

研
究
活
動

北海道大学電子科学研究所

平成二十一年度

研究活動

北海道大学電子科学研究所

平成21年度

—— 点検評価報告書 ——

Research Activities

Research Institute for Electronic Science
Hokkaido University

2009-2010

北海道大学電子科学研究所

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

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

平成23年4月発行

二〇〇九

平成22年発行

はじめに

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



当研究所はこのような新学術領域の創成をさらに加速するため、2007年より東北大学多元物質科学研究所、東京工業大学資源化学研究所、大阪大学産業科学研究所と共同で「ポストシリコン物質・デバイス創製基盤技術アライアンス」を発足させ、附置研究所間の異分野の研究者の共同研究を積極的に推進してきました。本アライアンスから生み出された研究成果は、国内外から高く評価され、その結果、2009年6月にはこれに九州大学先導物質化学研究所を加えた5研究所による「物質・デバイス領域ネットワーク型共同研究拠点」が、文部科学省より正式に認定されました。本ネットワーク型共同研究拠点は、文部科学省による共同利用・共同研究拠点改革において新規導入されたものであり、独創的な科学技術創出の源泉になるものと大きな期待が寄せられています。さらに、当研究所において培われた先端的なナノテクノロジー研究に関する「知」や、「先端設備・技術」を広く社会に還元するため、2007年より文部科学省の先端研究施設共用イノベーション創出事業ナノテクノロジーネットワークプログラムに「北海道イノベーション創出ナノ加工・計測支援ネットワーク (HINTS)」拠点として参画するとともに、2010年度には同省の「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」の拠点にも採択され革新的太陽電池の開発を推進しており、新産業技術の創出においても大きな貢献を果たしています。

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

平成23年3月

北海道大学 電子科学研究所長

三 澤 弘 明

目 次

組織図

I. 研究成果・活動

電子材料物性研究部門	
光電子物性研究分野……………	4
量子情報フォトンクス研究分野……………	11
有機電子材料研究分野……………	17
ナノ光高機能材料研究分野……………	22
電子機能素子研究部門	
量子機能素子研究分野……………	30
光波制御材料研究分野……………	35
細胞機能素子研究分野……………	40
電子計測制御研究部門	
光システム計測研究分野……………	46
生体物理研究分野……………	53
分子生命数理研究分野……………	57
ナノシステム生理学研究分野……………	67
電子情報処理研究部門	
情報数理研究分野……………	74
神経情報研究分野……………	81
スマート分子研究分野……………	87
計算論的生命科学研究分野……………	91
並列分散処理研究分野（客員研究分野）……………	96
附属ナノテクノロジー研究センター	
極限フォトンプロセス研究分野……………	98
バイオ分子ナノデバイス研究分野……………	107
ナノ理論研究分野……………	114
寄附研究部門	
ニコンバイオイメージングセンター……………	116
ナノテク支援室……………	121
連携研究室……………	125

II. 予算

II-1. 研究成果公表に関する各種の統計表……………	131
II-2. 予算……………	133
II-3. 外国人研究者の受入状況……………	134
II-4. 修士学位及び博士学位の取得状況……………	135

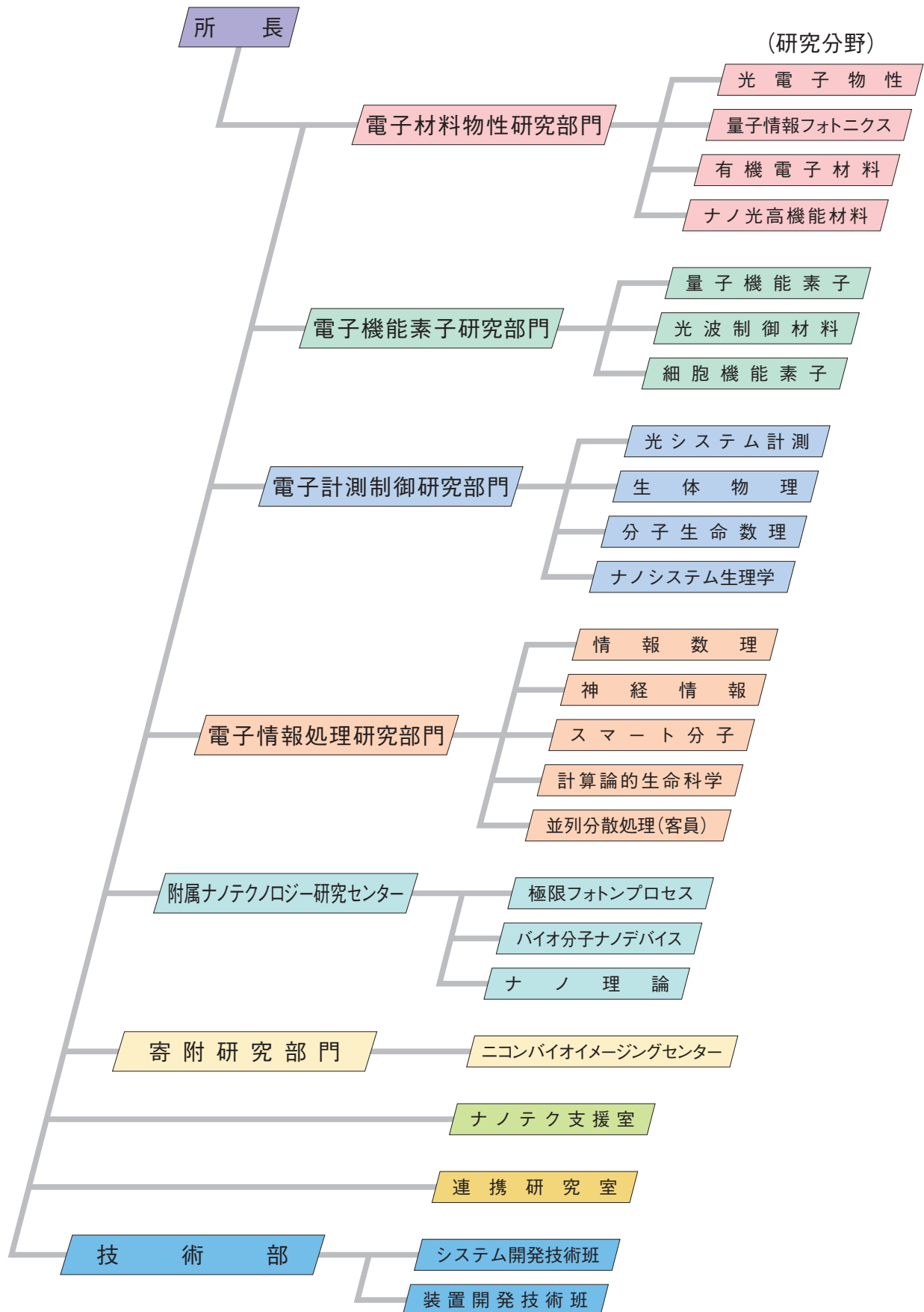
III. 研究支援体制

III-1. 技術部……………	139
III-2. 学術情報……………	140

IV. 資料

IV-1. 沿革……………	143
IV-2. 建物……………	146
IV-3. 現員……………	146
IV-4. 教員の異動状況……………	147
IV-5. 構成員……………	148

組 織 図



I. 研究成果・活動

電子材料物性研究部門

研究目的

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



光電子物性研究分野

教 授 太田信廣（東大院、理博、1998.10～）
准教授 中林孝和（東大院、理博、2002.7～）
助 教 飯森俊文（京大院、理博、2003.6～）
非常勤研究員 Mohan S. Mehata (2007.11～2009.10)、
Xiaoming Liu (2008.11～)

院 生

博士課程

大島瑠利子、Md. Serajul Islam、Farzana Sabeth

修士課程

太下周吾、岡田孟矩、澄川亮哉、秦 昊

1. 研究目標

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

2. 研究成果

(a) 電子・イオン伝導体における電気伝導度の光照射効果

π -共役ポリマーであるポリフルオレン (PFO) やポリフェニレンビニレン (PPV) は、効率的な光電変換材料として良く知られており、発光ダイオード、薄膜トランジスタ、太陽電池、レーザー発振等への応用も含めて多くの研究がなされている。これらの物質を電界発光素子や太陽電池作成のための光エネルギー変換材料として考えた場合、電子励起状態の電子構造やダイナミクスが電場印加時にどのような振舞をするかを分子レベルで調べることは、エネルギー変換効率や反応機構および物質の安定性を考える上で非常に重要である。そこで、PPV の誘導体であり、下記の構造を有する S3-PPV を対象に、電場吸収および電場発光測定を行い、これら π -共役ポリマーの電子励起状態における電子構造および電場印加時の電子励起状態におけるダイナミクスを調べた。

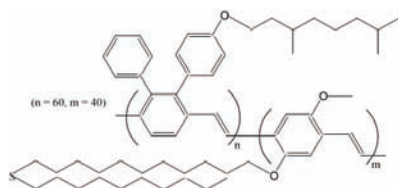


図 1. S3-PPV の分子構造。

台湾の共同研究者により合成された試料をトルエン溶媒に溶かし、それを透明電極 ITO が蒸着された石英基板上にスピンキャスト膜を作成するか、もしくは溶媒中にこれらの試料とポリメタクリル酸メチル (PMMA) を同時に溶かして、試料が PMMA にドーパされたスピンキャスト膜を作成した。キャストしたポリマー膜の上からアルミ (Al) を蒸着し、ITO と Al を電極として電場を印加している。電場吸収スペクトルおよび電場発光スペクトルの測定は、自作の電場吸収・電場発光同時測定装置を用いて行った。一定周波数の交流電場を印加し、二倍の周波数に同期した変調成分をロックイン・アンプを用いて測定している。電場吸収測定では、電場の方向と励起光の偏光方向のなす角度 (χ) を変えて行った。発光強度は吸収強度にも依存することから、電場発光測定は、電場による吸収強度の変化のない励起波長を選択して行っている。蛍光減衰曲線の電場印加による変化も自作の装置を用いて行った。電場発光スペクトルは国内外を問わず、これまでほとんど測定されておらず名前が定まっているわけではないが、電界発光のエレクトロルミネッセンス (EL) と区別して、エレクトロフォトルミネッセンス (E-PL) と我々は最近よんでいる。

S3-PPV ポリマーの電場吸収スペクトルは、吸収スペクトルの 1 次微分と 2 次微分の線形結合として再現することができる。2 次微分の寄与が大きく、光励起に伴って電気双極子モーメントが大きく変化することを示している。すなわちこれら π -共役ポリマーの電子励起状態は電荷移動状態と考えられる。E-PL スペクトルは励起波長に依存する。例えば、471、388、300 nm 励起における E-PL スペクトルが図 2 に示してある。いずれも発光スペクトルの零次微分と 1 次微分の線形結合として再現することができる。零次微分の寄与は、発光強度が電場により変化（強度増加もしくは減少）することを示している。長波長励起では、電場により発光強度が増加し、短波長励起では減少（電場消光）することがわかる。励起エネルギーを大きくするにつれて電場消光が顕著になる。E-PL スペクトルの励起波長依存

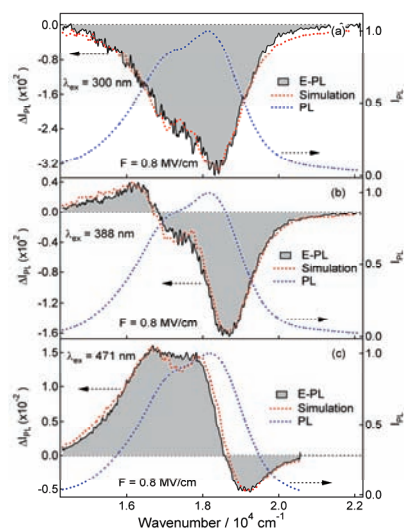


図 2. S3-PPV の発光スペクトル (PL) および E-PL スペクトルの励起波長依存性。赤は 1 次微分と零次微分によるシミュレーション。

性は、PFO の場合にも観測されるが、光誘起電子移動反応を示す電子供与体と受容体をドーブした系、例えばエチルカルバゾールとテレフタル酸メチルの場合は観測されず、 π -共役ポリマーに特有なものようである。発光強度の変化として二つの理由が考えられる。一つは、電場により無輻射遷移速度が変化する場合であり、他方は発光状態の濃度が電場により変化する場合である。そこで、発光減衰曲線の電場効果を測定した所、電場消光を示す励起波長では、例えば図3に示すような結果が得られた。励起直後の蛍光強度が電場印加時に大きく減少することを示している。すなわち、光励起により電荷分離状態が生成し、その状態から電場印加によりイオンへの解離が起こっていると考えられる。この電場により誘導される解離は、励起エネルギーが大きい程より効率的に起こるようになり、発光状態の生成量が減少することになる。この減少は、どの π -共役ポリマーにも共通のように思われる。ただし、S3-PPVの長波長励起における蛍光の電場増強は、電場により蛍光寿命が長くなることから、無輻射遷移速度が電場により減少するためであり、電荷状態の解離がそれほど起こらないことも相まって観測されたと推測される。このような励起エネルギーに依存した電子励起状態からの電場誘起のイオンへの解離は π -共役ポリマー特有であり、効率的な光電変換素子としての機能と密接に関係していると考えている。

