成

4.10 受賞

- 1) 関澤 祐侑: 優秀講演賞 「DNA ポリマーブラシを用いた金ナノロッド配向変化」 (第 55 回高分子学会北海道支部研究発表会) 2021 年 01 月
- 2) 関澤 祐侑: 優秀発表賞 「pH 変化による高分子ブラ

シを用いた金ナノロッドの可逆的な配向変化」(生命科学院ソフトマター専攻令和2年度修士論文審査会) 2021年02月

- 3) 関澤 祐佑: 総合成績最優秀賞(令和元年入学生命科学院ソフトマター専攻) 2021年02月

4.11 社会教育活動

a. 公的機関の委員

- 1) 居城 邦治: 文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム事業「技術スタッフ表彰選定委員」(2020年07月21日~2021年03月31日)

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 研究会運営委員長(2002年04月01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04月01日~現在)
- 3) 三友 秀之: 高分子学会 北海道支部 若手会幹事(2012年06月01日~現在)
- 4) 居城 邦治: 日本化学会 生体機能関連化学部会 幹事(2016年03月01日~2021年02月28日)

c. 兼任・兼業

- 1) 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)
- 2) 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)
- 3) 三友 秀之: 第34期(前期)「高分子」編集委員会 委員(2018年06月01日~2020年05月31日)
- 4) 居城 邦治: 理化学研究所 開拓研究本部 伊藤ナノ医工学研究室 客員主幹研究員(2019年04月01日~2022年03月31日)
- 5) 与那嶺 雄介: 科学技術専門家ネットワーク・専門調査員(2020年04月01日~2021年03月31日)
- 6) 居城 邦治: 第69回高分子討論会 会場責任者(2020年09月16日~2020年09月18日)
- 7) 三友 秀之: 第69回高分子討論会 会場責任者(2020年09月16日~2020年09月18日)
- 8) 与那嶺 雄介: 第69回高分子討論会 会場責任者(2020年09月16日~2020年09月18日)

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) 全学共通、環境と人間 ナノテクノロジーが拓く光・マテリアル革命、居城 邦治、2020年04月01日~2020年09月30日
- 2) 全学共通、環境と人間 ナノテクノロジーが拓くバイオサイエンスの新潮流、居城 邦治、2020年04月01日~2020年09月30日
- 3) 生命科学院、ソフトマター分子科学特論(高分子化学)、居城 邦治、三友 秀之、2020年04月01日~2020年09月30日
- 4) 生命科学院、ソフトマター科学研究、居城 邦治、2020年04月01日~2021年03月31日
- 5) 生命科学院、ソフトマター科学実習、居城 邦治、2020年04月01日~2021年03月31日
- 6) 生命科学院、ソフトマター科学論文購読I、居城 邦

治、2020年04月01日~2021年03月31日

- 7) 生命科学院、ソフトマター科学論文購読II、居城 邦治、2020年04月01日~2021年03月31日
- 8) 生命科学院、ソフトマター科学特別研究、居城 邦治、2020年04月01日~2021年03月31日
- 9) 生命科学院、ソフトマター科学論文購読、居城 邦治、2020年04月01日~2021年03月31日
- 10) 生命科学院、ソフトマター分子科学特論(超分子化学)、居城 邦治、2020年10月01日~2021年03月31日
- 11) 全学共通、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論II-光・物質・生命・数理の融合科学-、居城 邦治、2020年11月24日~2020年11月25日

f. 北大以外での非常勤講師(対象、講義名、担当者、期間)

- 1) 与那嶺 雄介、千歳科学技術大学、マテリアルフォトリクス実験A、2020年04月01日~2020年09月13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: 2人

- 1) 関澤 祐佑: 生命科学院ソフトマター専攻、修士(理学)、pH変化による高分子ブラシを用いた金ナノロッドの可逆的な配向変化
- 2) 岡田 直大: 生命科学院ソフトマター専攻、修士(理学)、DNA伸長酵素を用いた高感度蛍光プローブの開発

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、交替燃料電池で期待される中低温域で動作するプロトン伝導体などの極限省エネルギー創出につながるデバイス開発、さらには、室温での二酸化炭素完全分離材料などのグリーンナノテクノロジー研究に取り組んでいます。これらの研究成果は、有機的な産学連携研究に繋がっています。

グリーンフォトンクス研究分野

特任教授 三澤弘明 (筑波大院、理博、2003.5~)
特任准教授 孫泉 (北京大院、博(理)、2020.4~2020.8)
特任准教授 押切友也 (阪大院、博(理)、2012.12~)
特任助教 ZU SHUAI (北京大院、博(理)、2020.4~)
院 生
博士課程
中村圭佑、曹 艳凤、臧 潇倩、王 亜光、曹恩、范昕、
劉言恩
修士課程
菅浪誉騎、大西梓、石原穂、古屋和樹

1. 研究目標

産業革命以降、人類による生産活動が化石燃料をエネルギー源として急激に拡大し、二酸化炭素を含む温室効果ガスの排出量が著しく増加した。これによって地球温暖化が進行し、近年、様々な気候変動や大規模自然災害が顕在化しており、不可逆的な環境破壊の臨界点に近づきつつある。このような状況から脱却するために、再生可能エネルギーである太陽光エネルギーの有効利用を可能とする太陽電池や人工光合成などの研究の重要性が一段と増している。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。グリーンフォトン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に先駆けて提唱し、金属ナノ構造が示す光アンテナ効果により光エネルギーを高効率に利用する「光-分子強結合反応場の創成」を目的として、文部科学省の科学研究費補助金特定領域研究(領域代表：平成19~22年度)を推進し、国際的にも本分野を牽引してきた。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。

グリーンフォトンクス研究分野では、「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、令和元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光アンテナとして局在表面プラズモン共鳴(LSPR)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光化学反応に展開してきた。また、光を微小な空間に束縛して強く閉じ込める機能を示す金属ナノ構造の近接場分光特性や位相緩和過程を時間分解光電子顕微鏡計測を用いて明らかにし、光アンテナの構造設計指針を明

らかにしてきた。さらに、LSPRとその他の光学モードとが形成する「モード強結合」に着目し、特にファブリ・ペローナノ共振器として機能する酸化チタン/金反射膜の上に、金ナノ粒子を担持することで、LSPRとナノ共振器とのモード強結合を形成し、広い可視光波長域の光を強く吸収して光電変換可能な光電極の作製に成功した。さらにプラズモン-ファブリ・ペローナノ共振器強結合構造を光陽極として用い、水分解に基づく水素発生および空中窒素の固定に基づく光アンモニア合成など人工光合成の高効率化に展開してきた。

これまでの研究成果に基づき、令和2年度は、上記の人工光合成反応の各素過程についての理解を得るため、金属/半導体界面での電子移動課程や電場増強分布の制御を試みた。

2. 研究成果

2.1 プラズモン誘起水酸化反応効率のチタン酸ストロンチウム結晶面依存性

金ナノ粒子と半導体界面での電荷分離において、その界面構造が重要な役割を果たすと考えられている。本研究では面方位の異なるチタン酸ストロンチウム(STO、図1a)の上に金ナノ粒子を担持(Au-NP/STO)し、その表面での水の酸化反応効率について検討した。その結果、TiO₂層が表面に露出したSTO(100)を用いた場合の方が(110)や(111)を用いた場合よりも1.4倍程度入射光電流変換効率(IPCE)が大きかった(図1b)。また、電位印加下、785 nmの光照射下での表面増強ラマン計測を行った(図1c,d)。

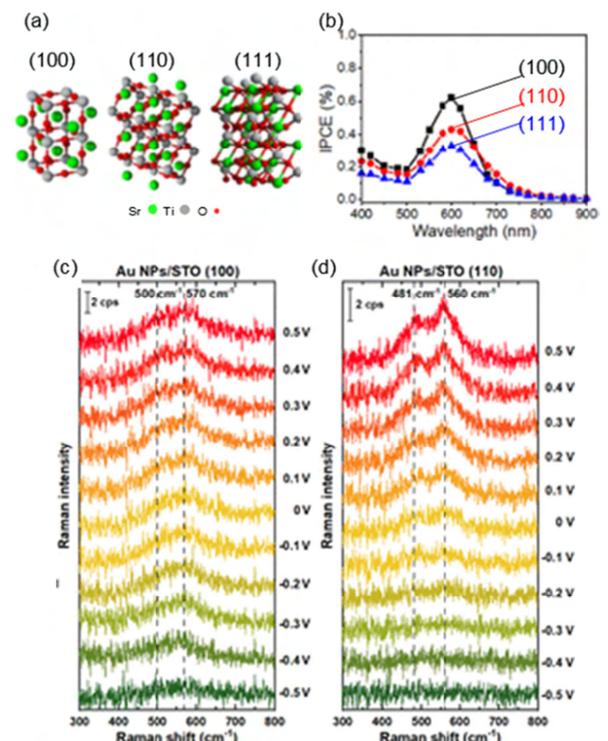


図1 (a) 面方位の異なるSTOの模式図。(b) IPCEの作用スペクトル (0.3 V vs 飽和カロメル電極(SCE), in 0.1 mol dm⁻³ KClO₄aq.). (c, d) Au-NP/STOの印可電位依存性 (vs Ag/AgCl, in 0.1 mol dm⁻³ NaFaq.).

Au/STO(100)上において、 500 cm^{-1} と 570 cm^{-1} の Raman シグナルはそれぞれ AuOOH と Au(OH)₃の Au-O 伸縮振動に由来すると帰属された。一方、Au-NP/STO(110)上においては、 561 cm^{-1} と 481 cm^{-1} にピークが観測され、それぞれ Au(OH)₃と Au^{*}₂(OH)₄ (*は吸着サイトを表す)に由来すると考えられる。これらの結果から、AuNPsを担持する結晶面によって水の酸化の反応中間種が異なることが示された。また、Au-NP/STO(100)では、Au-O 伸縮振動のオンセットポテンシャルがより負であり、より低い印可電位で電極表面での水の酸化中間体が生成することも明らかとなった。さらに、プラズモン金属中で生成したホールは STO 表面準位に補足されて水の酸化反応を進行していると推測されているが、犠牲電子供与体を用いた速度論解析の結果から、STO(100)の表面準位が他の結晶面よりも貴に存在し、反応を促進していることが示唆された。

これらの結果から、金ナノ粒子と半導体界面での電荷分離効率はその結晶面に対して鋭敏に反応し、半導体構造とその界面制御が反応効率増大の重要な鍵となることが示された。

2.2 金ナノ粒子から大きな負電位を有する半導体への電子注入

n 型半導体である酸化ガリウムの伝導帯は水素還元電位よりも -1.0 V 程度卑な電位に存在するため、二酸化炭素の還元をはじめとする種々の還元反応にも利用できると考えられている。しかし、波長 300 nm 以下の深紫外光でしか励起できず、太陽光エネルギー変換に用いることは困難であった。本研究では単結晶酸化ガリウム (Sn-doped $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$, (-201)) 表面に薄膜 3 nm を成膜して 800°C で加熱することで金ナノ粒子を担持した (Au-NPs/ Ga_2O_3)。これを作用電極とし、3電極系にて酸化ガリウムを用いた可視光領域での水の酸化に基づく光電流発生に初めて成功した。さらに、原子層堆積装置によって Au-NPs/ Ga_2O_3 の酸化ガリウム表面に酸化チタンを数 nm 選択的に成膜した (Au-NPs/ TiO_2 / Ga_2O_3)。その結果、酸化チタン膜厚が 2 nm の時にプラズモン共鳴に由来する光電変換効率は最大となり、 TiO_2 未堆積の場合と比べて波長 600 nm の可視光での光電変換効率を 1.5 倍に増大させることに成功した (図2)。これは2.1で述べたように、 TiO_2 層がプラズモン金属中で生成したホールをその表面準位にトラップする能力を有しているためであると考えられる。

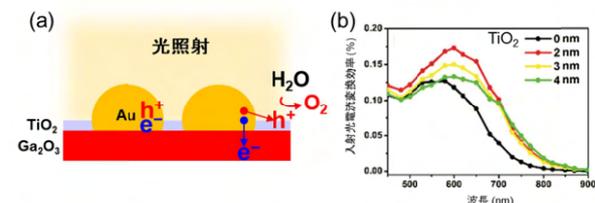


図2 (a) Au-NPs/ TiO_2 / Ga_2O_3 上での水の光酸化反応の模式図。(b) TiO_2 膜厚の異なる Au-NPs/ TiO_2 / Ga_2O_3 を作用電極として用いた IPCE 作用スペクトル (0.3 V vs SCE , in $0.1\text{ mol dm}^{-3}\text{ KClO}_4\text{aq}$)。

本研究により、可視光によりプラズモンを励起し、二酸化炭素を還元できる卑な電位に伝導帯が存在する酸化ガリウムに電子注入できることを示したことは、二酸化炭素の可視光還元のを拓くものである。

2.3 モード強結合電極における近接場空間分布の制御

プラズモンとファブリ・ペロー共振器とのモード強結合を示す、金ナノ粒子/酸化チタン/金フィルム (ATA) 電極は可視光の 85% を吸収可能であるが、これを水酸化反応の光電極として用いた際の内部量子収率は 1.5% 程度であり、吸収した光で生成した電子・ホールを反応に必ずしも有効活用できていなかった。

そこで我々は、ATA の反応場の最適化を電磁場シミュレーションによって行った。図3aに示すように、従来の ATA 構造では TiO_2 層上に形成した金ナノ粒子の一部をさらに TiO_2 で埋め込んだ構造を用いている。このとき、その増強電場 (近接場) は埋め込み前の金ナノ粒子と TiO_2 との接触界面に分布しており、水の酸化反応が進行する Au-NP/ TiO_2 /水の三層界面から空間的距離があることが分かった。そこで我々は、Au-NPs の上にさらに金を堆積した (図3b)。その結果、追加堆積した金と TiO_2 との界面、すなわち、構造表面近傍で強い電場増強が生じることが明らかとなった。

この設計に基づき、ATA 構造を作用電極とした3電極系で、 $0.25\text{ mmol}\cdot\text{dm}^{-3}\text{ HAuCl}_4$ 、 $0.1\text{ mol}\cdot\text{dm}^{-3}\text{ Na}_2\text{SO}_4$ 水溶液中で SCE 参照電極に対して 0.3 V を3分間印可することで金を追加堆積させた。その光電極を利用して $0.1\text{ mol}\cdot\text{dm}^{-3}\text{ KOH}$ 中で計測した水の酸化反応に IPCE は、従来の ATA に比べて 1.3 倍程度増強した (図3c)。

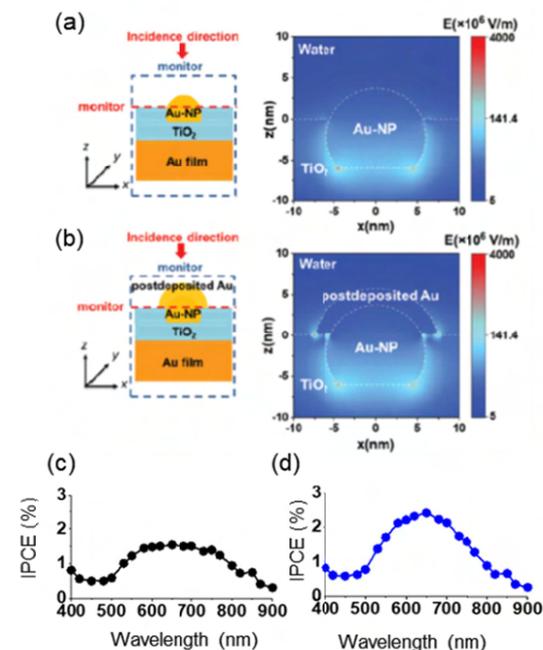


図3 (a, b)有限要素法を用いた数値シミュレーションにより求めた入射光 650 nm における近接場分布。(c, d) IPCE 作用スペクトル (0.3 V vs SCE , in $0.1\text{ mol dm}^{-3}\text{ KOHaq}$)。 (a, c)金追加堆積前, (b, d)金追加堆積後。

本研究により、ナノ構造によってモード強結合の電場増強分布を変調可能な「近接場エンジニアリング」を確立した。この方法論を用いることで強結合電極を用いた水の酸化反応をさらに効率化させることが可能になることから、人工光合成の研究開発において大きな意義を有する。

3. 今後の研究の展望

上記に示す通り、プラズモンやそのモード強結合と用いた光電気化学反応において、金属/半導体界面における電子移動は材料の組成や結晶構造などの電子構造に大きく左右されることが明らかとなった。さらにその電場増強分布は、ナノ構造の形状によって設計・制御可能であることも示された。これらの方法論を活用することで、光電変換素子や人工光合成反応（水分解・アンモニア合成・二酸化炭素固定など）などの高効率光エネルギー変換系の開発のみならず、種々の光化学反応系や化学センサーの高感度化にも応用が期待される。

4. 資料

4.1 学術論文（査読あり）

- 1) Y. Li, W. Liu, Y. Wang, Z. Xue, Y.-C. Leng, A. Hu, H. Yang, P.-H. Tan, Y. Liu, H. Misawa, Q. Sun, Y. Gao, X. Hu, and Q. Gong, “Ultrafast Electron Cooling and Decay in Monolayer WS_2 Revealed by Time- and Energy-Resolved Photoemission Electron Microscopy”, *Nano Lett.*, 20, 5, 3747-3753 (2020).
- 2) Y. Li, Q. Sun, S. Zu, X. Shi, Y. Liu, X. Hu, K. Ueno, Q. Gong, H. Misawa, “Correlation between near-field enhancement and dephasing time in plasmonic dimers”, *Phys. Rev. Lett.*, 124, 16, 163901 (2020).
- 3) M. Okazaki, Y. Suganami, N. Hirayama, H. Nakata, T. Oshikiri, T. Yokoi, H. Misawa, and K. Maeda, “Site-Selective Deposition of a Cobalt Cocatalyst onto a Plasmonic Au/TiO₂ Photoanode for Improved Water Oxidation”, *ACS Appl. Energy Mater.*, 3, 6, 5142-5146 (2020).
- 4) X. Shi, X. Li, T. Toda, T. Oshikiri, K. Ueno, K. Suzuki, K. Murakoshi, and H. Misawa, “Interfacial Structure Modulated Plasmon-Induced Water Oxidation on Strontium Titanate”, *ACS Appl. Energy Mater.*, 3, 6, 5675-5683 (2020).
- 5) K. Chen, T. D. Dao, T. D. Ngo, H. D. Ngo, A. Tamanai, S. Ishii, X. Li, H. Misawa, T. Nagao, “Enhanced Photocurrent Generation from Indium-Tin-Oxide/Fe₂TiO₅ Hybrid Nanocone Arrays”, *Nano Energy*, 76, 104965 (2020).
- 6) Q. Sun, S. Zu, H. Misawa, “Ultrafast photoemission electron microscopy: Capability and

potential in probing plasmonic nanostructures from multiple domains”, *J. Chem. Phys.*, 153, 12, 120902 (2020).

- 7) P. Subramanyam, M. Deepa, S. S. K. Raavi, H. Misawa, V. Biju and C. Subrahmanyam, “A photoanode with plasmonic nanoparticles of earth abundant bismuth for photoelectrochemical reactions”, *Nanoscale Adv.*, 2, 12, 5591-5599 (2020). 【電子研内共著】
- 8) Y. Wang, X. Shi, T. Oshikiri, S. Zu, K. Ueno and H. Misawa, “Plasmon-induced electron injection into the large negative potential conduction band of Ga₂O₃ for coupling with water oxidation”, *Nanoscale*, 12, 22674-22679 (2020).
- 9) Y. Cao, X. Shi, T. Oshikiri, S. Zu, Y. Sunaba, K. Sasaki and H. Misawa, “Near-Field Engineering for Boosting the Photoelectrochemical Activity to a Modal Strong Coupling Structure”, *Chem. Commun.*, 57, 4, 524-527 (2021). 【電子研内共著】
- 10) K. Nakamura, T. Oshikiri, K. Ueno, H. Ohta, and H. Misawa, “Hot-carrier Separation Induced by the Electric Field of a p-n Junction between Titanium Dioxide and Nickel Oxide”, *Chem. Lett.*, 50, 2, 374-377 (2021). 【電子研内共著】

4.2 学術論文（査読なし）

なし

4.3 総説・解説・評論等

- 1) 押切友也、三澤弘明、「ワイドギャップ半導体である SrTiO₃ や TiO₂ を用いた可視光による選択的アンモニア合成」、*CERAMICS JAPAN*, Vol.55, No. 4, 287-289 (2020).

4.4 著書

なし

4.5 特許（発明者：特許番号、特許名、出願年月日）

- 1) 三澤弘明、押切友也、石旭、X. ZANG、上野貢生、笹木敬司、特願 2020-163256、「表面増強ラマン散乱分析用基板、その製造方法およびその使用方法」、2020年9月29日

4.6 講演

- a. 招待講演（国際学会）
 - 1) H. Misawa, “Dynamics of Electron Transfer in Enhanced Water Splitting Under Modal Strong Coupling Conditions” (Keynote), PRIME 2020, Online, October 4-9, 2020.
- b. 招待講演（国内学会）
 - 1) 三澤 弘明、「プラズモンとナノ共振器とのモード強

- 結合を用いた可視光水分解」、2021年電子情報通信学会総合大会企画シンポジウム「光計測技術のバイオ・環境分野への応用展開」、オンライン開催、2021年3月9日～12日
- 2) 三澤 弘明、「モード強結合によって生じる量子コヒーレンスを用いた高効率人工光合成」、日本化学会第101春季年会(2021)中長期テーマシンポジウム「人工光合成実現に向けた太陽光エネルギー変換効率向上の戦略」、オンライン開催、2021年3月19日～22日
- c. 一般講演(国際学会)
なし
- d. 一般講演(国内学会)
- 1) Y. Suganami, T. Oshikiri, S. Zu, X. Shi, Q. Sun, H. Misawa, “Water oxidation under modal ultra-strong coupling condition using Au/Ag alloy nanoparticles and Fabry-Perot nanocavity”, 2020年web光化学討論会, オンライン開催, 2020年9月9日～11日
- 2) 押切 友也、石 旭、三澤 弘明、「モード強結合を利用した選択的空中窒素固定による光アンモニア合成」、2020年web光化学討論会, オンライン開催, 2020年9月9日～11日
- 3) Y. Liu, X. Shi, Q. Sun, T. Oshikiri, H. Misawa, “Influence of Particle Density on Modal Strong Coupling Photonics Properties between Localized Surface Plasmon and Fabry-Perot Nanocavity Modes”, 2020年web光化学討論会, オンライン開催, 2020年9月9日～11日
- 4) Y. Liu, X. Shi, T. Oshikiri, S. Zu, Q. Sun, K. Sasaki, H. Misawa, “Coherent-interaction-enhanced hotelectron generation under modal strong coupling conditions”, 日本化学会第101春季年会, オンライン開催, 2021年3月19日～22日
- 5) T. Oshikiri, S. Shi, H. Misawa, “Fabrication of photocathode using modal coupling between plasmon and Fabry-Perot nanocavity”, 日本化学会第101春季年会, オンライン開催, 2021年3月19日～22日
- 6) 菅浪 誉騎、押切 友也、石 旭、三澤 弘明、「金銀合金ナノ微粒子を用いたモード超強結合電極の構築とその電子移動効率の検討」、日本化学会第101春季年会, オンライン開催, 2021年3月19日～22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、「プラズモニク化学のその先へ」(招待講演), 第18回プラズモニク化学シンポジウム, オンライン開催, 2020年7月10日.
- 2) 三澤 弘明、「プラズモンの化学のその先へ」(招待講演), 化学特別講義(慶應義塾大学理工学部化学科),

オンライン開催, 2020年11月14日

- 3) 三澤 弘明、「プラズモンの化学のその先へ」(招待講演), 第948回分子研コロキウム, 分子科学研究所, 岡崎, 2020年12月16日
- 4) Y. Liu, X. Shi, T. Oshikiri, S. Zu, Q. Sun, K. Sasaki, H. Misawa, “Coherent-interaction-enhanced hot-electron generation under modal strong coupling conditions”, The 21st Ries-Hokudai International Symposium, Online, December 10-11, 2020.
- 5) Y. Suganami, T. Oshikiri, X. Shi, H. Misawa, “Modal Ultra-strong Coupling using Au/Ag Alloy Nanoparticles and Fabry-Pérot Nanocavity and its application to water oxidation”, The 21st Ries-Hokudai International Symposium, Online, December 10-11, 2020.
- 6) 石 旭、押切 友也、三澤 弘明、「モード強結合を利用した水の可視光分解」(招待講演), 光機能材料研究会第81回講演会「光触媒材料の設計開発と光触媒反応解析の最新動向」、オンライン開催, 2021年3月1日

4.7 シンポジウムの開催

- 1) 第18回プラズモニク化学シンポジウム, オンライン開催(2020年7月10日)
- 2) 第19回プラズモニク化学シンポジウム, オンライン開催(2020年11月13日)
- 3) 2020年度プラズモニク化学研究会「次世代プラズモニク化学への挑戦」、オンライン開催(2021年3月5日)

4.8 共同研究

- a. 所内共同研究
なし
- b. 民間等との共同研究
- 1) 三澤弘明(株式会社イムラ・ジャパン):「プラズモンを利用したバイオセンサに関する研究」(2020年度)サステイナブル社会実現の為の技術探究を目的として、プラズモン共鳴を利用したセンシング技術の実用化について研究を行う。
- 2) 三澤弘明、上野貢生、孫泉(エア・ウォーター株式会社):「SiCメンブレンの特性評価」(2020年度)MEMS等種々のデバイスへの応用が期待できるSiCメンブレンの光学特性や耐熱性の評価を実施する。
- c. 委託研究
なし
- d. 国際共同研究
- 1) Prof. Qihuang Gong, Peking University, China
- 2) Dr. Kuang-Li Lee, Academia Sinica, Taiwan
- 3) Prof. Hiroshi Masuhara, Academic Sinica, Taiwan

4) Prof. Daniel Gomez, RMIT, Australia

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、特別推進研究、ナノ共振器-プラズモン強結合を用いた高効率光反応システムの開拓とその学理解明、2018~2022年度
- 2) 押切友也、基盤研究C、局在プラズモンが示す近接場円偏光による光不斉化学反応場の開拓、2018~2020年度
- 3) 押切友也、新学術領域研究(研究領域提案型)、モード強結合光カソードを用いた全可視光応答型光アンモニア合成、2020~2021年度

b. 大型プロジェクト・受託研究
なし

4.10 受賞

- 1) Y. Liu, X. Shi, T. Oshikiri, S. Zu, Q. Sun, K. Sasaki, H. Misawa, "Coherent-interaction-enhanced hot-electron generation under modal strong coupling conditions", 日本化学会第101春季年会学生講演賞, 2021年3月. 【電子研内共著】
- 2) 菅浪 誉騎、「モード超強結合電極の構築とその結合強度と電子移動効率の関連の検討」、北海道大学大学院情報科学院長賞、2021年3月

4.11 社会教育活動

a. 公的機関の委員

- 1) 三澤弘明：日本学術会議 連携会員(2011年10月3日~2023年9月30日)
- 2) 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~)
- 3) 三澤弘明：科学技術振興機構 戦略的創造研究推進事業 研究領域「光の極限制御・積極利用と新分野開拓」領域アドバイザー(2015年7月1日~2021年3月31日)
- 4) 三澤弘明：Frontiers Science Center for Nano-optoelectronics, Peking University, Advisory committee member(2019年10月30日~)
- 5) 三澤弘明：日本学術振興会 科学研究費委員会専門委員(基盤研究A)(2019年12月1日~2020年11月30日)
- 6) 三澤弘明：台湾 中央研究院 応用科学研究センター アドバイザリーコミッティーメンバー(2020年1月1日~2022年12月31日)
- 7) 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 委員(2020年4月1日~2022年3月31日)

8) 三澤弘明：科学技術振興機構 戦略的創造研究推進事業 個人型研究(さきがけ) 外部評価者(2020年7月1日~2020年8月31日)

9) 三澤弘明：日本学術振興会 令和3(2021)年度科学研究費補助事業「特別推進研究」の新規研究課題の選定に係る審査意見書の作成(2020年12月7日~2021年1月8日)

10) 三澤弘明：日本学術振興会 令和3(2021)年度科学研究費補助事業「基盤研究(S)」の新規研究課題の選定に係る審査意見書の作成(2020年12月7日~2021年1月8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年4月30日~)
- 2) 三澤弘明：Asian Nanoscience and Nanotechnology Association, President(2013年5月~)
- 3) 三澤弘明：ACS Photonics, Editorial Advisory Board(2014年1月1日~)
- 4) 三澤弘明：International Foundation of Photochemistry (IFP), Executive member(2018年9月25日~)
- 5) 三澤弘明：The Journal of Chemical Physics, Guest Editor of Special Issue "Emerging Directions in Plasmonics"(2019年2月23日~2020年7月7日)

c. 兼任・兼業

1) 三澤弘明：国立交通大学(台湾) 講座教授(2015年8月1日~2021年7月31日)

d. 外国人研究者の招聘

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、電気回路、三澤弘明、2020年4月15日~2020年6月10日(春ターム)
- 2) 工学部「情報エレクトロニクス演習」押切友也、2020年4月4日~2020年9月30日
- 3) 全学教育科目、環境と人間 ナノテクノロジーが拓く光・マテリアル革命、三澤弘明、2020年5月29日
- 4) 全学教育科目、環境と人間 2030年エレクトロニクスの旅、三澤弘明、2020年7月1日
- 5) 情報科学院、ナノフォトニクス特論、三澤弘明、押切友也、石旭、2020年10月5日~11月25日
- 6) 工学部、生体工学概論、三澤弘明、2021年1月12日
- 7) 工学部「生体情報工学実験 I」押切友也、2020年4月4日~2020年8月3日

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(札幌南高校)、夢のエネルギー人工光合成の実現に向けて、三澤弘明、2020年10月23日

g. 新聞・テレビ等の報道

なし

h. ポスドク・客員研究員など

- 1) GAO Hui (客員研究員、中国国家留学基金管理委員会、2019.9.16~2020.9.8)
- 2) BIAN Lifeng (客員研究員、Chinese Academy of Sciences、2019.9.16-2020.9.7)
- 3) YAN Qiuchen (客員研究員、北京大学、2019.9.16~2020.8.14)
- 4) YU Zhiqiang (客員研究員、National Natural Science Foundation of China、2020.1.15-2020.6.21)
- 5) WANG Jianxin (客員研究員、National Natural Science Foundation of China、2020.1.15-2020.6.21)

i. 修士学位及び博士学位の取得状況

修士学位：2人

- 1) 菅浪誉騎、情報科学院：修士(情報科学)、モード超強結合電極の構築とそのホットエレクトロン移動挙動の観測 (Fabrication of modal ultra-strong coupling anode and observation of its hot-electron transport phenomena)
- 2) 大西 梓、情報科学院：修士(情報科学)、モード強結合が形成する増強電場における量子ドットの発光特性評価 (Emission properties of quantum dots on electric field formed by modal strong coupling)

博士学位：1人

- 1) 曹艶凤 (CAO Yanfeng)、情報科学研究科：博士 (情報科学)、Study on Efficient Water Oxidation under Modal Strong Coupling Conditions (モード強結合下における水の酸化反応の高効率化に関する研究)

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 小野円佳 (東大院、科博、2019.8～)
 助教 藤岡正弥 (慶大院、理博、2015.4～)
 助教 Melbert JEEM (北大院、工博、2019.3～)
 客員研究員 Zagarzusem KHURELBAATAR (2019.4～)
 大学院生 佐藤賢斗 (総合化学院M2)
 田邊泰人 (総合化学院M1)
 Cui Ming (総合化学院M1)
 学部生 星野海大 (理学部化学科B4)
 山田裕也 (理学部化学科B4)

1. 研究目標

当研究分野では、酸化材料中の電子、フォノン、光子、イオンの輸送現象に着目した新規材料探索に取り組んでいる。本稿では、その中のプロトン伝導材料の研究概要について述べる。250～500℃の無加湿雰囲気で作動する中温作動型燃料電池(ITFC)は、低炭素社会の実現に向けて実用化が期待されているが、現状では十分な性能を備えた固体電解質が存在しない。そこで我々は、熱的・化学的耐久性に優れたリン酸塩ガラスへのプロトン伝導性付与に関する研究に取り組んでいる。

2. 研究成果

ガラス材料とアルカリ-プロトン置換法の開発

小型カメラに搭載するレンズには、モールド成形が可能なリン酸塩ガラスが使われる。その中でも、 $\text{Na}_2\text{O}-\text{La}_2\text{O}_3-\text{P}_2\text{O}_5$ 系ガラスは化学的耐久性に優れている。本研究では、このガラス系を基本として、電気化学的に Na^+ を H^+ に置換するために図1に

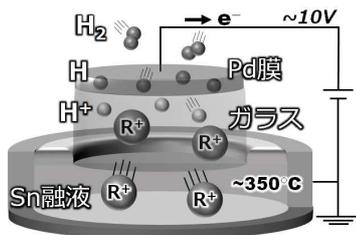


図1 当研究室で開発した Alkali-Proton Substitution (APS)法: アノード側に Pd 膜を成膜したガラスを溶融 Sn 上に置き、10V 程度の直流電圧を印加することで Na^+ を H^+ に置換できる。

示すプロセス(以降、APS法という)を開発した。

まず、過去の文献で化学的・熱的耐久性に優れていると報告されている $25\text{NaO}_{1/2}-12\text{LaO}_{3/2}-63\text{PO}_{5/2}$ ガラス(mol%)へのプロトン導入を試みたところ、その途中で結晶化が進行した。その後、結晶化抑制のための様々な添加物を検討したところ、 La_2O_3 の一部を GeO_2 に置換することが有効であった。そこで、 $25\text{NaO}_{1/2}-(12-x)\text{LaO}_{3/2}-x\text{GeO}_2-63\text{PO}_{5/2}$ 系ガラスにおいて、プロトン導入と伝導度の評価に取り組んだ。

アルカリ-プロトン置換率と物性

Na^+ から H^+ への置換は、SEM-EDSによって求まるNa濃度と、赤外吸収スペクトルで見積られるOH基濃度を対比することで確認できる。表1に示すように、本稿に記載するガラス系の場合、 Na^+ から H^+ への置換率は約90%である。したがって、APS後の組成は、 $22.5\text{HO}_{1/2}-2.5\text{NaO}_{1/2}-(12-x)\text{LaO}_{3/2}-x\text{GeO}_2-63\text{PO}_{5/2}$ (mol%)と表わすことができる。ここで重要な点は、OH基の吸収ピークがGe

表1 アルカリプロトン置換前後のガラスの物性

Sample	Before APS		Average substitution rate (%)	After APS				
	T_g (°C)	A_i (°C)		T_g (°C)	A_i (°C)	n_H (cm ⁻³)	n_{OH} (cm ⁻³)	OH absorption peak (cm ⁻¹)
4Ge	404	446	86	232	298	5.7×10^{21}	5.7×10^{21}	2735
6Ge	414	463	87	236	305	5.7×10^{21}	6.0×10^{21}	2719
8Ge	425	475	87	239	325	5.5×10^{21}	6.1×10^{21}	2680
10Ge	438	498	89	250	334	5.7×10^{21}	6.2×10^{21}	2653

T_g : ガラス転移点, A_i : 屈伏点, n_i : EDS で求めた Na 濃度から換算したプロトン濃度, n_{OH} : 赤外吸収から求めた OH 濃度