(b) 有機超伝導体の光照射効果

固体の様々な機能性、たとえば磁性や電子伝導性、および光学特性などの光物性は、物質の電子状態と密接に関連している。これら電子状態や相状態を、光や外部電場などの外部刺激を用いて自由にスイッチングさせることのできる新しい物質や技術の開発は、物質科学における重要なテーマの一つである。我々は、電気を流す有機結晶である有機超伝導体の電気物性に着目し、光照射と外部電場を用いた物性制御に関して研究をすすめてきた。特に、光を用いることで超伝導状態を誘起することを目的として、超伝導状態

へ相転移を示す有機電荷移動錯体を対象に研究を行っている。有機電荷移動錯体は、圧力や静磁場などの外部環境を変化させると、一つの物質においても金属状態、半導体状態、および超伝導といった多彩な相変化が生じることが知られている。したがって、光や電場などの外部刺激を用いた物性制御の研究対象として魅力的な物質である。さらに、相転移温度の近傍では、物性の大きな変化が、わずかな温度変化で生じる場合が多く、物質は不安定状態にあると考えることができる。そのため、相転移温度の近傍であれば、わずかな光刺激でも巨大な物性変化が期待できる。本研究では、有機超伝導体である κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Br (κ -Br)を用いて、金属-超伝導相転移温度(T_c)に近い温度において、電気伝導度への光照射効果を調べた。

実験には、パルスレーザー光とパルス電流を同期させて用い、電気抵抗値の過渡的な変化の時間分解測定を行った。光励起によって物質は非平衡な光励起状態へと変化するが、時間が経過するにともない、元の安定な状態に戻る緩和現象が観測される。ここでは、光照射によって抵抗値の変化が誘起された後、元の抵抗値へ緩和する過程が観測される。その一方で、従来の有機超伝導体の研究においては、静圧下や静磁場下での輸送特性や磁性を調べるなど、定常・熱平衡状態における物性を調べる研究が主流であり、パルスレーザー光に対する応答や緩和ダイナミクスは未解明であった。また超伝導への相転移温度は液体ヘリウム温度に近い温度となり、そのような極低温下の光照射と電気物性計

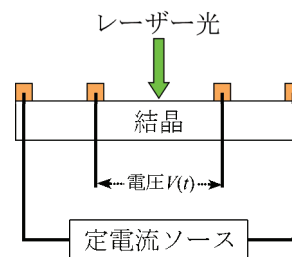


図4. 試料の電極（4端子）配置と光照射。

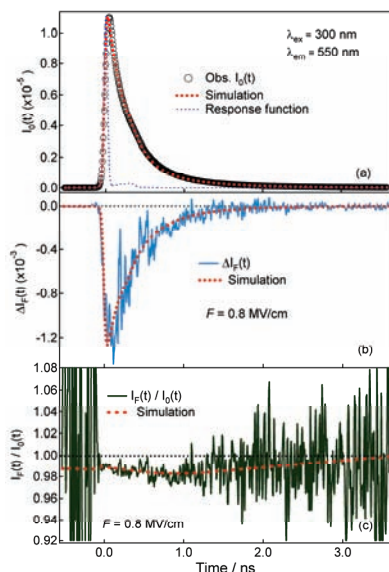


図3. S3-PPVの蛍光減衰（上）、電場の無い場合と有る場合の減衰の差（中）および比（下）。

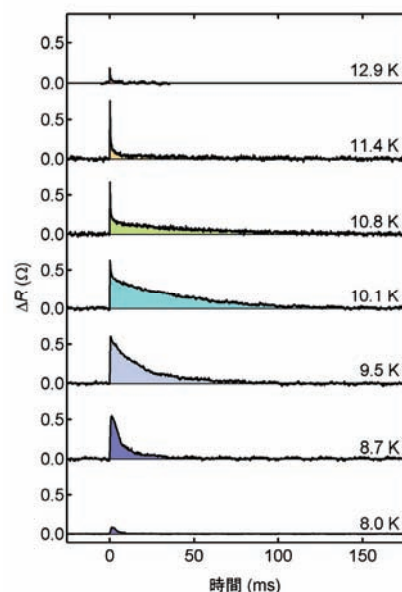


図5. 有機超伝導体の抵抗値に対する光照射効果。

測には特殊な実験装置が要求され、実験上の難しさがある。そこで我々は、新たに実験装置の開発を行った。試料の抵抗値は、図4に示すように4端子配置を用いて計測した。単結晶試料の両端にバイアス電流を流すための電極を作成し、その内側に、電圧計測用の端子を作成した。自作のパルス電流発生器を用いて電流パルスを発生させて試料へ加え、オシロスコープを用いて電圧を測定した。電圧計測端子の間の結晶表面に、結晶面に対して垂直方向からレーザー光を照射し、光照射と同期した過渡電圧信号を測定することにより、電気伝導度に対する光照射効果の時間分解計測を行った。光源にはナノ秒パルスレーザー（波長532nm）を用いた。実際の実験においては、光照射による試料の温度上昇を防ぐため、シングルショットによる計測を行った。

κ -Br は、低温では金属的な伝導性を示すが、 T_c （約12K）において超伝導相に転移する。 κ -Br において、超伝導転移温度近傍で光照射により誘起される抵抗変化の時間プロファイルを測定した結果を、図5に示す。バイアス電流値は0.6mA、レーザー光強度は5 μ J/pulseを用いた。縦軸は、光照射前の抵抗値からの変化量を示しており、横軸はレーザーパルス光照射後の時間を表す。今回測定したいずれの温度においても正方向への変化がみられることから、光照射によって抵抗値が過渡的に増大することがわかる。金属相である12.9Kにおいては、光照射後に比較的速く元の抵抗値へ減衰するが、相転移温度直下の10.1Kにおいて、非常に遅い緩和過程が存在し、光照射後約100msものあいだ光照射効果が続く事がわかった。一方、さらに温度を下げてほぼ完全に超伝導体に転移した場合（8 $\sim$ 8.7K）においては、時間プロファイルに立ち上がりが出現することが特徴であるが、超伝導転移温度直下の場合に比べると、元の抵抗値へ緩和する速度はかなり速くなることがわかった。

抵抗値の温度依存性を図6(a)に示す。光照射により試料の温度が上昇する場合には、温度上昇 ΔT に伴う抵抗値の変化(ΔR)は、抵抗値の温度に対する微分値に比例する。そこで信号強度 ΔR として、得られた抵抗値の時間変化を、時間に対して積分したものをとり、抵抗値を温度で微分したものと比較した(図6(b))。どちらも約10K付近でピークを示し、それより高温側の金属状態では温度依存性は類似

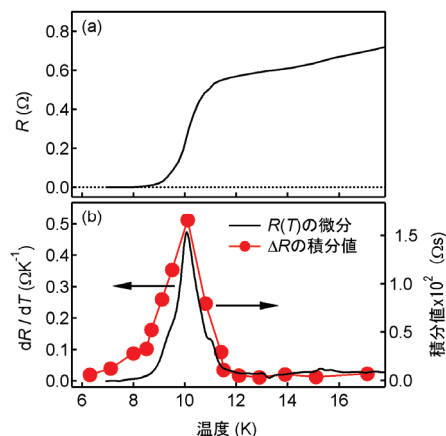


図6. (a) 抵抗値の温度依存性。(b) 抵抗値の温度依存性の微分と時間プロファイルの積分。

している。しかし、約10K以下の超伝導状態においては、両者の違いが顕著になっており、観測される光応答は試料の温度上昇による熱効果では説明できない。このことは、 T_c の近傍において、電気伝導度が特異的な光照射効果を示すことを明らかにしている。

有機超伝導体は、ミリ秒オーダーの非常に遅い時間スケールの緩和を示すことがわかった。このような遅い緩和過程の存在は、複雑な結晶構造を有し準安定な複数の電子状態を内包する有機導電体の特徴であると考えられる。超伝導発現には電子の運動と核の運動（フォノン）の相互作用が非常に重要な役割を果たしている。有機電荷移動錯体の特徴は、多原子分子から構成されているために分子振動の自由度が非常に大きいという点である。今回観測された非常に遅い緩和過程は、多数の振動自由度により、複数の準安定な状態が存在するために生じていると考えられる。

緩和時間が温度に対して顕著に依存する結果に関連して、相転移の臨界点の近傍では、一般に緩和時間が長くなり、臨界緩和現象として知られている。相転移と臨界現象の理論によれば、臨界（相転移）温度に近づくにつれて緩和時間が発散的に長くなることが予測される。また、高温側から臨界温度に近づく場合と低温側から近づく場合を比較すると、緩和時間の温度依存性は、臨界点に対して対称的に発散すると考えられている。今回観測された緩和時間は、 T_c ではなく、それよりも低い温度で長くなり臨界点に対して非対称的であるが、このような振る舞いを示す物質はこれまであまり知られておらず、臨界現象における有機超伝導体の特異性を示している。

(c) 蛍光寿命イメージングを用いた単一細胞内 pH 計測

顕微鏡を用いた生細胞の蛍光観察において、蛍光強度ではなく、蛍光寿命を画像化することにより、細胞内のイオン濃度および各種刺激に対する細胞内の環境変化の高感度検出を行っている。昨年度我々は、変異型緑色蛍光タンパク質(EGFP)の蛍光寿命イメージングを用いた単一細胞内 pH 計測を提案している。この手法は、EGFP内に存在する発色団がピコ秒の蛍光寿命を持つ中性種とナノ秒の蛍光寿命を持つアニオン種との酸塩基平衡状態にあることを利用しており、アニオン種と中性種の両方を励起し、両方の蛍光が観測される蛍光波長を選ぶと、細胞内 pH の変化による中性種とアニオン種の平衡状態の変化を蛍光寿命の変化として観測することができる。しかし、EGFPのみではなく多くの蛍光タンパク質においても、発色団が速い蛍光寿命を持つ中性種と遅い蛍光寿命を持つアニオン種の酸塩基平衡状態にあることが報告されており、蛍光タンパク質の蛍光寿命を用いた細胞内 pH 測定は、多くの蛍光タンパク質に対して適用可能な一般的な手法となり得ることができる。そこで本研究では、変異型黄色蛍光タンパク質(EYFP)の蛍光寿命の pH 依存性について、HeLa 細胞内および緩衝溶液中において検討を行った。

図7に HeLa 細胞中における EYFP の蛍光寿命画像の細胞内 pH 依存性を示す。励起波長に440 nmを用い、EYFPの発色団の中性種とアニオン種の両方を励起している。イオ

ノフォアを細胞の培養液に加えて細胞内外のpHを等しくしており、細胞外のpHを調製することによって、細胞内のpHを変化させることができる。細胞内pHが小さくなるにつれて、蛍光寿命の値が短くなっており、EYFPの蛍光寿命を用いて細胞内のpHを観測できることがわかる。イオノフォアを用いて細胞内におけるEYFPの蛍光寿命とpHとの間の検量線を作成し、その後目的の細胞の蛍光寿命を観測すれば、単一細胞内のpHをその場で求めることができる。