濃度と共に低波数側へシフトしたことである。つまり、O-H結合強度が徐々に弱くなった。このことが伝導度にどのように影響するかを調べた。

プロトン伝導特性

図2は、5% H_2 -95% N_2 雰囲気中で測定した伝導度のアレニウスプロットである。全てのガラスにおいてプロトン輸率は1で、直流分極が見られないことを確認した。すなわち、伝導に寄与するキャリアーは全てプロトンである。 T_g 付近での伝導度は 10^{-6} ～ 10^{-5} S/cmであり、10 mol%のGeを含有するガラス(以降、10Geと

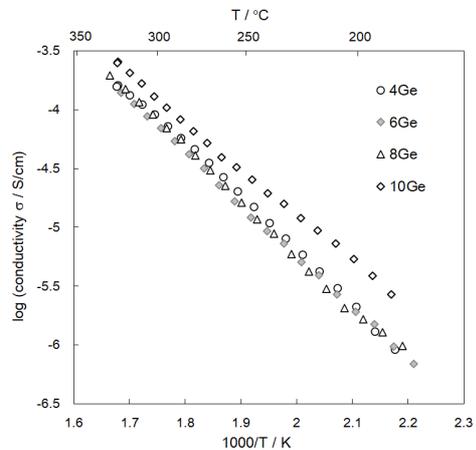


図2 $22.5\text{HO}_{1/2}-2.5\text{NaO}_{1/2}-(12-x)\text{LaO}_{3/2}-x\text{GeO}_2-63\text{PO}_{5/2}$ ガラスの伝導特性 (Na 残留量を考慮した組成で表記)

表記する)の伝導度が最も高い。このような特徴は、伝導の活性化エネルギーやプロトンの移動度にも明確に現れる。

プロトン導入前後のガラス構造

10Geが高い伝導度と低い活性化エネルギーを示す要因を明らかにすることは、今後の組成開発の上で重要である。そこでまず、高エネルギーX線回折(HEXRD)とラマン散乱スペクトルから、APS前後のガラスの構造を調べた。図3は、HEXRDによって求めた4Geと10Geの全相関関数($T(r)$)である。ピークの位置は

組成に対してほとんど変化しない。また、Ge-O結合に帰属されるピーク(1.88 Å)は、4配位(1.74 Å)と6配位(1.90 Å)の中間に位置し、このガラス中でのGeの平均配位数は5.35~5.76と見積もられた。

次に、APS前後のガラスのラマン散乱スペクトルを図4に示す。ピーク強度に差が見られるものの、P-O-P伸縮振動(700 cm⁻¹)およびO-P-O伸縮振動(1170 cm⁻¹)などの主なピークの位置はほとんど変わらない。ただし、APS後のO-P-O伸縮振動(1190 cm⁻¹)も含めて、1100 cm⁻¹以上の領域のピークが高波数側にシフトする。この理由は、Na⁺が配位していたQ²ユニット(PO₄²⁻)が、APS後には2つのP-OH結合を形成するためである。また、P-O-P伸縮振動(700 cm⁻¹)よりも低波数領域(550~600 cm⁻¹)にいくつかのピークが見られる。これらはGeを含まないガラスには見られず、Ge濃度と共に強度が増すことから、Ge-O-P結合が関係していることは明らかである。

以上の結果より、以下の3つが明らかになった。

- (1)APSによってP-OH結合が形成され、O-P-O伸縮振動ピークはブロードになる。
- (2)ガラス中のGeの配位数は6配位に近い(Laも6配位)。

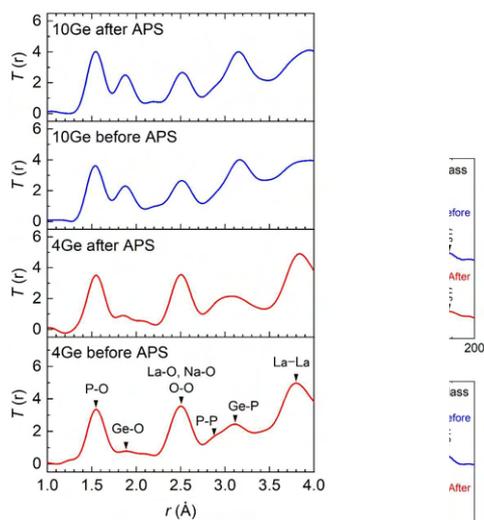


図3 HEXRDによって求めた4Geと10Geガラスの全相関関数(T(r))

図4 APS前後の4Ge~10Geガラスのラマン散乱スペクトル

(3)Geの導入で、La-O-P結合がGe-O-P結合に変化した。しかしながら、これらの情報のみでは図2に示したプロトン伝導のGeO₂濃度依存性を説明できない。そこで、MAS-NMR、XPSを用いてP-O-Geの結合状態について調べた。

P-O-Ge結合の電子状態の解析

³¹PのMAS-NMRの測定結果を図5に示す。この結果から分かかったことは以下の2つである。

- (1) APS前のガラスにおいて、GeO₂の導入によってピークが高磁場側へシフトする。
- (2) APS後のシグナルピークはAPS前よりも全体的に高磁場側へシフトし、GeO₂濃度に依存してさらに高磁場側へシフトする。

つまり、プロトン導入とGeO₂添加の両方の影響でP-O結合が強くなる(共有結合性が増す)。

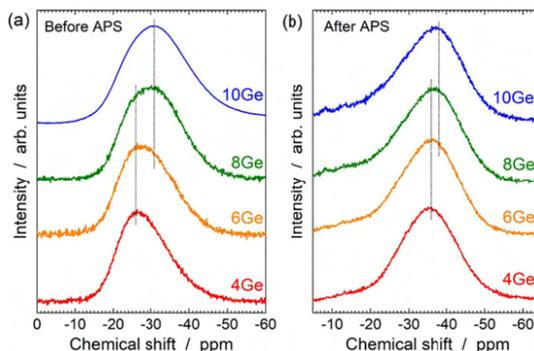


図5 APS前後の4Ge~10Geガラスの³¹P MAS-NMRスペクトル

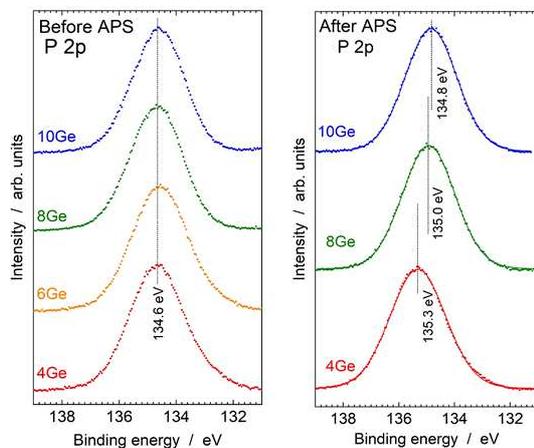


図6 APS前後の4Ge~10GeガラスのP2pのXPSスペクトル

図6に示すように、同様な傾向はP2pのXPSスペクトルにも見られる。APS後のピークはGeO₂濃度とともに低エネルギー側へシフトすることから、P-Oの共有結合性が増している。すなわち、La₂O₃をGeO₂に置換すると、PO₄ユニットが強固になり、そこにOH結合が形成されるとO-Hの結合強度が下がることから、プロトン伝導度のGe濃度依存性を説明できる。

LaとGeの電気陰性度は、それぞれ1.74と2.14である。したがって、通常はLa-OよりもGe-Oの方が共有結合的であるため、Geの添加はP-O結合を弱めるのではないかと考える。しかしながら、実際はGeを導入した方がP-O結合が強くなり、O-H結合が弱くなる。NMRやXPSは、La₂O₃およびGeO₂を含有するリン酸塩ガラスのプロトン伝導特性を説明する上で必要な事実を与えてくれたが、それでもなお明らかにすべき点が残されている。

3. 今後の研究の展望

世界中が脱炭素社会の実現に向けて動いている。我々の研究室では、酸化物材料中の電子、フォノン、光子、イオンの輸送現象に着目した材料開発に注力しているが、その出口は省エネ・創エネである。我々はどのようにやって必要なエネルギー

一を獲得し、貯蔵するか、従来の常識に捕らわれない斬新な発想が求められる。試行錯誤に頼った材料研究の時代は明らかに終わった。しかしながら、計算機が設計した材料をロボットが作る時代の到来には時間がかかる。材料研究は、まさに世代交代の時期にある。

4. 資料

4.1 学術論文 (査読あり)

- 1) Understanding the effect of oxide components on proton mobility in phosphate glasses using a statistical analysis approach, T. Omata, I. Suzuki, A. Sharma, T. Ishiyama, J. Nishii, T. Yamashita and H. Kawazoe, RSC Advances, 11, 3012-3019, 2021.
- 2) Tuning the Mechanical Toughness of the Metal-nanoparticle-implanted Glass: the Effect of Nanoparticle Growth Conditions, M. Ono, S. Miyasaka, Y. Takato, S. Urata and Y. Hayashi, Journal of the American Ceramic Society, 00, 1-13, 2021.
- 3) Understanding the molar volume of alkali-alkaline earth-silicate glasses via Voronoi polyhedra analysis, Y. Yang, H. Tokunaga, M. Ono, K. Hayashi and J.C. Mauro, Scripta Materialia, 166, 1-5, 2020.
- 4) Synthesis of yellow persistent phosphor garnet by mixed fuel solution combustion synthesis and its characteristic, T. Gotoh, M. Jeem, L. Zhang, N. Okinaka and S. Watanabe, Journal of Physics and Chemistry of Solids, 142, 109436, 2020.
- 5) Thermal stability and proton conductivity of densely proton injected phosphate glasses containing rare-earth elements, A. Miyazaki, T. Kinoshita, T. Tatebayashi, T. Fang, Y. Ren, T. Ishiyama, T. Yamaguchi, T. Omata, M. Fujioka, H. Kaiju, G. Zhao and J. Nishii, Journal of Non-Crystalline Solids, 541, 120064(1-7), 2020.
- 6) Understanding thermal expansion of pressurized silica glass using topological pruning of ring structures, Y. Yang, H. Tokunaga, K. Hayashi, M. Ono and J.C. Mauro, Journal of the American Ceramic Society, 2020, 1-14, 2020.
- 7) Topological pruning enables ultra-low Rayleigh scattering in pressure-quenched silica glass, Y. Yang, O. Homma, S. Urata, M. Ono and J.C. Mauro, npj Computational Materials, 6, 2020.
- 8) Discovery of AgxTaS₂ superconductor with stage-3 structure, Z. Khurelbaatar, M. Fujioka, T. Shibuya, S. Demura, S. Adachi, Y. Takano, M. Jeem, M. Ono, H. Kaiju and J. Nishii, 2D Materials, 8, 015007 (1-10), 2020.

4.2 学術論文 (査読なし)

該当なし

4.3 総説・解説・評論等

- 1) 小野 円佳「低損失ファイバーレーザーに向けたシリカガラスの空隙制御」レーザー研究 48(7), 339-343 (2020).

4.4 著書

該当なし

4.5 特許

該当なし

4.6 講演

a. 招待講演 (国際学会)

- 1) M. Ono, "Void-Engineering in Silica Glass for Fibers with Ultralow Optical Scattering Loss", ECOC, Online(2020-12).
- 2) M. Ono, "Pressure Control of Fluctuation in Glass", Glass Meeting 2020, Online(2020-8).
- 3) M. Ono, "Mechanical toughness of the metal-nanoparticle-implanted glass, its mechanical strength and the dependence on the preparation conditions", Virtual Glass Summit 2020, Online(2020-8).

b. 招待講演 (国内学会)

- 1) 藤岡 正弥:「プロトンの電気化学的拡散を利用した新規超伝導物質探索」、応用物理学会超伝導分科会、低温工学・超電導学会(材料研究会)合同研究会、オンライン(2020-11).
- 2) 藤岡 正弥、岩崎 秀、フレルバータル ザガルツェム、小峰 啓史、森戸 春彦、メルバート ジェーム、小野 円佳、西井 準治:「イオンの拡散制御による新規物質開発」、第81回応用物理学会秋季学術講演会、オンライン(2020-9).

c. 一般講演 (国際学会)

- 1) K. Senshu, Y. Sasaki, Y. Nakayama, T. Misawa, T. Komine, N. Hoshino, T. Akutagawa, M. Fujioka, J. Nishii, H. Kaiju: "Spin transport properties in Ni₇₈Fe₂₂/Mq₃ (M=Al, Er)/Ni₇₈Fe₂₂ nanoscale junction devices utilizing magnetic thin-film edges", 33rd International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC 2020), Online (2020-11).
- 2) M. Ono: "Suppression of optical loss in pressure-quenched silica glass: University Modeling and experimental results", Virtual Glass Summit 2020, Online (2020-08).

d. 一般講演 (国内学会)

- 1) 藤岡 正弥:「擬一次元アモルファス構造を有する新規超伝導物質 AgxZrTe₃」、日本金属学会 2021 年春期 (第 168 回) 講演大会、オンライン(2021-03).
- 2) 飯島 譲、森戸 春彦、藤岡 正弥、山根 久典、藤原 航三:「Na-Sn フラックスを用いた Na, Ba 内包型 Si クラスレートの単結晶育成」、日本金属学会 2021 年春期 (第 168 回) 講演大会、オンライン(2021-03).
- 3) 山田 裕也、岩崎 秀、フレルバータル ザガルツェム、メルバート ジェーム、小野 円佳、藤岡 正弥、西井 準治:「NaCl カプセルの水素封止能力の圧力・温度依存性」、第 56 回応用物理学会北海道支部/第 17 回日本光学会北海道支部合同学術講演会、オンライン (2021-01).
- 4) 星野 海大、岩崎 秀、フレルバータル ザガルツェム、メルバート ジェーム、小野 円佳、藤岡 正弥、西井 準治:「高圧固体電気化学法による NaAlB₁₄ の電子物性制御」、第 56 回応用物理学会北海道支部/第 17 回日本光学会北海道支部合同学術講演会、オンライン (2021-01).

- 5) 千秋 賀英子、佐々木 悠馬、中山 雄介、三澤 貴浩、小峰 啓史、星野 哲久、芥川 智行、藤岡 正弥、西井 準治、海住 英生：「 $\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}/\text{Mq}_3$ ($\text{M} = \text{Al}, \text{Er}$)/ $\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}$ ナノ接合素子における室温磁気抵抗効果」、第 44 回日本磁気学会学術講演会、オンライン(2020-12)。
- 6) 星野 海大、岩崎 秀、田邊 泰人、佐藤 賢斗、小野 円佳、藤岡 正弥、西井 準治：「多価数イオン伝導体の合成と高圧固体電気化学への応用」、オンライン(2020-11)。
- 7) 山田 裕也、岩崎 秀、フレルバータル ザガルツェム、メルバート ジェーム、小野 円佳、藤岡 正弥、西井 準治：「 NaCl カプセルの水素封止能力の検証および水素化合物の高圧合成」、令和 2 年度 日本セラミックス協会 東北北海道支部 研究発表会、オンライン (2020-11)。
- 8) 佐藤賢斗、岩崎 秀、フレルバータル ザガルツェム、メルバート ジェーム、小野 円佳、藤岡 正弥、西井 準治：「遷移金属トリカルコゲナイド層間化合物 AgxZrTe_3 の合成およびその電気伝導特性」、令和 2 年度 日本セラミックス協会 東北北海道支部 研究発表会、オンライン (2020-11)。
- 9) 藤岡 正弥、岩崎 秀、フレルバータル ザガルツェム、小峰 啓史、森戸 春彦、メルバート ジェーム、小野 円佳、西井 準治：「高圧固体電気化学法の開発」、2020 年秋期日本金属学会 第 167 回講演大会、オンライン(2020-09)。
- 10) 岩崎 秀、森戸 春彦、藤岡 正弥：「高圧固体電気化学法による NaAlB_{14} からの Na イオンの抜去」、2020 年秋期日本金属学会 第 167 回講演大会、オンライン(2020-09)。
- 11) 千秋 賀英子、佐々木 悠馬、中山 雄介、三澤 貴浩、小峰 啓史、星野 哲久、芥川 智行、藤岡 正弥、西井 準治、海住 英生：「磁性薄膜エッジを利用した $\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}/\text{Mq}_3$ ($\text{M} = \text{Al}, \text{Er}$)/ $\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}$ ナノ接合素子の電気磁気特性」、日本物理学会 2020 年秋季大会、オンライン (2020-9)。

e. 研究会・シンポジウム・ワークショップなど（学会以外）

該当なし

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

小野円佳 AGC

c. 委託研究

該当なし

d. 国際共同研究

- 1) 西井準治（西安理工大学）Gaoyan Zhao

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、基盤研究 (B) (代表)、超高密度プロトン含有リン酸塩ガラスのプロトン移動の科学と高速プロトン伝導性の実現、2020-2022 年度

- 2) 西井 準治、挑戦的萌芽研究 (代表)、新奇イオン放出現象を利用した全固体イオンガンの創製、2019-2020 年度
- 3) 西井 準治、特別研究員奨励費 (代表)、ナノ構造光デバイス創製、2019-2020 年度
- 4) 小野 円佳、学術変革領域研究 (A) (分担)、社会実装に向けた超秩序構造物質ライブラリーに基づく合成プロセス開発、2020-2024 年度
- 5) 藤岡 正弥、挑戦的萌芽研究 (代表)：電圧印加型プロトン充填材料の探索による水素貯蔵イノベーション、2018-2020 年度
- 6) 藤岡 正弥、基盤研究 (B) (代表)：高濃度水素化合物の創製に向けた革新的反応場の構築、2019-2020 年度
- 7) Melbert Jeem、若手研究 (代表)、水中結晶光合成による金属酸化物ナノロッドの創製とメカニズム解明、2020~2022 年度
- 8) Melbert Jeem、基盤研究(A) (分担)、「ガルバニック水中結晶光合成の学理構築に基づく機能性 3 次元ヘテロ構造体創製、2020~2023 年度
- 9) 岩崎 秀、研究活動スタート支援 (代表)：固体電気化学に基づく熱力学的な制約を超えた新規酸素欠損量制御法の創製、2020~2022 年度

b. 大型プロジェクト・受託研究

- 1) 藤岡 正弥、イオン工学助成金 (代表)、「プロトン駆動イオン導入法によるイオンの放出現象の応用展開、2019-2020 年度
- 2) 藤岡 正弥、CREST (主たる共同研究者)、新規結晶の大規模探索に基づく革新的機能材料の開発、2019-2024 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

- 1) 小野 円佳：文部科学省 科学技術・学術政策研究所 科学技術予測センター NISTEP 専門調査員(2020 年 4 月 1 日~2021 年 3 月 31 日)

b. 国内外の学会の役職

- 1) 小野 円佳：日本セラミックス協会第 33 回秋季シンポジウム 開催地実行委員(2020 年 4 月 - 2020 年 9 月)
- 2) 小野 円佳：光産業技術振興会 光材料・応用技術研究会 幹事(2017 年 4 月~現在)
- 3) 小野 円佳：国際ガラス年日本実行委員会 国際ガラス年日本実行委員会 実行委員(フォトンクス分科会 会長)(2020 年 12 月~現在)
- 4) 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~)

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)

- 1) 全学共通、ナノテクノロジーが拓く光マテリアル革命、西井 準治、2020 年 05 月 10 日
- 2) 総合化学院、物質化学Ⅲ(ナノフォトンクス材料論)、

西井 準治、2020年6月16日～7月7日

- 3) 理学部専門科目、ナノ物性科学、藤岡正弥、小野円佳、2020年6月15日～7月6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) 小野 円佳、"NEWS Collect (2020/10/5)", 北大、光損失率が従来のガラスの50%以下の透明なガラスを理論的に予測
<https://newscollect.jp/article/?id=684973266615567457>"
- 2) 小野 円佳、"docomo dニュース (2020/10/3)", 北大、光損失率が従来のガラスの50%以下の透明なガラスを理論的に予測http://topics.smt.docomo.ne.jp/article/mycom/world/mycom_2134508"
- 3) 小野 円佳、"B! Hatena 大学 (2020/10/3)", 北大、光損失率が従来のガラスの50%以下の透明なガラスを理論的に予測 | マイナビニュース
<https://b.hatena.ne.jp/entry/s/news.mynavi.jp/article/20201003-1367992/>"
- 4) M. Ono, "Labroots (2020/10/22)", Researchers collaborating from Hokkaido University and The Pennsylvania State University show that producing silica glass fibers under high pressure can greatly improve optical fiber data transmission, reducing signal loss by over 50%. The new research is published in the journal npj Computational Materials."
<https://www.labroots.com/trending/chemistry-and-physics/18993/improving-optical-fiber-data-transmission-silica-glass-pressures>
- 5) 小野 円佳、"OplusE (2020/10/5)", 究極透明ガラスの構造を解明～量子通信の実用化への加速に期待～
<https://www.adcom-media.co.jp/news/2020/10/02/35312/>
- 6) 小野 円佳、"マイナビニュース (2020/10/5)", 北大、光損失率が従来のガラスの50%以下の透明なガラスを理論的に予測
<https://news.mynavi.jp/article/20201003-1367992/>"
- 7) 小野 円佳、"オプトロニクスONLINE (2020/10/5)", 北大ら、究極透明ガラスの構造を解明
<http://www.optronics-media.com/news/20201001/68457/>"
- 8) 小野 円佳、"gooニュース (2020/10/3)", 北大、光損失率が従来のガラスの50%以下の透明なガラスを理論的に予測"
https://news.goo.ne.jp/picture/world/mycom_2134508.html
- 9) 小野 円佳、"Fabcross エンジニア (2020/10/2)", 北大、光損失が常圧ガラスの50%以下になる究極透明ガラスの構造を解明——量子通信の実用化へ
https://engineer.fabcross.jp/archieve/201001_hokudai.html"

h. ポスドク・客員研究員など

- 1) KHURELBAATAAR Zagarzusem (JSPS 外国人特別研究員、(2019. 4. 1～2021. 3. 31)

i. 修士学位及び博士学位の取得状況

修士学位：1人（総人数を記載）

- 1) 佐藤賢斗、総合科学院：遷移金属トリカルコゲナイド層間化合物の研究

博士学位：0人（総人数を記載）

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 小門憲太 (京大院、博(工)、2020.4～)
 助教 高橋仁徳 (東北大院、博(工)、2017.8～)
 黄瑞康 (中山大院、博(理)、2020.12～)
 薛晨 (南京理工大院、博(工)、2020.12～)

博士研究員

Shivakumar Kilingaru Ishwara (2019.4～2021.03)

院 生 李思敏 (DC3)、陳 昕 (DC3)、吉 沁 (DC3)、
 吳佳冰 (DC2)、武冬芳 (DC2)、楊竹西 (DC2)、
 高橋優太(MC2)、刁子健(MC2)、蓮尾直洋(MC2)、
 金丸和矢(MC1)、堺博紀(MC1)、羽田将人(MC1)、
 広瀬昂生(MC1)、王超(MC1)

1. 研究目標

分子が発現する機能は多様であり、光・電子機能性、生理活性などに基づき、分子はエレクトロニクス・材料・医薬など広範な分野で応用に供されている。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、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が発現する。ナノアセンブリ材料研究分野では、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。ナノアセンブリ材料の構造と機能の相関を詳細に検討し、次代を担う新奇な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) 超分子アプローチに基づく固相分子運動の実現

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等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。

当研究分野はこれまでに、有機・無機カチオン-クラウンエーテルからなる超分子カチオンを構築し、アニオンラジカル $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]^-$ の対カチオンとして組み合わせることによって、超分子カチオン構造設計による新奇な電子的・磁氣的機能の開拓を行ってきた。例えば、*m*-fluoroanilinium⁺ (*m*-FAni⁺) と dibenzo[18]crown-6 からなる超分子カチオンを導入した結晶 (*m*-FAni⁺) (dibenzo[18]crown-6) $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]$ では、*m*-FAni⁺ が結晶内で分子回転が可能であり、*m*-FAni⁺ のC-F結合に基づく分極が結晶全体で反転するため、強誘電体となる。超分子アプローチに基づいて固相分子運動を示す物質系の開拓は、新奇物性開拓における要点であるにも関わらず、結

晶内での分子運動を示す物質系は容易には得られないことから、新たな設計指針が求められていた。そこで我々が着目したのは、ハロゲン化アルキルアンモニウムとクラウンエーテル誘導体を組み合わせる超分子アプローチである。アルキル鎖は、液晶分子を構成する柔軟な構造であり、結晶中でも容易な動作が可能だと推定される。また可動グループに双極子モーメントを導入することは、効率的な強誘電性、圧電性、焦電性の応答を示す材料を作成するための効果的なアプローチである。そこで2-X-CH₂CH₂NH₃⁺ (X = H, F, Cl, and Br) と[18]crown-6からなる超分子カチオンを $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]$ 塩にそれぞれ導入した結晶、構造と誘電物性を検討した。

得られた4つの結晶は (2-X-CH₂CH₂NH₃⁺) ([18]crown-6) $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]^-$ (X = H (1), F (2), Cl (3), and Br (4)) の組成で結晶化していた。結晶1の構造を図1に示す。

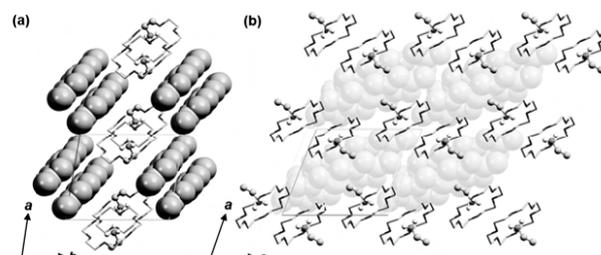


図 1. 223 K における結晶 1 の構造。超分子カチオン内の水素結合に関与しない水素原子は省略している。(a) c 軸投影図。(b) b 軸投影図。

各結晶において、 $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]^-$ はa軸に沿って1次元的に配置された2量体として存在していた。2-X-CH₂CH₂NH₃⁺ 及び [18]クラウン-6はN-H...O水素結合により超分子カチオンを形成し、 $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]^-$ 間でc軸に沿って一次元的に整列していた。結晶2-4 において、 $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]^-$ と超分子カチオンの配列は結晶1とおおむね同じであった。一方、超分子カチオンのディスオーダーには大きな違いが見られた。結晶1 では100-373 K までディスオーダーが見られない一方、結晶2では、2-F-CH₂CH₂NH₃⁺ のF-CH₂基が、結晶3では2-Cl-CH₂CH₂NH₃⁺ のCl-CH₂基と [18]crown-6が、それぞれ2

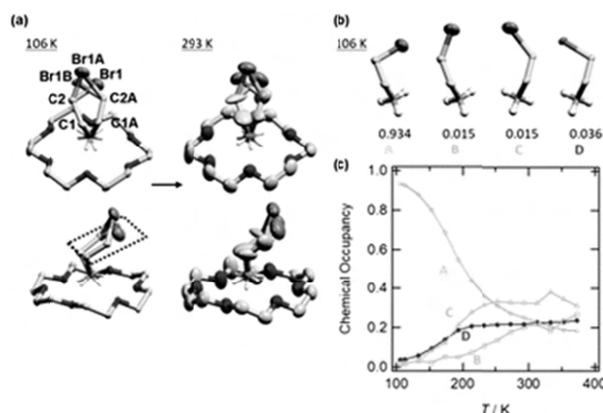


図 2. (a) 106 (左) および 293 K (右) での結晶 4 の超分子カチオン構造。(b) 4 サイト A-D でディスオーダーした Br-CH₂CH₂NH₃⁺ カチオン。下部に 106 K における占有率を記載。(c) A-D サイトの占有率の温度依存性。

サイトでディスオーダーを示すとともに、ディスオーダー部位の占有率は温度に依存し、高温ほど占有率が平均化していた。さらに結晶 **4** では2-Br-CH₂CH₂NH₃⁺ の Br-CH₂-CH₂ 基が4サイトのディスオーダーが見られた。図2に結晶**4**におけるディスオーダーをまとめた。106 Kにおいて、結晶**4**の2-Br-CH₂CH₂NH₃⁺カチオンはA-Dの4サイトに分かれ、それぞれの占有率は0.934:0.015:0.015:0.036だったが、300 Kまで温度を上昇させると各サイトの占有率は0.2-0.3に平均化していた。ハロゲン化エチル基の分子運動に利用可能な空間の大きさを評価するため、2-X-CH₂-CH₂基に対してHirshfeld 表面解析から体積(V_{X-C2})を見積もるとともに、2-X-CH₂-CH₂を構成する原子のvan der Waals 半径から計算した体積(V_{vdW})との比 V_{X-C2}/V_{vdW} を計算した。結晶**1, 2**の V_{X-C2}/V_{vdW} は2.86, 2.63である一方、結晶**3, 4**の V_{X-C2}/V_{vdW} はそれぞれ3.02, 3.22だった。結晶**4**の V_{X-C2}/V_{vdW} が結晶**1-4**の中で最大なのは、Br-CH₂-CH₂ 基が示す大振幅の運動と一致していた。

結晶**1-4**内での分子運動を評価するために、誘電率実部(ϵ_1)および誘電正接($\tan \delta$)の温度一周波数依存性を測定した(図3)。

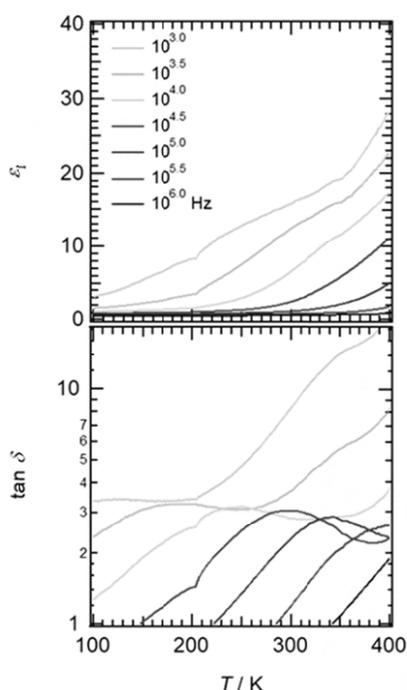


図3. 結晶**4**の誘電率実部(ϵ_1)および誘電正接($\tan \delta$)の温度一周波数依存性。

結晶**4**の ϵ_1 は温度が100~400 Kに上昇するとほぼ単調に増加した一方、測定周波数 $10^{3.5}$, 10^4 , $10^{4.5}$ および 10^5 Hzでの $\tan \delta$ は、それぞれ189, 245, 300, 341 Kで極大値を取った。測定周波数が高周波数である程、高温側で $\tan \delta$ が極大値を示す挙動は典型的な誘電緩和である。アレニウスプロットより、誘電緩和の活性化エネルギー(E_a)は13.1 kJ mol⁻¹と推定された。結晶**4**において、Br-CH₂CH₂ 基の占有率が106 Kより上昇することで平均化されることから、結晶

4が示した誘電緩和は、結晶内のBr-CH₂CH₂基が運動し、双極子モーメントの方向が変化していることに対応する。結晶**1**では誘電緩和を示さず、結晶**2, 3**においても分子運動を示唆するX-CH₂基の占有率の変化はみられる一方、 $\tan \delta$ の変化はわずかで E_a を議論することは困難であった。結晶**2**および**3**よりも結晶**4**のX-CH₂CH₂基が示す分子運動の振幅が大きいため、顕著な誘電緩和が生じたと考えられる。

(b) 水素結合一次元鎖を用いた磁性アニオンの配列制御

プロトン受容体として窒素を含むもの(たとえば、N-H+...N)は、興味深い誘電体を構築するために利用されてきた。この点で特に興味深いのは、1,4-ジアザビシクロ[2.2.2]オクタン(DABCO)とその誘導体である。DABCOおよびその誘導体は、円筒形の構造を持ち、軸方向の位置に窒素原子を含むため、その結晶状態のモノプロトン化塩がしばしばN-H⁺...N結合を介して1次元鎖を形成する。1次元鎖内において協調的なプロトン移動が生じると、強誘電性転移を示すことがある。

電子システムと誘電性水素結合ネットワークが共存・結合している物質の磁気特性を調査することへの関心の一環として、DABCOカチオンと $S = 1/2$ のスピンのもつ[Ni(dmit)₂]⁻との組み合わせに注目した。本研究では(HDABCO⁺)₉(DABCO)[Ni(dmit)₂]₉•6CH₃CN (**5**)結晶を作製し、その結晶構造と誘電応答・磁気特性を評価した。

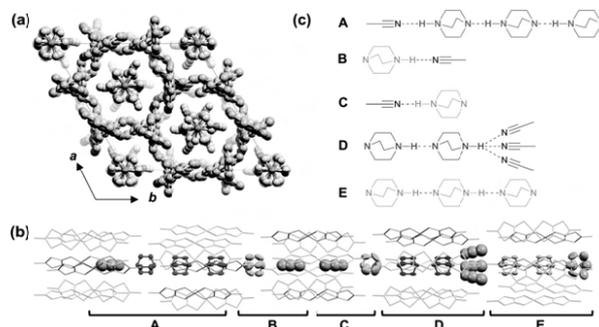


図4. 結晶**5**の構造。水素原子は省略している。(a) c 軸投影図。(b) 単位格子中に含まれるDABCO-CH₃CNによる1次元配列。単位格子中の1つの鎖A-B-C-D-E-E'-D'-C'-B'-A'は、5つの異なる水素結合フラグメントで構成されている。ここで、「プライム(')」は、元の分子の反転によって生成された分子集合を示している。(c) 水素結合ユニット(A-E)の構成。

図4に173Kでの結晶**5**の構造を示す。結晶**5**の空間群は $R\bar{3}$ であり、高度に対称的な空間群に属していた。結晶**5**において、[Ni(dmit)₂]⁻アニオンは六花弁の花のように配列した6量体を形成していた。ラジカルイオンは、 π - π 相互作用によって結晶状態で二量体と柱状構造を形成する傾向が強いのに対し、結晶**5**では、[Ni(dmit)₂]⁻アニオンのエッジオンアセンブリが6量体を形成している。6量体の中心が空隙となっており、 ac 平面との平行面に沿って[Ni(dmit)₂]⁻はハニカム状に配列していた(図4a)。[Ni(dmit)₂]⁻によるハニカムシートは、 c 軸方向に積層し、ハニカムシート内の空隙が1次元のチャンネルを形成するよ

うに積層していた。DABCO及び CH_3CN は、ハニカムシートを貫通するように c 軸と平行に1次元鎖を形成していた。図4bに示した単位格子中の1つの鎖A-B-C-D-E-B'-D'-C'-B'-A'は、5つの異なる水素結合フラグメント(図4c)で構成されている。ここで、「プライム(')」は、元の分子の反転によって生成された分子集合を示している。合計28個のDABCO、 CH_3CN 、および $(\text{CH}_3\text{CN})_3$ と、18個のプロトンが、150 Åを超える格子長の c 軸に沿って存在していた。

$[\text{Ni}(\text{dmit})_2]$ アニオン間に存在する分子間磁気交換相互作用(J)を評価するため、 J の大きさに対応する分子間移動積分(t)を計算した。6量体内の t は約40-50 meVである一方、6量体間の t は、積層方向(c 軸方向)には-3, 15, 15, 0 meVを周期的に繰り返し、 ab 面と平行面内では、-2, 0 meVだった。 J から $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]$ は6量体3つが1ユニットとなり、集積しているとみなすことができる。