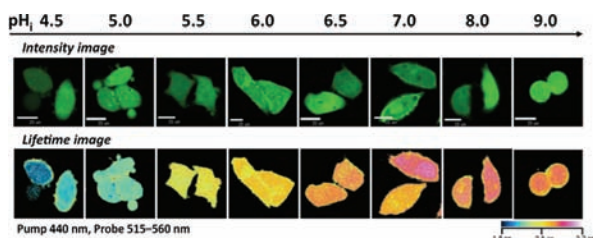


図7. EYFPが発現したHeLa細胞の蛍光強度画像(上)と蛍光寿命画像(下)の細胞内pH依存性。細胞内pHは各図の上に表示している。励起波長、440 nm; 蛍光波長、515-560 nm。

(d) 蛍光寿命イメージングを用いたアポトーシス過程および細胞分裂過程の計測

蛍光寿命の値は、光退色および測定光学系の変化の影響を受けないために、蛍光強度測定と比較して定量性を大きく向上させることができる。そこで本研究では、アポトーシス(プログラム化された細胞死)過程および細胞分裂過程に伴う細胞内状態変化について、蛍光寿命イメージングを用いて検討した。試料は、EGFPを発現させたHeLa細胞を用いている。アポトーシス過程の実験は、アポトーシス誘導試薬の添加直後を0時間として、細胞が著しい形状変化を起こすまで蛍光強度画像および蛍光寿命画像の継時変化を観測した。誘導試薬添加に伴う蛍光強度および蛍光寿命画像の継時変化を図8に示す。誘導試薬後0時間および6時間後の画像の全領域の蛍光寿命のヒストグラムも合わせ

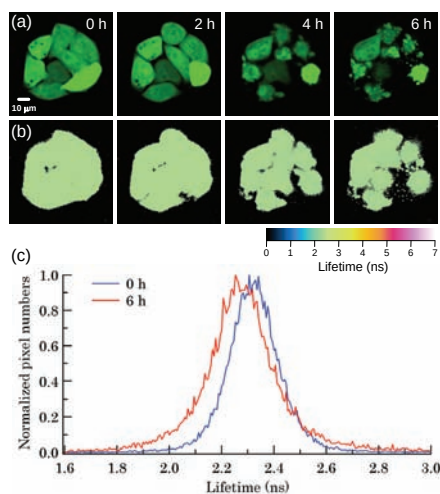


図8. アポトーシス誘導試薬添加に伴うEGFPが発現したHeLa細胞の蛍光強度画像(a)と蛍光寿命画像(b)の時間変化。誘導試薬添加直後(0h)と6時間後(6h)における画像の全領域の蛍光寿命のヒストグラム(c)。励起波長、440 nm; 蛍光波長、515-560 nm。

て示す。アポトーシス誘導試薬には、腫瘍壊死因子TNF- α とシクロヘキシミドを用いている。約6時間後に細胞の形状変化が観測され、蛍光寿命のヒストグラムのピーク位置が2.32 ns $\rightarrow$ 2.27 nsへとアポトーシスに伴い蛍光寿命が短くなる方向へとシフトした。細胞に刺激を与えない状態では、蛍光寿命の経時変化は観測されなかった。また、細胞にネクロシス(壊死)を誘導し参照実験を行ったが、蛍光寿命の変化は観測されず、アポトーシス過程に特有の変化であることがわかった。Annexin V-FITCを用いた実験から、アポトーシスの初期過程である細胞膜のフォスファチジルセリンの反転現象後に寿命変化を生じることがわかった。励起波長依存性の測定から、アポトーシスの進行に伴う細胞内pHの変化による寿命変化ではないことが示唆された。

観測された蛍光寿命の変化は、アポトーシス過程に伴いEGFP内の発色団の周囲の環境が変化したことに起因する。我々は、蛍光タンパク質の蛍光寿命が、蛍光タンパク質内の発色団と外部電場との相互作用に依存することを示しており、アポトーシスに伴うEYFPの構造変化によって、発色団と発色団周囲を取り囲むアミノ酸残基が形成する局所電場との相互作用が変化し、蛍光寿命の減少を観測したのではないかと考えられる。またEGFPが発現したHeLa細胞において、細胞分裂の前後において蛍光寿命の変化は見られなかった。細胞分裂過程では分裂時と分裂前後の間では細胞内環境においてEGFPの発色団に影響を与える変化が無いことがわかった。

3. 今後の研究の展望

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

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) K. Awasthi, T. Iimori and N. Ohta : “Synergy Effects of Electric Field and Magnetic Field on Fluorescence of Electron Donor and Acceptor Pairs in a Polymer Film”, *J. Phys. Chem. A*, 113(40) : 10603–10609 (2009)
- 2) K. Awasthi, T. Iimori and N. Ohta : “Fluorescence of Electron Donor–Acceptor Pairs of *N*-Ethylcarbazole and 1, 3-Dicyanobenzene in the Presence of Electric Field and Magnetic Field”, *Chem. Phys. Lett.*, 470(4-6) : 219–223 (2009)
- 3) M. S. Mehata, K. Awasthi, T. Iimori and N. Ohta : “Electric Field Effects on State Energy and Molecular Orientation of 2-Hydroxyquinoline in Solid Polymer Films”, *J. Photochem. Photobiol. A*, 204(1) : 39–45 (2009)
- 4) M. S. Mehata, C.-S. Hsu, Y.-P. Lee and N. Ohta : “Electric Field Effects on Photoluminescence of Polyfluorene: Dependence on Excitation Wavelength, Field Strength and Temperature”, *J. Phys. Chem. C*, 113(27) : 11907–11915 (2009)
- 5) T. Fukuda, S. Masuda, Md. Wahadoszamen, N. Ohta and N. Kobayashi : “Electroabsorption Spectra of Directly Linked Tribenzotetraazachlorin–Fullerene Conjugates Having Either Electron Donating or Withdrawing Substituents in a Polymer Film”, *Dalton Transactions*, 31 : 6089–6091 (2009)
- 6) H. Mori, K. Takeshita, E. Miyoshi and N. Ohta : “Theoretical Quest for Photoconversion Molecules Having Opposite Directions of the Electric Dipole Moment in S_0 and S_1 states”, *J. Chem. Phys.*, 130(18) : 184311–184316 (2009)
- 7) R. Khaton, T. Iimori and N. Ohta : “Excitation Wavelength Dependence of Photoinduced Phase Transition in Polycrystalline AgI at Room Temperature”, *J. Phys. Conference Series*, 148 : 012012–1–012012–3 (2009)
- 8) T. Iimori, T. Naito and N. Ohta : “Memory Effect of Photoinduced Conductivity Switching Controlled by Pulsed Voltages in a Molecular Conductor”, *J. Phys. Conference Series*, 148 : 012009–1–012009–3 (2009)
- 9) T. Iimori, T. Naito and N. Ohta : “Unprecedented Optoelectronic Function in Organic Conductor: Memory Effect of Photoswitching Controlled by Voltage Pulse Width”, *J. Phys. Chem. C*, 113(11) : 4654–4661 (2009)
- 10) T. Ito, S. Oshita, T. Nakabayashi, F. Sun, M. Kinjo and N. Ohta : “Fluorescence Lifetime Images of Green Fluorescent Protein in HeLa Cells during TNF- α Induced Apoptosis”, *Photochemical and Photobiological Sciences*, 8(6) : 763–767 (2009)
- 11) R. Ohshima, T. Nakabayashi, T. Hamada and N. Ohta :

“External Electric Field Effects on Emission of a Dendrimer-encapsulated Gold Nanocluster in a Polymer Film”, *Chemistry Letters*, 38(6) : 546–547 (2009)

- 12) J. Tayama, T. Iimori and N. Ohta : “Comparative study of electroabsorption spectra of polar and nonpolar organic molecules in solution and in a polymer film”, *J. Chem. Phys.*, 131(24) : 244509–1–244509–7 (2009)
- 13) T. Nakabayashi, T. Yotsutsuji, K. Ogawa, Y. Kobuke and N. Ohta : “Electroabsorption and Electrophotoluminescence Spectra of Porphyrin Supramolecules in a Polymer Film”, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, 83(1) : 33–38 (2010)
- 14) N. Ohta, T. Nakabayashi, S. Oshita and M. Kinjo : “Fluorescence Lifetime Imaging Spectroscopy in Living Cells with Particular Regards to pH Dependence and Electric Field Effect”, *Proceedings of SPIE*, 7576 : 75760G–1–75760G–13 (2010)

4.2 総説・解説・評論等

- 1) 中林孝和、太田信廣 : 「蛍光寿命イメージングを用いる単一細胞内計測の展開」、分析化学、58(6) : 473–485 (2009)
- 2) 中林孝和、太田信廣 : 「共焦点顕微鏡と半透明金属基板を用いた反射・散乱光画像計測」、分光研究、58(6) : 275–276 (2009)
- 3) 中林孝和、太田信廣 : 「蛍光寿命イメージングによる生体分析」、日本レーザー医学会誌、30(4) : 441–448 (2010)

4.4 著書

- 1) N. Ohta and T. Nakabayashi : “Fluorescence Lifetime Imaging Study on Living Cells with Particular Regard to Electric Field Effects and pH Dependence”, *Molecular Nanodynamics*, Wiley–VCH : 607–621 (2009)
- 2) 太田信廣 : 「電場・磁場効果の光計測」、光科学研究の最前線 2 : 66 (2009)

4.6 特許

- 1) 足立貴志、太田信廣 : 2010–053213、粒子分析装置および粒子分析方法、2010年3月10日
- 2) 太田信廣、中林孝和、足立貴志、荻窪真也 : 2010–053214、光誘起自家蛍光の時間分解測定による生物試料の低酸素領域分析方法とその装置、2010年3月10日
- 3) 太田信廣、中林孝和、足立貴志、荻窪真也 : 2010–053215、蛍光寿命を利用した細胞内の pH イメージング方法とその装置、2010年3月10日
- 4) 太田信廣、中林孝和、足立貴志、荻窪真也 : 2010–053216、pH 測定方法、異常領域検出方法、及び生体物質分析方法、並びに各装置、2010年3月10日

4.7 講演

a. 招請講演

i) 学会

- 1) 太田信廣:「光誘起ダイナミクスと電場効果:ミクロからマクロへ」、第3回分子科学討論会、名古屋大学 (2009-09)
- 2) N. Ohta: “Electric Field Effects on Structure, Dynamics and Function of Photoexcited Molecules”, The 6th KJFP2009, Korea University, Chungnam, Korea (2009-11)
- 3) N. Ohta: “Fluorescence Lifetime Imaging Spectroscopy and its Application to Biological Systems”, The Second Asian Spectroscopy Conference, Seoul, Korea (2009-11)
- 4) N. Ohta, T. Nakabayashi, S. Ohshita and M. Kinjo: “Fluorescence lifetime imaging spectroscopy in living cells with particular regards to pH dependence and electric field effect”, SPIE Photonics West, San Francisco, USA (2010-01)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) N. Ohta: “Fluorescence Lifetime Imaging Study of a Living Cell: Intracellular Environment and Dynamics”, Department Seminar, Hangzhou, China (2009-04)
- 2) N. Ohta: “Control of Molecular Dynamics and Material Function with Photon and Electric field”, RIES-CIS Mini-workshop on Nano/Bio/Quantum Science, Taipei, Taiwan (2009-12)
- 3) 中林孝和:「蛍光寿命イメージングを用いる細胞内環境計測の展開」、日本分光学会平成21年度生細胞分光部会シンポジウム、東京 (2009-12)

iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 中林孝和:「蛍光寿命の基礎と細胞観察への応用」、第14回細胞生物学ワークショップ、札幌 (2009-11)

b. 一般講演

i) 学会

- 1) 中林孝和、王会平、長尾一生、金城政孝、太田信廣:「蛍光タンパク質の蛍光寿命イメージングを用いた細胞内状態の観測」、第48回日本生体医工学会大会、東京 (2009-04)
- 2) T. Iimori, T. Naito and N. Ohta: “Nonthermal Photoreponse in an Organic Superconductor Investigated by Time-Resolved Measurement of Electrical Conductivity”, ISCOM2009, Niseko (2009-09)
- 3) N. Ohta, T. Iimori and T. Naito: “A Novel Optoelectronic Function in an Organic Conductor: Memory Effect of Photoswitching Behavior Controlled by Pulsed Electric Fields and Photoirradiation”, ISCOM2009, Niseko (2009-09)
- 4) 中林孝和、日野和之、伊藤沙由里、中野博文、太田信廣:「蛍光タンパク質の発色団の吸収および蛍光スペクトルの外部電場効果」、2009年光化学討論会、桐生 (2009-09)
- 5) 伊藤寿之、大下周吾、中林孝和、金城政孝、太田信廣:「蛍光寿命イメージングを用いた細胞内環境変化のそ