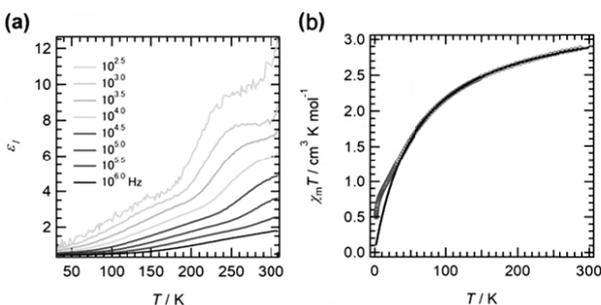


図5. (a) 結晶5の単結晶試料の c 軸方向に交流電場を印加したときの、複素誘電率実部(ϵ_1)の温度一周波数依存性。(b) 結晶5の多結晶サンプルについての $\chi_m T$ versus T プロット(白抜き丸)。実線は、キュリー定数、ワイス温度それぞれ $3.45 \text{ cm}^3 \text{ K mol}^{-1}$ 、 -58 K をパラメータとするキュリーワイス則。

結晶5の単結晶試料の c 軸方向に交流電場を印加したときの複素誘電率実部(ϵ_1)の温度一周波数依存性を図5aに示す。100Kと300K付近で、それぞれの E_a が7.8と26.4 kJ mol^{-1} の2種類の誘電緩和を示した。既報のDABCOを含む塩に対し、固体NMR測定で見積もられた E_a の値と結晶5の E_a が同程度であることから、結晶5で観察された緩和はさまざまな結晶環境でのDABCO分子の分子回転によることが示唆される。

結晶5のモル磁化率(χ_m)から計算した $\chi_m T$ 値の温度依存性を図5bに示す。低温ほど $\chi_m T$ が減少する挙動から、 $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]$ アニオンが反強磁性相互作用を示すことがわかる。50-300 Kの温度域の $\chi_m T$ は、キュリー定数(C)、ワイス温度(θ)それぞれ $3.45 \text{ cm}^3 \text{ K mol}^{-1}$ 、 -58 K をパラメータとするキュリーワイス則と適合する。 $\theta = -58 \text{ K}$ より、結晶5にはかなり強い反強磁性相互作用が存在するといえる。 J は t の2乗に比例することから、結晶5の強い反強磁性相互作用は、約50 meVの t 値を持つ6量体内相互作用に対応する。50 K以下では、 $\chi_m T$ 値がキュリーワイス則に基づいて予想されるものよりも大きくなっていった。過剰の $\chi_m T$ は3つの六量体で構成されるユニット内および/またはユニット間で生じる強磁性相互作用を示唆している。

(c) 結晶の構成要素を繋ぐ高分子材料合成法の開発

従来のネットワーク高分子の合成法では溶液中でランダムに運動しているモノマーを重合して繋ぎ合わせるという手法で合成が行われてきたため、生じる構造の制御は基本的には大変困難であるとされてきた。一方で我々はこれまでに多孔性結晶である金属有機構造体(MOF)の有機配位子を事後修飾によって架橋する「結晶成分結合法」の開発を行ってきた。この手法ではモノマーは結晶として長距離に亘って整然と配置していることになり、溶液中でのランダムな重合では困難な構造制御が可能になると考えられる。

これまでの研究でアジド基を有するAz2tpdcと反応性官能基を有さないピラー配位子である4,4'-ビピリジルを銅(II)イオンや亜鉛(II)イオンと組み合わせることで二重相互貫入網目構造のピラードレイヤー型MOFが得られ、これをゲスト分子とのクリック反応によって架橋した場合に溶媒分子の出入りによって一軸方向の大きな変形挙動を示すことを見出している。ピラー配位子をさらに長くすべく、ジピリジルベンゼンをピラー配位子として用いてAz2tpdcおよび金属イオンと混合することで結晶化させると三重相互貫入網目構造を有するピラードレイヤー型MOFが得られることが分かった(図6)。これをクリック反応によって架橋し、加水分解すると斜方膨潤現象を示すことを見出した。さまざまな長さの架橋剤を用いて架橋を行ったが斜方膨潤現象における膨潤度などはほぼ同一であった。この斜方膨潤現象を解明すべく、架橋剤の長さで架橋可能な反応点の組み合わせを網羅的に抽出したところ、特定の結晶面に架橋が集中することで、その結晶面の面内方向への膨潤は抑制されるとともに法線ベクトルの方向に大きく膨潤し、立方体から平行六面体への斜方膨潤現象が観察されたと考えられる。架橋剤間で膨潤挙動に差がなかったのは、近傍に存在する反応点が早く反応し、遠方に存在する反応点との反応は難しいためであると考えられる。これらの結果は結晶構造からの膨潤挙動予測に繋がると考えられる。

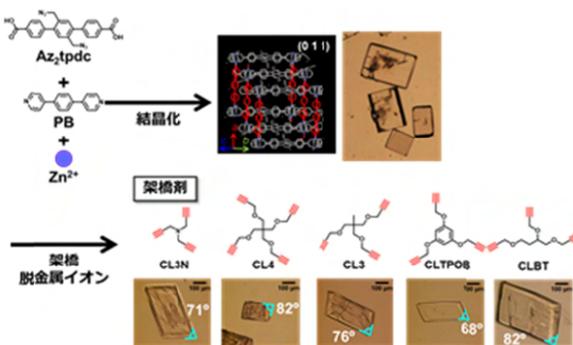


図6. 斜方膨潤ゲルの作製

また、ヒドロキシ基を2点有するhyd2tpdcを合成し、これと亜鉛(II)イオンを組み合わせることでIRMOF-15型のMOFを得た。これを架橋すべく、1官能または2官能のイソシアネート化合物と有機スズ触媒を加えて加熱静置した。圧縮試験(図7)によって力学的強度を調査したところ、1官能性イソシアネート化合物を用いた系では原料のMOFの最大応力(12 MPa)と変わらない

最大応力(12 MPa)を示したが、2官能性イソシアネート化合物を用いた系では最大応力が飛躍的に向上した(135 MPa)。また、重合反応後の結晶の配位結合を酸性条件下で加水分解したところ、2官能性イソシアネート化合物を反応させた資料は結晶の形状を維持したままゲルへと変化することが分かった。このことから2官能性イソシアネート化合物と反応させた系ではイソシアネート基の多量化が起こってネットワーク化することで強靱化されたことが示唆された。

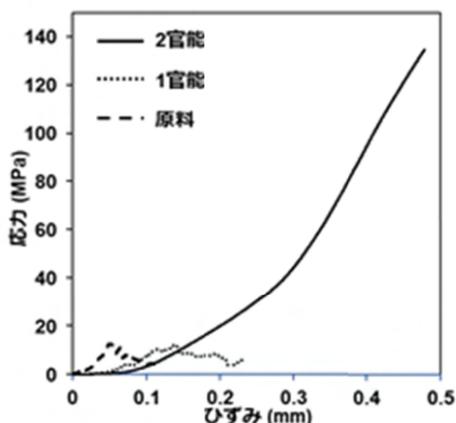


図7. 圧縮試験の応力ひずみ曲線

3. 今後の研究の展望

ナノアセンブリ材料として、(1) 超分子アプローチに基づく固相分子運動の実現や、(2) 水素結合一次元鎖を用いた磁性アニオンの配列制御を行うとともに、(3) 結晶の構成要素を繋ぐ高分子材料合成法の開発を進めてきた。いずれの材料系においても、分子集合体内における分子間相互作用を制御し、それを活用することが機能発現の鍵となっており、単一分子では実現しがたい、分子集合体特有の性質を積極的に利用した材料系であるといえる。分子集合体を用いる最大の利点は、多数の分子による共同現象を利用できることである。共有結合で機能ユニットが繋がっていないために、ある程度分子間の相互作用を時空間的に制御できる点も利点である。これら分子集合体の特徴を生かし、今後も分子集合に基づく機能材料の開拓を進めていく。

4. 資料

4.1 学術論文 (査読あり)

- 1) K. Kubo, M. Yoshitake, N. Norihisa, S. Noro, T. Akutagawa, T. Nakamura : "Stable Ferromagnetic Crystal of Two-Dimensional Manganese-Chromium Oxalate with Supramolecular Cation", *European Journal of Inorganic Chemistry*, **17**: 1670-1675 (2020)
- 2) X. Zheng, H. Sato, K. Takahashi, S. Noro, T. Nakamura : "A Synchronous Change in Fluid Space and Encapsulated Anions in a Crystalline Polymethylene Unit Containing Metal-Organic Framework", *Crystal Growth & Design*, **26**(6): 3596-3600 (2020)
- 3) I. Hisaki, Q. Ji, K. Takahashi, N. Tohnai, T. Nakamura :

"Positional Effects of Annelated Pyrazine Rings on Structure and Stability of Hydrogen-Bonded Frameworks of Hexaazatrinaphthylene Derivatives", *Crystal Growth & Design*, **20**(5): 3190-3198 (2020)

- 4) K. Sambe, N. Hoshino, T. Takeda, T. Nakamura, T. Akutagawa : "Structural Modulation of Electrically Conducting TCNQ Salts Using Na⁺(crown ether) Supramolecular Cations", *Crystal Growth & Design*, **20**(6): 3625-3634 (2020)
- 5) K. Sambe, N. Hoshino, T. Takeda, T. Nakamura, T. Akutagawa : "Dynamics and Structural Diversity of Li⁺(Crown Ether) Supramolecular Cations in Electrically Conducting Salts", *Journal of Physical Chemistry C*, **124**(25): 13560-13571 (2020)
- 6) S. Noro, Y. Song, Y. Tanimoto, Y. Hijikata, K. Kubo, T. Nakamura : "Controlling the gate-sorption properties of solid solutions of Werner complexes by varying component ratios", *Dalton Transactions*, **49**(27): 9438-9443 (2020)
- 7) Y. Sagara, K. Takahashi, T. Nakamura, N. Tamaoki : "Mechanical and thermal stimuli-induced release of toluene included in luminescent crystals as one-dimensional solvent channels", *Journal of Materials Chemistry C*, **8**(29): 10039-10046 (2020) 【電子研内共著】
- 8) X. Zheng, K. Fukuhara, Y. Hijikata, J. Pirillo, H. Sato, K. Takahashi, S. Noro, T. Nakamura : "Understanding the interactions between the bis(trifluoromethylsulfonyl)imide anion and absorbed CO₂ using X-ray diffraction analysis of a soft crystal surrogate", *Communications Chemistry*, **3**(1): 143 (2020)
- 9) M. Fujibayashi, Y. Watari, R. Tsunashima, S. Nishihara, S. Noro, C. Lin, Y. Song, K. Takahashi, T. Nakamura, T. Akutagawa : "Structural Phase Transitions of a Molecular Metal Oxide", *Angewandte Chemie-International Edition*, **59**(50): 22446-22450 (2020)
- 10) S. Li, K. Takahashi, I. Hisaki, K. Kokado, T. Nakamura : "One-dimensional DABCO hydrogen-bonding chain in a hexagonal channel of magnetic [Ni(dmit)₂]", *Dalton Transactions*, **49**(46): 16772-16777 (2020)
- 11) Y. Tang, Y. Xie, Y. Ai, W. Liao, P. Li, T. Nakamura, R. Xiong : "Organic Ferroelectric Vortex-Antivortex Domain Structure", *Journal of the American Chemical Society*, **142**(52): 21932-21937 (2020)
- 12) N. Hasuo, K. Takahashi, I. Hisaki, K. Kokado, T. Nakamura : "Molecular motion of halogenated ethylammonium/[18]crown-6 supramolecular ions in nickel dithiolate magnetic crystals", *Crystengcomm*, **23**(14): 2756-2763 (2020)
- 13) J. Qi, Y. Kim, K. Takahashi, K. Aoki, I. Hisaki, T. Nakamura, N. Tamaoki : "A Series of Bisamide-Substituted Diacetylenes Exhibiting a Terminal Alkyl Odd/Even Parity Effect on Mechanoactivated Photopolymerization", *Chemistry-A European Journal*, **27**(11): 3832-3841 (2020) 【電子研内共著】

- 1 4) K. Shivakumar, S. Noro, Y. Yamaguchi, Y. Ishigaki, A. Saeki, K. Takahashi, T. Nakamura, I. Hisaki:” A hydrogen-bonded organic framework based on redox-active tri(dithiolylidene)cyclohexanetrione”, *Chemical Communications*, **57**(9):1157-1160(2020)
- 1 5) Y. Sagara, K. Takahashi, A. Seki, T. Muramatsu, T. Nakamura, N. Tamaoki:” Two-step mechano-responsive luminescence and mechanical stimuli-induced release of small molecules exhibited by a luminescent cyclophane”, *Journal of Materials Chemistry C*, **9**(5):1671-1677(2020) 【電子研内共著】
- 1 6) M. Tadokoro, H. Machida, R. Toyofuku, M. Murakami, H. Kamebuchi, K. Isoda, F. Kobayashi, K. Takahashi, S. Noro, T. Nakamura:” Gas sorption of nano-porous supramolecules formed by multi-hydrogen bonded coordination capsules”, *Chemical Communications*, **57**(18):2249-2252(2020)
- 1 7) Y. Tanaka, T. Machida, T. Noumi, K. Sada, K. Kokado:” Emissive Tetraphenylethylene (TPE) Derivatives in a Dissolved State Tightly Fastened by a Short Oligo(Ethylene Glycol) Chain”, *Organic Chemistry Frontier*, **7**(18):2649-2656(2020)
- 1 8) M. Naya, K. Kokado, K. Sada:” Triple Thermoresponsiveness of a TADDOL-Based Homopolymer through the Formation of Supramolecular Complexes with Chiral Guest Molecules at Variable Ratios”, *ACS Applied Polymer Materials*, **2**(11):4415-4424(2020)
- 1 9) H. Chen, L. Zhu, C. Xue, P. Liu, X. Du, K. Wen, H. Zhang, L. Xu, C. Xiang, C. Lin, M. Qin, J. Zhang, T. Jiang, C. Yi, L. Cheng, C. Zhang, P. Yang, M. Niu, W. Xu, J. Lai, Y. Cao, J. Chang, H. Tian, Y. Jin, X. Lu, L. Jiang, N. Wang, J. Huang and Wang :” Efficient and bright warm-white electroluminescence from lead-free metal halides”, *Nature communications*, **12**(1):1-7(2020)
- 2 0) H. Zhang, C. Tu, C. Xue, J. Wu, Y. Cao, W. Zou, W. Xu, K. Wen, J. Zhang, Y. Chen, J. Lai, L. Zhu, K. Pan, L. Xu, Y. Wei, H. Lin, N. Wang, W. Huang, J. Wang:” Low Roll-Off and High Stable Electroluminescence in Three-Dimensional FAPbI₃Perovskites with Bifunctional-Molecule Additives”, *Nano Letters*, **21m**(9):3738-3744(2020)
- 2 1) Y. Hui, H. Wang-Hua, X. Wei-Jian, Z. Ying, C. Xiao-Xian, H. Rui-Kang, Z. Wei-Xiong, C. Xiao-Ming:” Two enantiomeric perovskite ferroelectrics with a high T_c raised by inserting intermolecular hydrogen bonds”, *APL Materials*, **9**, 031102 (2021)

4.2 学術論文 (査読なし)

該当なし

4.3 総説・解説・評論等

- 1) 小門憲太、佐田和己:” 結晶の構成要素を連結するポリマー合成の新技术”, *日本結晶学会誌*, **63**:16-23(2020)
- 2) 高橋仁徳、芥川智行、中村貴義:” 超分子カチオンを導入した分子性イオン結晶の動的特性と物性”, *熱測定*, **48**(1):2-6(2020)

4.4 著書

該当なし

4.5 特許

該当なし

4.6 講演

a. 招待講演 (国際学会)

該当なし

b. 招待講演 (国内学会)

- 1) 小門憲太: 「結晶の構成要素を連結する巨大分子の精密合成」、関東高分子若手研究会 2020 ミニシンポジウム、Online、(2020-09)

c. 一般講演 (国際学会)

- 1) Takahashi Kiyonori, Shirakawa Yuki, Takayoshi Nakamura: “Magnetism of Nickel Dithiolate Crystal with Rotating Pyridinium Cation in Supramolecular Dibenzo[24]crown-8 Columnar Structure”, 1st Asian Conference on Molecular Magnetism, Online (2021-03)
- 2) Wu Jiabing, Takahashi Kiyonori, Hisaki Ichiro Takayoshi Nakamura: “Ferroelectric and Ferromagnetic Hybrid Material Based on [MnCr(oxalate)₃] Coordination Polymer with Supramolecular Structure”, 1st Asian Conference on Molecular Magnetism, Online (2021-3)
- 3) Wu Dongfang, Chen Jiao, Li Simin, Takahashi Kiyonori, Hisaki Ichiro Takayoshi Nakamura: “Formation of Carbonate-Bridged Lanthanide Equilateral Triangle in Sandwich-Type Polyoxometalates”, 1st Asian Conference on Molecular Magnetism, Online (2021-3)
- 4) Wu Jiabing, Takahashi Kiyonori, Hisaki Ichiro, Takayoshi Nakamura: “Oxalate-Based Magnets with 1D to 3D Structures: Synthesis, Structures and Magnetic Behaviors”, 1st Asian Conference on Molecular Magnetism, Online (2020-3)

d. 一般講演 (国内学会)

- 1) Yu Song, Takahashi Kiyonori, Takayoshi Nakamura, Noro Shin-ichiro: “Rare [2+2] Photodimerization Reaction in Werner Clathrates”, 錯体化学会第 70 回討論会, Online (2020-9)
- 2) Yu Song, Zheng Xin, Takahashi Kiyonori, T. Nakamura, Noro Shin-ichiro: “Significant structural change of photoactive Werner clathrate by photoirradiation”, 化学系学協会北海道支部 2021 年冬季研究発表会, Online (2021-01)
- 3) ねえん よ一、高橋 仁徳、野呂 真一郎、中村貴義: 「光反応性配位子を有するウェルナー型金属錯体の合成」、日本化学会第 101 春季年会、Online、(2021-03)

- 4) 鄭 きん、中村 貴義、野呂 真一郎:「含フッ素アニオンを含む柔らかい配位高分子の多様な構造及び相変換」、日本化学会第 101 春季年会、Online (2021-03)
- 5) う そう、高橋 仁徳、野呂 真一郎、中村貴義:「ウェルナークラスレートにおける光誘起大構造変化」、日本化学会第 101 春季年会、Online (2021-03)
- 6) 小門 憲太*、山下 将人、三島 康太、佐田 和己 :「2 種類の修飾剤による MOF の選択的事後修飾」、日本化学会第 101 春季年会、Online (2021-03)
- 7) 小門 憲太*、久保田 美羽、納谷 昌実、佐田 和己 :「フッ素系溶媒中における様々な高分子の温度応答性の発現」、日本化学会第 101 春季年会、Online (2021-03)
- 8) 小門 憲太*、福島寛也、森健介、相良剛光、中村貴義、玉置信之、中野英之 :「シアノスチルベン系アモルファス分子材料の発光と光反応」、日本化学会第 101 春季年会、Online (2021-03)
- 9) 小門 憲太*、道端 彩乃、高木 絵美、古川 雄基、佐田 和己 :「多面体形状高分子ゲルの精密サイズ制御」、第 69 回高分子討論会、(2020-09)
- 10) 福岡 脩平、伊藤 悠馬、高橋仁徳、松永悟明、井原慶彦、河本充司:「 π -d 系物質 λ -(BEDT-STF)₂FeCl₄ の誘電特性」、日本物理学会 2020 年秋季大会、Online、(2020-9)

e. 研究会・シンポジウム・ワークショップなど (学会以外)

- 1) 高橋 仁徳、福岡 脩平:「新奇な運動メカニズムで「機能する固相分子機械」の開発」、第 6 回 北大・部局横断シンポジウム、Online、(2020-10)

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

- 1) スマート分子材料研究分野の玉置信之教授、Yuna Kim 准教授と密接に共同研究を行い、*Chem. Eur. J.*誌に論文を発表した。

b. 民間等との共同研究

- 1) 中村貴義、高橋仁徳、久保和也 (兵庫県立大学):「超分子カチオンの動的特性を導入した分子性イオン結晶」
- 2) 中村貴義、高橋仁徳、野呂真一郎 (北海道大学):「気体吸着を示す配位高分子の構造評価」
- 3) 中村貴義、高橋仁徳、久木一朗 (大阪大学):「水素結合型有機多孔体の構造・物性評価」
- 4) 中村貴義、高橋仁徳、相良剛光 (東京工業大学):「機械刺激応答性発光材料の構造評価」
- 5) 中村貴義、高橋仁徳、綱島亮 (山口大学):「構造柔軟性を持つ分子性酸化物の構造評価」
- 6) 中村貴義、高橋仁徳、田所誠 (東京理科大学):「金属錯体アモルファスケージの構造・物性評価」
- 7) 中村貴義、芥川智行 (東北大学):「超分子アプローチに基づく固相分子運動系の開拓」

c. 委託研究

該当なし

d. 国際共同研究

- 1) 中村貴義、Ren Gen Xiong (南昌大学):「分子性強誘電体の開発」

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) 小門 憲太、新学術領域研究 研究領域提案型、外部刺激に応答する異方伸縮ソフトクリスタルを用いた結晶変形挙動の合理的設計、2020~2022 年度
- 2) 高橋 仁徳、若手研究、融解するイオンラジカル分子導体・半導体の開発と中間相・相境界近傍での機能開拓、2019~2020 年度
- 3) 中村 貴義、基盤研究 B 一般、超分子構造を用いた結晶内分子配列制御と機能開拓、2018~2021 年度

b. 大型プロジェクト・受託研究

- 1) 中村 貴義、受託事業、強誘電性を基礎とした新規分子性複合材料の開拓、2020~2022 年度
- 2) 小門 憲太、受託、トポロジー精密制御による革新的ネットワーク高分子材料の創出、2020~2022 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

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) 全学教育、一般教養演習、高橋 仁徳、2020 年 4 月 1 日~2020 年 9 月 30 日
- 2) 全学教育、全学教育科目 環境と人間「ナノテクノロジーが拓く光・マテリアル革命」、中村 貴義、2020 年 4 月 1 日~2020 年 9 月 30 日
- 3) 環境科学院、環境物質科学特論Ⅱ、中村 貴義、2020 年 10 月 1 日~2021 年 3 月 31 日
- 4) 環境科学院、光電子科学特論Ⅱ、中村 貴義、小門 憲太、2020 年 4 月 1 日から 2020 年 9 月 30 日
- 5) 環境科学院、分子環境学特論Ⅱ、中村 貴義、小門 憲太、2020 年 10 月 1 日~2021 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

該当なし

h. ポスドク・客員研究員など

- 1) Shivakumar Kilingaru Ishwara (電子科学研究所)

i. 修士学位及び博士学位の取得状況

修士学位：2人

- 1) 高橋優太、環境科学院：修士（環境科学）、無機カチオンと[2.2.2]cryptandからなる超分子カチオンを導入した $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]$ 塩の構造相転移
- 2) 蓮尾直洋、環境科学院：修士（環境科学）、超分子アプローチに基づくハロゲン化アルキルアンモニウムの結晶内分子運動の実現

博士学位：1人

- 1) 李思敏、環境科学院：博士（環境科学）、Multifunctional systems based on supramolecular motions in $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]$ -magnetic crystals ($[\text{Ni}(\text{dmit})_2]$ -磁性結晶における超分子運動に基づく複合機能系)

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であるため、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、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する新しい研究手法の枠組みの中で実験事実在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 (数理学), 2012. 4~)

准教授 青沼 仁志 (北大院, 博士 (理学), 2015. 4~)

准教授 小林 康明 (東大院, 博士 (理学), 2019. 3~)

助 教 西野 浩史 (岡山大院, 博士 (理学), 2015. 4~)

助 教 劉 逸侃 (東大院, 博士 (数理学), 2019. 8~)

特任助教 大野 航太 (明治大院, 博士 (数理学),
2019. 4~2021. 3)

博士研究員 一本嶋 佐理 (2017. 4~2020. 9)

学術研究員 熊本 淳一 (2016. 4~2021. 3)

学術研究員 浪花 啓右 (2017. 10~)

客員研究員 中村 玄 (2019. 10~)

客員研究員 西浦 廉政 (2019. 10~)

技術補助員 堂前 愛 (2017. 5~)

技術補助員 富澤 ゆかり (2019. 10~)

派遣職員 星野 由佳 (2018. 11~)

院 生

博士課程 KIM Minsoo, 岡本 守, 安ヶ平 裕介

修士課程 沈 安鷺, 松永 哲, 森 篤志, 長友 優弥

研究生 熊 澤宇

学部生 磯崎 健吾, 小井田 大賀, 鈴木 淑恵,

宮本 悠輔

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は、うまく toy モデルを構成出来れば一見複雑に見える現象も見通しよく簡単に説明することができる。しかし、現象の細部には目をつぶらねばならない場合もある。そこで、toy モデルを構成し実際の現象を深く観察・実験し toy モデルに不足分を付け加えることで現象を説明する最小限のモデルを作ることを目指す。即ち、現象を再現するための数理モデル化ではなく、数理モデルを作りながら現象の本質となっている部分を抜き出すのである。我々はこの一連のプロセスを単に数理の範疇だけで行うのではなく、実験系研究者と

緊密に連携を取りながら、生命現象に潜むメカニズムを解明していくことが目標である。

2) 非平衡系における振動現象の数理

非平衡系に現れる振動ダイナミクスの発生メカニズムを解析し、振動現象の生命系における役割について明らかにしていくことを目標とする。空間的に広がった系にたいする振動場の理論と、離散的な系にたいする振幅振動子・位相振動子の理論を用いて具体的な問題にたいする数理モデルを構築して解析を行っていく。

細胞集団の集団振動は同期現象や進行波といった特徴的な時空間構造を持つが、このような集団特有のダイナミクスには細胞間の相互作用が不可欠である。相互作用には隣り合う細胞間にはたらく局所的なものだけでなく、遠く離れた細胞間にはたらく長距離の相互作用もある。細胞外で拡散する化学物質の濃度場を介した相互作用はそのような例であり、細胞全体に均一な場の作用が仮定されることが多い。しかし細胞集団が複雑な3次元形態を持っていれば、細胞集団に作用する場の空間分布は一般に不均一なものになる。このような不均一な場による相互作用を含んだ、より広い集団振動現象を記述する理論的な手法を構築することを目指す。

3) 動物の適応的な振る舞いの構成論的理解

時々刻々と変化する環境は、予測することが不可能な無限定な環境といえる。私たち動物は、このような無限定環境の中で状況に応じて適応的に行動を切り替えながら生活している。一方、私たちの生活環境では、計算能力が向上したコンピュータが使われているが、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標としている。

4) 昆虫をモデルとした感覚情報処理の解明と応用

近年、持続可能な開発目標（SDGs）のひとつとして環境低負荷型の農業やペストコントロールが注目されてお

り、種特異的なシグナル（フェロモン等）を用いた選択的害虫防除の領域で神経生物学との緊密な連携が進みつつある。また、速い情報処理を発達させている昆虫の構造や機能を工学的に模倣（生物模倣学）しようという機運も高まっている。

本研究では、昆虫の五感の神経レベルでの情報処理様式の解明を主軸としつつも、得られた知見を環境低負荷型のペストコントロールや生物模倣などの応用指向の研究へと発展させていくことを目標とする。

5) 非整数階発展方程式の数学解析

不均質媒質における粒子の特異拡散、細胞膜におけるタンパク質の輸送などの現象において、マルコフ性が破綻し、通常の発展方程式で記述できない場合がある。これらの非マルコフ過程に対し、非局所モデルが数多く提唱されたが、特に 0.5 階、1.3 階などの時間微分をもつような非整数階発展方程式が注目されている。このような方程式の解の一意存在性などの基礎理論を構築した上、解の漸近挙動や形状など解析的および幾何的特徴を解明することを目的とする。同時に、応用上で重要な数値解法（有限要素法など）を開発し、数値解析を行い数値精度を保証する。一方、解の欠落データから方程式の構成要素である未知の初期値や係数などを決定する逆問題について、順問題の性質に基づき、実用的な問題設定で未知の要素の一意性と条件付き安定性を証明し、効率的な再構成方法を創出する。さらに、いくつかの側面から非整数階発展方程式と通常の発展方程式の本質的な違いと共通点を見極め、整数階と非整数階の場合を横断する統一な数学理論の確立を目指す。

2. 研究成果

1) 表皮構造の数理解析

今年度は、CREST 課題の最終年度ということで、表皮バリア機能の恒常性維持の数理解析の結果をまとめて論文投稿をおこなった。また、新しい研究展開として、北大医学部皮膚科の夏賀健准教授らと、培養表皮細胞が作るパターン形成問題やマウスを使った乾癬病態に対する数理解析を行った。成果はまだ得られていないが、次年度には新しい研究成果を得たい。また、角層バリア機能の高い人工モデル皮膚が形成されるメカニズムを明らかにするために、周期的な凹凸パターンの固定された基底膜上での表皮構築モデルの解析を行った。表皮構造が成長する 14 日間において、最も表皮が厚くなる周期凹凸パターンは 20 μm であることが数理解析から明らかになった。この結果は実験結果と定量的に一致しており、数理解析が人工モデル皮膚の構築に援用できることが明らかになった。

2) 糖代謝モデルの構築

ムーンショットプロジェクトの中で糖代謝モデルの構築を東北大学の水藤寛教授、千葉逸人教授らと行った。肝臓内で起こっている糖代謝の詳細なモデルと臓器間ネットワークとしての血流体循環を込めた単純なグルコースダイナミクスモデルを構築した。

3) 自己駆動系モデルの数理解析

今年度は液滴を表現する数理解析モデルとして保存量を持つ Phase-Field 方程式を改良した数理解析モデルを提案した。この数理解析モデルの持つパラメータの次数をコントロールすることによって、樟脳円盤のような固体も表現できることがわかった。この表現モデルを用いることで、液滴の自走運動のような変形を伴う運動や樟脳円盤のように変形しない系の運動を記述する数理解析モデルを構築することができた。

4) 社会創造数理解析の展開

今年度は、酪農家あるいは農家で予想される需要電力量を賄うことができる最小の直流ナノグリッドシステムの数理解析モデル化を行った。太陽光発電システム、充放電バッテリーシステムを有していると仮定し、最適化問題として数理解析モデルを定式化し数値計算を行った。その結果、需要電力に応じて1年間運用できる直流ナノグリッドの構成を提案できることがわかった。また、各時刻での発電量を予測して運用する EMS モデルを構築したが、一般的な最小単位の太陽光発電では、晴天時の発電量が多すぎる場合に EMS が破綻することがわかった。今後は二酸化炭素削減、経済効果の向上等を考慮できる最良化された DC グリッド構成やグリッド間ネットワークの数理解析モデルを構築する。

5) 振動する薄膜の数理解析

理学研究院の景山義之氏と共同で以下の研究を行った。分子の集合体がつくる薄膜状の結晶が光照射によって自発的に振動運動を起こすことが実験的に報告されている。このような現象を起こす結晶は主に光異性化を示すアゾベンゼンのような棒状の分子からなっていて、光の照射によって分子形状が変化する。結晶の形状によって様々な運動のモードが観察されている。平べったい結晶では主にフリップ運動が見られる。異性体の濃度比の時間変化の解析からこれはリミットサイクル振動であることが示唆されている。一方リボン状の結晶では局所的な変形が進行波となって伝播する。また単純な振動だけでなく、多重周期の振動やカオス的な振動も観察されている。振動のメカニズムは次のようなものと考えられている。結晶を構成する分子はトランス型とシス型の2つの異性体の間を確率的に遷移する。光照射によってシス型の濃度が増加すると結晶が構造転移を起こして変形する。変形した結晶内では光異性化の反応速度が変化する

ため今度はトランス型が優勢になり、再び構造転移を起こす。この繰り返して結晶は振動する。すなわち光異性化のミクロなダイナミクスと結晶の構造転移というマクロなダイナミクスが結合した結果の振動現象と考えられるが、なぜ実験で観察されるような持続的な振動が生じるかは明らかになっていない。そこで結晶の各点の自発曲率が1次相転移的なポテンシャルに従うとし、ポテンシャルが光異性化反応に依存するようなモデルを提案した。結晶は2次元の三角格子でモデル化し、その運動が自発曲率に依存して決まるとした。さらに結晶の変形の度合いによって光異性化反応の反応速度が変化するとした閉じた方程式系を構築した。このモデルを用いて結晶のダイナミクスを数値シミュレーションにより解析し、結晶の振動が形状にどのように依存するかを調べた。実際に実験で観察されているような持続的な振動運動が生じることを明らかにした。(図1)

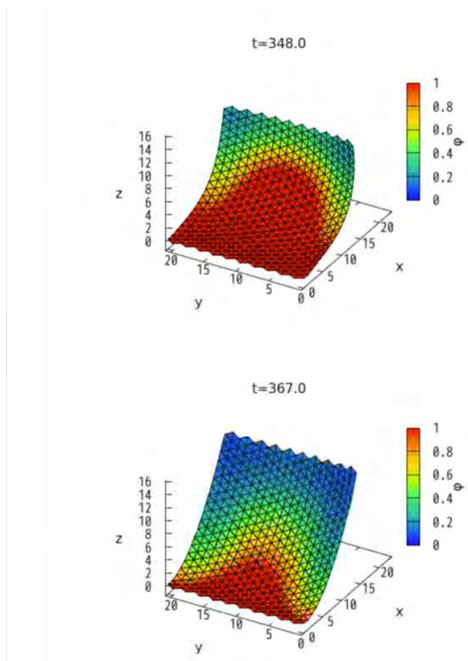


図1: 2次元結晶の振動ダイナミクスの数値シミュレーション

6) 適応的な行動発現の制御構造とその設計原理

予測が困難な無限定な環境のなかで、生物は状況に応じて行動する。このような動物の適応行動の制御メカニズムを理解するためには、個体を取り巻く環境、身体、神経系のいずれかを実験的に操作することで、運動や行動の発現基盤である神経系の制御原理や設計原理を探ることができる。昆虫、多足類、棘皮動物、軟体動物など神経系の構造が比較的単純で、個々の細胞が同定可能な無脊椎動物を使い、適応的な行動の発現基盤となる神経系の制御構造とその設計について行動生理学実験やX線マイクロイメージングなどの方法を使い調べた。昆虫のアリを使った研究では、外部刺激に対する回避行動や防衛

行動の発現メカニズムを理解するため、脳内の神経修飾物質である生体アミンの役割を調べた。その結果、防衛行動に伴う攻撃性は、脳内の生体アミンのセロトニンのはたらきによって調節されていることを明らかにした。

また、昆虫のコオロギや多足類のムカデを使った研究では、動物に普遍的にみられるロコモーションの発現メカニズムに着目し、個体を環境の変化に応じて変容する歩容遷移の制御メカニズムについて研究した。上位中枢とも言える脳と歩脚の運動制御の中核とも言える胸部神経節の間の神経接続を物理的あるいは薬理的に切断や阻害することで、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あぶり出すことを目指した。その結果、協調的な歩脚の運動を生成するための感覚フィードバックの役割、脳から胸部神経節への下降性の神経信号のはたらき、腹部神経節から胸部神経節への上行性の神経信号のはたらきについて新たな知見が得られた。

7) 昆虫が超高速運動を生み出すカラクリ

運動速度を向上させることは、動物が生存競争に生き抜く上で適応的な行動として意義がある。早い運動は、突然の脅威から逃れたり、獲物を捕獲する上で重要な機能と言える。一般的に、行動発現は、刺激を受容してから感覚情報の処理、運動制御信号の生成、運動出力といった過程を経て生成される。この過程にかかる時間を短くすることで刺激の受容から反応までの時間を縮め高速度運動が可能になる。ところが神経系には、信号を早く伝える仕組みはあるものの、その伝搬には限界がある。一方、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遥かに超えた超高速の運動を発現する種がいる。この超高速の運動制御のカラクリを探るため、アギトアリ属の行動に着目して研究を進めた。アギトアリは、長く内側に突起がある大きな顎を素早く閉じることで獲物を捕らえる。その時の顎を閉じる速度は、動物が生み出す動きとして世界最速と言われている。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2)。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、骨格の弾性変形を利用した飛び移り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。(図2)



図2：アギトアリと頭部のマイクロCTイメージ。内側に突起がある大顎を超高速度で閉じて獲物を捕まえる。顎の内転筋と骨格の弾性変形を利用して超高速度の運動を生み出している。

8) 光嗜好性を利用した昆虫の行動制御

広い森林面積を持つ北海道では短い夏の間には多くの昆虫が発生する。とくに、お盆の時期に高速道路沿線の光源に大型のガが多数飛来し、休憩施設に定着したり、金收受システムの目詰まりを起こしたりすることが問題となってきた。休憩施設には多くの利用者が集まるため、農薬の散布を控える必要があり、「環境にやさしい飛来虫防除法の開発」が望まれてきた。

本研究では東日本高速道路北海道支社との産学連携研究の一環として、大規模な野外実験を実施し、害虫を選択的に誘引するライトトラップの開発に向けた基礎的知見を得た。

様々な仕様、波長の発光ダイオード（LED）トラップを高速道路沿線に設置し、気象条件や光波長の違いとトラップされる昆虫種の関係について調べたところ、飛来虫は種特異的な光波長への嗜好性を持っていた。（図3）防除対象であるマイマイガ、クスサンは低波長の光を好むが、紫外線域よりもむしろ可視光との境界域（380 nm）に誘引される傾向があった。とくにマイマイガはクスサンよりも長波長よりの光に誘引される傾向があった。一方、水生昆虫（トビケラ、ヘビトンボ）や羽アリは波長選択性が低く、暖色系の光源にも誘引された。また、日没時の気温が20℃を超えたときにマイマイガのメスの群飛が最も起こりやすく、大量のガが捕獲されることがわかった。本成果はガの群飛がおこりそうな気象条件の日に適正な波長を実装したトラップを設置することによって、マイマイガやクスサンの選択的防除が可能となることを示すものである。現在、適正な光波長を実装したLEDトラップを作成中である。

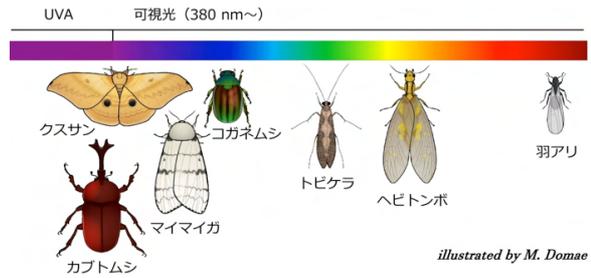


図3：昆虫の光波長選択性

9) 非整数階発展方程式の源泉項決定逆問題の数学解析

時間微分 $\alpha \in (0,2)$ をもつ非整数階発展方程式の初期値・境界値問題において、外部供給を与える未知な源泉項を決定する逆問題について、源泉項の形と解の観測データの数種類の現実的な組み合わせを研究し、以下の成果を得た。

(a) 源泉項を $F(x,t) = f(x)R(x,t)$ のような部分的に変数分離の形をとり、空間成分 $f(x)$ を、解の最終時刻における観測データから決定する問題については、解析フレドホルム理論を用いて条件付き一意性を示した。すなわち、高々可算個の除外点を除き、 $f(x)$ が観測データによって一意的に決められる。

(b) 上記と同じ問題設定で、解の部分内部領域における観測データによって源泉項の空間成分 $f(x)$ を数値的に再構成する問題については、離散化された最適化問題の解の存在性、安定性および収束性を示し、反復法に基づく効率的な数値スキームを開発し、空間2次元までの数値例で検証した。

(c) 源泉項が既知のベクトルに沿って平行移動するが、その形状が未知の場合、境界付近の観測データによって形状を特定する問題について、一意性を証明した。微分階数 α が1以下のとき、一つの形状を特定できるが、 α が1以上の場合、移動方向が異なる二つの形状を同時に特定できることを示した。また、最適化問題に基づく数値反復法を構築し、特に α が1以上の場合に現れる移流方程式を、安定性が優れる楕円方程式に帰着する手法を提案した。

(d) 上記の一般化として、源泉項が既知の曲がった軌道に沿って移動する場合、境界上のコーシーデータによって形状を決定する問題に取り組んだ。観測時間が無限の仮定下で、適切な試験関数とフーリエ変換の解析性を用いて一意性を証明した。

3. 今後の研究の展望

1) 皮膚構造の数値モデル

次年度以降は、毛包形成モデルの構築と角層剥離モデルの研究を進めていく。毛包形成モデルでは、実験から提唱されているテレスコープモデルを支持するような数値

計算結果が得られるか調べていく。同心円状の分化パターンの再現と分化パターンを維持しつつ、毛包形成するために必要な仮説を加えて基底膜が陥入する現象の再現を目指す。角層剥離モデルでは、角層剥離に重要なメソトリプシンとその阻害剤であるセルペンB12を考慮した数理モデルを構築し、角層の厚さに依存して表皮構造がどのように変化していくの調べていく。また、夏賀健准教授との共同研究についても平行して研究を進め行く。

2) 自己駆動系の数理解析

次年度以降は、今年度構築したPhase-Field型の数理モデルを拡張して、実験で見られる水面上を運動する可変な液滴の集団運動に対する数理モデリングを行う。それと同時に形状変化しない系における集団運動のモデリングも行う。さらに、次年度から数理モデルの数学解析も開始する。パラメータを変化させることで変形の有無が生まれるメカニズムを特異摂動法を用いることによって得られる曲線運動方程式の解析から示すことができなにか検討する。また、静止解から並進運動解への分岐現象が解析できないか検討を進める。

3) MSプロジェクトの展開

次年度は、臓器間ネットワークモデルの詳細化を行い、ヒト血糖値データを用いた定量解析を目指す。数理モデルに対するパラメータ推定（ベイズ推定あるいは最尤推定）を行い、C-ペプチドの半減期を定量化する。これによってこれまでに知られている半減期と矛盾が生じないことを確認後に、インスリンの放出とインスリンクリアランス、半減期等を数理モデルから推定し、これまでに医学データと比較することで数理モデルに信頼性を与え、臓器間ネットワーク糖代謝モデルを用いた糖尿病の発生未満である未病に対する数理的定義を与える。

4) 社会創造数学研究の展開

次年度は、日立北大ラボが岩見沢市に構築する試作直流ナノグリッドシステムに対するEMSの数理基盤モデルの構築をおこなう。需要電力はドローンバッテリー充電として、発電システムは太陽光発電とマルチ燃料エンジンとする。運用可能性を示す最適化問題の定式化を目指す。直流ナノグリッドをネットワーク化することで得られる持続可能な地域社会を実現するための数理モデルについても考察していく。

5) 振動する薄膜の数理モデル

実験では結晶の形を直接コントロールすることが困難であり、数値シミュレーションで様々な形の結晶の運動形態を調べることは有益である。これまでのところ、単純なリミットサイクル振動だけでなくカオスの振動や多重周期の振動、進行波の存在も報告されている。広範な数

値シミュレーションによりこれらの運動を再現することを目指す。また理論解析によって、振動モードと形態の関係を明らかにする。現在の数理モデルは直接理論解析することが困難なため、定性的に同じ振る舞いをするより簡約化した数理モデルを構築し、解析を実行する。

6) 身体と脳の相互作用によって生まれる適応行動の解析

X線を使ったイメージングでは、身体の詳細な3次元構造解析を生体組織を破壊することなく行える。節足動物は、神経系を構成する神経細胞が少ないが、発現する行動は多様で適応的である。そのため、行動発現の基盤となる神経系や筋骨格系のはたらきを解析し、理解するには有効な実験材料と言える。そこで、X線マイクロイメージングにより、節足動物の適応的な運動発現の基盤となる神経系や筋骨格系などの3次元構造の解析を進めている。また、Spring-8を利用して、昆虫が運動中の筋肉や骨格の動きについてライブイメージング法やX線回折法を使って調べている。ハイスピードカメラを使った生体のライブ撮影を組み合わせることで、運動中の筋収縮に伴う骨格の動きを解析する。これにより、限られた身体リソースしか利用できない昆虫が、神経細胞や骨格筋の性能を上回る運動機能を生み出すカラクリを明らかにする。

7) 嗅覚情報処理における気流情報の役割

匂いを感知するにはこれを運ぶ空気流が不可欠である。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からの細胞内記録データの解釈に流体力学の数理モデルを導入することで、匂いを運ぶ気流情報がどのように符合化されているのかを明らかにする。

8) 集合フェロモンを用いた衛生害虫誘引剤の開発

ゴキブリは世界中にあまねく分布する衛生害虫で、ウイルスや細菌の媒介、食品混入、アレルギー誘発が大きな問題となっている。ゴキブリの集合フェロモンが糞中に含まれていることは半世紀前に示されたが、現在でも主要成分の特定には至っていない。本研究では、糞中の揮発性分画や既存の匂い物質に対するフェロモン受容神経の応答解析と候補物質の化学分析・行動アッセイを双方向的に進めることで、フェロモン成分の構造決定を行うことを目標とする。

9) 非整数階拡散-波動方程式に対する数学解析

非マルコフ過程を記述する非局所モデルの一つである非整数階発展方程式のうち、時間微分階数 α が (0,1) 区間にある非整数階拡散方程式が特に注目されてきたが、 α が (1,2) 区間にある非整数階拡散-波動方程式は、発展方程式論および粘弾性モデルにおいて重要であるにもかか

ならず、解析上の困難により研究が進まず、その性質が十分に解明されていない。これからは非整数階拡散-波動方程式の初期値・境界値問題に焦点を当て、「通常の拡散・波動方程式と整合した一般理論への展開」、「解の定性的・定量的な特徴づけ」、「非局所性の逆問題への影響を解明」という3大課題に取り込む。今まで非整数階拡散方程式に適用した手法を受け継ぎながら、新たに解の形状や保存則の観点から非整数階拡散-波動方程式の特有な性質を発見し、その性質が逆問題にもたらす効果を評価する。さらに非整数階拡散-波動方程式を(非整数階)拡散方程式および波動方程式と比較し、類似性と差異を見極め、時間微分 α が (0,2) に渡る発展方程式の全体的な一般理論へと深化させる。

4. 資料

4.1 学術論文 (査読あり)

- 1) Junichi Kumamoto, Koji Fujimoto, Yasuaki Kobayashi, Kota Ohno, Masaharu Nagayama, Mitsuhiro Denda, Substrate membrane bearing close-packed array of micron-level pillars increases air-exposed three-dimensional epidermal equivalent model, *Skin Research and Technology*, (2021), <https://doi.org/10.1111/srt.13035>
- 2) Masaaki Uesaka, Ken-Ichi Nakamura, Keiichi Ueda and Masaharu Nagayama, *Stability of stationary points for one-dimensional Willmore energy with spatially heterogeneous term*, *Physica D*(2021), DOI: 10.1016/j.physd.2020.132812
- 3) S. Tanaka, S. Nakata, M. Nagayama, A surfactant reaction model for the reciprocating motion of a self-propelled droplet, *Soft Matter*, DOI: 10.1039/d0sm01500h (2020.10)
- 4) J. Fan, M. Nagayama, G. Nakamura, M. Okamoto, A weak solution for a point mass camphor motion. *Differential Integral Equations* 33 (2020), no. 7-8, 431-443. (2020.8)
- 5) M. Okamoto, T. Gotoda, M. Nagayama, Existence and non-existence of asymmetrically rotating solutions to a mathematical model of self-propelled motion, *Japan Journal of Industrial and Applied Mathematics*, No. 37巻3号, P883-P912, DOI 10.1007/s13160-020-00427-x, (2020.9)
- 6) Y. Hirose, Y. Yasugahira, M. Okamoto, Y. Koyano, H. Kitahata, M. Nagayama, Y. Sumino, Two floating camphor particles interacting through the lateral capillary force, *Journal of the physical Society of Japan*, 89, 074004, DOI: <https://journals.jps.jp/doi/10.7566/JPSJ.89.074004>. (2020,5)
- 7) K. Naniwa and H. Aonuma: “Descending and ascending signals that maintain rhythmic walking pattern in the cricket”, *Frontiers in Robotics and AI*, 8: 625094- (2021)
- 8) D. Owaki, H. Aonuma, Y. Sugimoto and A. Ishiguro: “Leg amputation modifies coordinated activation of the middle leg muscles in the cricket *Gryllus bimaculatus*”, *Scientific Reports*, 11: 1327- (2021)
- 9) H. Aonuma: “Serotonergic control in initiating defensive responses to unexpected tactile stimuli in the trap-jaw ant *Odontomachus kuroiwae*”, *Journal of Experimental Biology*, 223: jeb228874- (2020)
- 10) K. Naniwa, Y. Sugimoto, K. Osuka and H. Aonuma: “Novel method for analyzing flexible locomotion patterns of animals by using polar histogram”, *Journal of Robotics and Mechatronics*, 32(4): 812-821 (2020)
- 11) K. Saito, R. Pérez-de la Fuente, K. Arimoto, Y. Ah Seong, H. Aonuma, R. Niiyama and Z. You: “Earwig fan designing: biomimetic and evolutionary biology applications”, *PNAS*, 117(30): 1-5 (2020)
- 12) 西野 浩史 嗅覚研究の進展が拓く新たな薬物療法の可能性 最前線「匂いのかたちを把握する昆虫」*ファルマシア* 57巻3号, 180-184 2021年
- 13) H. Nishino, M. Sakai Chap. 7 Tonic Immobility in a Cricket: Behavioral Characteristics, Neural Substrate, and Functional Significance. In *Death-Feigning in Insects Mechanism and Function of Tonic Immobility* (Eds, M. Sakai) 93-108, 2021
- 14) H. Nishino Chap. 8 Tonic Immobility in a Cricket: Neuronal Underpinnings of Global Motor Inhibition. In *Death-Feigning in Insects Mechanism and Function of Tonic Immobility* (Eds, M. Sakai) 109-132, 2021
- 15) M. Komatsu, K. Kurihara, S. Saito, M. Domae, N. Masuya, Y. Shimura, S. Kajiyama, Y. Kanda, K. Sugisaki, K. Ebina, O. Ikeda, Y. Moriwaki, N. Atsumi, K. Abe, T. Maruyama, S. Watanabe and H. Nishino: “Management of flying insects on expressways through an academic-industrial collaboration: evaluation of the effect of light wavelengths and meteorological factors on insect attraction”, *Zoological Letters*, 6(15): 1-15 (2020)

- 1 6) M. Paoli, H. Nishino, E. Couzin-Fuchs and G. C. Galizia, Coding of odour and space in the hemimetabolous insect *Periplaneta americana*, *Journal of Experimental Biology*, The Company of Biologists LTD, 223: jeb218032- (2020).
- 1 7) D. Jiang, Y. Liu and D. Wang, Numerical reconstruction of the spatial component in the source term of a time-fractional diffusion equation, *Adv. Comput. Math.*, 46, Article 43 (2020, May).
- 1 8) Z. Li, X. Cheng and Y. Liu, Generic well-posedness for an inverse source problem for a multi-term time-fractional diffusion equation, *Taiwanese J. Math.*, 24, 1005-1020 (2020, August).
- 1 9) G. Nakamura, M. Vashisth, M. Watanabe, Inverse boundary value problem for a non-linear hyperbolic partial differential equation (to appear in *Inverse Problems*).
- 2 0) Lin, Ching-Lung; Lin, Liren; Nakamura, Gen, Born approximation and sequence for hyperbolic equations. *Asymptot. Anal.* 121 (2021), no. 2, 101-123.
- 2 1) Nakamura, Gen, Vashisth, Manmohan; Watanabe, Michiyuki, Inverse initial boundary value problem for a non-linear hyperbolic partial differential equation. *Inverse Problems* 37 (2021), no. 1, 015012, 27 pp.
- 2 2) Fan, Jishan; Li, Fucui; Nakamura, Gen, Uniform regularity of the compressible full Navier-Stokes-Maxwell system. *Z. Angew. Math. Phys.* 72 (2021), no. 1, Paper No. 3, 10 pp.
- 2 3) Jiang Yu; Nakamura, Gen; Wang Haibing, Locating small inclusions in diffuse optical tomography by a direct imaging method, *IMA J. Appl. Math.* 85 (2020), 840-864.
- 2 4) Nakamura, Gen; Tanuma, Kazumi; Xu, Xiang, On the Perturbation of Bleustein-Gulyaev Waves in Piezoelectric Media, *Mathematical Analysis of Continuum Mechanics and Industrial Applications III*, Proceedings of the International Conference CoMFoS18 (2020), 67-79
- 2 5) J. Fan, Y. Hu, G. Nakamura, Local existence for an isentropic compressible Navier-Stokes-P1 approximate model arising in radiation hydrodynamics. *Bull. Korean Math. Soc.* 57 (2020), no. 4, 921-932.
- 2 6) J. Fan, G. Nakamura, T. Tang, Uniform regularity for a two-phase model with magneto field and a related system. *J. Math. Phys.* 61 (2020), no. 7, 071508, 10 pp. 7
- 2 7) J. Fan, L. Jing, G. Nakamura, T. Tang, Regularity criteria for a density-dependent incompressible Ginzburg-Landau-Navier-Stokes system in a bounded domain. *Ann. Polon. Math.* 125 (2020), no. 1, 47-57.
- 2 8) J. Fan, L. Jing, G. Nakamura, K. Zhao, Qualitative analysis of an integrated chemotaxis-fluid model: global existence and extensibility criterion. *Commun. Math. Sci.* 18 (2020), no. 3, 809-836.
- 2 9) J. Fan, L. Jing, G. Nakamura, T. Tang, A note on a non-isothermal model for superconductivity. *Bull. Malays. Math. Sci. Soc.* 43 (2020), no. 4, 3027-3034.
- 3 0) Y. Jiang, J. Fan, S. Nagayasu, G. Nakamura, Local solvability of an inverse problem to the Navier-Stokes equation with memory term. *Inverse Problems* 36 (2020), no. 6, 065007, 14 pp.
- 3 1) T. Li, S. Kabanikhin, G. Nakamura, F. Wang, D. Xu, An inverse problem of triple-thickness parameters determination for thermal protective clothing with Stephan-Boltzmann interface conditions. *J. Inverse Ill-Posed Probl.* 28 (2020), no. 3, 411-424.
- 3 2) J. Fan, L. Jing, G. Nakamura, T. Tang, Local well-posedness of the isentropic Navier-Stokes-Maxwell system with vacuum. *Math. Methods Appl. Sci.* 43 (2020), no. 8, 5357-5368.
- 3 3) C. Cârstea, G. Nakamura, L. Oksanen, Uniqueness for the inverse boundary value problem of piecewise homogeneous anisotropic elasticity in the time domain. *Trans. Amer. Math. Soc.* 373 (2020), no. 5, 3423-3443.
- 3 4) M. Machida, G. Nakamura, Born series for the photon diffusion equation perturbing the Robin boundary condition. *J. Math. Phys.* 61 (2020), no. 1, 013502, 17 pp.
- 3 5) C. Sun, G. Nakamura, G. Nishimura, Y. Jiang, J. Liu, M. Machida, Fast and robust reconstruction algorithm for fluorescence diffuse optical tomography assuming a cuboid target, *J. Optical Society of America A*, 37 (2020), no. 2, 231-239.
- 3 6) J. Fan, J. Sun, T. Tang, G. Nakamura, Global small solutions of the compressible nematic liquid crystal flow in a bounded domain. *Ann. Polon. Math.* 124 (2020), no. 1, 47-59.

- 3 7) Y. Jiang, G. Nakamura, H. Wang, Locating small inclusions in diffuse optical tomography by a direct imaging method, *IMA J. Appl. Math.* 85 (2020), 840-864.
- 3 8) Y-H. Lin, G. Nakamura, R. Potthast, H. Wang, Duality between range and no-response tests and its application for inverse problems, *Inverse Problems and Imaging*, doi:10.3934/ipi.2020072.
- 3 9) J. Liu, M. Machida, G. Nakamura, G. Nishimura, C. Sun, On fluorescence imaging: diffusion equation model and recovery of absorption coefficient of fluorophore (to appear in *Science China Mathematics*).
- 4 0) Kei-Ichi Ueda, Yasumasa Nishiura, Keiichi Kitajo: "Mathematical mechanism of state-dependent phase resetting properties of alpha rhythm in the human brain", *Neuroscience Research*, 4387, 1-13, 2020, DOI: 10.1016/j.neures.2020.03.007
- 4 1) Nishiura, Yasumasa, "Mathematics of the commons", *Science Impact Ltd*, Volume 2020, Number 4, October 2020, pp.9-11(3), DOI: <https://doi.org/10.21820/23987073.2020.4.9>
- 4 2) Edgar Avalos, Kazuto Akagi, Yasumasa Nishiura: "Visible fingerprint of X-ray images of epoxy resins using singular value decomposition of deep learning features", *Computational Materials Science*, Volume 186, January 2021, 109996, <https://doi.org/10.1016/j.comatsci.2020.109996>
- 4 3) Edgar Avalos, Shuangquan Xie, Kazuto Akagi, Yasumasa Nishiura: "Bridging a mesoscopic inhomogeneity to macroscopic performance of amorphous materials in the framework of the phase field modeling", *Physica D: Nonlinear Phenomena*, Vol. 409, 132470, 2020, DOI: <https://doi.org/10.1016/j.physd.2020.132470>

4.2 学術論文 (査読なし)

- 1) Masashi Nakatani, Yasuaki Kobayashi, Kota Ohno, Masaaki Uesaka, Sayako Mogami, Zixia Zhao, Takamichi Sushida, Hiroyuki Kitahata, Masaharu Nagayama. "Temporal coherence of mechanical stimulation modulates tactile form perception." *Nature Communications*. (2020)
- 2) Y. Liu, Numerical schemes for reconstructing profiles of moving sources in (time-fractional)

evolution equations, *数理解析研究所講究録*, 2174 (2021), 73-87.

4.3 総説・解説・評論等

なし

4.4 著書

- 1) 西野 浩史, 「生物の世界観：昆虫の振動・音受容とバイオミメティクス」, *バイオミメティクス・エコミメティクス -持続可能な循環型社会へ導く技術革新のヒント-*, 第 III 編第 4 章 生物の世界観：昆虫の振動・音受容とバイオミメティクス, CMC 出版, 228-239, 2021 年

4.5 特許

該当なし

4.6 講演

a. 招待講演 (国際学会)

- 1) Masaharu Nagayama, "Mathematical modeling of epidermal structure", JSPS Core-to-Core Program "Establishing International Research Network of Mathematical Oncology" (Online), Osaka University (Osaka), 26th-28th, October, 2020,
- 2) Yasumasa Nishiura, Bridging a mesoscopic inhomogeneity to macroscopic performance of amorphous materials in the framework of the phase field modeling, 2020 Tianyuan International Workshop on Modelling and Analysis of Dynamical Systems, Hangzhou Normal University (China) (online), (November, 22nd, 2020)

b. 招待講演 (国内学会)

- 1) 青沼 仁志, "X線マイクロCTを使ったイメージングから紐解く", 第14回 NIBB バイオイメージングフォーラム, 愛知県岡崎市基礎生物学研究所 (web), Japan, 2020 年 11 月 6 日
- 2) 青沼 仁志, "動物の多様な振る舞いの源泉を求めて", 計測自動制御学会・自律分散サマースクール, 東京 (web), Japan, 2020 年 8 月 31 日

c. 一般講演 (国際学会)

- 1) Satoshi Matsunaga, Mamoru Okamoto, Toshikazu Fukushima, Jun-ichi Nakagaya and Masaharu Nagayama, "Mathematical Modeling for Biological Wastewater Treatment", The 21th RIES-HOKUDAI International Symposium "Ma" (Poster

- Presentation), Online, Hokkaido University (Sapporo), December 10th-11th, 2020,
- 2) Yasuaki Kobayashi, Yusuke Yasugahira, Masaharu Nagayama, “Mathematical modeling of plastic deformation of the basement membrane”, The 21st RIES-Hokudai International Symposium, online, December 10, 2020.
 - 3) Y. Liu, “Uniqueness for determining profiles of moving sources in (time-fractional) evolution equations”, The Workshop on Theoretical and Computational Analyses for Inverse Problems, オンライン開催, 2020年12月5日.
 - 4) Y. Liu, “Inverse moving source problems on determining profiles in (time-fractional) evolution equations”, Workshop on Inverse Problems, オンライン開催, 2020年10月25日.
 - 5) Y. Liu, “Uniqueness and numerical schemes for an inverse moving source problem for (time-fractional) evolution equations”, 4th Conference on Numerical Methods for Fractional-Derivative Problems, オンライン開催, 2020年10月22日~24日.
 - 6) Gen Nakamura, Sampling methods for inverse boundary value problem, Workshop on Inverse Problems, Southeast University, China, October 25, 2020
 - 7) Gen Nakamura, Invitation to inverse problems: MRE (interior measurement) and EIT (boundary measurements), Distinguished talk at Indian Institute of Technology Tirupati, India, October 14, 2020
 - 8) Gen Nakamura, An inverse problem for anisotropic elastic equation: Application of the propagation of localized Neumann-Dirchlet map to the vibroseis reflection exploration, 12th International Scientific Conference and Young Scientists School, Theory and Computational Methods for Inverse and Ill-posed Problems, October 6, 2020
 - 9) Gen Nakamura, Sampling methods for inverse boundary value problem, Summer Intensive Seminar organized by School of Mathematics, Shanghai University of Finance and Economics, China, August 5, 2020,
- d. 一般講演 (国内学会)
- 1) 長山 雅晴, 森 篤志, 岡本 守, 体積保存反応拡散系による自己駆動系モデル近似, 日本数学会 2021 年度年会 (オンライン), 慶應義塾大学理工学部 (神奈川県, 横浜市), 2021年3月15日~18日,
 - 2) 長山 雅晴, 佐藤 優祐, 中田 聡, “自励往復運動する自己駆動体に対する数理モデリング”, 日本数学会 2020 年度秋季総合分科会 (オンデマンド), 熊本大学 (熊本県, 熊本市), 2020年9月22日~25日
 - 3) 大野 航太, 安ヶ平 祐介, 北畑 裕之, 熊本 淳一, 夏賀 健, 傳田 光洋, 長山 雅晴, “バリア機能を有する表皮数理モデルとその応用”, 日本応用数理学会 2020 年度年会 (オンライン), 愛媛大学 (愛媛県, 松山市), 2020年9月8日~10日
 - 4) Minsoo Kim, 岡本 守, 安ヶ平 祐介, 中田 聡, 田中 晋平, 小林 康明, 長山 雅晴, “A mathematical model for clustering of oil droplets on a surfactant solution”, 応用数学合同研究集会 (オンライン), 龍谷大学 (滋賀県, 大津市), 2020年12月18日~20日,
 - 5) 大野 航太, 小林 康明, 熊本 淳一, 長山 雅晴, “表皮構造の数理モデルにおける基底膜形状と培養皮膚への応用”, 応用数学合同研究集会 (オンライン), 龍谷大学 (滋賀県, 大津市), 2020年12月18日~20日
 - 6) 小林 康明, 安ヶ平 祐介, 大野 航太, 長山 雅晴, “真皮の塑性変形と形態形成の数理モデル構築”, 日本応用数理学会 2020 年度年会, オンライン, 2020年9月8日~10日
 - 7) 小林 康明, 安ヶ平 祐介, 長山 雅晴, “真皮の塑性変形と形態形成の数理モデル構築”, 2020 年度応用数学合同研究集会 2020, オンライン, 2020年12月18日
 - 8) K. Yasui*, T. Kano, E. M. Standen, H. Aonuma, A. J. Ijspeert and A. Ishiguro : “Towards understanding adaptive motor control mechanisms underlying walking and swimming in centipedes”, The 42nd Annual Meeting of The Japanese Society for Comparative Physiology and Biochemistry, 山形大学, Japan (2020-11)
 - 9) D. Owaki* and H. Aonuma : “Gait recovery with prosthetic legs in the cricket after leg amputation”, The 42nd Annual Meeting of The Japanese Society for Comparative Physiology and Biochemistry, 山形大学, Japan (2020-11)
 - 10) 立石 康介, 渡邊 崇之, 西野 浩史, 水波 誠, 渡邊 英博, 「ワモンゴキブリの嗅覚共受容体 (Orco) の同定と機能解析」, 第 65 回日本応用動物昆虫学会大会, 島根大学松江キャンパス, Japan (2021-03)
 - 11) 谷口 諒*, 西野 浩史, 伊庭 靖弘, 「微小感覚器官の高分解能可視化による化石ゴキブリの生態復元」, 第 170 回日本古生物学会例会, 横浜国立大学, Japan (2021-02)
 - 12) G. Hu, 劉 逸侃, M. Yamamoto, “(時間非整数階) 発展方程式における移動する源泉項の形状決定につ

いて”，2020年度応用数学合同研究集会，オンライン開催，2020年12月18～20日。

- 1 3) D. Jiang, 劉逸侃, D. Wang, “非整数階時間微分をもつ拡散方程式における源泉項の空間成分の数値再構成について”，日本応用数学会 2020年度年会，オンライン開催，2020年9月8日～10日。
- 1 4) 中村 玄，境界値逆問題に対するサンプリング法，日本数学会 2021年度年会（オンライン），慶應義塾大学理工学部（神奈川県，横浜市），2021年3月15日～18日，
- 1 5) 中村 玄，非等方弾性方程式に対する境界値逆問題，日本数学会 2021年度年会（オンライン），慶應義塾大学理工学部（神奈川県，横浜市），2021年3月15日～18日，
- 1 6) 西 慧，西浦 廉政，3種反応拡散方程式でみられるパルス解の分岐構造と遷移ダイナミクス，日本数学会 2021年度春季総合分科会，応用数学分科会，慶應義塾大学矢上キャンパス（オンライン）2021年3月18日
- 1 7) Shuangquan Xie, T. Kolokolnikov, Yasumasa Nishiura, Complex oscillatory motion of multiple spikes for a three-component Schnakenberg model, 日本数学会 2020年度秋季総合分科会：応用数学分科会，熊本大学（Online），2020年9月25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) 大野 航太，小林 康明，熊本 淳一，長山 雅晴，“表皮構造の数理モデルにおける基底膜形状と培養皮膚への応用”，第8回皮膚の会（オンライン），2021年3月6日～7日，
- 2) 小林康明，安ヶ平 祐介，長山雅晴，“真皮形状変形の数理モデリング”，医学研究における数値的方法（オンライン），大阪大学数理データ科学教育研究センター，2021年2月24日，
- 3) 岡本 守，後藤田 剛，長山 雅晴，“粒子反応拡散モデルの数学的取り扱いについて”，応用数学合同研究集会（オンライン），龍谷大学理工学部（滋賀県，大津市），2020年12月18日～20日，
- 4) 松永 哲，岡本 守，福島 寿和，中川 淳一，長山 雅晴，“微生物を用いた汚水処理の数理モデル”，応用数学合同研究集会（オンライン），龍谷大学
- 5) 森 篤志，岡本 守，長山 雅晴，“体積保存反応拡散系による自己駆動モデル近似”，明治非線型数理セミナー・秋の学校（オンライン），明治大学（新宿区），2020年11月22日～24日，
- 6) 松永 哲，岡本 守，長山 雅晴，“微生物を用いた工業排水処理の数理モデル”（ポスター発表），第6回北大・部局横断シンポジウム「生命科学と物質化学の融合を目指して！」（オンライン），2020年10月19日
- 7) 岡本 守，後藤田 剛，長山 雅晴，“On a mathematical treatment of a particle-reaction-

diffusion model”，応用数理研究会，北海道大学電子科学研究所（北海道，札幌市），2020年9月5日

- 8) 松永 哲，岡本 守，長山 雅晴，“数理モデルを用いた工業排水処理プロセスの性能予測について”，応用数理研究会，北海道大学電子科学研究所（北海道，札幌市），2020年9月5日
- 9) 大野 航太，安ヶ平 祐介，小林 康明，長山 雅晴，“表皮数理モデルとその応用”，応用数理研究会，北海道大学電子科学研究所（北海道，札幌市），2020年9月5日
- 1 0) 西浦 廉政，ミクロとマクロの橋渡し—数理的立場からの一考察—，第69回高分子討論会，岩手大学（オンライン）2020年9月16日
- 1 1) 西浦 廉政，フェーズフィールド法の基礎と応用（その1-その3），明治非線型数理セミナー・秋の学校（オンライン）明治大学（新宿区），2020年11月22日～24日
- 1 2) 西浦 廉政，真贋のはざま，第12回数理モデリング研究会 in 京都：数理モデリングの哲学—数理モデルは何のためにあるのか—，京都会場・（オンライン），2020年11月21日

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) 長山 雅晴，日本製鉄株式会社，活性汚泥法モデルの高精度化，2019年度～2021年度
- 2) 長山 雅晴，株式会社資生堂，表皮構造モデルの構築，2015年度～2021年度

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) 長山 雅晴（分担），基盤研究（B），時空間発展する自己駆動体の構築，2020～2023年度
- 2) 小林 康明（代表），基盤研究（C），やわらかい組織の上で増殖する細胞系の連続体モデル構築と解析，2019～2021年度
- 3) 青沼 仁志（分担），挑戦的研究（萌芽），運動への介入から解き明かす闘争行動を引き起こすアンテナフェンシングの構成論的理解，2018～2020年度

- 4) 青沼 仁志 (分担), 基盤研究(S), 昆虫のゾンビ化から紐解く生物の多様な振る舞いの源泉, 2017～2021 年度
- 5) 西野 浩史 (代表) 基盤研究(C), 明瞭分離された2つの嗅覚経路のシグナルフローの意義の解明, 2017～2021 年度
- 6) 西野 浩史 (分担) 基盤研究(C), アリ類における音声コミュニケーションの進化を探る, 2020～2023 年度
- 7) 西野 浩史 (分担) 基盤研究(C), 不完全変態昆虫の成長に伴う性フェロモン受容・処理経路の発達, 2019～2021 年度
- 8) 劉 逸侃 (代表), 若手研究 非整数階拡散-波動方程式とその逆問題の数学解析, 2020～2021 年度
- 9) 西浦 廉政 (代表), 挑戦的研究(開拓), 散逸系複雑ダイナミクスの万能細胞を求めて, 2018 年～2022 年度

b. 大型プロジェクト・受託研究

- 1) 長山 雅晴, JST ムーンショット型研究開発事業, 恒常性の理解と制御による糖尿病および併発疾患の克服, 2020 年度～2022 年度
- 2) 長山 雅晴, JST CREST, 体表多様性を創発する上皮一問充織相互作用の動的制御機構の解明, 2019 年度～2024 年度
- 3) 長山 雅晴, JST CREST, 数理モデリングを基盤とした数理皮膚科学の創成, 2015年度～2021年9月

4.10 受賞

- 1) K. Yasui, T. Kano, E. M. Standen, H. Aonuma, A. J. Ijspeert and A. Ishiguro: 日本比較生理生化学会第42回大会発表論文賞会長賞 “Towards understanding adaptive motor control mechanisms underlying walking and swimming in centipedes” (日本比較生理生化学会) 2020 年 11 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) 小林 康明, 文科省技術政策研究所専門調査委員 (2020.4-2021.3)
- 3) 青沼 仁志, NEDO「分野横断的公募事業」事前書面審査員
- 4) 西野 浩史, 特別研究員等審査会専門委員 (2018.5～2020.3)