の場合計測: アポトーシス過程」、2009年光化学討論会、桐生 (2009-09)

- 6) R. Khaton, T. Iimori and N. Ohta: “Photoirradiation effects on the electrical conductivity of polycrystalline AgI”, 2009年光化学討論会、桐生 (2009-09)
- 7) 大島瑠利子、中林孝和、小林洋一、浅野彩子、玉井尚登、太田信廣:「CdTe ナノ粒子の光学特性の光照射および外部電場効果」、2009年光化学討論会、桐生 (2009-09)
- 8) M. S. Mehata, C.-S. Hsu, Y.-P. Lee and N. Ohta: “Electric field-effects and photo-irradiation effects on photoluminescence of sulfide-substituted poly(1,4-phenylene vinylene) film”, 2009年光化学討論会、桐生 (2009-09)
- 9) 飯森俊文、内藤俊雄、太田信廣:「有機超伝導体の金属-超伝導相転移温度近傍における光応答」、2009年光化学討論会、桐生 (2009-09)
- 10) R. Khaton, T. Iimori and N. Ohta: “Photoinduced change in the electrical conductivity of polycrystalline silver iodide”, 第3回分子科学討論会、名古屋 (2009-09)
- 11) 飯森俊文、中畑喬之、内藤俊雄、太田信廣:「有機超伝導体 β -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$ における電気伝導度の光応答」、第3回分子科学討論会、名古屋 (2009-09)
- 12) M. Rahaman, T. Iimori, T. Hamada and N. Ohta: “Characterization of optoelectronic devices based on the methylene-linked compounds of pyrene”, 第3回分子科学討論会、名古屋 (2009-09)
- 13) 太田信廣、中林孝和:「細胞内自家蛍光成分の光励起ダイナミクスの解明 (1): 水溶液中における FAD と NADH のフェムト秒-ナノ秒ダイナミクス」、第3回分子科学討論会、名古屋 (2009-09)
- 14) M. S. Mehata, C.-S. Hsu, Y.-P. Lee and N. Ohta: “Electric Field-Induced Modification of photoluminescent Properties in Polyfluorene Thin Films”, 第3回分子科学討論会、名古屋 (2009-09)
- 15) 大下周吾、中林孝和、澄川亮也、孫凡、三國新太郎、金城政孝、太田信廣:「Yellow Fluorescent Protein(YFP)の蛍光寿命のpH計測」、第3回分子科学討論会、名古屋 (2009-09)
- 16) 大島瑠利子、中林孝和、小林洋一、浅野彩子、玉井尚登、太田信廣:「CdTe ナノ粒子の吸収・発光スペクトルへの光照射効果および外部電場効果」、第3回分子科学討論会、名古屋 (2009-09)
- 17) T. Iimori and N. Ohta: “Control of electrical conductivity in an organic conductor and an organic superconductor using photoirradiation and external fields”, The 6th KJFP2009, Korea University, Chungnam, Korea (2009-11)
- 18) R. Ohshima, T. Nakabayashi and N. Ohta: “External Electric Field Effects on Emission of Metal and Semiconductor Nanoparticles in a Polymer Film”, The 6th

KJFP2009, Korea University, Chungnam, Korea (2009-11)

- 19) 太田信廣、中林孝和、澄川亮哉、金城政孝、太田信廣：「Enhanced Yellow Fluorescent Protein (EYFP)の蛍光寿命イメージングを用いた細胞内pH測定」、日本化学会第90春季年会、大阪 (2010-03)
- 20) 中林孝和、太田信廣：「細胞内自家蛍光成分の光励起ダイナミクスの解明(2): FADのフェムト秒-ナノ秒領域の蛍光ダイナミクスのアルコール濃度依存性」、日本化学会第90春季年会、大阪 (2010-03)

4.10 予算獲得状況

a. 科学研究費補助金 (研究代表者、分類名、研究課題、期間)

- 1) 太田信廣、基盤研究(A)、光と電場による反応制御と新奇外場応答機能物性の発現 (2008~2011年度)
- 2) 太田信廣、特別研究員奨励費、光励起ダイナミクス及び分子運動への外部電場効果 (2007~2009年度)
- 3) 太田信廣、特別研究員奨励費、新奇ナノ物質・ナノ複合体におけるフォトルミネッセンスへの外部電場効果 (2008~2010年度)
- 4) 中林孝和、萌芽研究、非線形分子分光技術を用いた細胞イメージングシステムの開発 (2008~2009年度)
- 5) 飯森俊文、若手研究(B)、光スイッチングにおけるメモリー効果の機構解明と新デバイス創製 (2009~2010年度)

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

- 1) 中林孝和、分子科学研究奨励森野基金運営委員会、凝縮相分子の微視的構造と高速ダイナミクスに関する実験的・理論的研究、2007年~

c. 海外機関との共同研究

- 1) 太田信廣、日印二国間交流事業、金属ナノクラスターの光学特性への電場効果、2008年~2009年度
- 2) 太田信廣、日台共同研究 (JST-NSCプロジェクト)、有機分子及びポリマー物質により構成される光電変換ナノデバイスの創製と学理、2009年~

4.12 社会教育活動

a. 公的機関の委員

- 1) 太田信廣：科学研究費委員会専門委員 (2009年12月1日~2010年11月30日)
- 2) 太田信廣：化学系研究設備有効ネットワーク北海道地域委員会委員

b. 国内外の学会の役職

- 1) 太田信廣：2010年 光化学討論会実行委員長 (2010年1月1日~現在)
- 2) 太田信廣：光化学協会常任理事 (2010年1月1日~現在)
- 3) 太田信廣：光化学協会理事 (2008年1月1日~2009年12月31日)
- 4) 太田信廣：日本分光学会生細胞分光部会幹事

5) 太田信廣：日本分光学会代議員

6) 中林孝和：日本分光学会編集委員会委員 (2005年2月18日~現在)

e. 大学院担当講義科目

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

量子情報フォトンクス研究分野

教 授 竹内繁樹（京大院、理博、2007.6～）
准教授 辻見裕史（北大院、理博、2007.6～）
助 教 岡本亮（北大院、工博、2007.8～）
助 教 藤原正澄（阪市大院、理博、2009.1～）
客員研究員 Jeremy L. O'Brein (2009.1～2009.6)
博士研究員 趙 洪泉（中国科学院、工博、2009.4～）
院 生
博士課程
永田智久、谷田真人
修士課程
佐藤功亮、田中 陽、桃原清太、柳澤朋李

1. 研究目標

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

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

2. 研究成果

(a) 伝令付き単一光子源の2光子干渉性の向上

量子情報処理において、パラメトリック蛍光対は同時に発生する性質を持ち、効率的に単一光子のみを取り出すことが可能なため、パラメトリック蛍光対を用いた伝令付単一光子源が頻繁に用いられている。一方で、パラメトリック蛍光対のペア間での2光子干渉と比較して干渉性が低下する問題があった。そのため、伝令付単一光子源における2光子干渉性についての解析を行い、その結果として、励起光と蛍光光子間の群速度不整合が大きな要因であることが分かった。実際に、非線形光学結晶の厚さを変化させ、群速度不整合の影響を変化させる実験を行った（図1）。実験結果と解析結果は良い一致を示しており、また、明瞭度96%と世界最高レベルの干渉性を持つ光源を実現した。

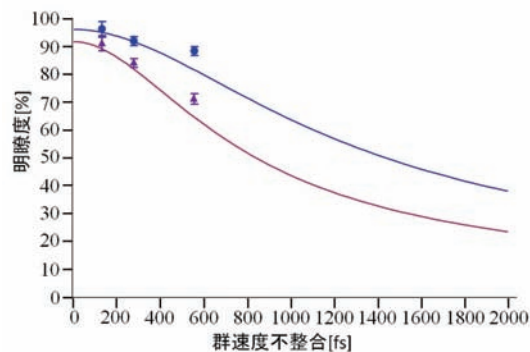


図1. 群速度不整合と明瞭度の関係

(b) 線形光学素子量子ゲートにおけるエラー源の解析

線形光学量子回路の基盤となる技術、特に線形光学量子ゲートのエラー原因の解明に取り組んだ。量子ゲートとしては、部分偏光ビームスプリッタ (PPBS) を利用した制御ノットゲートをモデルとして選んだ。この量子ゲートにおけるエラー要因としては、PPBSの各偏光に対する反射率の理想値からのずれ (δR_H , δR_V) に加え、反射光（透過光）のそれらの偏光に依存した位相差、さらに入力された2光子の時空間的なモードミスマッチに起因する2光子干渉性の劣化をエラー原因として考えた。我々は、これらのエラー要因の寄与を、プロセスマトリックスを用いて理論的に解析した。その結果、特にエラー量が小さい領域で、要因ごとに異なる依存性を持つことを明らかにした（図2）。その結果、またエラー間の相乗・相殺効果が全エラー量の10%に達する場合があることなどを明らかにした。

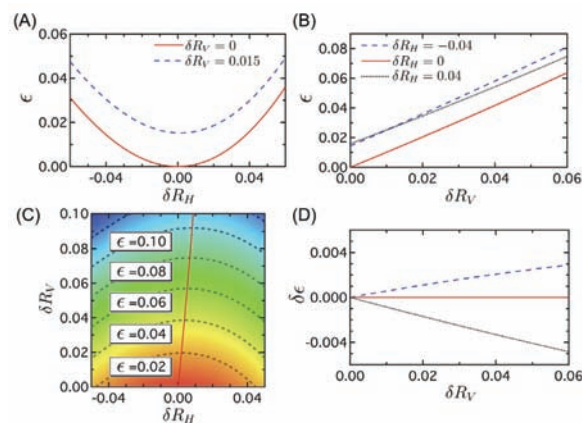


図2. エラー要因とエラー量(ϵ)の関係

(c) 単一光子レベルでのファイバ結合微小球共振器による位相シフト

テーパファイバ結合微小球共振器は、ガラス微小球による高いQ値とテーパファイバからの近接場的な光入出力により、高効率光入出力が可能な微小光共振器デバイスとして注目されている。特に、共振器内に単一発光体を導入して非線形光学効果を格段に高める事が可能であり、これを用いることで量子位相ゲートが実現可能であると期待

されている。この系では（単一発光体が無い場合においても）、微小球と結合した後ファイバに再結合した光子、及び微小球に結合しない光子の間で干渉が起こり、ファイバ出力光子の位相がシフトする。今回、我々は微小球が特定の偏光成分とのみ結合する性質を利用し、こうした位相シフトを偏光測定を元に単一光子レベルで測定することに成功した。下図に平均光子数が0.41の実験結果を示す。(a)はテーパファイバと微小球間距離が500nmであり、(b)は100nmである。(a)はアンダーカップリング、(b)はオーバーカップリングと呼ばれる結合領域にある。異なる結合領域に起因して、(a)では非共鳴部における位相シフトは0に漸近するのにに対して(b)では $\pm\pi$ に漸近する。