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 (2016.6月～)
- 2) 長山 雅晴, 日本数学会 全国区代議員 (2020.3～)
- 3) 長山 雅晴, 日本数学会 応用数学分科代表会員 (2020.4～2021.3)

- 4) 長山 雅晴, 日本数学会奨励研究生選考委員会委員 (2020.10～2021.9)
- 5) 長山 雅晴, 日本学術振興会, 科学研究費委員会専門委員 (2019.12～2020.11)
- 6) 長山 雅晴, 日本数学会応用数学研究奨励賞審査委員会委員 (2020.4～2021.4)
- 7) 青沼 仁志, 日本比較生理生化学会, 評議委員・国際担当理事
- 8) 青沼 仁志, 日本動物学会国際交流委員
- 9) 青沼 仁志, 日本生理学会北海道支部会, 会計監査委員
- 10) 西野 浩史, 日本比較生理生化学会, 編集委員
- 11) 西野 浩史, 日本比較生理生化学会, 評議委員

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)

- 1) 理学部3・4年生, 数理科学A, 長山 雅晴, 2020 年後期
- 2) 全学教育, 線形代数学2, 小林 康明, 2020 年後期
- 3) 全学教育, 線形代数学1, 小林 康明, 2020 年前期
- 4) 理学部3・4年生, 数理科学演習, 小林 康明, 劉 逸侃, 2020 年後期
- 5) 生命科学院, 行動システム制御科学特論, 西野浩史, 2020 年度前期
- 6) 理学院修士1年生, 数学独立探究II, 劉 逸侃, 2020 年度後期
- 7) 全学教育, 微分積分学II, 劉 逸侃, 2020 年度後期
- 8) 理学院修士1年生, 数学独立探究I, 劉 逸侃, 2020 年度前期
- 9) 全学教育, 微分積分学I, 劉 逸侃, 2020 年度前期
- 10) 全学教育, 線形代数学2, 大野 航太, 2020 年後期

f. 北大以外での非常勤講師(対象、講義名、担当者、期間)

- 1) 長山 雅晴, 公開講義(札幌創成高等学校)、国民との科学・技術対話事業「アカデミックファンタジスタ」, 2021 年 3 月 12 日
- 2) 長山 雅晴, 出張講義(札幌北高校), スーパーサイエンスハイスクール, 2020 年 12 月 16 日
- 3) 青沼 仁志, 公開講義(立命館慶祥高校), 国民との科学・技術対話事業「アカデミックファンタジスタ」, 2020 年 10 月 23 日
- 4) 長山 雅晴, 公開講座(神奈川県立産業技術総合研究所「研究者、技術者のための応用数学 ～科学・工学に活かす数理的思考～」, 2020 年 10 月 21 日～23 日(オンライン開催)
- 5) 長山 雅晴, 出張講座(UHB 大学), 2020 年 9 月 29 日
- 6)

g. 新聞・テレビ等の報道

- 1) 青沼 仁志, The Journal of Experimental Biology 2020年11月09日 INSIDE JEBに「Serotonin key for trap-jaw ant aggression」
- 2) 青沼 仁志, NHK News 2020年07月14日 「昆虫最小の羽の折り畳み 仕組み解明「宇宙 開発にも応用可能」」
- 3) 青沼 仁志, EurekAlert AAAS 2020年07月13日 “Design of insect-inspired fans offers wide-ranging applications A new design method for highly compact deployable structures is based on the sophisticated folding of earwig wings”
- 4) 青沼 仁志, 日経サイエンス 2020年10月号 2020年08月27日 「「ハサミムシに収納のヒント」昆虫最小に折り畳める「ハサミムシの翅」の畳む仕組みについて紹介記事が掲載された」
- 5) 青沼 仁志, FNN プライムニュース 2020年07月17日 「昆虫最小に折り畳める「ハサミムシの翅」の仕組みを解明…その秘密は“折り紙”だった。」
- 6) 青沼 仁志, News Atlas (web news) 2020年07月14日 “Earwig wings inspire new folding technology”
- 7) 西野 浩史, 朝日新聞朝刊 2020年03月02日 「コオロギに人間に似た「耳」

h. ポスドク・客員研究員など

- 1) 浪花 啓右 (学術研究員, 科学研究費/基盤研究 (S) 「昆虫のゾンビ化から紐解く生物の多様な振る舞いの源泉」)
- 2) 一本嶋 佐理 (博士研究員, JST/CREST 「数理モデリングを基盤とした数理皮膚科学の創成」)
- 3) 熊本 淳一 (学術研究員, JST/CREST 「数理モデリングを基盤とした数理皮膚科学の創成」)
- 4) 安ヶ平 裕介 (学術研究員, 受託研究/資生堂)
- 5) 松永 哲 (学術研究員, JST/CREST 「数理モデリングを基盤とした数理皮膚科学の創成」)
- 6) 岡本 守 (学術研究員, JST/CREST 「数理モデリングを基盤とした数理皮膚科学の創成」)
- 7) 堂前 愛 (技術補助員, 科学研究費/基盤研究 (C) 「嗅覚並行処理経路の統合様式の解明」)
- 8) 中村 玄 (客員研究員)
- 9) 西浦 廉政 (客員研究員)

i. 修士学位及び博士学位の取得状況

修士学位:2人(総人数を記載)

- 1) 松永 哲, 理学院, 修士, 微生物を用いた汚水処理の数理モデルと定量的予測に向けて
- 2) 森 篤志, 理学院, 修士, 体積保存反応拡散系による時刻どうモデル近似

博士学位 1人(総人数を記載)

- 1) 岡本 守, 理学院, 博士, ある粒子反応拡散系モデルの数学的取り扱いについて

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 寺本央 (東大院、博(学術)、2017.4～2021.3)
助教 水野雄太 (東大院、博(学術)、2019.8～)
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～)

田畑公次 (北大院、博(情報科学)、2017.7～)

Mikhail Tsitsvero (ローマ・ラ・サピエンツァ大、PhD、2019.10～)

Jean-Emmanuel Clement (University of Burgundy、PhD、2021.1～)

Sulimon Sattari (UC Merced、PhD、2021.2～)

博士研究員 Sulimon Sattari (UC Merced、PhD、2017.7～2021.1)

永幡 裕 (北大院、博(生命科学)、2019.10～)

学術研究員 Md. Menhazul Abedin (University of Rajshahi、Master of Science、2020.2～2020.9)

特別研究員 Jean-Emmanuel Clement (University of Burgundy、PhD、2018.11～2020.12)

外国人協力研究員 Md. Motaleb Hossain (北大院、博(理学)、2019.7～)

学 生

博士課程後期

Udoy Sankar Basak (生命科学院 生命融合科学コース)

Abdul Halim Bhuiyan (総合化学院 物質化学コース)

Md. Menhazul Abedin (総合化学院 物質化学コース)

Zannatul Ferdous (生命科学院 ソフトマター専攻)

博士課程前期

宮下 彩季 (総合化学院 物質化学コース)

学部生

浅野 光平 (理学部 数学科)

近藤 僚哉 (理学部 化学科)

田中 綾一 (理学部 化学科)

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、マイクロレベルでの“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る。その特異性が生命現象の豊かさの源泉となっている。生体機能とは「外界からの刺激に対する応答として始まる一連の構造変化とそれに伴う化学反応」であり、階層を越えた「状態変化」のつながりの産物といえる。そのような生命システムを理解するためのアプローチには、大別して、背後に存在する数理構造を提唱するトップダウン的構成論的手法と微視的な立場からマクロな現象の再現を試みるボトムアップ的還

元論的手法が存在する。前者は大胆な仮定や粗視化のために自然と乖離したモデルに陥る可能性が存在する一方で、後者は個々の微視的事象を枚挙するだけでシステム全体を捉えることは困難である。

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

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

この他、単一分子分光を用いた生体計測を通して、階層を越えた構造と機能の相関を探っている。具体的には、700～1400 nmの近赤外波長領域の光計測技術を用いた非侵襲計測により、生きたままの生体組織の定量的生体計測技術を確立する。それにより、単一分子レベルから個体レベルまでの階層をまたいだ総合的理解を目指している。

2. 研究成果

(1) イジング計算機を用いた化学反応経路解析法の開発

化学反応経路は、化学反応の重複を許した組合せ、あるいは図1のような化学反応ネットワーク上の各化学反応への非負整数値の割り当て(フロー)として定式化できる。図1では、○が化学種、□が化学反応を表しており、各反応のフローは●に白抜き数字で示してある。有機合成経路最適化や代謝反応機構解析に現れる化学反応経路を求める問題は、問題サイズが大きくなると組合せ爆発のために急激に計算困難になる組合せ最適化問題(NP完全問題)に帰着される。そのため、数千・数万反応からなる大規模化学反応ネットワークの解析の実用化のためには、計算の工夫が必要となる。そこで我々は、組合せ最適化問題に特化し

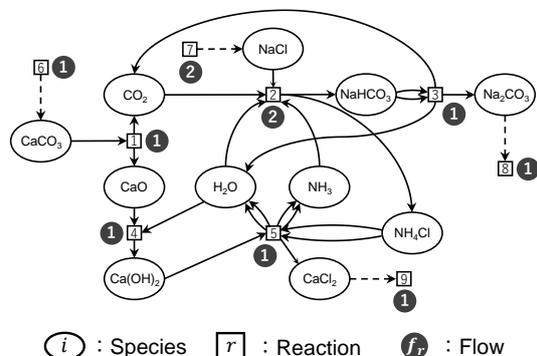


図1 アンモニアソーダ法の化学反応経路。化学反応を適切に組み合わせて実行することで、有用な化学変換を実現している。

た新概念コンピュータであるイジング計算機を化学反応経路解析に応用することを検討している。昨年度の成果である化学反応経路解析問題のイジング定式化に基づき、本年度は実際のイジング計算機（量子アニーリングやシミュレーテッド・アニーリングなど）を利用した化学反応経路解析プログラムを実装した。また、イジング計算機を利用する際に調節が必要なパラメータの自動調節機能の試験実装も行った。

(2) ラマン分光イメージングの背景光除去法の開発

ラマン顕微画像中のピクセルのうち最も強度が低いピクセルのグループを分離することで、対象サンプルの外部（基質や光学系など）に由来する背景スペクトルを推定する。背景ピクセルの分離は、3-混合ガウスモデル、k-平均法、自己組織化マップなどの、5つの異なる方法を用いてテストされた。すべての背景分離法は、信号-背景比の広範囲にわたって、スペクトルをよく再現した。そこで、2つのラマン測定装置と11の実験インスタンスから得られた32枚の *in vitro*

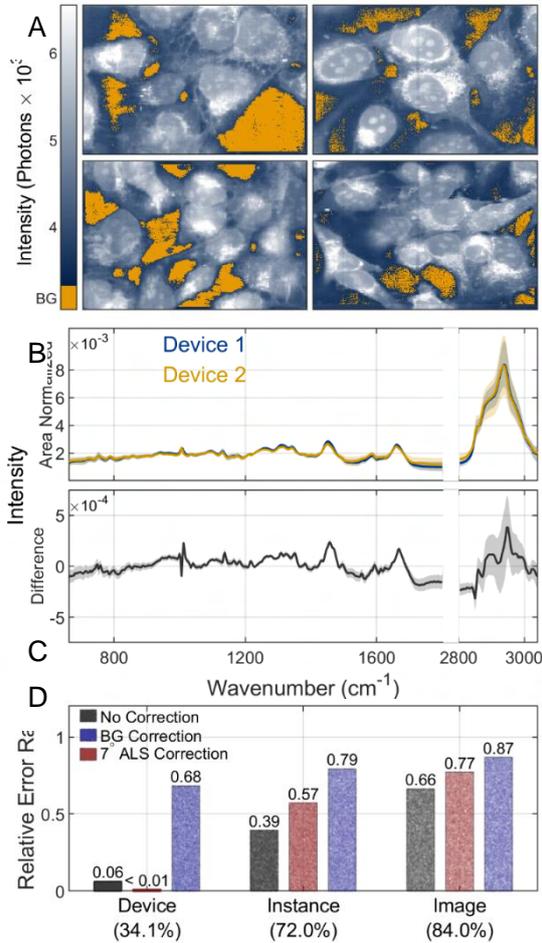


図 2. 実験で得られたラマン画像における外来性背景光の推定。A) 背景ピクセルの分離。B) 測定装置ごとの外来性背景光補正後の平均スペクトル。C) 測定装置ごとの平均スペクトル(B)の差。D) k-近傍分類の結果。背景光補正により測定装置、実験インスタンス、および画像の識別率が低下している。

Nthy-0ri 3-1 培養細胞のラマン画像に対して外来性背景光の推定を行った。スペクトルの分類にk近傍法を用いた場合、本手法による背景光補正後のスペクトルは、よく用いられているベースライン補正法による補正スペクトルに比べて、測定装置の識別は34%、実験インスタンスの識別は19%、そして画像の識別は9%、識別率が減少した。次に、よく用いられている4つのベースライン補正法と背景光推定を組み合わせることでテストした。ここで、各ベースライン補正法には調節可能なパラメータがあるが、これらの値もある範囲で変化させてテストした。すべてのベースライン補正法とパラメータ値において、背景光推定を組み合わせさせた場合はそうでない場合と比べて、測定装置、実験インスタンス、および画像の識別率の減少がみられた。これは、使用するベースライン補正法に関係なく背景光推定が有益であることを示している。

(3) 分類バンディット問題のアルゴリズムの研究

多腕バンディット問題とは、複数の腕と呼ばれる選択肢の中から1つ選択し、それに対する報酬を得ることを繰り返しながら逐次的に良い腕を探す問題である。近年良い腕を探すだけでなく、様々な識別問題や分類問題にも応用されている。K本の腕が与えられ、平均報酬が与えられた閾値よりも高いか低いかで各腕はpositiveまたはnegativeに識別するとし、Bad armとgood armは、一定の識別率でそれぞれpositive, negativeと診断されるといことがわかっているとす。本研究では、Bad armの個数が N_1 個以下であるか、 N_2 個($N_2 > N_1$)以上であるかをできるだけ少ないサンプル数で判断するという問題を扱う(分類バンディット)。 N_1 と N_2 の二つの閾値を一つの閾値だけで判別できる問題へとまず還元したのち、その問題を解く、ThompsonSampling-CBというアルゴリズムを提案した。人工データを用いた実験を行い、他の手法との比較実験を行った結果を図3に示した。腕の個数 $K=20$ でpositiveと判定される腕が10個であるときに、 $N_2 (= N_1 + 5)$ を変えながら実験を行ったときの各アルゴリズムの停止時刻を示して、低いほどアルゴリズムの性能が良い。ThompsonSampling-CBがSuccessiveElimination-CBよりも常によく、また、UCB-CBとほぼ同等かいくつかの問題のインスタンスにおいては圧倒的にUCB-CBよりも良いことがわかる。

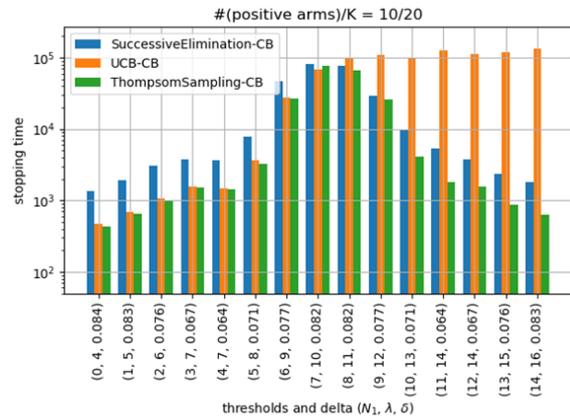


図 3. 各アルゴリズムの停止時間の比較

この成果は、PAKDD-2021 MLMEIN に投稿し、受理された (K. Tabata, A. Nakamura and T. Komatsuzaki, “Classification Bandits: Classification Using Expected Rewards as Imperfect Discriminators”, PAKDD Workshops MLMEIN, India.

創薬において多数の候補になる化合物から薬効性のある化合物を効率的に選び出すことは極めて重要である。そのような薬剤のスクリーニングに関する問題に対し、多腕バンディット (Multi-armed bandit; MAB) と呼ばれる機械学習法を適用しその有効性を確かめることを目的とした。特に今年度は癌幹細胞に対するモデル評価系に対して、MAB 中の線形バンディット法あるいは文脈バンディット法を採用し、多数の薬剤ライブラリより有効薬剤を選択する方法に関して研究した。まず、これらを用いるための前段階として薬剤ライブラリより薬剤の種類、分子構造などに基づく特徴あるいは表現と呼ばれる情報を取り出した。さらに実験で得られる薬剤の有効性に対してこれらの情報との相関関係を解析した。今後は、これらの前段階の結果を用い、実際に線形バンディット法を採用した予測を行い、その有効性を確かめる予定である。

(4) ガウス過程と計算化学を融合した、運動の先鋭化を考慮に入れた NMR シフトの計算手法の開拓

動的な巨大分子の NMR スペクトルを予測することは、計算量的に極めて厳しい。我々は図 4 に示す 240 原子からなる分子の ^1H および ^{13}C NMR スペクトルを対象に、計算化学と情報科学に立脚した算定手法を開発した。この分子は極めて柔軟性にとみ、そのためこの分子のプロトン NMR および炭素 NMR スペクトルを分子動力学軌道の各スナップショットに対して計算するのはコストがかかる。そこで、我々は動的分子の平均的磁気的性質の計算の加速を可能にする機械学習アルゴリズムを設計した。J. Pirollo と Y. Hijikata と共同し、結び目分子系の分子動力学トラジェクトリのいくつかのスナップショットに対し、DFT B3LYP レベルの NMR データ計算を行い、これに基づいてガウス過程を訓練した。まず、遮蔽定数の予測と不確かさの推定を、RBF カーネルや Matern カーネル、関連度自動決定を用いたパラメトリックカーネル、そしてディープカーネルなど、いくつかのカーネルに対して実行した。次に、結び目分子系の動力学全体に対する予測に基づき、分子の基本的統計量 (各スピンの受ける平均遮蔽、分子の相関および緩和時間) を計算し、ディー

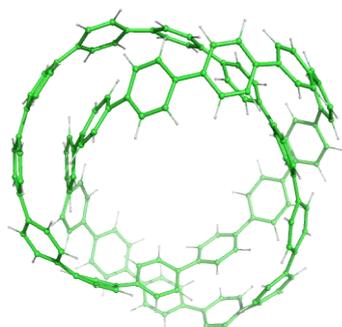


図 4 : 24-benzene ring knot system

プカーネルに基づくニューラルネットワークを構築した。これは遮蔽定数の予測を向上させると同時に各スピンの磁気的環境の可視化を可能にするもので、既存手法では達成できない手法として期待されている。

(5) シンギュラリティ生物学：情報流の形態

James と Crutchfield は、移動エントロピー (TE) と時間遅延相互情報量が固有 (intrinsic)、共有 (shared)、および相乗 (synergistic) 情報量に分解でき、これらはより正確で説明的な情報流の表現であることを指摘した (arXiv, 2018)。彼らの研究では、単純な二値モデルのみに焦点が当てられ、実験データを対象にした場合に、なぜある情報流の形態が他の形態に比べてより見られるのかについて詳細な説明はなされていない。我々の研究では、リーダー-フォロワー関係やメモリー効果をチューニングできる、いくつかのバージョンの Vicsek モデルを導入した。結果として、異なる情報流の形態は意味のある解釈をもつという詳細な証拠が得られた (図 5)。驚くべきことに、情報流の形態は、リーダーおよびフォロワーの運動軌跡のペアのみを用いて、フォロワー同士の間関係を解読できる。

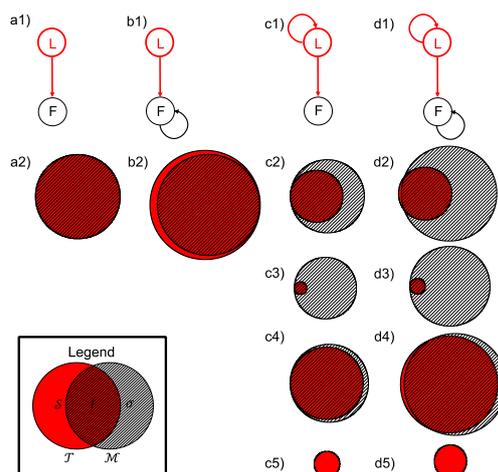


図 5. 異なる相互作用型に対する情報流形態のベン図

(6) リーダー・フォロワーの集団運動の軌跡から背後の相互作用領域、従属関係を推定する手法の開発

鳥や魚、細胞など、局所的に相互作用する粒子などの標本点で構成されるシステムは、全体として時空間的な集団行動を自発的に行う。標本点間の相互作用は、標本点の時空間的な協調の重要な特徴である。ほとんどの場合、2つの標本点は無限の距離を超えて通信することはできないので、相互作用は本質的に局所的なものであると考えるのが自然である。したがって、相互作用半径は、エージェント間の相互作用ネットワークを定義するものとして、集団行動分析の分野において重要な量である。

集団運動を定性的に理解するために、様々なモデルが提案されている。その中でも最も研究されているのが Vicsek model (VM) であり、相互作用領域内に位置するエージェントの平均的な向きに対して、その域内の

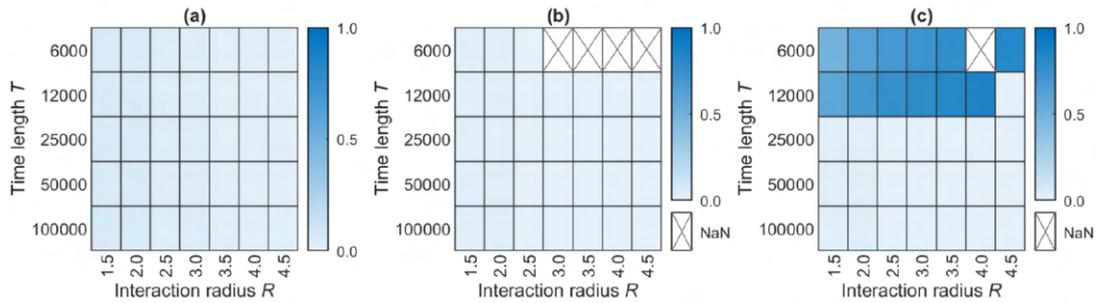


図6 $\delta = 1 \times 10^{-4}$ 、 $\{M\} = \{M|2 \leq M \leq 30\}$ のもとで (a) $\eta_0 = 0.2\pi$ 、(b) $\eta_0 = 1.2\pi$ 、(c) $\eta_0 = 1.8\pi$ での凸性スコアを用いた相互作用ドメインを特定する際の相対誤差。クロスマークのボックス「NaN」は、相互作用半径を特定できないことを意味する。

エージェントが整列するという単純なルールに基づいている。このモデルは、リーダーとフォロワーの分類にも用いられている。VMでは、移動中のエージェントは、距離R以内のエージェントとのみ相互作用し、相互作用領域は円とみなされる。本論文では、多粒子系におけるトラジェクトリから、複合エージェント間の基本的な相互作用領域や距離を推定する情報理論的な手法を提案する。修正 VM において、最適な相互作用領域を特定することで、距離に関係なくすべてのペアに対して TE を計算した場合に比べて、リーダーとフォロワーの分類が大幅に改善されることを示した。実際には、動物、細胞、鳥などのグループの相互作用領域を推測することはできない。トラジェクトリの統計情報からそれを推測するために、「カットオフ距離」 λ が導入される。我々は、カットオフ距離の関数としての平均 TE の微分が、実際の相互作用半径の近くで最小となることを示し、このスキームが集団で動くエージェントの相互作用領域を捉えることができることを示した。また、非線形な観測量としての TE は、相互作用領域の特定において相互相関 (CC) よりも優れていることを示した。しかし、上記の方式は、「観測時間」が比較的短い場合、非常に高い「相対誤差」を持つことがわかった。そこで、代替案として「凸性スコア」方式を提案したところ、観測時間が短い場合でも、相互作用領域の識別に非常に有効であることがわかった (図6)。

(7) 細胞性粘菌の細胞集団移動の解析

細胞性粘菌 (*Dictyostelium Discoideum*, DD) コロニーは、自律的ステージおよび集団のステージの両方を示し、単細胞生命から多細胞体への遷移を目の前で見ることができる。細胞運動とサイクリック AMP 活性の両方をプローブする蛍光イメージを用いて、DD コロニーのライフサイクルの初期ステージにわたって、化学的および運動的な集団挙動の発達を解析した。DD 細胞は cyclic-AMP (cAMP) と呼ばれる化学誘引物質を用いて相互のやり取りを行っている。細胞が飢餓状態になったときに、他の細胞に対して cAMP のスパイクを放出することで信号を送ると、その近くの細胞は cAMP 勾配に向かって移動し、さらに cAMP スパイクを追加で放出する。その結果、フィードバック効果が得られ、螺旋状の波の cAMP のパターンが観測される。

cAMP の波の動きが細胞の速度に関してどのような効果をもたらしているかを定量化するのに PIV (Particle Image Velocimetry, 粒子画像流速測定法)

と DD 細胞の蛍光画像のウェーブレット解析を用いた。DD 細胞の平均蛍光強度の時系列データに対しウェーブレット変換を行うと、飢餓状態から約5時間後に明確な位相が確認された。二つの周波数帯において強いピークが確認でき、低い周波数帯のピークがまず現れ、それに少し遅れて高い周波数帯のピークが現れた。

飢餓状態後すぐは細胞の移動速度は遅いが、その後速くなりランダムになるという興味深い現象が確認された (2~5.5時間後では、細胞の移動速度 (u) が大きく、各細胞の周辺細胞の平均単位移動ベクトルのノルム (v_a) は小さくなっている)。最終的に約5.5時間後には位相に応じて u は異なる値をとり始め、 v_a は大きくなり、 u と v_a は波のピークでは大きく、 $\cos \theta$ (θ は PIV ベクトルとぼかした画像の勾配との間の角度である) がすぐに正から負になる (図7)。波が通過するたびに、速度と細胞同士のコヒーレンスが大きくなり、波が通過したあとすぐにランダム化が見られ、細胞の動きも遅くなることがわかった。DD細胞の速度ベクトルを評価するためにPIVのようなオプティカルフロー制約を使った。オプティカルフロー制約は速度を決めるためにイメージ間の強度勾配に沿った強度の変化を使う。最初、画像の強度はぼやけていて画像の大きな領域に情報が広がっている。強度の変化は、 $\frac{\Delta I}{\Delta t} = \frac{I(t+\Delta t) - I(t)}{\Delta t} = -\vec{v} \cdot \nabla I$ と書くことができる。画像の小領域の速度は時系列で隣接した画像のペアから強度と強度勾配を計算し、最小二乗法によって決定した。オプティカルフローはそれほど一般的ではないが、比較的単純な実装でもPIVを凌駕する結果が得られた。

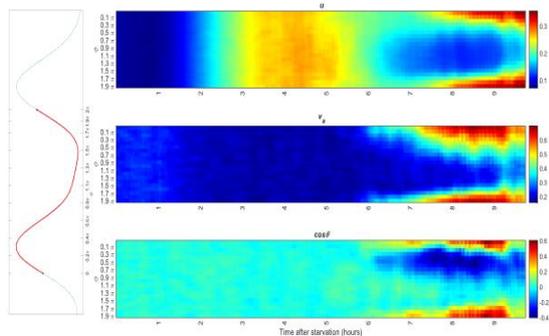


図7. 細胞性粘菌のオイラー速度場(上段)、速度場の協働性指標(中段)、cAMPのスパイラル波と速度場の配向(下段)

(8) ラマン分光画像の背景・前景領域の推定

生細胞サンプルのラマン画像は3種類の個別の領域に分けることができる。一つ目は細胞内部領域であり、この領域は強いラマンスペクトラムを示す。二つ目は細胞外部領域である。この領域は重要な化学成分を含んでいるが、ラマンのシグナルはたいていとても弱い。三つめは細胞のない領域で、背景領域と呼ぶ(図

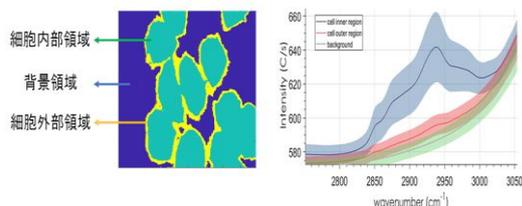


図 8. a) 生細胞のラマン画像は3つの個別の領域(細胞内部領域、細胞外部領域、背景領域)に特徴づけられる。b) 三つの領域の典型的なラマンスペクトラム。

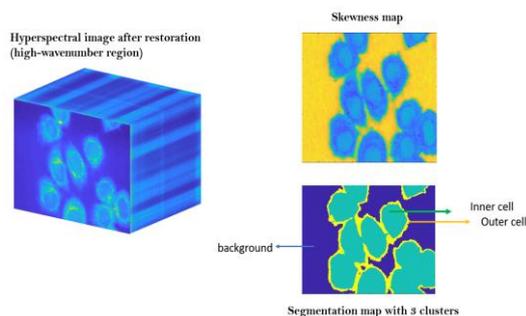


図 9. 実データに適用した新しい分割手法。

8). 本研究での目的は、ラマン画像から細胞のスペクトラムだけを使うために、できるだけ正確にこれらの三つの領域への分割を行うことである。ラマンデータには領域分割のパフォーマンスを低下させる強いノイズが含まれていることが知られており、ラマンの画像を復元するために、異なるタイプのノイズの除去を行うため空間方向とスペクトラム方向の両方の情報を利用した enhanced 3D total variation という新しいノイズ除去手法を用いた。この手法は SVD ノイズ除去などの従来法と比較して、データの構造をはるかに考慮しており、信号の復元が向上する。ラマン信号が復元された後は、高波数帯における skewness map の

推定を行う。この skewness map により強度の低い細胞領域と背景領域の差が強まる。最後に、3つのクラスターへの分割を行う k-medoid アルゴリズムを skewness map に対して実行し、ラマン画像を三つの固有領域へと適切に分割する(図9)。

(9) 化学反応ネットワークの時間解像度における粗視化の数理

数理的に扱える分子ダイナミクスと実験化学者のいう化学反応の間には、大きな隔りがある。前者がポテンシャルエネルギー面上のサドルを超えのダイナミクスであるのに対し、後者はそうした細かな分子構造や結合の変化を経巡った後に辿り着く平衡状態や乖離を反応として取り扱う。我々は、量子化学計算で得たポテンシャルエネルギー面上のサドル・ウェルのネットワークから、化学反応ネットワークを抽出し、それが観測する時間解像度に応じてどのように阻止化されるのかを提示した。具体的には、反応速度式を速度係数行列の適切な不変部分空間に射影しその空間での速度式を得る理論を lumping 理論に基づき構築した。加えて、与えられた時間解像度に対してどのように粗視化されるのかを示す階層図(図10)を提示した。

(10) 畳み込みニューラルネットワークを用いたラマン画像情報解析

腫瘍診断において、正常細胞からガン細胞を区別することは重要である。特に本研究で対象としている、甲状腺濾胞腺ガンは形態的に正常細胞と区別するのは難しく、新しい診断手法が求められている。ラマンスペクトルは細胞の内部情報を反映しうる指標として期待されるが、ラマンスペクトルは強度が弱く数々のアーティファクトを含むため、それを指標とし用いるためには新しいデータ分析のアルゴリズムが必要である。ラマンスペクトル画像から細胞種を分別する手段として深層学習を適用しその有用性について検討した。今年度は、画像の各点でのラマンスペクトルから正常とガン細胞を予測するために、畳み込みニューラルネットワーク(Convolutional Neural Network; CNN)とこれまで広く用いられてきた機械学習の手法(MLCs)と比較した。まず、データに含まれるノイズやバックグラウンド等の影響を軽減するために、例えばノイズ除去などのいくつかの前処理を行った。

MLCs では、通常、さらに PCA あるいは UMAP(uniform manifold approximation) という手法を

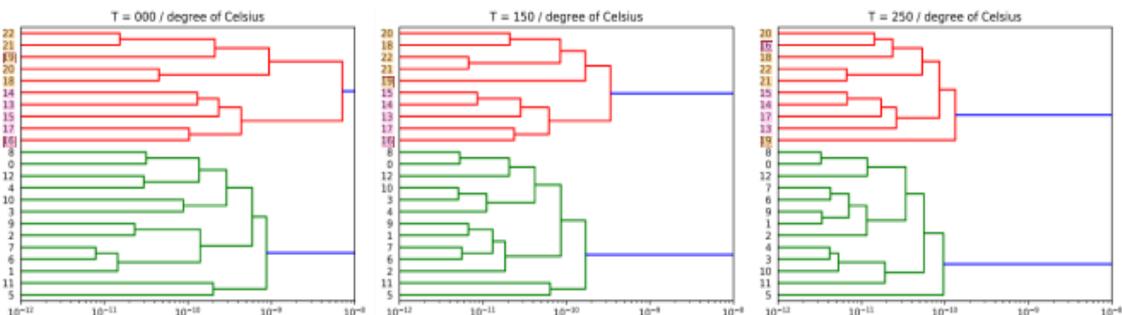


図 10 アリルビニルエーテルのクライゼン転位反応の解析結果1。各温度(各図)における時間解像度(横軸)に対する階層図

用い、もとのデータの次元数を減らす処理を行う(図 11)。しかし、MLCs では、前処理などに依存し結果が変わることがわかった。一方、CNN においては、繰り返すに依りて正答率が極めて速く 100% 付近に近づくとともに誤答率はほぼ 0 に近づく。さらに、データの前処理を行わないものに CNN を適用した場合でも、前処理をしたものより繰り返すによる近づき方は遅くなるが、図 12 に示したように最終的には正答率は 100% に近づく。したがって、CNN は、MLCs と比べ、Raman スペクトルから細胞種の分別に有効であることが示された。この結果から、CNN は他のスペクトルデータなどにも広く適用可能であると示唆された。

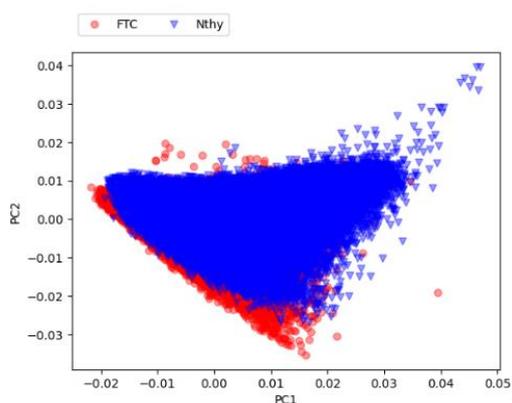


図 11 PCA の第一成分(PC1)と第二成分(PC2)で特徴付けられた細胞群(赤:FTC, 青 Nthy)

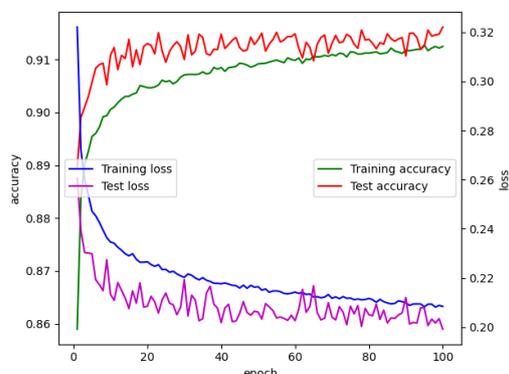


図 12 前処理を施さないデータに対する CNN のパフォーマンス評価

(11) 位相画像に依拠するガン幹細胞の形態解析

ガン組織は、僅かな数のガン幹細胞(CSC; Cancer Stem Cell)、ガン前駆細胞、そして大半を占める分化した幹細胞以外の細胞からなる不均一な細胞の集まりである。特に、CSCs は治療耐性あるいは再発に関与するため、CSCs を標的とした治療はガン撲滅のために必須である。これまでの多くのガン治療薬は、大部分を占める CSCs 以外の細胞を標的としたものであり、CSCs には有効でない。そのために、CSCs を標的とした薬物の開発あるいはそのための CSCs の特徴の分析は危急の課題である。その中でも CSCs とその周辺の微小領域の環境や他の細胞との相互作用の解析は重

要である。本研究では、滑膜肉腫細胞(C2C12 SS18-

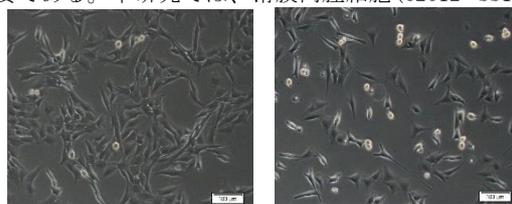


図 13 C2C12 SS18-SSX1 細胞の 2 種のハイドロゲル上での培養(左 PS ゲル、右 PAMPS ゲル)による形態の違い。



図 14 PAMPS ゲル上で 24 時間培養した細胞の形態と SOX2 発現量の相関例。左 2 図 高発現群、右 2 図 低発現群

SSX1) が異なるハイドロゲルを用いた培養環境において異なる形態を取ることを見つけ(図 13)、その形態の違いを数的に分類した。

形態の違いを画像から分析するため、最初に antiSOX2 抗体による免疫染色により、幹細胞のマーカとして知られる SOX2 の発現量を調べた。さらに位相画像から細胞の形態を区別して取り出し、SOX2 発現量の違いとの相関を調べた(図 14)。この画像から、次に、細胞の形態の特徴量として、面積、偏心率、周長、真円度、湾曲度の 5 つを算出し、それを用いて最も単純な教師なしクラスタリング手法である主成分分析(PCA)を用いて、分布を調べた(図 15)。図では SOX2 の発現量により幹細胞と分化細胞を区別した。それぞれの細胞群は主成分空間上で異なる分布を示していることから、これらの形態の特徴量により細胞群を区別することが可能であることを示唆する。

そこで、特徴量から一般化線形回帰モデルにより細胞群を区別することを試みた。その結果、81.7% の推定精度を得た。これらの結果は、PAMPS ゲル上で SOX2 の発現量と形態に強い相関があることを示し、すなわち

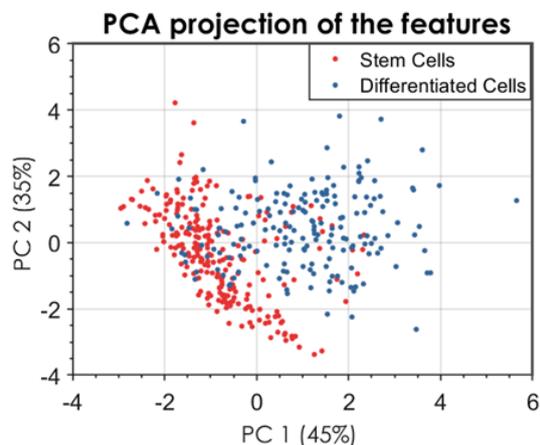


図 15 特徴量の主成分分析による細胞群のマッピング(PAMPS ゲル)

周りの環境との相互作用の違いを示していることになると考えられる。今後は、さらに細胞の生化学的性質を反映すると考えられるラマンスペクトルなども組み合わせ、細胞種の違いとの相関などを解析したい。

(12) ラマン分光イメージングによる化学的空間不均一性の情報解析

非アルコール性脂肪性肝疾患 (NAFLD) は、飲酒歴なしに脂肪の蓄積を肝細胞に認める病態である。さらに肝硬変などに悪化する非アルコール性脂肪肝炎 (NASH) と非アルコール性単純脂肪肝 (NAFL) に分類される。従来の NASH と NAFL の判別方法は形態学的特徴に基づき、専門家の主観を含んだ診断である。当研究室では生化学的情報から NASH と NAFL を判別するために、高い空間分解能で化学種の分布を観察できるラマン顕微鏡画像の解析法を研究してきた。NAFLD の疾患モデルラットの肝組織を撮影したラマン分光画像に対し、情報理論に基づくファジークラスタリングを用いて分類を行った。形態学的特徴を現す前に NASH に速やかに移行する NAFL と緩やかに移行する NAFL を識別することが明らかにされている。一方で画像中でのスペクトルの位置情報を考慮していないので、本研究では NAFLD のラマン分光画像について画像や組織全体のみならず、より細部の化学種の空間分布の情報を用いて病態への新たな知見を得ることを目標とした。

より高い空間分解能でファジークラスタリング法を行った。局所的な空間情報を得るために、画像中の各ピクセルにおけるスペクトルと周辺のピクセルにおけるスペクトルとの類似性を数値的に求めた。この値を局所的な化学種の不均一性を評価する値として各病態や上記のクラスタリングとの関係性を調べた。病態の悪化に付随して不均一性が小さくなることを見出した。また、各ピクセルの局所的な不均一性の特徴を調べるために新たなファジークラスタリング法であるインフォメーションボトルネック法を用いた。この手法は新しい変数 ν を設定し、データを新しい空間上でクラスタリングを行う。各データはそれぞれの変数 ν への類似度を条件付き確率で表す。残す情報の大きさと圧縮する情報の大きさとのトレードオフの関係をパラメータによって調節できる。また、クラスタリングの結果は各データの各クラスターへの類似度を条件付き確率で表す。このことにより似たデータが全く異なるクラスターに分類される可能性はなく、光子の揺らぎ等の誤差を含んだデータもクラスタリングが可能になる。

(13) 部分 Kabsch アルゴリズムと主成分分析を用いたエネルギー地形の可視化による非統計的化学反应に関する研究

一般に化学反応の選択性は遷移状態理論で説明できると考えられているが、それでは説明のつかない反応も多く見つかっている。本研究ではその一つである Bicyclo[3, 2, 0]hept-2-ene から norbornene への反応を取り扱った。この反応における立体選択性は熱的な [1, 3] シグマトロピー転移反応によって説明されると考えられていたが、温度を上げることで選択性が上がるという異常な温度依存性を示す。先の研究において、ここで動的な要因が関与していることが示唆されており本研究は、動力学的な考察を行うた

め少数の次元に削減したエネルギー地形の可視化を目的とした。AFIR 法により探索した 2 種の IRC 経路に沿った構造について、主成分分析を行う前にはできる限り分子の座標を揃えておく必要があるが、分子全体の位置を平均的に合わせるのではなく、動きの少ない五員環部分だけを揃えることで反応に関わる座標を効果的に取り出すことができた。さらに、IRC 上の構造をできるだけ少数の次元で近似するために、主成分において上から 4 次元以降の値を、近傍の構造からガウス重みをとって近似した。これによって得られた近似的な構造は、定性的な反応過程における分子の動きをかなりよい精度で近似するだけでなく、定量的にエネルギーも再現することがわかった。本研究によって、化学反応を少数次元で近似する一般的な手法の一つを提案することができたと考えている。

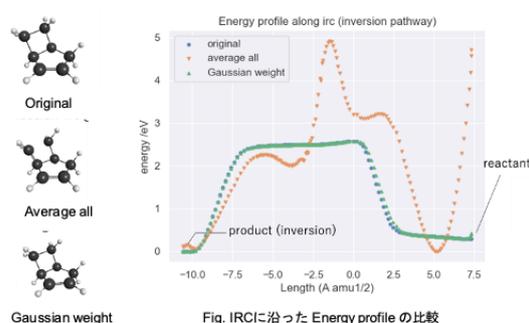


図 16 次元縮約されたモデルハミルトニアン
のエネルギー地形と分子構造

(14) 時間分解法を用いた、蛍光ターゲットの位置形状推定に関する検討

生体組織の内部の病変部の高感度検出法では、放射性プローブを用いた手法が一般的であるが被曝の問題などから蛍光プローブなどに置き換えることが望ましい。しかし、光学的手法は、生体組織の強い散乱により、深部にある蛍光プローブの検出や位置形状の特定は極めて難しい。このような強い散乱の中で拡散する蛍光からその蛍光体の位置や形状を特定する手法は拡散蛍光トモグラフィ (FDOT) と呼び、多くの研究が行われているが、外乱に弱く確立した手法はない。昨年度までは、蛍光体の形状を直方体にするにより、確定するべきパラメータ数を減らし安定的に推定する方法を研究したが、本年度はデータにおいてどのような特徴量を使うのが良いかを検討するために、光拡散方程式の解に関しての性質を議論した。

生体組織での光伝搬は拡散方程式が良い近似となる。特に本研究では、時間領域の応答を利用し失われた空間情報を時間領域から補完する時間領域の FDOT について考える。その時間応答関数のどの領域を用いるのが再構成に良いのかを議論するために時間応答関数そのものの性質を考える。実験的には、最もノイズが少なく安定的にデータが得られる応答関数のピーク付近の計測が有利であるため、ピークを持つターゲットの情報を解析した。

形状が全体の空間に比べ十分小さく、また表面から深い位置にある場合を考えると、蛍光を発生する点とし

て蛍光体が近似される。この場合、蛍光の時間応答関数は、励起光がその点までに至る時間応答と、その点から発した蛍光が検出点に至るまでの時間応答の2つの関数の畳み込みで与えられる。この関数は境界面での屈折率差を無視し、また励起光の入射位置と検出位置の midpoint の直下に蛍光体を置くとした場合、畳み込みを実行することができた。さらに蛍光体の位置が中点直下からずれた場合についての近似式を求めた。その結果、時間応答関数のピークの時間が入射点あるいは検出点から蛍光体までの距離の2乗の和と関数として与えられることが導かれた。

このことから、ピーク時間の算出により近似的に蛍光体までの距離を決めることができ、画像を再構成する際の初期値として用いることができると予想される。今後は、実際に直方体などの形状を仮定した蛍光体位置推定に適用し、実際の実験データにおいてより安定的に位置推定を可能とするアルゴリズムを構築する。

3. 今後の研究の展望

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

一方、近赤外波長域を用いた生体組織レベルでの定量的計測法の確立を目指し、それを用いた生物システムの階層をまたいだ計測とその医学生物学応用を進めていく予定である。またそれにとどまらず幅広い応用も進めて行く。

4. 資料

4.1 学術論文(査読あり)

- 1) U. S. Basak, S. Sattari, K. Horikawa and T. Komatsuzaki: "An information-theoretic approach to infer the underlying interaction domain among elements from

finite length trajectories in a noisy environment", J. Chem. Phys., 154: 034901-1-034901-12 (2021)

- 2) Y. Sugie, Y. Yoshida, N. Mertig, T. Takemoto, H. Teramoto, A. Nakamura, I. Takigawa, S. Minato, M. Yamaoka and T. Komatsuzaki: "Minor-embedding heuristics for large-scale annealing processors with sparse hardware graphs of up to 102,400 nodes", Soft Computing 25, pages1731-1749 (2021)
- 3) B. S. Udo, S. Sattari, K. Horikawa and T. Komatsuzaki: "Inferring domain of interactions among particles from ensemble of trajectories", Phys. Rev. E, 102(1): 012404-1-012404-9 (2020)
- 4) N. Shimamoto, M. Toda, S. Nara, T. Komatsuzaki, K. Kamagata, T. Kinebuchi and J. Tomizawa: "Dependence of DNA length on binding affinity between TrpR and trpO of DNA", Scientific Reports, 10: 15624-1-15624-9 (2020)
- 5) B. S. Udo, S. Sattari, K. Horikawa and T. Komatsuzaki: "Erratum: Inferring domain of interactions among particles from ensemble of trajectories", Physical Review E, 102(124040): 069902-1-069902-3 (2020)
- 6) J. Liu, M. Machida, G. Nakamura, G. Nishimura and C. Sun: "On fluorescence imaging: diffusion equation model and recovery of absorption coefficient of fluorophores", Science China Mathematics DOI:10.1007/s11425-020-1731-y, (2020).

4.2 学術論文(査読なし)

- 1) Y. Mizuno, T. Komatsuzaki, "A Note on Enumeration by Fair Sampling", arXiv <https://arxiv.org/abs/2104.01941> (2021)

4.3 総説・解説・評論等

- 7) T. Aizawa, M. Demura, K. Gohara, H. Haga, K. Ishimori, M. Kinjo, T. Komatsuzaki, K. Maenaka and M. Yao: "Biophysical Research in Hokkaido University, Japan", Biophysical Reviews, 12(2): 233-236 (2020)
- 8) M. Arai, T. Komatsuzaki and H. Nakamura: "Editorial", Biophysics and Physicobiology, 17: 155 (2020)

4.5 特許

- 1) 小松崎 民樹, テイラー ジェームズ ニコラス, 原田 義規, 岡嶋 亮, 田中 秀央, 伊藤 義人, 藤田 克昌, 熊本 康昭, N A S H 予測装置及び N A S H 予測方法特願2021-041383

4.6 講演

a. 招待講演(国際学会)

- 1) T. Komatsuzaki*: "Geometrical aspect of chemical reaction dynamics in thermally fluctuating environments and Future

Directions”, Chaos Indicators, Phase Space and Chemical Reaction Dynamics, University of Bristol (オンライン), United Kingdom of Great Britain and Northern Ireland (2020-05)

b. 一般講演 (国際学会)

- 1) C. Sun, G. Nishimura*, G. Nakamura, M. Machida, Y. Jiang, and J. Liu: “Time-domain Fluorescence Diffuse Optical Tomography using a Cuboid”, Biophotonics Congress: Biomedical Optics 2020, オンライン, (2020-04).
- 2) M. M. Hossain*, S. Sattari, U. S. Basak, K. Horikawa and T. Komatsuzaki: “Vector analysis of amoeba motion response to a cyclic-AMP wave”, The 21st RIES-HOKUDAI International Symposium, 札幌 (オンライン), Japan (2020-12)
- 3) M. M. Abedin*, K. Tabata, J. Clement, M. Tsuda, S. Tanaka and T. Komatsuzaki: “Application of Linear Bandit in Drug Screening Example”, The 21st RIES-HOKUDAI International Symposium, 札幌 (オンライン), Japan (2020-12)
- 4) J. Clement*, K. Mochizuki, K. Fujita and T. Komatsuzaki: “Raman Imaging for Exploring Cancer Metabolism”, The 21st RIES-HOKUDAI International Symposium, 札幌 (オンライン), Japan (2020-12)
- 5) Kondo Ryoya*, ジェームス ニコラス テイラー, Clement Jean-Emmanuel, 水野 雄太, Fujita Katsumasa, Harada Yoshinori, 小松崎 民樹: 「Classification of Spectra in Raman Microscopic Image by Chemical Heterogeneity」, The 21st RIES-HOKUDAI International Symposium, 札幌 (オンライン), Japan (2020-12)
- 6) Z. Ferdous*, M. Tsuda, J. Clement, K. Tabata, Y. Ishida, J. Suzuka, J. P. Gong, S. Tanaka and T. Komatsuzaki: “Analysis of Cancer Stem Cells in Sarcoma Model Cells by Deep Neural Network”, The 21st RIES-HOKUDAI International Symposium, 札幌 (オンライン), Japan (2020-12)
- 7) S. Sattari*, U. Basak, M. M. Hossain, K. Horikawa and T. Komatsuzaki: “Vector analysis of amoeba motion with respect to the propagation of chemoattractant cyclic-AMP”, The 21st RIES-HOKUDAI International Symposium, 札幌 (オンライン), Japan (2020-12)
- 8) A. B. Halim*, J. Clement, K. Mochizuki, J. N. Taylor, K. Tabata, Y. Mizuno, A. Nakamura, Y. Harada, K. Fujita and T. Komatsuzaki: “To classify Raman spectra using Deep Learning Approach”, The 21st RIES-HOKUDAI International Symposium, 札幌 (オンライン), Japan (2020-12)
- 9) U. S. Basak*, S. Sattari, M. M. Hossain, K.

Horikawa and T. Komatsuzaki: “Inferring domain of Interaction among Dictyostelium discoideum colony from the ensemble of Trajectories of cells”, The 21st RIES-HOKUDAI International Symposium, 札幌 (オンライン), Japan (2020-12)

c. 一般講演 (国内学会)

- 1) Hossain Md. Motaleb*, Sattari Sulimon, Basak Udoy S, Horikawa Kazuki, Komatsuzaki Tamiki: “Vector analysis of amoeba motion with respect to the propagation of chemoattractant cyclic-AMP”, 第58回日本生物物理学会年会, オンライン, Japan (2020-09)
- 2) J. Clement*, K. Mochizuki, K. Fujita and T. Komatsuzaki: “Raman imaging for cancer diagnosis”, 第58回日本生物物理学会年会, オンライン, Japan (2020-09)
- 3) U. S. Basak*, S. Sattari, H. M. Motaleb, K. Horikawa and T. Komatsuzaki: “Inferring domain of Interactions among Dictyostelium discoideum colony from the Ensemble of Trajectories of cells”, 第58回日本生物物理学会年会, オンライン, Japan (2020-09)
- 4) S. Sattari*, U. Basak, M. M. Hossain, K. Horikawa and T. Komatsuzaki: “Quantifying the length- and time-scales of influence of cells in collective motion”, 第58回日本生物物理学会年会, オンライン, Japan (2020-09)
- 5) 田代剛大*, 鈴木崇弘, 山田幸生, 丹羽治樹, 牧昌次郎, 北田昇雄, 斉藤亮平, 小池卓二, 道脇幸博, 西村吾朗「近赤外蛍光を用いた非侵襲咽頭残留検出装置のヒトにおける検出性評価」日本機械学会 2020年度年次大会, オンライン, (2020-9)
- 6) C. Sun, 西村吾朗*, 中村 玄, 町田 学, J. Liu, Y. Jang, 「直方体形状を仮定した拡散蛍光トモグラフィ」, Optics and Photonics Japan 2020, オンライン, (2020-11).
- 7) 田代剛大*, 山田幸生, 丹羽治樹, 牧昌次郎, 北田昇雄, 斉藤亮平, 小池卓二, 道脇幸博, 西村吾朗「近赤外蛍光を用いた咽頭残留の非侵襲検出法の開発:ファントムを用いた検出能評価」 Optics and Photonics Japan 2020, オンライン, (2020-11).

d. 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*: 「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」, 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」第5回CREST領域会議, オンライン, Japan (2020-10)
- 2) 水野雄太*, 小林正人, Mikhail Tsitsvero: 「新概念コンピューティングによる化学反応設計」, 第6回北海道大学部局横断シンポジウム, オンライン, Japan (2020-10)
- 3) 水野 雄太*: 「離散的化学反応論のための量子

- 計算技術」、JSTさきがけ領域「革新的な量子情報処理技術基盤の創出」第3回領域会議、オンライン、Japan (2020-12)
- 4) 近藤 僚哉*, ジェームス ニコラス テイラー、Clement Jean-Emmanuel、水野 雄太、藤田 克昌、原田 義規、小松崎 民樹：「機械学習を用いた化学的不均一性 の情報を含むラマン顕微鏡画像中のスペクトルの分類」、化学系学協会北海道支部2021年冬季研究発表会、オンライン、Japan (2021-01)
 - 5) 田中 綾一*、水野 雄太、堤 拓朗、チツペロ ミカイル、武次 徹也、小松崎 民樹：「AFIR法を用いた化学反応における動的効果の研究：1, 3-シグマトロピー転移の類似反応を例に」、化学系学協会北海道支部2021年冬季研究発表会、オンライン、Japan (2021-01)
 - 6) 小松崎 民樹*：「強化学習を用いたラマン計測迅速化：On-the-fly Raman image microscopy」、大阪大学・ナノ理工学情報交流会、大阪府豊中市、Japan (2021-02)
 - 7) Z. Ferdous*, M. Tsuda, J. Clement, K. Tabata, J. P. Gong, S. Tanaka and T. Komatsuzaki： “Detection of Cancer Stem Cells in Sarcoma Model Cells Using Morphological Features for Developing New Diagnostics Tools”, ICREDD 3rd International Symposium, 札幌(オンライン), Japan (2021-02)
 - 8) Y. Nagahata*, T. Taketsugu, S. Maeda and T. Komatsuzaki： “The hierarchy of observable reaction networks associated with observation time-intervals”, ICREDD 3rd International Symposium, 札幌(オンライン), Japan (2021-02)
 - 9) Hiroshi Teramoto*, Katsusuke Nabeshima：” Parametric standard system for generalized mixed module and its application to singularity theory”, トポロジープロジェクト：幾何や自然科学に現れる特異点, オンライン, Japan (2021-2)
 - 10) U. S. Basak*, S. Sattari, M. Hossain, K. Horikawa and T. Komatsuzaki： “Study on Identification of Leader and Follower agents and its Interaction domain from Trajectories in a Collectively Moving Colony”, 生物物理学学会 北海道支部－東北支部合同例会, オンライン, Japan (2021-03)
 - 11) S. Sattari*, U. S. Basak, J. P. Crutchfield and T. Komatsuzaki： “Modes of Information Flow in Collective Cohesion”, 生物物理学学会 北海道支部－東北支部合同例会, オンライン, Japan (2021-03)
 - 12) M. Hossain*, S. Sattari, U. S. Basak, K. Horikawa and T. Komatsuzaki： “Analysis Dictyostelium Discoideum cells motion response to a chemoattractant cyclic-AMP wave”, 生物物理学学会 北海道支部－東北支部合同例会, オンライン, Japan (2021-03)
 - 13) 近藤 僚哉*, ジェームス ニコラス テイラー、Clement Jean-Emmanuel、水野 雄太、藤田 克昌、原田 義規、小松崎 民樹：「化学的不均一性も考慮したラマン顕微鏡画像解析」、生物物理学学会 北海道支部－東北支部合同例会、オンライン、Japan (2021-03)
 - 14) 寺本 央*：「実特異点の分類および認識アルゴリズムの進展」、数学と諸分野の連携にむけた若手数学者交流会2021、オンライン、Japan (2021-03)
- #### 4.7 シンポジウムの開催
- 1) 小松崎 民樹、諏訪 牧子、原田 慶恵：日本学術会議公開シンポジウム「次世代統合バイオイメージング数理の協働の展望」、オンライン(オンライン) (2020年10月14日)
 - 2) 小松崎 民樹：「日立北大ラボ×北海道大学コンテンツ2020「未来の自律分散型まちづくり」表彰式」、オンライン(札幌市) (2021年03月19日)
 - 3) 小松崎 民樹：「複雑系数理：物理・化学・生物・情報とカオス」、奈良女子大学記念館(奈良市) (2021年03月27日～2021年03月28日)
- #### 4.8 共同研究
- b. 民間等との共同研究
 - 1) 株式会社日立製作所「数学モデルとハードウェアアルゴリズムに基づく社会応用」2016-2021年度
 - d. 国際共同研究
 - 1) 小松崎民樹(北海道大学)、Rigoberto Hernandez(ジョーンズ・ホプキンス大学)との国際共同研究「化学反応動力学における相空間構造理論」
 - 2) J. N. Taylor, 小松崎民樹(北海道大学)、T. Bocklitz博士(Leibniz Inst. Photonic Tech., ドイツ)、I. Nottingher教授(Univ. Nottingham, UK)との共同研究「ラマン分光計測における標準化手法の統一とオンライン計測」
 - 3) 西村吾朗(北海道大学)、Jijun Liu(東南大学、中国)との国際共同研究「拡散蛍光トモグラフィに関する逆問題とその応用」
- #### 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、新学術領域研究、細胞集団とシンギュラリティ細胞のデータ駆動型数理解析技術の開発、2018～2022年度
 - 2) 小松崎 民樹、特別研究員奨励費、1細胞ラマン分光イメージングのための情報計測技術、2018～2020年度
 - 3) 寺本 央、基盤研究 C、包括的グレブナー基底系を用いた特異点分類の自動化、2019～2021年度
 - 4) 水野 雄太、若手研究、相空間幾何学に基づく動力学的反応経路図の自動作成法の開発、2020～2023年度
 - 5) 田畑 公次、若手 B、確率的多腕バンディット

設定における効率的な良腕識別手法の開発とその応用、2018～2021年度

- 6) 西村 吾朗、基盤研究 C、生体組織内部にある蛍光体の高感度検出を可能とするタイムドメイン蛍光法、2019～2021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) 小松崎 民樹、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、2016～2021年度
- 3) 小松崎 民樹、CREST、数学に依拠する精度保証等の安全・安心を担保する最適化問題の研究、2018～2023年度
- 4) 水野 雄太、さきがけ、離散的化学反応論のための量子計算技術、2020～2023年度、科学技術振興機構
- 5) Jean-Emmanuel Clement、JSPS、特別研究員奨励費、2018～2020年度

4.10 受賞

- 1) 近藤 僚哉、小松崎 民樹：優秀講演賞（ウェブポスター発表部門）「機械学習を用いた化学的不均一性の情報を含むラマン顕微鏡画像中のスペクトルの分類」（化学系学協会北海道支部2021年冬季研究発表会）2021年02月
- 2) 田中 綾一、小松崎 民樹：優秀講演賞（ウェブポスター発表部門）「AFIR法を用いた化学反応における動的効果の研究：1, 3-シグマトロピー転移の類似反応を例に」（化学系学協会北海道支部2021年冬季研究発表会）2021年02月

4.11 社会教育活動

a. 公的機関の委員

- 1) 小松崎 民樹：(財)新世代研究所 バイオ単分子研究会委員 (H21年4月～令和3年3月)
- 2) 小松崎 民樹：北海道大学共同プロジェクト拠点「知識メディアラボラトリ」運営委員 (H29年4月～現在)
- 3) 小松崎 民樹：Editorial Board “Scientific Reports” Division of Chemical Physics (H29年2月～現在)
- 4) 人工知能学会第2種研究会 計測インフォマテイクス研究会 (Special Interest Group on Measurement Informatics: SIG-MEI) 幹事 (H30年1月～現在)
- 5) 小松崎 民樹：JST/さきがけ量子情報処理アドバイザー (令和元年6月～)
- 6) 小松崎 民樹：科学技術振興機構、創発的研究支援事業 外部専門家 (令和2年8月～令和2年12月)
- 7) 小松崎 民樹：文部科学省研究振興局、科学研究費助成事業における評価に関する委員会の評価者 (令和2年12月～令和3年11月)

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 and Physicobiology」編集委員 (H25年1月～現在)、副編集委員長 (令和2年1月～)
- 2) 小松崎 民樹：日本生物物理学会副会長 (H31年6月～R3年6月)
- 3) 小松崎 民樹：日本生物物理学会北海道支部幹事 (令和2年～)
- 4) 小松崎 民樹：日本化学会北海道支部賞選考委員 (令和2年～)

c. 兼任・兼業

- 1) 水野雄太：科学技術振興機構、さきがけ研究者 (令和2年11月～令和4年3月)

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、化学 I、小松崎 民樹、2020年度前期
- 2) 理学部化学科4年生、ナノ物性化学、小松崎民樹 (分担)、水野雄太 (分担)、2020年度前期
- 3) 学部1年生 (全学教育科目)、一般教育演習 (フレッシュマンセミナー)、水野雄太 (分担)、2020年度前期
- 4) 学部1年生 (全学教育科目)、自然科学実験 (化学)、水野雄太 (分担)、2020年度前期

f. 北大以外での非常勤講師 (対象、講義名、担当者、期間)

- 1) 小松崎 民樹、東京大学理学系研究科、物理化学特論 II 集中講義、2021年01月22日

h. ポスドク・客員研究員など

- 1) Sulimon Sattari (博士研究員、新学術領域研究)
- 2) 永幡 裕 (博士研究員、化学反応創成研究拠点)
- 3) Jean-Emmanuel Clement (JSPS 外国人特別研究員)
- 4) Md. Motaleb Hossain (外国人協力研究員)

i. 修士学位及び博士学位の取得状況

博士学位：1人

Udoy Sankar Basak、生命科学院 生命融合科学コース：博士 (生命科学)、Study on Identification of Leader and Follower Agents and its Interaction Domain from Trajectories in a Collectively Moving Colony (協同的コロニーの軌道データによる先導従エージェントとそれらの相互作用領域の同定に関する研究)

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~)

准教授 佐藤讓 (東大院, 学博, 2017.4~)

助教 西上幸範 (兵大院, 理博, 2018.9~)

事務補助員 岩下利香 (2020.4~)

大学院生 千葉拓也(D1), 佐藤耀(D1), 越後谷駿(M2), 松本紘汰(M2), 大西舞(M1), 神田幸輝(B4), 池浩(研究生)

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だろうか? 生命システム特有の情報処理のしくみは、古代ギリシャ時代から今日に至るまで、その時代の学問を総動員して連綿と問い直されてきた問題である。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であろう。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も期待できる。

我々は、細胞の行動を主な対象として、生物の情報処理能力の高さを実験により評価し、さらにそのしくみをダイナミクスの観点から解明することを目指す。単純な体制を活かして、モノの運動法則から生物行動を理解するという、いわば生命情報処理の原点を志向している。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9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)原生生物と線虫の行動に関するバイオメカニクスと細胞生物学、(4)微小な生物の動きを捉えるイメージング技術の開発、(5)繊毛虫の遊泳力学と電気生理学、(6)アメーバの這行力学と高分子レオロジー、(7)胚発生形態形成における細胞集団の力学解析、(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、(9)ランダム力学系の数理と非線形現象への適用。

2. 研究成果

(a) 生物系のネットワーク最適化機構に学ぶ樹木の耐風・耐震・耐倒壊性能とその構造形成

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体化される」という、いわゆる「用不用則」である。この適応規

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る。

樹木の構造や形は、梁に伝わる力に応じて梁の太さを変えるという強化則によって構築され、力学的な最適性を実現している。本研究では、樹木の力学特性、特に風や振動に対して全倒壊しないように部分倒壊する特質の解明を目指して、振動エネルギーの効率的な散逸と予定調和的な枝折れの効果を実験的に検証する。また、このような構造が、自己組織化される仕組みも解明する。最終的には、倒壊リジリエントな建築物の設計指針を提供したい

今回、樹木の振動特性に注目し、力学的エネルギーが樹木全体でどのように伝播し行き渡るか、さらにそれによってどのように力学的エネルギーが散逸するかを当面の課題として、その課題解明に資する実験手法を検討し、可能な数理モデルのあり方について考察した。

北海道大学北方圏フィールド科学研究センター苫小牧研究林ならびに和歌山研究林において、樹高3~5メートルのハウノキ(落葉広葉樹)ならびにバリバリノキ(常緑広葉樹)をモデル樹木として、加振実験を実施した:

(1)野外のその場でハウノキに揺動を与えて、振動特性を記録した、(2)ハウノキを枝と幹に切り分け、それぞれの部分を加振し、バネ・ダッシュポット振動子模型に準じて、バネ定数や粘性係数を見積もった、(3)その見積もりに基づき、樹木全体をバネ・ダッシュポット振動子の連成系とみなして理論的な考察した。

その結果、連成することによって速い減衰効果が生じる仕組みを解明するためには従来の模型とは異なる振り子模型が有効であることがわかった。今後、この考えに沿って、より適切な数理模型を考えていきたい。

(b) 粘菌の振動パターンを表す力学数理モデル

真正粘菌の変形体は、寒天などの培地の上に置かれると、アクチンミオシンの収縮力を起源とする原形質流動の往復運動を始めて、ある方向に移動し始めるが、その動き出すまでの間に、ある一定の規則で時空間的な振動パターンを示す。粘菌の振動パターンは粘菌の行動に直結しているため、粘菌の示す多種多様な振動パターンを理解することは粘菌の動力学を理解するために必須である。今まで提供されている粘菌の振動パターンを説明する数理モデルはアブストラクトすぎるか複雑すぎるかのいずれかで、粘菌の振動パターンの本質をとらえるには難しいものであった。今回、我々は粘菌を周期的に振動するピストン・シリンダーの連結したものと考えて、この簡単な設定で粘菌が示す複雑な振動パターンが説明しうるかを調べた。粘菌の振動パターンの本質は水流の結合による非局所連結によるものである事が示されつつある。

(c) 細胞境界の直線化の新しいメカニズム

昆虫の体節の形態形成では、ある異なる種の細胞境界面が直線化することが重要になる。この直線化のメカニズムは長い間、細胞境界面でのアクチンミオシンの集積に依る収縮力の増加であると考えられてきていたが、近年、東北大

学の倉永・梅津グループにより、細胞間の接着の増加によっても直線化が起こることが示された。この現象を理解するために vertex model と呼ばれる上皮細胞を表す数理モデルを、収縮力と接着力とを分離して扱えるように改良し、そのメカニズムを明らかにした。

(d) 遊泳繊毛虫の走流性に関する研究

遊泳性の単細胞真核生物は環境中の流れに対応してその行動を変化させる。特に淡水に生息する遊泳微生物は外界の流れに対抗した行動をとる必要がある。というも、もしこのような能力を持たない場合、細胞は環境中の流れによって海まで流されてしまい、環境変化によって死滅する可能性が高いためである。したがって、遊泳性の微生物は一般的に流れに逆らう性質（正の走流性）があると考えられている。淡水域に多い単細胞真核生物としては繊毛虫が挙げられる。私たちは、代表的な繊毛虫であるテトラヒメナを用いてその走流性に関して調べた。マイクロ流体デバイスを用いて流れ場中でのテトラヒメナの行動を観察したところ、壁付近で正の走流性が確認された。さらにこの際に壁付近の繊毛打が抑制されていることが分かった。そこで、流体シミュレーションを用いてこの行動の再現を目指した。その結果、この行動は壁付近で繊毛打が抑制されることに加えて、細胞形状が楕円体である際に実現されることが分かった。つまり、テトラヒメナにおいて一見非常に複雑に見える走流性という行動は細胞形状と壁付近での繊毛打の抑制によって実現されることが示唆された。

(e) 新型コロナウイルス感染者数予測の不確実性を解明

新型コロナウイルス感染症の感染者数や死亡者数に関する予測データは、予測誤差が発生が発生することが多く、特に新型コロナウイルス感染症のデータは世界中の多くの地域で報告基準が異なるため、さまざまな測定誤差を含んでいる。こういった状況での予測の不確実性がどの程度のものかを検証し、そのメカニズムを明らかにした。とくに観測データのわずかな誤差が、予測感染者数を百倍近く増幅させることを解明し、感染症モデルによる長期予測は注意深くなされるべきであると提言した。

3. 今後の研究の展望

(a) 用不用適応則から読み解く形状と機能の最適化

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、欧州と日本の異なる二地域において町と道の共発展を検討した。今後、さらに異なる地域、時代における町と道の共発展現象を検討し、人間社会の基盤となる町と道のパターン形成機構を考察して行きたい。

樹木の風揺動特性については、独自の力学モデルを提案するに至ったので、これに基づき樹種、樹齢、生息地の違いを計測し、風揺動耐性（エネルギー散逸機構）を調べた

い。

(b) 繊毛の運動の力学モデル

繊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。繊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。繊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、ダイニンなどの分子モーターなどの駆動力、相互作用によって波うち運動のような多種多様な動きができることが知られている。しかしながらその力学的メカニズムは未だ明らかにされていない。微小管、分子モーター、結合分子の相互作用を力学モデルで表現し、単純な力学相互作用だけでこれらの繊毛の運動が再現できるかを確認する。

(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繊毛虫が遊泳可能なサブミリオ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繊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

微生物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) 高速牽引力顕微鏡の作製

原生物の中には非常に高速な運動を行うものが知られており、従来の牽引力顕微鏡では時間分解能の問題で細胞の移動に伴う牽引力を測定することが難しい。そこで、本研究では従来の方法の50倍程度の速度で牽引力測定可能な方法の開発を行う。

4. 資料

4.1 学術論文（査読あり）

- 1) Davide Faranda, Isaac Pérez Castillo, Oliver Hulme, Aglaé Jezequel, Jeroen S. W. Lamb, Yuzuru Sato and Erica L. Thompson, "Asymptotic estimates of SARS-CoV-2 infection counts and their sensitivity to stochastic perturbation," *Chaos*, 30, 051107, (2020).
- 2) Iijima N, Sato K, Kuranaga E, Umetsu D. Differential cell adhesion implemented by *Drosophila* Toll corrects local distortions of the anterior-posterior compartment boundary. *Nat Commun.* 2020 Dec 10; 11(1):6320. doi: 10.1038/s41467-020-20118-y.
- 3) Syou Maki, Shigeru Kuroda, Seiji Fujiwara, Seiichi Tanaka, Eka Erzalia, Mizuki Kato, Katsumasa Higo, Toshiaki Arata, Toshiyuki Nakagaki: "Thermal

conductivity and thermal diffusivity of slime mold (Physarum Polycephalum)", Biomedical journal of Scientific and Technical Research, 31(3) 24140-24145(2020) DOI: 10.26717/BJSTR.2020.31.005090.