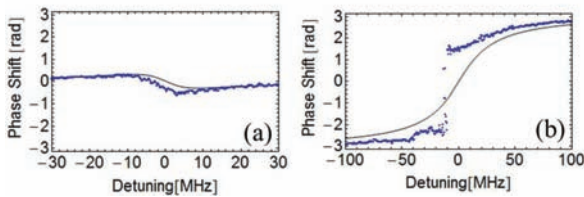


図3. ファイバ結合微小球共振器系による単一光子レベルでの位相シフトスペクトル。(a) ファイバ微小球間距離500nm, (b) 100nm。

(d) ダイヤモンド窒素欠陥中心の特性評価とテーパファイバ結合微小球共振器への導入

テーパファイバ結合微小球共振器を量子位相ゲート等の量子情報デバイスへ応用するためには、テーパファイバ結合微小球共振器へ原子のような2準位物質系を導入する必要がある。安定した動作や長いコヒーレンス時間が期待される2準位原子系として、我々はダイヤモンドナノ結晶中の窒素欠陥中心（NVセンター）に着目している。今年度は、このダイヤモンドNVセンターを含有するナノ結晶の光学特性の評価とナノ結晶の微小球共振器上への導入を試みた。図4は微小球共振器の顕微鏡画像とその上に配置されたNVセンターの共焦点顕微鏡画像である。左図の黒四角で囲まれた領域を共焦点顕微鏡で観察する事で、右図の画像を得た。赤丸で示した輝点がダイヤモンドNVセンターである。この輝点からの発光光子を2次光子相関測定によって解析する事で、この輝点が単一NVセンターである事が明らかとなった。また、微小球共振器上の単一NVセンターから検出される発光量は、ガラス平面基板のそれよりも3分の1程度に減少している事も明らかとなった。

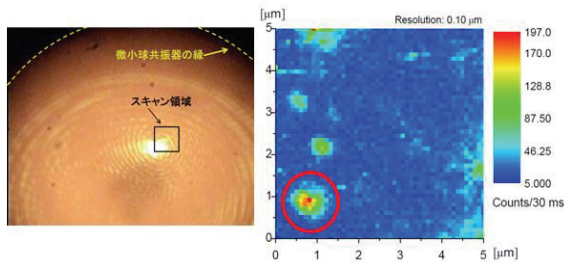


図4. (右図) 微小球共振器の顕微鏡 CCD カメラ画像。
(左図) 表面の共焦点レーザースキャン顕微鏡画像。

これはNVセンターからの発光が微小球共振器のモードに結合して失われた事を暗に示しており、NVセンター含有ダイヤモンドナノ結晶と微小球共振器の光学的結合が実現されていると考えられる。

(e) SrTiO₃の量子常誘電状態におけるブロード・ダブレット

量子常誘電体として知られているSrTiO₃は、0～40 Kの広い温度範囲で、電気分極を揃える双極子・双極子相互作用と、それをバラバラにする量子揺らぎ（ゼロ点振動）が拮抗しており、臨界領域（量子常誘電状態）が実現されている系であると考えている。この物質の量子常誘電状態において、ブロード・ダブレット（BD：約20 GHz）という光散乱ピークが特異的に出現することが報告されている。^[1] このピークは最低周波数の横波音響波よりも低い周波数を持つ。このことから分かるように、BDは通常の物質では決して存在し得ない励起ピークであり、量子常誘電状態だけに現れる新素励起かも知れないと大いに興味を持たれている。このBDの周波数と半値半幅から、平均自由行程 MFP を求めた。図5はMFP/ λ_0 の異方性を極座標表示（動径方向にMFP/ λ_0 、角度方向に θ ）したものである。ここで、 λ_0 は測定波長で約100 nmである。また、 θ はBDの進む方向を示しており、[001]cから[011]c方向に計った角度である。図5の様に、MFPが楕円形になっていることが分かった。また、温度が上昇すると、楕円が小さくなっていることも判明した。

^[1] Hehlen et. al.; PRL 75 (1995) 2416.

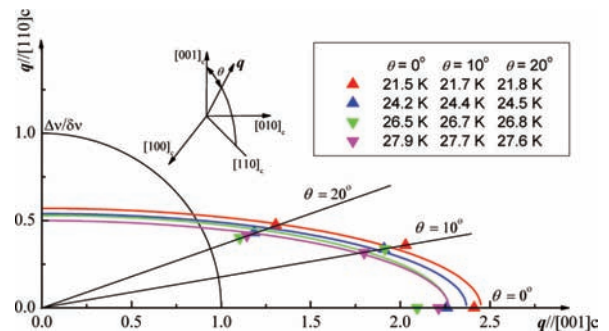


図5. ブロード・ダブレットの平均自由行程の異方性

3. 今後の研究の展望

本研究分野では現在、総務省戦略的情報通信研究開発推進制度のプロジェクト「光子間の高効率固体量子位相ゲートの実現に関する研究」を、科学研究費課題として、「群速度エンジニアリングによる、時空間単一モード光子源の実現と応用」を実施している。また今年度より、科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業のプロジェクト「モノサイクル量子もつれ光の実現と量子非線形光学の創成」、ならびに新学術領域研究「量子サイバネティクス」の計画研究「光量子回路による量子サイバネティクスの実現」を開始した。これらのプロジェクトの展開として、(a) テーパファイバ

結合微小球を用いた単一光子制御研究、(b) 光量子回路の高度化と応用、(c) パラメトリック蛍光対を用いた新光子源の開発 (d) 単一発光体の精密分光計測、(e) あらたな光子検出器の開発と応用 (f) もつれ合い光子の極限計測への応用などの研究テーマを遂行する予定である。また、量子相転移に関連して、量子常誘電体が示す特異な異常現象と、それをモディファイした物質で発現する超伝導状態とを、時空間スケールリングの観点から統一的に解釈して行く。さらに、磁性体で見られる量子臨界現象との関わりを追求する。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) T. Chiba, H. Fujiwara, J. Hotta, S. Takeuchi and K. Sasaki : “Dynamical Analysis of Triplet Lifetime of Single Molecules by a Photon Interdetection Time Analysis Method”, *Journal of Physical Chemistry C*, 113(27) : 11652-11656 (2009)
- 2) K. Sato, Y. Tsujimi, H. Uwe, and H. Minami ; “Broad Doublet Spectra and Anomalous Light Scatterings in Quantum Paraelectric States of SrTiO_3 and Nb-doped SrTiO_3 ”, *Ferroelectrics*, 380: 102-105 (2009).
- 3) H. Oka, H. Fujiwara, S. Takeuchi and K. Sasaki : “Non-linear optical phase shift obtained from two-level atoms confined in a planar microcavity”, *J. Appl. Phys.*, 107(5) : 054310-1-054310-6 (2010)

4.2 総説・解説・評論等

- 1) 竹内繁樹:「専門外の学問を学ぶこつ 情報系で物理が必要になったとき」、電子情報通信学会誌、(社)電子情報通信学会、92(12) : 1076-1078 (2009)
- 2) 竹内繁樹:「光量子回路の現状と展望 =光子を用いた量子コンピュータ、量子メトロロジーの実現に向けて=」、光アライアンス 光技術の融合と活用のための情報ガイドブック、日本工業出版、20(10) : 15-20 (2009)
- 3) 竹内繁樹、岡本亮 : 「光量子回路の実現-量子もつれ合いフィルター」、応用物理、(社) 応用物理学会、79(2) : 125-129 (2010)

4.6 特許

申請 1 件

4.7 講演

i) 学会

- 1) M. Tanida, T. Nagata, R. Okamoto, K. Sasaki and S. Takeuchi: “Highly-pure heralding single-photon sources for linear optics quantum computation”, 18th INTERNATIONAL LASER PHYSICS WORKSHOP (LPHYS'09), World Trade Center Barcelona, Spain (2009-07)

- 2) S. Takeuchi : “Realization of optical quantum circuits - an entanglement filter -”, 18th INTERNATIONAL LASER PHYSICS WORKSHOP (LPHYS'09), World Trade Center Barcelona, Spain (2009-07)
- 3) R. Okamoto, J. L. O'Brien, H. F. Hofmann, T. Nagata, K. Sasaki and S. Takeuchi : “Realization of optical quantum circuits: an entanglement filter”, SPIE Optics+ Photonics, San Diego Convention Center, USA (2009-08)
- 4) T. Nagata, R. Okamoto, K. Sasaki, S. Takeuchi : “Analysis of errors in linear-optics C-NOT gates”, SPIE Optics + Photonics Quantum Communications and Quantum Imaging VII, San Diego Convention Center, USA (2009-08)
- 5) 谷田真人、岡本亮、シー ジャンホン、栗村直、竹内繁樹 : 「時空間単一モード伝令付き単一光子源の実現」、日本物理学会2009年秋季大会、熊本大学黒髪キャンパス (2009-09)
- 6) 永田智久、岡本亮、竹内繁樹 : 「ゲートを再帰的に利用した多光子もつれ合い状態の生成」、日本物理学会2009年秋季大会、熊本大学黒髪キャンパス (2009-09)
- 7) 岡本亮、オブライエン L. ジェレミー、ホフマン F. ホルガ、永田智久、笹木敬司、竹内繁樹 : 「もつれ合いフィルタの実証実験」、日本物理学会2009年秋季大会、熊本大学黒髪キャンパス (2009-09)
- 8) 宮本洋子、青木俊介、竹内繁樹、武田光夫、笹木敬司 : 「軌道角運動量重ね合わせ状態検出における余分な方位角成分 II」、日本物理学会2009年秋季大会、熊本大学黒髪キャンパス (2009-09)
- 9) 辻見裕史 : (シンポジウム講演) 「キャリア制御された SrTiO_3 の格子振動とプラズモン」、日本物理学会2009年秋季大会、熊本大学黒髪キャンパス (2009-09)
- 10) 佐藤功亮、辻見裕史、植寛素、南英俊 : 「ペロフスカイト系酸化物におけるプラズモン関連光学モード」、日本物理学会2009年秋季大会、熊本大学黒髪キャンパス (2009-09)
- 11) 辻見裕史、岩田真 : 「 $\text{Pb}(\text{Zn}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ の低周波光学フォノンによるラマン散乱」、日本物理学会2009年秋季大会、熊本大学黒髪キャンパス (2009-09)
- 12) 竹内繁樹 : 「光子量子回路による量子サイバネティクスの実現」、サイバネティクス会議 熱海市 10/21、ホテルミクラス (2009-10)
- 13) 高島秀聡、高橋雅英、藤原英樹、笹木敬司、竹内繁樹 : 「ファイバ結合微小球レーザーの光入出力特性の解析」、日本光学会年次学術講演会 Optics Photonics Japan 2009、朱鷺メッセ : 新潟コンベンションセンター (2009-11)
- 14) S. Takeuchi : “Photonic Quantum Circuits and its application”, SPIE Photonics West 2010, The Moscone Center, San Francisco, USA (2010-01)
- 15) H. Takashima, K. Toubaru, M. Fujiwara, H. Fujiwara, K. Sasaki and S. Takeuchi : “Tapered fiber coupling to mi-

- crosspheres at cryogenic temperature medium”, SPIE Photonics West 2010, The Moscone Center, San Francisco, California, USA (2010-01)
- 16) 田中陽、桃原清太、藤原正澄、岡本亮、竹内繁樹：「ファイバ結合微小球共振器の単一光子レベルでのプロセストモグラフィ」、日本物理学会第65回年次大会、岡山大学津島キャンパス (2010-03)
 - 17) 永田智久、岡本亮、ホフマン F. ホルガ、竹内繁樹：「高忠実度線形光学量子ゲートの実現に向けて—エラー原因の深刻さと相乗効果—」、日本物理学会第65回年次大会、岡山大学津島キャンパス (2010-03)
 - 18) 佐藤功亮、辻見裕史：「SrTiO₃のブロードダブレットの異方性」、日本物理学会第65回年次大会、岡山大学津島キャンパス (2010-03)
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) 岡本亮、オブライエン L. ジェレミー、ホフマン F. ホルガ、永田智久、笹木敬司、竹内繁樹：「もつれ合いフィルタの実証実験」、ナノ量子情報エレクトロニクス公開シンポジウム、東京大学理学部1号館小柴ホール(本郷キャンパス) (2009-04)
 - 2) 岡本亮、オブライエン L. ジェレミー、ホフマン F. ホルガ、永田智久、笹木敬司、竹内繁樹：「もつれ合いフィルタの実験的な実現」、第20回量子情報技術研究会(QIT20)、広島大学 東広島キャンパス 学生会館2階レセプションホール (2009-05)
 - 3) 高島秀聡、浅井健志、桃原清太、藤原正澄、藤原英樹、笹木敬司、竹内繁樹：「ファイバー結合微小球共振器を用いた量子位相ゲートの開発に向けて」、第6回AMO検討会、大阪大学豊中キャンパスΣホール (2009-06)
 - 4) 谷田真人、永田智久、岡本亮、笹木敬司、竹内繁樹：「高い2光子干渉性を持つ伝令付単一光子源の実現」、第6回AMO討論会、大阪大学豊中キャンパスΣホール (2009-06)
 - 5) 岡本亮、オブライエン L. ジェレミー、ホフマン F. ホルガ、永田智久、笹木敬司、竹内繁樹：「もつれ合いフィルタの実証実験」、第6回AMO討論会、大阪大学豊中キャンパスΣホール (2009-06)
 - 6) R. Okamoto, J. L. O’Brien, H. F. Hofmann, T. Nagata, K. Sasaki and S. Takeuchi : “Experimental realization of an optical entanglement filter”, CLEO/Europe-EQEC 2009, ICM Center of the New Munich Trade Fair Center, Germany (2009-06)
 - 7) 永田智久、岡本亮、笹木敬司、竹内繁樹：「Toward high-fidelity operation of linear-optics quantum gates」、International Workshop on Photons and Spins in Nanostructures (IWPSN)、北海道大学創成科学研究棟5階大会議室 (2009-07)
 - 8) H. Takashima, M. Takahashi, H. Fujiwara, K. Sasaki and S. Takeuchi : “Analysis of input-output characteristic of fiber-coupled microsphere laser using rate equation models”, International workshop on photons and spins in nanostructures (IWPSN), Hokkaido University, Sapporo (2009-07)
 - 9) 岡本亮、竹内繁樹：「光量子回路の実現」、アライアンスG2分科会、北海道大学電子科学研究所 (2009-10)
 - 10) 高島秀聡、藤原英樹、竹内繁樹、笹木敬司：「ファイバ結合微小球レーザーの光入出力特性の解析」、アライアンスG2「新機能ナノエレクトロニクス」グループ分科会、北海道大学電子科学研究所創成科学研究棟 (2009-10)
 - 11) 竹内繁樹：「光量子回路の現状と今後」、さきがけ「場と反応」懇話会、土佐ロイヤルホテル (2009-10)
 - 12) 尾崎雄亮、川瀬大輔、青木俊介、宮本洋子、竹内繁樹、武田光夫、笹木敬司：「パラメトリック蛍光光子対の軌道角運動量もつれ合い状態の検出」、第21回量子情報技術研究会(QIT21)、電気通信大学 (2009-11)
 - 13) 藤原正澄、高島秀聡、桃原清太、趙洪泉、笹木敬司、竹内繁樹：「テーパファイバ・微小球結合系における強結合状態の実現に向けて」、第21回量子情報技術研究会、電気通信大学 (2009-11)
 - 14) M. Fujiwara, K. Toubaru, H. Takashima, T. Asai and S. Takeuchi : “Toward the realization of the strong coupling between a Diamond NV center and a microsphere resonator with a tapered fiber”, International Symposium on Quantum Nanophotonics and Nanoelectronics (ISQNN), Komaba Research Campus, the University of Tokyo (2009-11)
 - 15) R. Okamoto, J. L. O’Brien, H. F. Hofmann, T. Nagata, K. Sasaki and S. Takeuchi : “Experimental realization of an optical entanglement filter FrF-10 pp122”, International Symposium on Quantum Nanophotonics and Nanoelectronics (ISQNN), Komaba Research Campus, the University of Tokyo (2009-11)
 - 16) 岡本亮、竹内繁樹：「2光子量子干渉に基づく光量子ゲート」、第7回関西若手量子情報セミナー、京都大学桂キャンパス (2009-12)
 - 17) S. Takeuchi : “Linear Optics Quantum Computer”, Symposium on Physical Realizations Quantum Information Processing and Quantum Computation, 近畿大学 (2009-12)
 - 18) 岩田真、辻見裕史、青柳倫太郎、前田雅輝、石橋善弘：「Pb(Zn_{1/3}Nb_{2/3})O₃-PbTiO₃ 混晶の低周波数ラマン散乱周波光学フォノンによるラマン散乱」第5回トピカルミーティング「誘電体にひそむランダムネスとフラストレーション」(大阪大学、2009-12)
 - 19) 竹内繁樹：「光量子計算・量子リソグラフィ」、応用物理学会・量子エレクトロニクス研究会「量子情報の最前線と今後10年の展開」、上智大学軽井沢セミナーハウス (2010-01)
 - 20) 岡本亮、竹内繁樹：「量子情報フォトニクス2009」、北

北海道大学電子科学研究所平成21年度 研究交流会、北海道大学電子科学研究所 (2010-01)

- 21) M. Tanida, T. Nagata, R. Okamoto, K. Sasaki and S. Takeuchi : “Highly-pure heralding single-photon sources for linear optics quantum computation”, 13th SANKEN International Symposium 2010, ホテル日航関西空港 (2010-01)
- 22) M. Fujiwara, H. Takashima, K. Toubaru, H. Zhao, K. Sasaki and S. Takeuchi : “Toward the realization of the strong coupling between a Diamond NV center and a microsphere resonator with a tapered fiber”, 13th SANKEN International Symposium 2010, ホテル日航関西空港 (2010-01)
- 23) 竹内繁樹:「量子もつれ光による新しい計測の可能性について」、第2回 超高速時間分解光計測研究会～量子ダイナミクスと制御～、浜松名鉄ホテル (2010-03)
- 24) 竹内繁樹:「光子量子回路による量子サイバネティクスの実現」、新学術領域「量子サイバネティクス」第2回量子サイバネティクス総括班会議、新・都ホテル、伏見の間 (2010-03)
- 25) 竹内繁樹:「古典限界をうち破る一量子もつれ合いの計測への応用」、電子情報通信学会大会 2010年総大会、東北大学 川内キャンパス (2010-03)
- 26) M. Tanida, T. Nagata, R. Okamoto, K. Sasaki and S. Takeuchi : “Highly-pure heralding single-photon sources for linear optics quantum computation”, International Symposium on Joint Research Network for Advanced Material and Devices “彫”, ホテルニドム (2010-03)
- 27) H. Zhao, M. Fujiwara, H. Takashima, K. Sasaki and S. Takeuchi : “NV-center investigation in diamond nano granules by laser scanning confocal microscopy”, International Symposium on Joint Research Network for Advanced Material and Devices “彫”, ホテルニドム (2010-03)

iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 竹内繁樹:「光子を用いた量子回路の実現と展望」、第32回素粒子原子核研究所セミナー、KEK (高エネルギー加速器研究機構) 素粒子原子核研究所 (2009-07)
- 2) 竹内繁樹:「光子を用いた量子回路の実現と展望」、連続講演会「ナノフォトニクスと量子情報」、電気通信大学 (2009-12)
- 3) 竹内繁樹:「光量子回路の実現とアライアンス連携による展開」、特別教育研究経費「附置研究所間連携事業」最終補正か報告会「新産業創造物質基盤技術研究センター」「ポストシリコン物質・デバイス創製基盤技術アライアンス」、東京国際フォーラム (2010-03)

4.9 共同研究

a. 海外機関との共同研究

- 1) 英国ブリストル大学 (Prof. Jeremy O'Brien)
- 2) 独国フンボルト大学 (Prof. Oliver Benson)

3) 米国デューク大学 (Prof. Jungsang Kim)

b. 所内共同研究

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

c. 民間等との共同研究

- 1) 竹内繁樹 (三菱電機株式会社) : 「単一光子源をベースにした量子暗号システムの開発」、2009年度、2000千円、パルス駆動伝令付き単一光子源を用いた量子暗号システムの構築を目的に、その検証実験に関し、共同研究を行う。

d. 受託研究

- 1) 竹内繁樹、笹木敬司、藤原英樹、岡本亮、藤原正澄 (戦略的情報通信研究開発制度 (SCOPE) 特定領域重点型研究開発 (情報通信新技術・デバイス技術)) : 「光子間の高効率固体量子位相ゲート素子の実現に関する研究」、2009年度、光子間の高効率固体量子位相ゲート素子の実現に関する研究 (課題名)
- 2) 竹内繁樹、栗村直、ホフマン F. ホルガ (科学技術振興機構 戦略的創造研究推進事業「先端光源を駆使した光科学・光技術の融合展開」) : 「モノサイクル量子もつれ光の実現と量子非線形光学の創成」、2009年度 (課題名)

4.10 予算獲得状況

a. 科学研究費補助金

- 1) 竹内繁樹、栗村直、基盤研究A、群速度エンジニアリングによる、時空間単一モード光子源の実現と応用、2008年度～2010年度
- 2) 岡本亮、若手研究B、量子シャッターの実証実験、2009年度～2010年度
- 3) 藤原正澄、若手研究スタートアップ、微小球光共振器を用いた光合成光捕集蛋白の超高感度単一分子分光、2009年度～2010年度

b. 科学技術振興調整費

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

4.12 社会教育活動

a. 公的機関の委員

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

b. 国内外の学会の役職

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

c. 併任・兼業

- 1) 竹内繁樹：大阪大学産業科学研究所 招聘教授（2007年10月1日～現在）
- 2) 竹内繁樹：東京大学 ナノ量子情報エレクトロニクス研究機構 委嘱教授（2007年4月1日～現在）
- 3) 国立情報学研究所 最先端研究開発プログラム 客員教授（2010年3月1日～2014年8月31日）
- 4) 竹内繁樹：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（2009年8月6日～2010年3月31日）
- 5) 竹内繁樹：科学技術振興機構 領域アドバイザー（2003年7月24日～2009年3月31日）

d. その他

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

e. 新聞・テレビ等の報道

・新聞

- 1) 竹内繁樹：日経産業新聞 2009年4月9日「2009年度技術トレンド調査（第一回）」
- 2) 竹内繁樹：日刊工業新聞 2010年2月6日「若手向け振興会賞受賞者 五十嵐氏ら25人に」
- 3) 竹内繁樹：科学新聞 2010年2月12日「第6回日本学術振興会賞に25氏」
- 4) 竹内繁樹：科学新聞 2010年3月12日「永遠に輝く「日本の若き宝」」

f. 外国人研究者の招聘

- 1) Jeremy L.O'Brien, UK (2009年1月16日～6月15日)
- 2) Ian Walmsley, UK (2009年6月7日～6月8日)
- 3) Holger F.Hofmann, Hiroshima Univ. (2009年7月8日)
- 4) Andrew Shields, UK (2009年9月4日～9月7日)
- 5) Holger F.Hofmann, Hiroshima Univ. (2009年12月1日)

g. 北大での担当授業科目

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

j. 修士学位及び博士学位の取得状況

・博士課程（2名）

- 1) 川瀬大輔(情報科学研究科 光システム計測研究分野)
 - 2) 永田智久(情報科学研究科 光システム計測研究分野)
- ・博士論文
- 1) 川瀬大輔：光子の軌道角運動量もつれ合いの生成と制御に関する研究
 - 2) 永田智久：多光子量子干渉を用いた光量子回路の実現とその計測への応用に関する研究

有機電子材料研究分野

教授 中村貴義（東大院、理博、1997.4～）
 准教授 芥川智行（京大院、理博、2003.5～2010.3）
 助教 野呂真一郎（京大院、工博、2004.7～）
 博士研究員 Qiong Ye（2007.5～）、李 玲（2009.4～）
 院 生 遠藤大五郎 (DC3)、野田祐樹 (DC2)、遠藤格 (DC2)、
 福原克郎 (MC2)、厳寅男 (MC1)

1. 研究目標

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

2. 研究成果

(a) 超分子ローター構造を含む分子性強誘電体の開発

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

これまでに、 $\text{Cs}_2[\text{18crown-6}]_3[\text{Ni}(\text{dmit})_2]$ や $(\text{Anilinium})[\text{18crown-6}][\text{Ni}(\text{dmit})_2]$ 結晶における、 18crown-6 分子の回転運動や、 $\text{Anilinium}(\text{Ani}^+)$ カチオンあるいは m -fluoroanilinium ($m\text{-FAni}^+$) カチオンの 180° フリップフロップ運動に関する報告を行った。本研究では、後者のフリップフロップ運動に着目し、回転ユニットに双極子モーメントを導入する事で、固体中で分極反転場を構築し、新規な強誘電体の開発を目的に研究を行った。結晶中の分子回転運動の実現は、最密充填構造の形成と相反するため、結晶空間の精密設計が重要である。既に報告した ($m\text{-FAni}^+$) $[\text{18crown-6}][\text{Ni}(\text{dmit})_2]$ 結晶では、 Anilinium カチオンのフリップフロップ運動により、強誘電性が発現する。そこで新たに、 180° フリップフロップ運動で双極子モーメントの反転が可能な o -aminoanilinium (HOPD^+) カチオンを含む正方晶系 (HOPD^+)($\text{DB[18crown-6]Ni}(\text{dmit})_2$) (DB[18crown-6 =