4.2 学術論文 (査読なし)

該当なし

4.3 総説・解説・評論等

- 1) 大村 拓也, 西上 幸範, 市川 正敏, 「流体模型で明らかになる繊毛虫の機械受容と応答システム」, 61:5, pp.016-019, (2021)

4.4 著書

該当なし

4.5 特許

該当なし

4.6 講演

a. 招待講演 (国際学会)

- 1) Yuzuru Sato, "Stochastic bifurcation in a turbulent swirling flow", invited talk, CRITICS workshop 2020, Imperial College, London, UK, (August, 2020).

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形状最適化」, 第1回設計・ネットワーク最適化に関する分野融合研究会、オンライン開催 (北陸先端科学技術大学院大学主催)、(2020-09)

c. 一般講演 (国際学会)

- 1) Yukinori Nishigami, Takuya Ohmura, Masatoshi Ichikawa, "The mechanism of swimming ciliates, Tetrahymena pyriformis, resisting the flow," poster presentation, JSP/KSOP Joint Online Meeting 2020 (November 2020)
- 2) Takuya Chiba, Takuma Sugi, Yukinori Nishigami, Toshiyuki Nakagaki, Katsuhiko Sato, "Nematodes Caenorhabditis elegans' phoretic behavior to insects using an electrostatic field," poster presentation, The 21st RIES-Hokudai International Symposium, online (December 2020) .
- 3) Syun Echigoya, Yukinori Nishigami, Katsuhiko Sato, Toshiyuki Nakagaki, "The physical mechanism of behavioral change in the ciliate, Stentor coeruleus in narrow areas," poster presentation, The 21st RIES-Hokudai International Symposium, online (December 2020) .
- 4) Genta Matsumoto, Nishigami Yukinori, Sato Katsuhiko, Nakagaki Toshiyuki, "Elucidation of the Mechanism of Amoeboid Motion in Arcella sp.," poster presentation, The 21st RIES-Hokudai International Symposium, online (December 2020) .

- 5) Koki Kanda, Yukinori Nishigami, Katsuhiko Sato, Toshiyuki Nakagaki, "Behavioral pattern diversity and quantitative analysis of Halteria," poster presentation, The 21st RIES-Hokudai International Symposium, online (December 2020) .

- 6) Mai Onishi, Yukinori Nishigami, Katsuhiko Sato, Toshiyuki Nakagaki, "Bioconvection shown by the ciliate Tetrahymena," poster presentation, The 21st RIES-Hokudai International Symposium, online v (December 2020) .

- 7) Yukinori Nishigami, Takuya Ohmura, Masatoshi Ichikawa, "Resistance to the flow shown by ciliates Tetrahymena," poster presentation, The 21st RIES-Hokudai International Symposium, online v (December 2020) .

- 8) Yuzuru Sato, "Anomalous diffusion in random dynamical systems," poster presentation, Dynamics Days Digital, Amsterdam, Netherland, (August, 2020).

- 9) Yuzuru Sato, "Noise-induced degeneration in online learning," Dynamical systems and machine learning, Imperial College London, London, UK, (September, 2020).

d. 一般講演 (国内学会)

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) 西上幸範, "繊毛虫テトラヒメナの走流性に関して", 2020年原生生物合同ゼミ, オンライン開催 (2020年10月)
- 2) 越後谷駿, 西上幸範, 佐藤勝彦, 中垣俊之, "繊毛虫ソライロツパムシの形状遷移定量化", 2020年原生生物合同ゼミ, オンライン開催 (2020年10月)
- 3) 中垣 俊之*: 「単細胞のちょっと賢い話」, 第60回生物物理若手の会 夏の学校、オンライン開催、メインセミナー (2020-08)

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) 中垣俊之, 佐藤勝彦, 西上幸範, 佐藤譲: 株式会社ジイ・シイ企画, 「集团的知性の探求ならびにその社会動態や経済現象への展開応用に関する研究」, 2019~2020年度, 1,000千円

c. 委託研究

該当なし

d. 国際共同研究

- 1) 佐藤譲: CEA-CNRS, France と流体力学・気象データ解析に関する共同研究.

- 2) 中垣俊之：オックスフォード大学植物科学科マーカー・フリッカー博士，町と道の共発展ダイナミクスに関する研究
- 3) 西上幸範，佐藤勝彦，佐藤謙，中垣俊之：リヨン第1大学，ジャンポール・リュウ教授，細胞運動の力学に関する研究

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) 佐藤謙：研究代表者，「ランダム力学系理論に基づく確率カオスの現象論とその応用」，科学研究費補助金 基盤(C) No.18K03441，日本学術振興会 (2018-2020)
- 2) 佐藤謙：研究分担者，「古典および量子統計的システムにおける新規な情報幾何構造の探究」，科学研究費補助金 基盤(B) No. 17H02861，日本学術振興会 (2017-2021).
- 3) 佐藤謙：研究分担者，「ランダムな実および複素力学系，正則写像半群とフラクタル幾何学の研究」，科学研究費補助金 基盤(B) No.19H1790，日本学術振興会 (2019-2023).
- 4) 佐藤謙：研究分担者，「確率過程論的アプローチによるランダム力学系の理論研究」，科学研究費補助金 基盤(B) No.19H21834，日本学術振興会 (2019-2021).
- 5) 佐藤勝彦：研究代表者，「3次元空間内に埋め込まれた細胞集団運動の新しいメカニズム」，科学研究費補助金 基盤(C) No. 20K03871，日本学術振興会 (2020-2023).
- 6) 佐藤勝彦：研究分担者，「粘弾性流体に特有な渦の数理解析」，科学研究費補助金 基盤(B) No.18H01135，(2018-2022).
- 7) 西上幸範：研究分担者，「再構成アプローチで解明するダイナミンの膜切断機構とその破綻に起因する疾患発症機序」，国際共同研究強化(B) No. 19KK0180，(2019-2023).

b. 大型プロジェクト・受託研究

- 1) 佐藤謙：研究代表者，“Understanding the dynamics of atmospheric circulation”，PICS grant, LSCE, CEA, France,(2017-2020).
- 2) 佐藤謙：研究代表者，London Mathematical Laboratory Fellowship, London Mathematical Laboratory, UK, (2020-2021).
- 3) 西上幸範：「原生物の行動原理の解明」，次世代研究者育成プログラム(2018-2023).

4.10 受賞

- 1) 千葉拓也，The 21st RIES-HOKUDAI International Symposium, Poster Award
- 2) 千葉拓也，笹川科学研究助成受賞

4.11 社会教育活動

a. 公的機関の委員

- 1) 中垣俊之：北海道立啓成高等学校 SSH 運営委員

b. 国内外の学会の役職

- 1) 佐藤謙：JSIAM Letters 編集委員 (2020.4-2021.3)
- 2) 西上幸範：日本原生生物学会編集委員 (2014.10-)
- 3) 西上幸範：日本原生生物学会評議委員 (2018.10-)
- 4) 西上幸範：日本原生生物学会ネットワーク委員委員長 (2019.10-)

c. 兼任・兼業

- 1) 佐藤謙：London Mathematical Laboratory External Fellow (2013-present).
- 2) 佐藤謙：非常勤講師，千歳科学技術大学 (2020-present)

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) 全学共通，微分積分学 II，佐藤謙，2020年2学期
- 2) 理学部/理学院，数理科学概説，佐藤謙，2020年1学期
- 3) 全学共通，フレッシュマンセミナー「暮らしの中のサイエンス」，西上幸範，2020年1学期
- 4) 理学部専門科目，生物系のための物理学，佐藤勝彦，2020年1学期
- 5) 生命科学院専門科目，ソフトマター物理学特論（連続体力学），佐藤勝彦，2020年6-8月
- 6) 理学部専門科目，数学総合講義 I「数理で読み解く生物行動学」，中垣俊之，佐藤勝彦，2020年2学期
- 7) 全学教育科目，物理学 I，佐藤勝彦，2020年1学期
- 8) 生命科学院専門科目，中垣俊之，西上幸範，ソフトマター物理学特論「非線形現象」，1単位，2020年11月-12月
- 9) 全学共通，中垣俊之，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」，1/15単位，2020年08月21日
- 10) 全学共通，中垣俊之，ソフトマター概論，1/15単位，2020年04月01日-09月30日
- 11) 理学部生物科学科（高分子機能学専修分野），生体高分子学実験 III，中垣俊之，佐藤勝彦，西上幸範，第2学期
- 12) 理学部生物科学科（高分子機能学専修分野），高分子機能学文献購読，中垣俊之，佐藤勝彦，西上幸範，通年
- 13) 理学部生物科学科（高分子機能学専修分野），高分子機能学卒業研究，中垣俊之，佐藤勝彦，西上幸範，通年
- 14) 生命科学院ソフトマター専攻修士課程，ソフトマター科学研究，中垣俊之，佐藤勝彦，西上幸範，通年
- 15) 生命科学院ソフトマター専攻修士課程，ソフトマター科学実習，中垣俊之，佐藤勝彦，西上幸範，通年
- 16) 生命科学院ソフトマター専攻修士課程，ソフトマター科学論文購読 I，中垣俊之，佐藤勝彦，西上幸範，通年
- 17) 生命科学院ソフトマター専攻修士課程，ソフトマター科学論文購読 II，中垣俊之，佐藤勝彦，西上幸範，通年
- 18) 生命科学院ソフトマター専攻博士課程，ソフトマター科学特別研究，中垣俊之，佐藤勝彦，西上幸範，通年

f. 北大以外での非常勤講師（対象、講義名、担当者、期間）

- 1) 千歳科学技術大学，幾何学 I，佐藤謙，2020.4-2020.9

- 2) 千歳科学技術大学, 幾何学 I 演習, 佐藤譲, 2020.10-2021.3
- 3) 千歳科学技術大学, 数値計算概論, 佐藤譲, 2020.10-2021.3
- 4) 公立はこだて未来大学, 「物質の科学」, 2 単位, 中垣俊之, 2019 年 09 月 03 日~09 月 08 日

g. 新聞・テレビ等の報道

- 1) 佐藤譲: 2020 年 10 月 20 日, 北海道大学プレスリリース「SARS-Cov-2 感染者数漸近予測の不確実性を解明」.
- 2) 中垣 俊之: 日本経済新聞 2020 年 09 月 12 日 「イグノーベル賞 なぜ日本人多い」
- 3) 中垣 俊之: 東京新聞 2020 年 09 月 06 日 「イグノーベル賞 30 年」 「菌が迷路の最短ルートを探し出す!」
- 4) 中垣 俊之: PBS NOVA 2020 年 9 月 「Secret Mind of Slime」という 57 分の番組が放映された。この番組は、フランス ARTE が製作した科学ドキュメンタリー番組「Genius without brain」をもとに再編集した番組である。
- 5) 中垣 俊之: テレビ東京 2020 年 04 月 09 日 「探求の階段 #27 「単細胞」の意味を変える」

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: 3 人 (総人数を記載)

- 1) 茅原拓未, 理学院, 理学修士, “雑音誘起現象の存在に関する計算機援用証明”
- 2) 越後谷駿, 生命科学院, 理学修士, “繊毛虫ソライロラッパムシの遊泳と固着の行動切替”
- 3) 松本絃汰, 生命科学院, 理学修士, “有殻アメーバ *Arcella* sp. の細胞運動の力学計測”

博士学位: 0 人 (総人数を記載)

連携研究部門

共創研究支援部

ニコンイメージングセンター

教授 中垣俊之（名大院、学博、2019.11～）
教授 三上秀治（東大院、博士（理学）、2020.06～）
教授 松尾保孝（北大院、博士（工学）、2012.03～）
客員教授 根本知己（東工大院、博士（理学）、2012.03～）
特任助教 富菜雄介（北大院、博士（生命科学）、2021.01～）
技術職員 小林健太郎（北大院、博士（理学）、2012.03～）

1. 研究目標

近年になって蛍光バイオイメージング技術の必要性が増大し、そうした需要に呼応して遺伝子導入技術、蛍光タンパク質をはじめとする分子マーキング技術や機能指示薬の作成技術も大きく向上している。また顕微鏡やカメラなどの各種機器の性能も、飛躍的な向上を遂げている。しかしながら、これらの最新技術・機器を用いることで、誰でも即座に優れたデータを得ることができる訳ではないところに、蛍光バイオイメージング技術の難しさがある。

ニコンイメージングセンターは、最新の光学顕微鏡を利用できる施設として、平成18年にニコンインステック社（現ニコンソリューションズ社）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。

特に近年では、イメージング機器の多様化・先端化と最新鋭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、大学等の各研究機関が優れた機器を整備し、運用を継続することは一層困難となっている。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ている。

当センターの特色は、所内や学内の研究者のみならず、全国の研究者が広く設備等を利用可能な点である。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、光学顕微鏡を取り扱ったことのない初級者でも、観察技術全般を習得できる。特に近年では、遠方の大学や企業の研究者からサンプルを送付してもらい、スタッフが観察を行う依頼観察や、遠隔地から実際に機器操作も可能とするリモート利用支援への対応も開始した。その一方で、利用者の視点に基づく機器等の詳細な要望や感想が寄せられるため、協賛企業への迅速かつ綿密なフィード

バックも開設当初より行っている。

このように研究者と企業の双方と緊密な連絡を取り合うことにより、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と推進を目的としている。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. 研究成果

令和2年度の延べ利用人数・利用時間は、382人・2411時間となった。平成24年度以降の利用実績を図1のグラフに示す。利用者の所属ごとの年間利用人数は棒グラフ（上部の第1軸）で、年間総利用時間は折線グラフ（下部の第2軸）で表示する。近年は常連研究者の異動が多いのもあり、やや利用が減少している。令和2年度は緊急事態宣言の発令など、研究活動が大幅に制約された中ではあるが、ほぼ前年度と同様の利用があった。

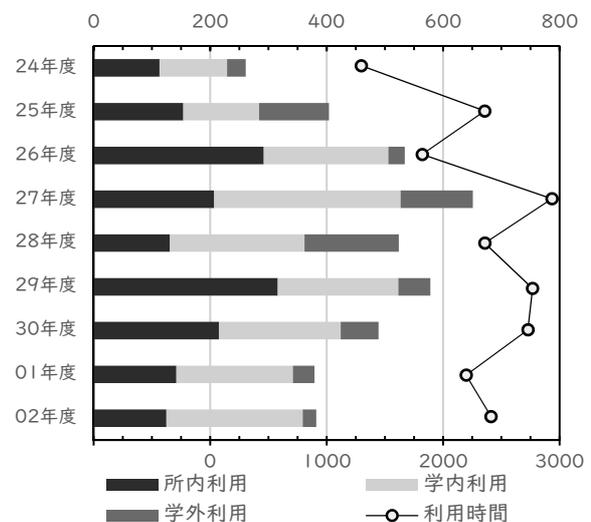


図1. 平成24年度以降のイメージングセンター利用状況。

この利用者所属の詳細を、図2のグラフで示す。当研究所内の利用にとどまらず、学内の多くの学部等から幅広く利用があった。

また令和2年度は、当センターの利用者が著した14報の論文が学術誌に掲載された。

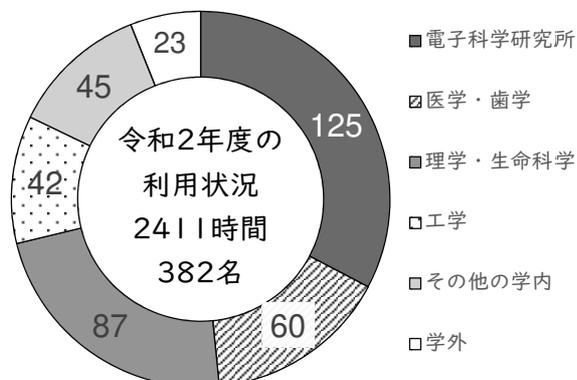


図2. 利用状況と所属の詳細(グラフ数値は延べ利用人数).

(b) イメージングに関連する知識と技術の普及

当センターの各顕微鏡の利用を希望する研究者には、顕微鏡やソフトウェアの操作指導を行っている。令和2年度は22件の新規の利用相談が寄せられ、計50名の研究者に操作指導を行った。図3には、利用相談が寄せられた後の利用動向を示す。4割程度は継続して当センターを利用してはいるものの、実際の利用には至らなかった事例も少なからず存在するため、一層のサポート体制の充実が課題である。

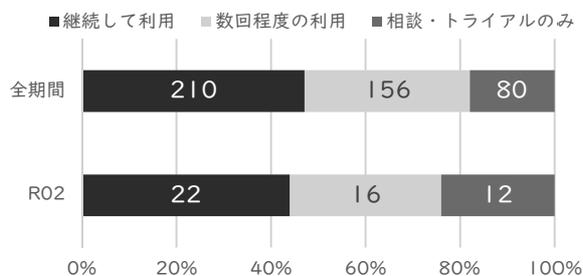


図3. 当センターへの利用相談後の動向.

平成24年度の研究所の改組以降、ニコンソリューションズ社をはじめとした協賛企業とともに、学術講演会等を積極的に開催し、顕微鏡関連分野の最先端研究の紹介を行うことで、研究者とメーカーの双方がフィードバックを行う環境を定期的に提供している。令和2年11月25日には、ニコンソリューションズ社が開催の「先端顕微鏡技術セミナー SIM方式による超解像顕微鏡技術の応用と実践」を共催した。今回はオンライン開催の形式としたところ、全国から154名の参加があり、盛況となった。

3. 今後の研究の展望

引き続き、学内外へ当センターを広くアピールするとともに、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光学顕微鏡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く。

4. 資料

4.1 学術論文 (査読あり)

1) 該当なし.

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

1) 該当なし.

4.6 講演

a. 招待講演 (国際学会)

1) 該当なし.

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) 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)

- 三上 秀治、「超高速蛍光イメージング顕微鏡の基礎から生命科学への応用まで」、2020年度第4回光機能研究会、Web講演会、Japan (2020-08)
- 三上 秀治、「高速蛍光イメージングが未来の生命科学を切り拓く」、第6回 北大・部局横断シンポジウム、Web開催、Japan (2020-10)
- 三上 秀治、「蛍光顕微鏡の技術革新が未来の生命科学を切り拓く」、先端顕微鏡技術セミナー、オンライン開催、Japan (2020-11)
- 三上 秀治、「超高速蛍光イメージングから広がる未来のバイオフォトンクス」、光塾2020、オンライン開催、Japan (2020-12)
- H. Mikami, "High-speed fluorescence imaging: toward integration of photonics, informatics, and life sciences", 21st RIES-Hokudai International Symposium, オンライン

- ン開催, Japan (2020-12)
- 6) 三上 秀治、「高速蛍光顕微鏡の現在と未来」、日本顕微鏡学会 超高分解能顕微鏡法分科会 2020 年度研究会 「超高時間分解能顕微鏡の進展と展望」、オンライン開催、Japan (2021-02)
 - 7) 三上 秀治、「高速蛍光顕微鏡技術の最前線から見えてきた未来のバイオイメージング」、ABiS Symposium 先端バイオイメージングの現在そして未来 ～我が国の研究戦略～、オンライン開催、Japan (2021-02)
 - 8) 三上 秀治、「生命科学・医学の未来を照らす最先端光学顕微鏡の開発」、第3回フォトエキサイトニクス研究拠点 研究会 ～ 光励起状態制御の予測と高度利用～、Web 開催、Japan (2021-03)

- 1) 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)
 - 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：0人

 - 1) 該当なし.

博士学位：0人

 - 1) 該当なし.

4.7 シンポジウムの開催

- 1) 先端顕微鏡技術セミナー (オンライン開催)、参加者 154 名、北海道大学 (2020-11) .

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) 中垣俊之・松尾保孝・小林健太郎. 株式会社ニコン, 「高品質バイオイメージングを可能とする生物試料調整・条件設定の最適化」, 2019 年度～2020 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) 中垣俊之, 科研費新学術領域研究・学術研究支援基盤形成 「先端バイオイメージング支援プラットフォーム」, 2016 - 2021 年度.
- b. 大型プロジェクト・受託研究
 - 1) 該当なし

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) 該当なし.
- b. 国内外の学会の役職
 - 1) 該当なし.
- 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)

国際連携推進室

室長:教授 Biju Vasudevan Pillai (Kerala大学、Ph.D.化学、2016.2～)
副室長:准教授 高野勇太 (筑波大学、博士(理学)、2017.4～)
教授 小松崎 民樹 (総合研究大学院大学、理学博士、2007.10～)
教授 三澤 弘明 (筑波大学、理学博士、2003.5～)
教授 笹木 敬司 (大阪大学、工学博士、1997.11～)
教授 太田 裕道 (東京工業大学、工学博士、2012.9～)
教授 雲林院 宏 (東北大学、理学博士、2015.7～)
事務補助員 藤井 敦子 (2016.2～)

1. 活動目標

国際連携推進室は、電子科学研究所の国際連携活動に関する企画立案・企画助言の役割を担うとともに、電子科学研究所が国際ネットワークのハブとして連携を充実・強化するために平成24年度に設置されたものである。電子科学研究所は、欧米の4つの研究所、アジアの6つの研究所・センターと部局単位の交流協定を締結し、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。電子科学研究所の国際連携活動を発展させて、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の計画・支援も行っている。

2. 成果

2020年度はコロナ禍の影響を色濃く受けた年として、従来までの国際連携活動が大きく制限された。ウィズコロナ、アフターコロナにおける国際連携を見据えての準備の年になったといえる。

(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

主にオンライン (Zoomなどの会議システム) を活用して、電子科学研究所の各研究分野が国際連携戦略を推進するための準備補佐、国際連携イベントの運営を行った。具体例として、ルーヴァン・カトリック大学 (ベルギー)、メルボルン大学 (オーストラリア) と電子科学研究所の国際協力関係の構築を計画したうえで、雲林院宏教授主導のもと日本学術振興会先端拠点形成事業を運営補佐している。2020年度は、2回のオンライン会議の運営補佐をおこなった。

(b) 世界的トップランナー達との協働体制の構築

北海道大学が掲げる「創基150周年に向けた近未来戦略」のビジョン「世界の課題解決に貢献する北海道大学」の達成にむけ、人材育成および共同研究の推進によるグローバル協働体制の構築を行っている。その一貫として世界的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サマーインステュート2020(HSI2020)において室長Biju教授をコース代表とする、各国のトップランナーを招いた上でのリレー講義を計画した。しかし、コロナ禍の影響もあり翌年に持ち越しとなった。

今後も、本学からのサポートを受けて各国から研究のトップランナーの招へいと、これを基にした講義を通じたグローバル人材育成を行っていく。

(c) 第21回RIES-HOKUDAI国際シンポジウム「間」開催のサポート

本シンポジウムは北大・電子科学研究所が主催し、海外、国内および学内の各研究機関に広く開かれた毎年開催の国際シンポジウムである。電子研の関係機関との新たな連携と分野横断的な学問や技術を生み出す土壌を提供することを目的としている。2020年12月10-11日にオンラインにて開催した。本学をはじめ国内では大阪大学、九州大学、東京工業大学、東北大学、徳島大学などから、海外からはオーストラリア Melbourne 大学、韓国 Pohang University of Science and Technology、韓国 Hanyang University、フランス CY Cergy Paris University、ベルギー KU Leuven、などから総勢150人を超える大学院生、ポスドク、研究者らが参加し、13件の口頭発表・61件のポスター発表をもとにした研究議論が行われた。ポスター発表を行った大学院生・若手研究者の優れた発表にはポスター賞を授与し、研究のさらなる活発化と国際化を推進した。

3. 今後の展望

2021年度は各国でのワクチン接種が進み、徐々に人的交流が回復することが期待される。引き続きオンライン交流をはじめとする国際的コミュニケーションを保持・拡張して、電子科学研究所の活動における、国際的なネットワーク構築の推進に努める。学術協定を既に締結している海外研究機関とのより強固な協力関係構築、新たな学術協定の締結、先端拠点形成事業の支援をベースとした新たな研究展開と予算獲得をとおして、電子科学研究所の有する国内研究ネットワークと海外のネットワークが連携するプログラムをサポートしていく。国際共同研究を展開している教授陣が中核となり、戦略的かつ多角的に国際連携推進室の活動のさらなる充実を図れるよう、国際連携推進室としてサポートを続けていく。

ナノテク連携推進室

教授 松尾保孝 (北大院、博士(工学)、2018.1～)

特任助教 小田島聡 (2018.4～)

(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 佐々木仁 (2019.4～)

学術研究員 福本 愛 (2007.6～)

学術研究員 細井浩貴 (2012.9～)

学術研究員 山崎郁乃 (2019.4～)

学術研究員 浮田桂子 (2019.6～)

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してはならないが、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プログラムである「ナノテクノロジープラットフォーム」事業についても業務実施者として参画している。北海道大学は微細構造解析プラットフォーム、微細加工プラットフォーム事業の実施機関として名を連ねることとなったが、ナノテクノロジープラットフォーム事業は全学事業として創成研究機構・ナノテクノロジー連携研究推進室が担っており、電子科学研究所ナノテク連携推進室はその一部として工学研究院（ナノ・マイクロマテリアル分析研究室、光電子分光分析研究室、超高圧電子顕微鏡室）、情報科学研究科と連携し、学内だけでなく全国の大学・公的研究機関・民間企業に対してナノテクノロジーに関する支援に取り組んでいる。特に、超微細加工と微細構造解析の二つの機能を有機的に連携させた支援を実現し、光・電子・スピンを制御する新規ナノデバイス創製、および新機能ナノ物質創出に関する研究開発を支援することを目的として事業推進を行っている。

原子層堆積装置やプラズマCVD装置、超高精度EB 描画装置、マスクアライナー、RIE 装置、ICPドライエッチング装置、FIB 装置、イオンビームスパッタ装置などのナノ加工・デバイス化装置による超微細加工に関する支援を行うとともに、高性能 STEM、超高圧透過型電子顕微鏡、各種プローブ顕微鏡、X線光電子顕微鏡装置、オージェ電子分光装置、集束イオンビーム加工・分析 装置などによる種々のナノ計測・表面分析支援までを幅広く行っている。

2. 研究成果

(a) 利用実績 (令和2年 4月～令和3年 3月)

令和2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58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、電子研以外の施による支援も含めて利用件数は82件、こちらも45%以上を学外への支援として実施した。本年度は、コロナ感染症の拡大により緊急事態宣言の発出等の影響により施設の利用停止期間が生じたことや来学が困難となったことにより、これまでよりも利用件数や学外利用の件数については減少することとなった。

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PFの支援課題に関する学会発表は240件以上、論文掲載が80報以上であった。また、各大学からプレスリリースなども発表され優れた利用成果が創出されている。

(b) ナノテクノロジープラットフォーム事業活動

ナノテクノロジープラットフォーム事業は3つのプラットフォーム（微細加工、微細構造解析、分子物質合成）ごとに各機関が参画して行う事業となっており、北海道大学は微細加工・微細構造解析の2つのプラットフォームに属している。電子科学研究所としても両方のプラットフォーム対して装置供出を行っており、研究支援と共に関連する会議などにおいて支援成果報告や広報活動を行っている。また、技術職員を含めた研究支援者は外部での技術研修に参加し、より優れたナノテクノロジー支援の実現を目指して技術研鑽に務めるとともに、学生研修や技術支援員を受け入れての技術トレーニングによりナノテク技術の普及への活動を行っている。今年度はコロナ感染症への対策として、オンラインでの対応、技術代行等の感染症拡大防止への対策を実施しながら事業を行った。この他に、セ応用物理学会、北洋銀行ものづくりテクノフェアなど、学会・展示会への出展や各種会議での講演を行い、外部ユーザーへの広報活動を行った。

今年度は微細加工・構造解析の技術支援員が、ナノテクノロジープラットフォームへの支援実績を評価され、支援貢献賞を受賞するに至った。企業への支援課題かつ北海道大学の特徴的な支援が活かされた成果について評価がなされている。

(c) 最先端フォトニクス材料・デバイスを支えるナノテク整備事業

電子科学研究所はナノテク装置を活用して学内外の研究者や企業に対し高度な研究開発支援を行っている。一方、支援する人的資源も不十分であり、また導入から15年以上

経過した装置が多数存在しているため、世界トップレベルの研究開発を支えることが困難になりつつある。本事業では、支援する人材確保・スキルアップを図ると共に、最先端装置への更新により、地域創成の鍵となるイノベティブな研究開発、並びにクリエイティブな研究を創発することを目的とし、平成30年度から4年間のプロジェクトとしてスタートした。今年度は、前年度に導入した多様な材料へ対応するため多元スパッタ装置への機能強化（成膜チャンバーの増設とラジカルイオンガン・カソードの追加）、高速で大面積にサブミクロンスケールや3Dのパターンを描画可能となるレーザー描画装置等の研究設備の整備を行い、「世界の課題解決に貢献する北海道大学へ」の実現に向けた研究環境を準備して支援活動を行った。

(d)設備運用状況

令和2年度は、スパッタ装置の機能強化、レーザー描画装置を導入し、機器の拡充と研究力向上を図った。また、遠隔（リモート）利用が可能になるように、収差補正透過電子顕微鏡へは遠隔立ち会いが可能な画面共有システムを導入、電子線描画装置については、オンラインでCAD利用できるシステムと描画シミュレーションが行えるソフトウェアの導入を図り、実験効率の向上に努めた。

(e)マテリアル先端リサーチインフラ事業

令和2年度末に、マテリアル先端リサーチインフラ事業において、スポーク機関としての採択が決定した。これに関連して、令和2年度予算にて、プラズマ式原子層堆積装置ならびにデータ連携サーバーの導入が決定した。

3. 今後の研究の展望

ナノテク連携室は引き続き文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム事業（NPF）を核として研究支援活動を行っていく予定である。NPF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。さらに、ナノテクノロジープラットフォーム事業の継続となる「マテリアル先端リサーチインフラ」事業をスタートさせ、政府成長戦略の一つの柱となっているマテリアルDXの実現に向けた支援活動がスタートすることになっている。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 学術論文（査読あり）

- 1) Yabu, H; Matsuo, Y; Yamada, T; Maeda, H; Matsui, J; “Highly Porous Magnesium Silicide Honeycombs Pre-

pared by Magnesium Vapor Annealing of Silica-Coated Polymer Honeycomb Films toward Ultralightweight Thermoelectric Materials”, CHEMISTRY OF MATERIALS, Vol.32, p.p. 110176-10183 (2020)

- 2) Shi, YL; Li, Q; Zhang, Y; Wang, GQ; Matsuo, Y; Liang, XG; Takarada, T; Ijro, K; Maeda, M; “Hierarchical growth of Au nanograss with intense built-in hotspots for plasmonic applications”, JOURNAL OF MATERIALS CHEMISTRY C, Vol. 8, p.p. 16073-16082 (2020) 【電子研内共著】
- 3) Yabu, H; Matsui, J; Matsuo, Y; “Site-Selective Wettability Control of Honeycomb Films by UV-O₃-Assisted Sol-Gel Coating”, LANGMUIR, Vol. 36, p.p. 12023-12029 (2020)
- 4) Kimura, T; Suzuki, A; Yang, Y; Niida, Y; Nishioka, A; Takei, M; Wei, JJ; Mitomo, H; Matsuo, Y; Niikura, K; Ijro, K; Tono, K; Yabashi, M; Ishikawa, T; Oshima, T; Bessho, Y; Joti, Y; Nishino, Y; “Micro-liquid enclosure array and its semi-automated assembling system for x-ray free-electron laser diffractive imaging of samples in solution”, REVIEW OF SCIENTIFIC INSTRUMENTS, Vol. 91, 83706 (2020) 【電子研内共著】
- 5) Nakamura, S; Mitomo, H; Sekizawa, Y; Higuchi, T; Matsuo, Y; Jinnai, H; Ijro, K; “Strategy for Finely Aligned Gold Nanorod Arrays Using Polymer Brushes as a Template”, LANGMUIR, Vol. 36, p.p.3590-3599 (2020) 【電子研内共著】

4.2 学術論文（査読なし）

該当なし

4.3 総説・解説・評論等

該当なし

4.4 著書

該当なし

4.5 特許

該当なし

4.6 講演

a. 招待講演（国際学会）

該当なし

b. 招待講演（国内学会）

該当なし

c. 一般講演（国際学会）

- 1) S. Odashima, H. Sasakura, “Fabrication of the metal-semiconductor nano-pillar structure for the single photon emitter”, 33rd International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC2020), Webinar, 2020.11.9-12

d. 一般講演（国内学会）

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) 松尾保孝、「原子層堆積装置による多種多様な材料・デバイスへの薄膜形成技術」、第3回 微細加工プロセス技術セミナー、オンライン、2020年10月29日
- 2) 松尾保孝、「原子層堆積(ALD)技術による薄膜形成」、第5回 微細加工プロセス技術セミナー、オンライン、2021年1月13日

4.7 シンポジウムの開催

- 1) 微細加工PFセミナー、北海道大学(2020年12月16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
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) 坂口紀史、基盤研究(C)、近距離 Casimir 力の起源となる表面プラズモン振動モードの EELS 解析と力評価、2018~2020 年度
 - 2) 松尾保孝、基盤研究(C)、ナノ構造を用いた光増強ソフトイオン化法による大気中有機ナノ粒子の直接質量分析、2019~2021 年度
 - 3) 笹倉弘理、基盤研究(B)、単一光子エンタングルメントを介したスピン間制御、2020~2023 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
該当なし
- 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)
 - 1) 理学部、ナノ物性化学、西井準治、小松崎民樹、水野、小野、藤岡、松尾保孝、2020年4月~2019年8月
 - 2) 総合化学院、物質科学(ナノフォトンクス材料論)、西井準治、松尾保孝、2020年6月~2020年8月
 - 3) 全学共通、大学院共通講義「ナノテクノロジー・ナノ