$\text{dibenzo[18crown-6]}$ (**1**) を作製した。同時に、コンフォメーション多形である単斜晶系 (HOPD^+)(DB[18crown-6])[$\text{Ni}(\text{dmit})_2$] (**2**) も作製可能であり、両結晶の誘電物性を比較する事で強誘電性の検証を可能とした。

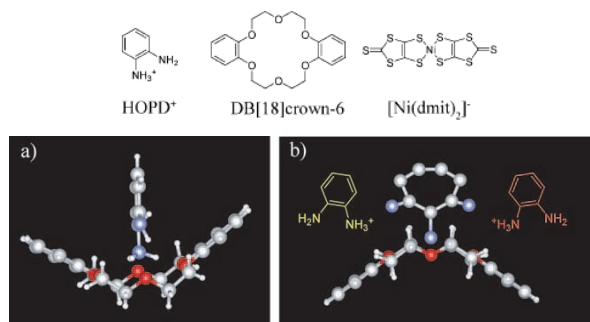


図1. 錯体 a) **1** と b) **2** の結晶中における超分子カチオンのコンフォメーション。

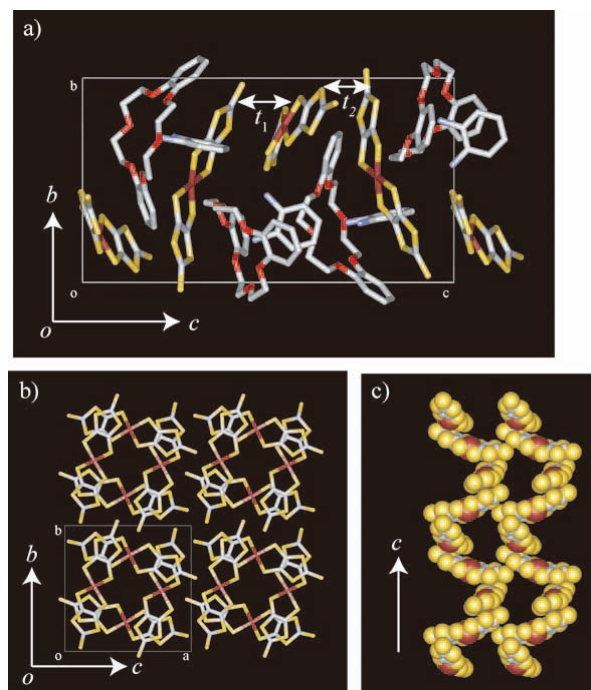


図2. a) 錯体 **1** の結晶構造。b) および c) 錯体 **1** の結晶中における $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]$ アニオンの分子配列。

結晶 **1** および **2** 中のアンモニウム基は、 $\text{N-H}\cdots\text{O}$ 水素結合により、V字型の DB[18crown-6] の酸素原子と相互作用し、異なるコンフォメーションの超分子カチオンを形成した。また結晶 **1** と **2** 中の $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]$ アニオン配列は超分子カチオンの構造に依存して、4回螺旋と二次元層であった。これらの磁性は、アニオン上の1つの $S=1/2$ を反映して、室温付近ではキュリー・ワイス則に従った。しかしながら結晶 **1** の電子スピン共鳴測定では、28 Kにおいて g 値と線幅に磁気異常が出現し、これは、4回螺旋構造の反強磁性秩序に由来する。結晶 **2** では、200 K以上の温度領域で顕著な誘電率の温度および周波数依存性が観測されるが、結晶 **1** ではこのような挙動は見られない、結晶 **2** 中の HOPD^+ カチオ

ンの熱揺らぎによる分子軌道計算によるポテンシャルエネルギー曲線計算とX線結晶構造解析から示唆された。一方、結晶1の(HOPD⁺)(DB[18]crown-6)カチオンの熱揺らぎは小さく、顕著な誘電応答を示さなかった。HOPD⁺カチオンのアミノ基とDB[18]crown-6分子の立体障害が、異なるコンフォメーションの超分子カチオン構造を与え、これが結晶多形および異なる磁気挙動を与える結果となった。

結晶2は、超分子化学の手法から設計された超分子ローター構造を利用した、新規な誘電体である。水素結合鎖内のプロトン移動と比較し、分子回転に伴う分子座標の大きな変位に加えて強誘電性を担う超分子ローター構造と磁性機能を担う金属錯体が共存していることから、今後、マルチフェロイック材料などへの展開が期待できる。

(b) 超分子ローター構造を含む分子磁性体に関する研究

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

有機アンモニウムカチオンはクラウンエーテルの6個の酸素原子とN-H⁺~O水素結合により、超分子カチオン構造を形成していた。この超分子カチオンのローター部位にあるF基は双極子モーメントの誘起を打ち消す向きにそれぞれの分子が配列しており、F基部位のディスオーダーも見られなかった。*m*-FAni⁺のフリップフロップ運動に対する回転ポテンシャル障壁を計算したところ、3200および1600 kJ mol⁻¹と非常に大きく、結晶内で回転運動は起こっていないことが示唆された。そのため、顕著な誘電特性を発現することはなかったが、*a*軸方向に誘電率測定を行うと、*m*-FAni⁺の振り子運動に起因すると考えられる誘電率の変化が240Kで見られた。

[Ni(dmit)₂]⁻アニオンは硫黄原子を介した相互作用により、*ac*面に平行な二次元層を形成する。この結晶は、[Ni(dmit)₂]⁻アニオンの side-by-side の相互作用(*J*₁, *J*₂, 図3)によりワイス温度が+3.42 Kの強磁性を示す。

結晶3は、磁性を担う、[Ni(dmit)₂]⁻アニオン部位の分子配列が、超分子ローター構造の種類により変化させることができることを利用した、新規な強磁性体である。強誘電性を担う超分子ローター構造と[Ni(dmit)₂]⁻アニオンの組み合わせで強磁性が発現することから、今後、マルチフェロイック材料などへの展開が期待できる。

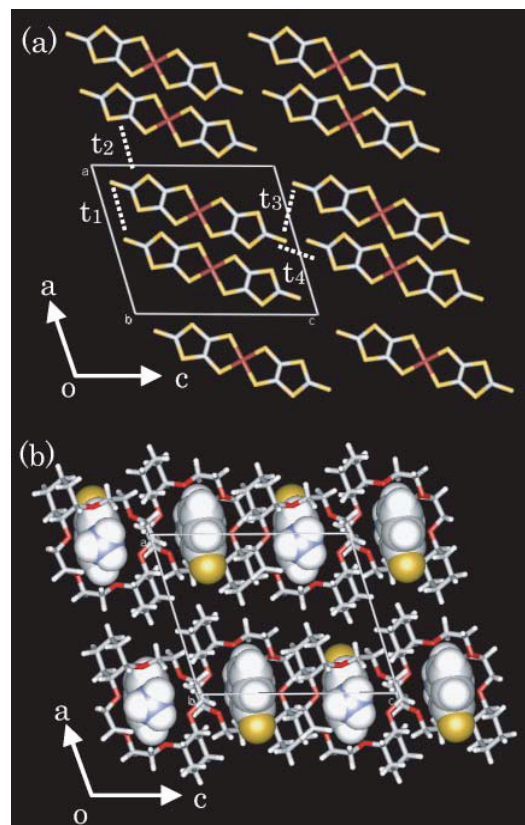


図3. 錯体3の結晶内における、a) [Ni(dmit)₂]⁻アニオンの分子配列、および b)超分子カチオンの分子配列。アニオン層とカチオン層がb軸方向に交互に積層している。

(c) 巨大POMクラスターの内部空間安定化及び機能化

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

昨年度は、直径4nmにも達する巨大リング状POM (Na₁₄[Mo₁₅₄O₄₆₂H₁₄(H₂O)₇₀]-400H₂O)を両親媒性分子である dimethyldioctadecylammonium (DODA⁺)カチオンで被覆することにより、リング内部空間に存在する水分子を完全に排除しても安定な複合体4((DODA)₂₃[Mo₁₅₄O₄₆₂H₅]-xH₂O)の合成に世界で初めて成功し、多孔性機能(ガス・蒸気吸着特性、水中固体酸触媒特性)に関する興味深い知見を得ることができた。本年度は、昨年度見出した両親媒性分子による被覆法が多様な系で応用可能かどうか検討するために、直径3.3 nmの巨大ボール状POM ((NH₄)₄₂[Mo₁₃₂O₃₇₂(AcO)₃₀(H₂O)₇₂]-~300H₂O~10CH₃COONH₄)とDODA⁺カチオンとの複合化について検討を行った。

巨大ボール状POMとDODA⁺カチオンとの複合化によって得られた複合体5((DODA)₃₁(NH₄)₁₁[Mo₁₃₂O₃₇₂(AcO)₃₀(H₂O)_x])は、複合化後もそのボール状構造が保持され、且つ溶液中

における安定性が向上することがIR及びUV スペクトルから明らかとなった。また、室温における水吸着測定を行ったところ、原料のボール状POM及び複合体**5**ともに低相対圧において急激な吸着量の増加が観測された。今回実験に用いたボール状POMは、その内部空間に72個のモリブデンイオンに配位した水を持ち、更に約50個の水分子を取り込むことが可能である。吸着量の急激な立ち上がりがおおよそ70モル／モル以降で緩やかになることから、原料のボール状POM及び複合体**5**は安定なLewis酸サイトを有していることを確認することができた。更に、複合体**5**の飽和吸着量はボール状POM内部に取り込める最大水分子量よりもわずかに高く、またボール表面がDODA⁺カチオンで被覆されていることから、複合体**5**に吸着された水分子はボール状POMの内部およびアンモニウムカチオン周りに取り込まれていることが予想された。

(d) 柔軟性金属錯体を用いた新規多孔性材料の開発

金属イオンと有機架橋配位子を自己集積させることによって得られる金属錯体は、構造の多様性・設計性・柔軟性に富んだ高結晶性の物質である。また、無機部品の金属イオンと有機部品の配位子が共存しているため、それぞれの特性を兼ね備えることが可能となる。そのため、様々な機能性物質（磁性、誘電性、光学特性、多孔性）の研究対象として注目されてきた。特に、均一なマイクロ孔を有する多孔性金属錯体はここ20年の間に急速に発展した分野であり、ゼオライト・活性炭に続く第3の多孔性材料として精力的に研究されている。本研究では、金属錯体の柔軟性に着目し、非多孔体→多孔体構造転移を利用したCO₂吸着分離材料の開発を試みた。

先行研究により、Cu-PF₆分極構造を持つ柔軟性1次元金属錯体 [Cu(PF₆)₂(bpetha)]_n (**6**, bpetha = 1,2-bis(4-pyridyl)ethane) が構造転移を伴いながらCO₂ガスを高選択的に吸着することを見出した。ただし、錯体**6**の改良点として(1)水吸着の抑制、(2)吸着開始圧の低減が挙げられる。本年度は錯体**6**の分離特性をさらに改良するために、誘導体 [Cu(PF₆)₂(bpp)]_n (**7**, bpp = 1,3-bis(4-pyridyl)propane) の合成を行った。錯体**7**は、単結晶構造解析・XRD・NMRの結果より錯体**6**と同様のCu-PF₆分極構造を持つ1次元状金属錯体であった。錯体**7**の各種ガス吸着測定を行ったところ、CO₂・N₂は低温で吸着されるのに対し (Langmuir 比表面積: 375 m²・g⁻¹)、水は室温において錯体**7**の細孔内へ吸着されなかった。極性分子である水はCO₂吸着をしばしば阻害するため、水を吸着しないCO₂吸着分離材料の開発は現状課題のひとつである。本研究では、配位子修飾により金属錯体の疎水性を向上することで、水吸着を抑制することに成功した。また、77KにおいてN₂吸着平衡状態に達する時間は一般的な多孔体に比べて非常に長かった。以上の結果から、錯体**7**は非常に小さな細孔を有する非柔軟性多孔体、または構造変化を伴いながらガスを吸着する柔軟性多孔体であり、非極性分子に対して親和性があることが示唆された。