サイエンスと光科学」、松尾保孝、2020年11月~12月

- 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

II.各種データ

II-1. 研究成果公表に関する各種の統計表

1. 学術論文

部門等		年度			
		平成29年	平成30年	平成31年/ 令和元年	令和2年
光科学 研究部門	欧 文	20(20)	19(19)	16(16)	24(20)
	邦 文	1(1)	1(0)	1(0)	0
物質科学 研究部門	欧 文	32(32)	37(37)	40(40)	37(34)
	邦 文	0	0	0	1(1)
生命科学 研究分野	欧 文	10(10)	13(12)	11(10)	5(5)
	邦 文	1(0)	1(1)	1(0)	0
附属社会創造 数学研究センター	欧 文	34(34)	23(23)	28(27)	36(36)
	邦 文	3(0)	4(1)	0	1(1)
グリーンテクノロジー 研究センター	欧 文	26(26)	24(24)	34(34)	54(51)
	邦 文	0	2(1)	2(0)	0
共創研究支援部	欧 文	-	-	-	2(2)
	邦 文	-	-	-	0
計	欧 文	96(96)	115(114)	129(127)	158(148)
	邦 文	5(1)	8(3)	4(0)	2(2)

()内の数はレフェリー付き。
 ※出版済のものを集計。客員研究
 分野は除外して集計。
 ※共著に関しては、筆頭著者の分
 野にて集計。
 ※令和2年度より共創連携支援部
 の集計開始。

2. 総覧、解説、評論等及び著書数

部門等		年度			
		平成29年	平成30年	平成31年/ 令和元年	令和2年
光科学 研究部門	総説等	2(0)	3(0)	3(0)	5(0)
	著 書	0	1(0)	1(0)	0
物質科学 研究部門	総説等	5(2)	7(3)	5(4)	7(2)
	著 書	1(1)	1(1)	3(2)	1(1)
生命科学 研究部門	総説等	3(1)	7(1)	2(0)	5(2)
	著 書	1(1)	0	0	2(0)
附属社会創造 数学研究センター	総説等	5(0)	2(0)	3(0)	4(2)
	著 書	3(3)	2(0)	4(0)	1(0)
グリーンテクノロジー 研究センター	総説等	3(0)	3(0)	5(1)	4(0)
	著 書	2(2)	4(0)	1(1)	0
共創研究支援部	総説等	-	-	-	0
	著 書	-	-	-	0
計	総説等	15(3)	22(4)	18(5)	25(6)
	著 書	5(5)	8(1)	9(3)	4(0)

()内の数は欧文
 ※客員研究分野は除外して集計。
 ※共著に関しては、筆頭著者の分
 野にて集計。
 ※令和2年度より共創連携支援部
 の集計開始。

3. 国際学会・国内学会発表件数

部門等		年度	平成29年	平成30年	平成31年/ 令和元年	令和2年
光科学 研究部門	国際		29(14)	22(14)	31(7)	10(7)
	国内		41(9)	32(6)	25(6)	13(5)
物質科学 研究部門	国際		32(20)	36(16)	55(11)	39(3)
	国内		46(8)	52(9)	70(11)	68(3)
生命科学 研究部門	国際		23(11)	21(5)	10(4)	0
	国内		38(12)	35(4)	17(7)	20
附属社会 創造数学 研究センター	国際		47(25)	50(30)	51(16)	29(4)
	国内		49(18)	62(26)	34(12)	29(3)
グリーンテクノロジー 研究センター	国際		27(12)	33(14)	31(14)	10(4)
	国内		45(8)	33(8)	31(8)	31(5)
共創連携支援部	国際		-	-	-	1
	国内		-	-	-	0
計	国際		131(70)	162(79)	178(52)	88(18)
	国内		174(47)	214(53)	177(44)	161(16)

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て集計。

※シンポジウム・研究会は除外して集計。

※共著に関しては、筆頭著者の分野にて集計。

※令和2年度より共創連携支援部の集計開始。

II-2. 予算

II-2-1) 全体の予算

(単位：千円)

内訳	平成29年度	平成30年度	平成31年度/令和元年度	令和2年度
業務費	130,195	124,615	237,169	196,168
科学研究費補助金	305,736(74)	479,781(75)	329,427(77)	267,675(79)
その他の補助金	1,100(2)	91,780(3)	450(1)	39,155(5)
寄附金	36,117(21)	22,020(17)	33,730(28)	14,876(14)
受託事業等経費	244,713(25)	189,278(26)	221,306(37)	280,846(36)
(受託研究費)	218,297(13)	166,252(14)	189,442(20)	252,870(26)
(共同研究費)	26,416(12)	23,026(12)	31,864(17)	27,976(10)
合計	717,861(122)	907,474(121)	822,082(143)	798,720(134)

()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 29 年度	平成 30 年度	平成 31 年度/令和元年度	令和 2 年度
光科学 研究部門	科学研究費補助金	112,400(13)	110,027(14)	88,724(13)	85,835(18)
	その他の補助金	0	0	0	0
	寄 附 金 I	9,017(3)	900(1)	3,700(3)	2,500(3)
	寄 附 金 II	500(1)	500(1)	900(1)	810(1)
	受託事業等経費	22,880(2)	24,171(3)	34,350(5)	37,732(6)
	(受託研究費)	22,880(2)	24,171(3)	33,850(4)	37,232(5)
	(共同研究費)	0	0	500(1)	500(1)
	小 計	144,797(19)	135,598(19)	127,674(22)	126,877(28)
物質科学 研究部門	科学研究費補助金	59,466(15)	27,200(8)	53,153(10)	33,437(16)
	その他の補助金	0	0	0	0
	寄 附 金 I	22,100(11)	12,080(9)	26,300(20)	3,600(3)
	寄 附 金 II	1,200(1)	340(1)	0	
	受託事業等経費	32,075(3)	17,744(4)	16,151(8)	19,710(7)
	(受託研究費)	31,719(2)	17,344(3)	14,226(4)	17,710(6)
	(共同研究費)	356(1)	400(1)	1,925(4)	2,000(1)
	小 計	114,841(30)	57,364(22)	95,604(38)	56,747(26)
生命科学 研究部門	科学研究費補助金	35,000(8)	39,100(11)	29,187(12)	14,445(7)
	その他の補助金	0	5,430(1)	450(1)	0
	寄 附 金 I	200(1)	7,700(4)	2,000(2)	6,300(3)
	寄 附 金 II	0	0	30(1)	0
	受託事業等経費	28,767(3)	26,862(4)	17,175(3)	22,775(1)
	(受託研究費)	27,987(1)	26,082(2)	16,395(1)	22,775(1)
	(共同研究費)	780(2)	780(2)	780(2)	0
	小 計	63,967(12)	79,092(20)	48,842(19)	43,520(11)
附属社会 創造数学 研究センター	科学研究費補助金	58,570(26)	64,592(27)	44,540(23)	41,170(21)
	その他の補助金	0	5,430(1)	0	14,850(1)
	寄 附 金 I	1,000(1)	0	0	500(1)
	寄 附 金 II	0	0	0	0
	受託事業等経費	119,397(10)	113,845(10)	134,088(12)	146,072(12)
	(受託研究費)	104,005(6)	98,655(6)	118,888(8)	128,260(7)
	(共同研究費)	15,392(4)	15,190(4)	15,200(4)	17,812(5)
	小 計	178,967(37)	183,867(38)	178,628(35)	202,592(35)

部門等	研究費	平成 29 年度	平成 30 年度	平成 31 年度/令和元年度	令和 2 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	39,500(10)	238,162(14)	101,550(9)	89,750(14)
	その他の補助金	0	0	0	6,244(2)
	寄 附 金 I	1,100(2)	0	800(1)	1,165(3)
	寄 附 金 II	1,000(1)	500(1)	0	
	受託事業等経費	37,586(4)	4,656(3)	16,742(7)	54,557(10)
	(受託研究費)	29,198(1)	4,656(3)	6,083(3)	46,893(7)
	(共同研究費)	8,388(3)	0	10,659(4)	7,664(3)
	小 計	79,186(17)	243,318(18)	119,092(17)	151,716(29)
その他	科学研究費補助金	800(2)	700(1)	4,210(5)	3,039(3)
	その他の補助金	1,100(2)	80,920(1)	0	18,061(2)
	寄 附 金 I	0	0	0	0
	寄 附 金 II	0	0	0	0
	受託事業等経費	4,008(3)	2,000(2)	2,800(2)	0
	(受託研究費)	2,508(1)	0	0	0
	(共同研究費)	1,500(2)	2,000(2)	2,800(2)	0
	小 計	5,908(7)	83,620(4)	7,010(7)	21,100(5)

() 内の数は受け入れ件数。 寄附金 I : 申請による財団等からの研究補助金。 寄附金 II : I 以外のもの。

II-3. 外国人研究者の受入(招へい)状況

a. 年度別統計表

部門等	年			
	平成 29 年度	平成 30 年度	平成 31 年度/ 令和元年度	令和 2 年度
光科学研究部門	2	13	2	0
物質科学研究部門	15	9	6	0
生命科学研究部門	2	4	3	0
附属社会創造数学研究センター	14	12	6	0
附属グリーンナノテクノロジー 研究センター	12	4	5	0
計	45	32	22	0

II-4. 修士学位及び博士学位の取得状況

II-4-1) 令和元年度 修士学位

情報科学研究科

- 大塚 涼平 : テーパーキャピラリーを用いた光圧によるナノ粒子の輸送と選別
- 砂場 侑司 : ナノ光渦場とナノ物質の相互作用に関する研究
- 西川 洋平 : D ナノ加工のための可視パルス光を利用した2光子重合加工装置の構築
- 明石 大輝 : 金被覆銀ナノワイヤーTERSプローブの開発
- 石田 拓都 : 低侵襲ナノワイヤーを用いた単一細胞への物質導入法の開発
- 杉岡 祥治 : 探針増強ラマン分光法によるアンジップグラフェンナノリボンの評価
- 中尾 佑輔 : 銀ナノワイヤ上における金ナノ粒子析出とナノ熱源としての利用
- 村杉 拓 : 金属有機構造体を被覆した金属ナノワイヤーによる選択的表面増強ラマン散乱
- 高嶋 佑伍 : 層状コバルト酸化物 $Ba_{1/3}CoO_2$ エピタキシャル薄膜の作製と熱電特性
- 龔 李治坤 : Fabrication and Characterization of Deep Ultraviolet Transparent Oxide Semiconductor $SrSnO_3$ Thin Film Transistor
- 菅浪 誉騎 : モード超強結合電極の構築とそのホットエレクトロン移動挙動の観測 (Fabrication of modal ultra-strong coupling anode and observation of its hot-electron transport phenomena)
- 大西 梓 : モード強結合が形成する増強電場における量子ドットの発光特性評価 (Emission properties of quantum dots on electric field formed by modal strong coupling)

生命科学院

- 植田 海透 : 外部刺激に応答するミオシン阻害剤の開発
- 斉 嘉俊 : アミド置換ジアセチレン誘導体の圧力誘起光反応における末端アルキル鎖の炭素数偶奇の影響
- 林 潤澤 : モータータンパク質を駆動するためのヘミインジゴ型光応答性高エネルギー化合物の合成の試み
- 関澤 祐佑 : pH変化による高分子ブラシを用いた金ナノロッドの可逆的な配向変化
- 岡田 直大 : DNA伸長酵素を用いた高感度蛍光プローブの開発
- Uday Sankar Basak : Study on Identification of Leader and Follower Agents and its Interaction Domain from Trajectories in a Collectively Moving Colony (協同的コロニーの軌道データによる先導従エージェントとそれらの相互作用領域の同定に関する研究)

総合化学院

- 佐藤 賢斗 : 遷移金属トリカルコゲナイド層間化合物の研究

環境科学院

- Hanjun Zhao : Development of Rhodamine6G-Anthracene Linked Molecules for Spatiotemporal Detection of Singlet Oxygen
- 高橋 優太 : 無機カチオンと[2.2.2]cryptandからなる超分子カチオンを導入した $[Ni(dmit)_2]$ 塩の構造相転移
- 蓮尾 直洋 : 超分子アプローチに基づくハロゲン化アルキルアンモニウムの結晶内分子運動の実現

理学院

- 黄倉 侑人 : 導波路結合受光・発電分離型光電変換素子に向けた光進行方向変換層の研究
- 周 子凌 : クリーンユニットシステムプラットフォーム (CUSP) とその派生アプリケーションの開発
- 余 佳興 : スペクトル分割型多接合型に対する非対称導波路結合方式の優位性と当該導波路作製のための準備
- 小森 至瑠 : 高次トポロジカル物質のエキゾチックな電子状態に関する理論研究
- 松永 哲 : 微生物を用いた汚水処理の数理モデルと定量的予測に向けて
- 森 篤志 : 体積保存反応拡散系による時刻どうモデル近似
- 茅原 拓未 : 雑音誘起現象の存在に関する計算機援用証明

- 越後 谷駿 : 繊毛虫ソライロラップムシの遊泳と固着の行動切替
- 松本 絃汰 : 有殻アメーバ *Arcella* sp. の細胞運動の力学計測

II-4-2) 令和元年度 博士学位

情報科学研究科

- 曹艳凤 (CAO Yanfeng) : Study on Efficient Water Oxidation under Modal Strong Coupling Conditions (モード強結合下における水の酸化反応の高効率化に関する研究)
- 山口 和志 : 2光子顕微鏡法を用いた補償光学による生体組織深部の可視化解析

環境科学院

- 李 思敏 (Li Simin) : Multifunctional systems based on supramolecular motions in $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]^-$ magnetic crystals ($[\text{Ni}(\text{dmit})_2]^-$ 磁性結晶における超分子運動に基づく複合機能系)

生命科学院

- Shariful Haque : Driving the photochemical reaction cycle of proteorhodopsin and bacteriorhodopsin analogues by photoisomerization of azo chromophores

理学院

- 岡本 守 : ある粒子反応拡散系モデルの数学的取り扱いについて

II-4-3) 大学院生在籍数

研究科名	年	修 士			博 士		
		平成30年	令和元年	令和2年	平成30年	令和元年	令和2年
理 学 院		6	5	14	3	0	5
環 境 科 学 院		4	7	10	10	14	13
情 報 科 学 研 究 科		34	30	25	13	20	16
生 命 科 学 院		13	19	12	11	14	5
総 合 化 学 院		3	3	4	0	0	4
計		60	74	65	37	47	43

III.研究支援体制

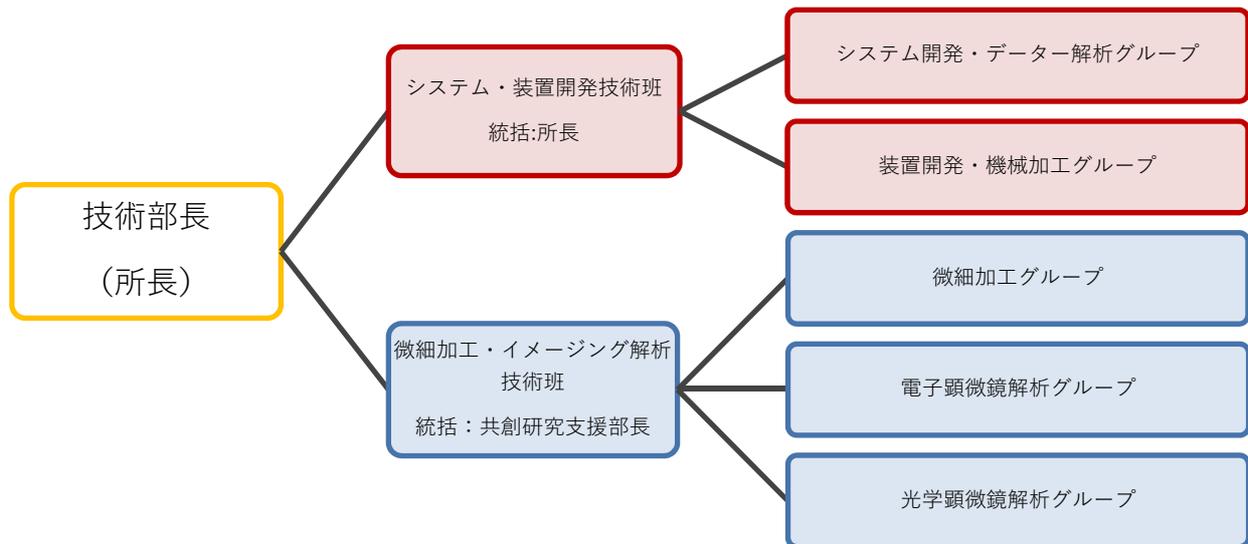
III-1. 技術部

技術部は、システム・装置開発技術班、微細加工・イメージング解析技術班の2班で構成されており、令和2年度現在では10名の技術職員が配置されている。

システム・装置開発技術班は、広報・情報・ネットワーク・研究所のWebサイト管理運営・IoT技術を駆使したシステム開発などを行うシステム開発・データ解析グループと、各種工作機械や3DCADシステム・3Dプリンタなどを利用して市販されていない研究機器などの製作にあたる装置開発・機械加工グループで構成される。近年ではシングルボードコンピュータを用いた装置制御の需要にも対応し、数多くの研究機器の開発・製作を行っている。

微細加工・イメージング解析技術班は、微細加工グループ、電子顕微鏡解析グループ、光学顕微鏡解析グループから構成されている。各グループでは、クリーンルームや微細加工装置、電子顕微鏡、光学顕微鏡といった最先端共用設備の維持・管理や装置利用の指導に携わり、また技術相談も受けている。

他にも技術部では、研究所全体に関わる業務として、研究所行事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。



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。図書室はカードロックシステムを導入しており、研究所の教職員、学生は24時間利用できる。

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。

1. 蔵書冊数

年 度	平成29年*	平成30年*	令和元年*	令和2年*
和 書	5,316	5,339	5,339	5,438
洋 書	17,225	17,260	17,248	17,257
計	22,541	22,599	22,583	22,695

2. 所蔵雑誌種類数

年 度	平成29年*	平成30年*	令和元年*	令和2年*
和雑誌	107	106	103	103
洋雑誌	385	385	383	383
計	492	491	486	486

3. 雑誌受入種類数

年 度	平成29年*	平成30年*	令和元年*	令和2年*
和雑誌	30	32	28	25
洋雑誌	5	3	4	3
計	35	35	32	28

4. 学外文献複写数

年 度	平成29年*	平成30年*	令和元年*	令和2年*
依 頼	48	20	19	9
受 付	65	57	33	30

* 北キャンパス図書室全体としての数字

b. 学術情報へのアクセス

図書室では、共用のパソコンが1台設置されているほか、平成30年度末に設置された無線LAN (HINES-WLAN と eduroam) が利用可能である。

北海道大学構成員は持ち込んだノートパソコン等のデバイスからHINES-WLANに接続することで、本学が契約する約18,000タイトルの電子ジャーナルや約58,000タイトルの電子ブックを閲覧できる。また、“Web of Science” “CAS SciFinder-n” 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も利用可能である。これらの学術情報は、平成22年度より運用を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ている。また、学外の研究者もeduroamのアカウントがあれば、インターネットに接続することができる。

近年の学術情報の電子化を踏まえ、平成30年度からは図書室内でデータベースの利用ガイドンスや学術情報まわりの動向に関する講習会が開催されている。令和2年度は新型コロナウイルスの影響もあり、オンラインによる講習会も開催されている。

IV.資料

IV-1. 沿革

超短波研究所

- 昭和16. 1 超短波研究室が設置される
- 18. 1 超短波研究所に昇格
第二部門、第四部門、第六部門、第七部門開設
- 18. 3 第三部門開設
- 19. 1 第一部門、第五部門開設
- 20. 1 第八部門開設

応用電気研究所

- 21. 3 応用電気研究所と改称する
部門構成：電気第一部門、電気第二部門、物理第一部門、物理第二部門、化学部門、
医学及び生理第一部門、医学及び生理第二部門、数学部門
- 24. 5 北海道大学附置研究所となる
- 36. 4 メディカルエレクトロニクス部門新設
- 37. 4 電子機器分析部門新設
- 38. 4 メディカルトランスデューサ部門新設
- 39. 2 研究部門は一部名称変更等により次のとおりとなる(昭和38年4月1日適用)
電子回路部門、電波応用部門、物理部門、化学部門、生理部門、生体物理部門、
応用数学部門、メディカルエレクトロニクス部門、電子機器分析部門、メディカルトランスデューサ
部門
- 39. 4 メディカルテレメータ部門新設
- 42. 6 強誘電体部門新設
- 46. 4 生体制御部門新設
- 48. 4 附属電子計測開発施設新設
- 50. 4 光計測部門新設(10年時限)
- 53. 4 感覚情報工学部門新設
- 60. 3 光計測部門廃止(時限到来)
- 60. 4 光システム工学部門新設(10年時限)

電子科学研究所

- 平成4. 4 研究所改組により電子科学研究所となる
- 14. 4 附属電子計測開発施設を附属ナノテクノロジー研究センターに改組転換
- 15. 5 電子情報処理研究部門感覚情報研究分野を廃止
- 17. 4 電子計測制御研究部門適応制御研究分野を廃止
電子計測制御研究部門ナノシステム生理学研究分野を新設
- 17. 10 電子材料物性研究部門光材料研究分野をナノ光高機能材料研究分野に名称変更
電子情報処理研究部門信号処理研究分野を極限フォトンプロセス研究分野に名称変更
電子情報処理研究部門計算論的生命科学研究分野を新設
寄附研究部門「ニコンバイオイメージングセンター研究部門」を新設(開設期間3年)
英国・ニューカッスル大学ナノスケール科学技術研究所との学術交流協定締結(22.10 協定終了)
- 19. 4 附属ナノテクノロジー研究センターの「10年時限」撤廃
- 19. 10 電子材料物性研究部門相転移物性研究分野を量子情報フォトンクス研究分野に名称変更
電子機能素子研究部門超分子分光研究分野を廃止
電子計測制御研究部門自律調節研究分野を分子生命数理研究分野に名称変更
- 20. 1 バングラデシュ・ダッカ大学物理化学生物薬学先端科学研究センターとの学術交流協定締結
(21.12 大学間交流協定へ移行 責任部局：大学院歯学研究科)
- 20. 1 台湾・国立台湾師範大学光電科学技術研究所との学術交流協定締結
- 20. 4 台湾・国立台湾大学物理学科との研究交流に関する覚書締結

- 20. 6 米国・カリフォルニア大学ロサンゼルス校カリフォルニアナノシステム研究所を代表するカリフォルニア大学評議会との学術交流協定締結
- 20.10 電子情報処理研究部門極限フォトンプロセス研究分野をスマート分子研究分野に名称変更
 附属ナノテクノロジー研究センターナノ材料研究分野を極限フォトンプロセス研究分野に名称変更
 附属ナノテクノロジー研究センターナノデバイス研究分野をバイオ分子ナノデバイス研究分野に名称変更
 寄附研究部門「ニコンバイオイメージングセンター研究部門」開設期間更新（更新期間3年）
- 22. 3 フランス・リヨン高等師範学校との学術交流協定締結
- 22. 4 電子材料物性研究部門ナノ光高機能材料研究分野をコヒーレントX線光学研究分野に名称変更
 電子機能素子研究部門分子認識素子研究分野を光波制御材料研究分野に名称変更
 電子計測制御研究部門量子計測研究分野を生体物理研究分野に名称変更
 附属ナノテクノロジー研究センターナノ理論研究分野をナノ光高機能材料研究分野に名称変更
 連携研究部門理研連携研究分野を新設
- 22. 9 ドイツ・オットー・フォン・ゲーリケ大学マクデブルク自然科学部との学術交流協定締結
- 23. 1 台湾・国立交通大学理学院との学術交流協定締結
- 23. 9 寄附研究部門「ニコンバイオイメージングセンター研究部門」開設期間満了
- 24. 4 改組に伴い研究部門名、研究分野名を全面改称
 附属ナノテクノロジー研究センターを附属グリーンナノテクノロジー研究センターに改組転換
 研究支援部を新設
 支援部構成：ニコンイメージングセンター、国際連携推進室、ナノテク連携推進室
- 25. 7 ベルギー・ルーヴェン・カトリック大学との学術交流協定締結
- 25.11 英国・グラスゴー大学理工学部との学術交流協定締結
- 26. 3 中国・吉林大学、ハル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
- 28. 6 産業創出分野「新概念コンピューティング産業創出分野」を新設（設置期間2年10月）
- 30. 6 研究支援部を共創研究支援部へ改組
 連携研究部門台湾国立交通大学理学院を新設
- 31. 4 産業創出分野「新概念コンピューティング産業創出分野」設置期間更新（更新期間3年）
- 令和元.10 中国武漢紡織大学化学・化学工学院との学術交流協定締結
- 令和2. 3 連携研究部門人間知・脳・AI研究教育センターを新設
- 令和2. 9 中国・香港城市大学理学部との学術交流協定締結
 中国・香港城市大学工学部との学術交流協定締結
- 令和3. 2 台湾・国立陽明交通大学理学院との学術交流協定締結

[歴代所長]

超短波研究室	昭和16年2月20日～昭和18年1月31日	蓑島 高	
超短波研究所	昭和18年2月1日～昭和21年3月31日	蓑島 高	
応用電気研究所	昭和21年4月1日～昭和21年9月10日	蓑島 高	
	昭和21年9月11日～昭和35年7月31日	浅見 義弘	
	昭和35年8月1日～昭和38年7月31日	東 健一	
	昭和38年8月1日～昭和45年3月31日	松本 秋男	
	昭和45年4月1日～昭和48年3月31日	望月 政司	
	昭和48年4月1日～昭和51年3月31日	馬場 宏明	
	昭和51年4月1日～昭和54年3月31日	吉本 千禎	
	昭和54年4月1日～昭和57年3月31日	馬場 宏明	
	昭和57年4月1日～昭和60年3月31日	山崎 勇夫	
	昭和60年4月1日～昭和63年3月31日	達崎 達	
	昭和63年4月1日～平成4年4月9日	安藤 毅	
	電子科学研究所	平成4年4月10日～平成6年3月31日	安藤 毅
		平成6年4月1日～平成9年3月31日	朝倉 利光
		平成9年4月1日～平成13年3月31日	井上 久遠
		平成13年4月1日～平成15年3月31日	下澤 楯夫
		平成15年4月1日～平成15年9月30日	八木 駿郎
平成15年10月1日～平成17年9月30日		西浦 廉政	
平成17年10月1日～平成21年9月30日		笹木 敬司	
平成21年10月1日～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	
平成29年4月1日～令和3年3月31日		中垣 俊之	
	令和3年4月1日～現在	居城 邦治	

[名誉教授]

昭和32年4月	(故) 蓑島 高
昭和37年4月	(故) 浅見 義弘
昭和43年4月	(故) 東 健一
昭和45年4月	(故) 松本 秋男
昭和55年4月	(故) 吉本 千禎
昭和57年4月	(故) 横澤彌三郎
昭和62年4月	(故) 羽鳥 孝三
	(故) 馬場 宏明
	(故) 松本 伍良
昭和63年4月	(故) 達崎 達
	山崎 勇夫
平成7年4月	安藤 毅
平成9年4月	朝倉 利光
	小山 富康
平成13年4月	(故) 井上 久遠
	永井 信夫
平成18年4月	八木 駿郎
平成19年4月	狩野 猛
	下澤 楯夫
	下村 政嗣
	伊福部 達
平成21年4月	栗城 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
令和3年4月	三澤 弘明

IV-2. 建物

本研究所は、平成15年度に現在の創成科学研究棟新築（北21西10）に伴い、ナノテクノロジー研究センター及び関連研究分野が北12条西6丁目から移転し、平成20年度に北キャンパス総合研究棟5号館が新築され、平成21年度に同館5階の一部が増築された。平成21年度には中央キャンパス総合研究棟2号館（旧B棟）が改修された。

建物名称	構造	建面積 ㎡	延面積 ㎡	建築年度
創成科学研究棟	鉄筋コンクリート造5階建	—	4,154	平成15年度
北キャンパス総合研究棟5号館	鉄筋コンクリート造5階建	1,104	5,419 (116)	平成20年度 (平成21年度増築)
中央キャンパス総合研究棟2号館	鉄筋コンクリート造5階建	—	1,294	平成21年度 (改修)
計		—	10,867	

延面積欄の（ ）内の数字は増築分で内数

IV-3. 現員（令和2年度）

（3月末日現在）

職名	人数
教授	15(8)
准教授	13
講師	0
助教	16
特任教授	1
特任准教授	1
特任講師	0
特任助教	7
教員小計	53(8)
技術部	10
合計	63(8)

（ ）内の数字は客員で外教

IV-4. 教員の異動状況（令和2年度）

○転入状況

所属部門	職名	氏名	採用年月日	前職
グリーンテクノロジー研究センター	特任教授	三澤 弘明	R2. 4. 1	電子科学研究所教授
グリーンテクノロジー研究センター	准教授	小門 憲太	R2. 4. 1	北海道大学大学院理学研究院助教
グリーンテクノロジー研究センター	特任准教授	孫 泉	R2. 4. 1	北海道大学大学院理学研究院特任講師
グリーンテクノロジー研究センター	特任助教	ZU SHUAI	R2. 4. 1	電子科学研究所博士研究員
生命科学研究	教授	三上 秀治	R2. 6. 1	東京大学大学院理学系研究科助教
グリーンテクノロジー研究センター	特任准教授	押切 友也	R2. 9. 1	電子科学研究所助教
物質科学研究	助教	PALYAM SUBRAMANYAM	R2. 12. 1	Indian Institute of Technology Hyderabad Doctoral Course
グリーンテクノロジー研究センター	助教	薛 晨	R2. 12. 1	西北工業大学柔性電子研究院博士研究員
グリーンテクノロジー研究センター	助教	黄 瑞康	R2. 12. 1	中山大学化学学院リサーチアソシエイト
共創研究支援部	特任助教	富菜 雄介	R3. 1. 1	日本学術振興会特別研究員
社会創造数学研究センター	特任助教	SATTARI SULIMON	R3. 2. 1	電子科学研究所博士研究員

○転出状況

所属部門	職名	氏名	退職年月日	転出先
物質科学研究	助教	柚山 健一	R2. 6. 30	大阪市立大学大学院理学研究科講師
グリーンテクノロジー研究センター	特任准教授	孫 泉	R2. 8. 15	北京大学長三角光電科学研究院副院長
物質科学研究	准教授	山ノ内 路彦	R2. 8. 31	北海道大学大学院情報科学研究院准教授
光科学研究	助教	猪瀬 朋子	R2. 9. 30	京都大学高等研究院特定助教
社会創造数学研究センター	准教授	寺本 央	R3. 3. 31	関西大学システム理工学部准教授
社会創造数学研究センター	特任助教	大野 航太	R3. 3. 31	中央大学助教

(R3. 3. 31)

IV-5. 構成員 (令和2年度)

所 長	中 垣 俊 之	客員教授	湊 真 一 (京都大学)
光科学研究部門		人間知・脳・AI 研究教育センター連携	
光システム物理研究分野		台湾国立交通大学理学院連携	
教 授	笹 木 敬 司	附属グリーンナノテクノロジー研究センター	
准教授	田 口 敦 清	センター長 (兼)	松 尾 保 孝
助 教	PIN CHRISTOPHE LOUIS MARIE	グリーンフォトニクス研究分野	
ナノ材料光計測研究分野		特任教授	三 澤 弘 明
教 授	雲林院 宏	特任准教授	押 切 友 也
准教授	平 井 健 二	特任助教	ZU SHUAI
コヒーレント光研究分野		光電子ナノ材料研究分野	
教 授	西 野 吉 則	教 授	西 井 準 治
助 教	鈴 木 明 大	准教授	小 野 円 佳
		助 教	藤 岡 正 弥
		助 教	MELBERT JEEM
物質科学研究部門		ナノ光機能材料研究分野	
分子フォトニクス研究分野		ナノアセンブリ材料研究分野	
教 授	BIJU VASUDEVAN PILLAI	教 授	中 村 貴 義
准教授	高 野 勇 太	准教授	小 門 憲 太
助 教	PALYAM SUBRAMANYAM	助 教	高 橋 仁 徳
スマート分子材料研究分野		助 教	薛 晨 康
教 授	玉 置 信 之	助 教	黄 瑞
准教授	K I M Y U N A		
助 教	松 尾 和 哉	附属社会創造数学研究センター	
ナノ構造物性研究分野		センター長 (兼)	長 山 雅 晴
教 授	石 橋 晃	人間数理研究分野	
准教授	近 藤 憲 治	教 授	長 山 雅 晴
薄膜機能材料研究分野		准教授	小 林 康 明
教 授	太 田 裕 道	准教授	青 沼 仁 志
助 教	CHO HAI JUN	助 教	劉 逸 侃
生命科学部門		助 教	西 野 浩 史
光情報生命科学研究分野	三 上 秀 治	特任助教	大 野 航 太
生体分子デバイス研究分野		データ数理研究分野	
教 授	居 城 邦 治	教 授	小松崎 民 樹
准教授	三 友 秀 之	准教授	寺 本 央
助 教	与那嶺 雄 介	助 教	水 野 雄 太
連携研究部門		助 教	西 村 吾 朗
理研連携研究分野		特任助教	TAYLOR JAMES NICHOLAS
社会連携客員研究分野		特任助教	田 畑 公 次
客員教授	穂 田 宗 隆 (東京工業大学)	特任助教	SATTARI SULIMON
客員教授	川 上 伸 昭 (宮城大学)	知能数理研究分野	
客員教授	川 合 眞 紀 (自然科学研究機構)	教 授	中 垣 俊 之
拠点アライアンス連携研究分野		准教授	佐 藤 勝 彦
客員教授	小 田 祥 久 (国立遺伝学研究所)	准教授	佐 藤 讓
客員教授	根 本 知 己 (自然科学研究機構)	助 教	西 上 幸 範
新概念コンピューティング研究分野		実験数理研究分野	
客員教授	山 岡 雅 直 (株)日立製作所)	共創研究支援部	
客員教授	竹 本 享 史 (株)日立製作所)	部長 (兼)	松 尾 保 孝
		ニコソイメージングセンター	
		センター長 (兼)	中 垣 俊 之
		特任助教	富 菜 雄 介
		国際連携推進室	
		室長 (兼)	BIJU VASUDEVAN PILLAI
		ナノテク連携推進室	
		室長 教授	松 尾 保 孝
		特任助教	小 田 島 聡

技術部

技術部長（兼）	中 垣 俊 之
システム・装置開発技術班	
班 長	武 井 将 志
技術専門職員	楠 崎 真 央
技術専門職員（主任）	遠 藤 礼 暁
技術専門職員	今 村 逸 子
技術職員	富 樫 愛 采
微細加工・イメージング解析技術班	
班 長	小 林 健太郎
技術専門職員（主任）	大 西 広
技術専門職員	中 野 和佳子
技術専門職員（兼）	今 村 逸 子
技術専門職員（主任）	平 井 直 美
技術職員	森 有 子
契約職員・短時間勤務職員	
博士研究員	岩 崎 秀
学術研究員	山 田 美 和
〃	酒 井 恭 輔
〃	山 口 由美子
〃	熊 本 淳 一
〃	浪 花 啓 右
〃	安ヶ平 裕 介
〃	松 永 哲
〃	HOSSAIN MD MOTALEB
非常勤研究員	ZHANG XI
〃	SHIVAKUMAR KILINGARU ISHWARA
研究支援推進員	佐々木 彩 乃
〃	駒 井 京 子
〃	石 田 裕 美
事務補佐員	山 崎 涼 子
〃	奥 原 亜 季
〃	伊 藤 春 奈
〃	岡 内 啓 子
〃	柳 亮 輔
技術補佐員	新井田 雅 学
事務補助員	石 出 希公代
〃	石 田 真 美
〃	石 野 松 美
〃	藤 原 由美恵
〃	浦 田 絵 美
〃	米 森 寛 子
〃	岩 下 利 香
技術補助員	澤 本 マサ江
〃	堂 前 愛
〃	富 澤 ゆかり

（令和3年3月末日現在）

北海道大学電子科学研究所

〒001-0020 札幌市北区北20条西10丁目
TEL (011)706-9102 FAX (011)706-9110

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