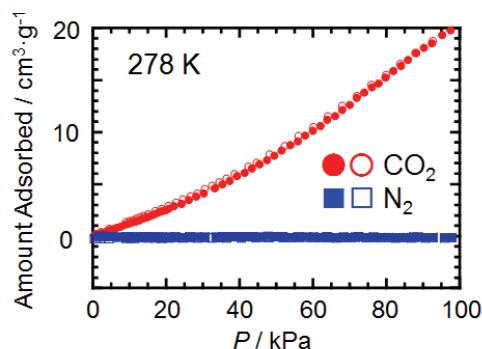


図4. 錯体**7**の278KにおけるCO₂(赤)・N₂(青)吸脱着等温線 (●■: 吸着、○□: 脱着)

そこで、次に278KにおけるCO₂・N₂の吸着測定を行ったところ(図4)、低温の時とは異なりN₂は全く吸着されなかったのに対し、CO₂は徐々に錯体**7**に吸着された。以上の結果は、錯体**7**を用いることによって室温・低圧条件におけるCO₂の選択的分離が可能であることを示している。また、CO₂の吸着量が圧力増加と共にだらかに増加しているため、錯体**7**は非柔軟性多孔体ではなく柔軟性多孔体ではないかと現在推測している。278KにおいてN₂が吸着されなかった原因としては、N₂と錯体**7**の相互作用が弱く、構造転移を誘起できなかったためであると考えられる。

3. 今後の研究の展望

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

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) T. Akutagawa, H. Koshinaka, D. Sato, S. Takeda, S. Noro, H. Takahashi, R. Kumai, Y. Tokura, and T. Nakamura: “Ferroelectricity and polarity control in solid state flip-flop supramolecular rotators”, *Nature Materials*, 8 : 342-347 (2009)
- 2) S. Noro, S. Kitagawa, T. Akutagawa and T. Nakamura: “Coordination polymers constructed from transition metal ions and organic N-containing heterocyclic ligands: Crystal structures and microporous properties”, *Progress in Polymer Science*, 34 : 240-279 (2009)
- 3) T. Akutagawa, K. Shitagami, M. Aonuma, S. Noro and T. Nakamura: “Ferromagnetic and Antiferromagnetic Coupling of [Ni(dmit)₂] Anion Layers Induced by Cs⁺₂(benzo[18]crown-6)₃Supramolecule”, *Inorganic Chemistry*, 48 : 4454-4461 (2009)
- 4) M. Fujisawa, A. Asakura, S. Okubo, H. Ohta, S. Nishihara, T. Akutagawa, Y. Hosokoshi and T. Nakamura: “Impurity effect of an $S = 1/2$ two leg spin ladder antiferromagnet [Ph(NH₂)]([18]crown-6)[Ni(dmit)₂] studied by ESR”, *Journal of Physics*, 150 : 042034- (2009)
- 5) T. Endo, T. Akutagawa, T. Kajiura, K. Kakiuchi, Y. Tatewaki, S. Noro and T. Nakamura: “Langmuir-Blodgett Films of Charge-Transfer Complexes: Ethylenedithio-Substituted Amphiphilic Bis-TTF Macrocycle and F₄TCNQ or Br₂TCNQ”, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, 82 : 968-974 (2009)
- 6) S. Noro, D. Tanaka, H. Sakamoto, S. Kitagawa, S. Takeda, K. Uemura, H. Kita, T. Akutagawa and T. Nakamura: “Selective Gas Adsorption in One-Dimensional, Flexible Cu^{II}Coordination Polymers with Polar Units”, *Chem. Mater.*, 21 : 3346-3355 (2009)
- 7) S. Carsten, R. Tsunashima, M. A. Donald, M. Thomas, T. Akutagawa, S. Antonino, P. Bruno, G. Nikolaj, C. Leroy and T. Nakamura: “Supramolecular Silver Polyoxometalate Architectures Direct the Growth of Composite Semiconducting Nanostructures”, *Angew. Chem., Int. Ed.*, 48 : 6490-6493 (2009)
- 8) R. M. X., L. X. G., T. Akutagawa and T. Nakamura: “Doping Effect of Nonmagnetic Impurity on the Spin-Peierls-like Transition in the Quasi-one-dimensional (quasi-1D) spin System of 1-(4'-nitrobenzyl)pyridinium bis(maleonitriledithiolato)nickelate”, *Polyhedron*, 28 : 2075-2079 (2009)
- 9) H. Imai, T. Akutagawa, F. Kudo, M. Ito, K. Toyoda, S. Noro, C. Leroy and T. Nakamura: “Structure, Magnetism, and Ionic Conductivity of the Gigantic {Mo₁₇₆}-Wheel Assembly: Na₁₅Fe₃Co₁₆[Mo₁₇₆O₅₂₈](H₂O)₈₀]Cl₂₇ · 450H₂O”,

J. Am. Chem. Soc., 131 : 13578-13579 (2009)

- 10) M. Ishikawa, S. Yamashita, T. Naito, M. Matsuda, H. Tajima, N. Hanasaki, T. Akutagawa and T. Nakamura: “Nonlinear Transport Phenomena in Highly One-Dimensional M^{III}(Pc)(CN)₂ Chains with π -d Interaction (M=Co and Fe and Pc=Phthalocyaninato)”, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 78 : 104709-104714 (2009)

4.2 著書

- 1) 中村貴義、芥川智行: 「配位空間の化学—最新技術と応用—」、誘導物性、シーエムシー出版 (2009)
- 2) 中村貴義、芥川智行: 「超分子サイエンス&テクノロジー」、分子性導体デバイス、NTS : 618-627 (2009)

4.3 講演

一般講演

i) 学会

- 1) 野呂真一郎*、芥川智行、中村貴義: 「巨大リング状及びボール状金属酸化物と両親媒性有機分子との複合構造の合成と性質」、第59回錯体化学討論会、長崎大学 (2009-09)
- 2) 遠藤格*、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義: 「Anilinium誘導体/[18]crown-6超分子カチオンを含む[Mn_{II}Cr_{III}(ox)₃]錯体の結晶構造と磁性」、第59回錯体化学討論会、長崎大学 (2009-09)
- 3) Y. Qing*, T. Akutagawa, S. Noro and T. Nakamura: “Supramolecular Cations of Flexible Cyclohexane Diammonium Cations in [Ni(dmit)₂]Salts”, 第59回錯体化学討論会、長崎大学 (2009-09)
- 4) 厳寅男*、佐藤大介、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義: 「アダマンチルアミン誘導体-クラウンエーテル超分子構造を含む[Ni(dmit)₂]塩の構造と物性」、第59回錯体化学討論会、長崎大学 (2009-09)
- 5) 芥川智行*: 「固相超分子ローター構造の設計と誘電物性の制御」、第59回錯体化学討論会、長崎大学 (2009-09)
- 6) 野田祐樹*、芥川智行、野呂真一郎、中村貴義: 「イミン部位の相互作用を利用したポルフィリン-金ナノ粒子集積体の作製と電気伝導」、第3回分子科学討論会、名古屋大学 (2009-09)
- 7) 野田祐樹*、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義: 「ポルフィリン誘導体-金ナノ粒子複合構造の作製」、第62回コロイド及び界面化学討論会、岡山理科大 (2009-09)
- 8) 野呂真一郎*、芥川智行、中村貴義: 「分極ユニットを有する低次元銅金属錯体の結晶構造と特異な吸着選択性」、第62回コロイドおよび界面化学討論会、岡山理科大 (2009-09)
- 9) 福原克男*、野田祐樹、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義: 「TTF誘導体-金ナノ粒子複合LB膜の量子伝導に与える金ナノ粒子サイズの影響」、第62回コロイドお

よび界面化学討論会、岡山理科大学 (2009-09)

- 10) T. Endo*, S. Noro, T. Akutagawa and T. Nakamura :
“Crystal Structure and Ferromagnetic Properties of
[Mn^{II}Cr^{III}(ox)₃] Salt with m-Fluoroanilinium/Dibenzo [18]
crown-6 Supramolecular Cation”, ISCOM2009, Niseko
(2009-09)
- 11) T. Akutagawa* and T. Nakamura : “Ferroelectricity Aris-
ing From Molecular Rotators in Magnetic [Ni(dmit)₂]
Salts”, ISCOM2009, Niseko (2009-09)
- 12) Y. Noda*, S. Noro, T. Akutagawa and T. Nakamura :
“Charge Transport Behavior of Hybrid Assembly Struc-
tures Between Gold Nanoparticles and Porphyrin Deriva-
tives”, ISCOM2009, Niseko (2009-09)
- 13) Y. Qiong*, T. Akutagawa, S. Noro and T. Nakamura :
“Flexible Cyclohexane Diammonium Cations in [Ni(dmit)₂]
Salts”, ISCOM2009, Niseko (2009-09)
- 14) 芥川 智行* : 「Dipole Rotator in Ferroelectric
[Ni(dmit)₂]Salts」、Global-COE International Conference
on Perspectivs in Orhanic-Inorhanic Hybird Conductors
and Molecule-Based Magnets、東北大学 (2009-09)
- 15) 野田祐樹*、芥川智行、野呂真一郎、中村貴義 : 「金ナ
ノ粒子-ポルフィリン誘導体からなる集積体の電気伝
導挙動」、日本物理学会2009年秋季大会、熊本大学
(2009-09)
- 16) 遠藤格*、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義 : 「*m*
-fluoroanilinium/dibenzo[18]crown-6超分子ローターを
含む[Mn^{II}Cr^{III}(ox)₃]結晶の構造と強磁性」、日本化学会
北海道支部会夏季研究発表会2009、苫小牧高専
(2009-07)

ii) シンポジウム

- 1) T. Nakamura*, R. Tsunashima and T. Akutagawa : “Elec-
trically Conducting Nanostructures Formed by Lang-
muir-Blodgett Method”, 19th MRS-J Symposium, Yoko-
hama (2009-12)
- 2) T. Nakamura* and T. Akutagawa : “Molecular Rotators for
Ferroelectrics”, IUPAC 4th International Symposium on
Novel Materials and Synthesis (NMS-V)& 19th Interna-
tional Symposium on Fine Chemistry and Functional
Polymers(FCFP-XIX), Shanghai, China (2009-10)

4.4 予算獲得状況

- a. 科学研究費補助金 (研究代表者、分類名、研究課題、
期間)
- 1) 中村貴義、基盤研究A、固相人工分子モーターの構築
(2007～2009年度)
- 2) 芥川智行、基盤研究B、ナノワイヤーナノ粒子連結系
の量子伝導制御 (2008～2010年度)

4.5 社会教育活動

a. 北大での担当授業 (対象、講義名、担当者、期間)

- 1) 環境科学院、電子材料科学特論、中村貴義、2009年4
月1日～2009年9月30日

i. ポスドク・客員研究員など

・ポスドク (2名)

- 1) Qiong Ye (日本学術振興会外国人特別研究員)
- 2) 李 玲 (電子科学研究所研究員)

j. 修士学位及び博士学位の取得状況

・修士課程 (1名)

福原克郎

・修士論文

- 1) 福原克郎 : TTF誘導体・金ナノ粒子から形成される複
合超薄膜の電子物性

ナノ光高機能材料研究分野

教 授 末宗幾夫（東工大院、工博、1993.4～）

准教授 熊野英和（北大院、工博、1997.4～）

助 教 笹倉弘理（北大院、工博、2007.11～）

博士研究員

許 載勳、小田島聡

院 生

江國晋吾、倉光周平、宮村壮太、加藤大望、中島秀朗、
和田雅樹、井田惣太朗、Nahid Akhter Jahan

1. 研究目標

本研究分野では、(I)量子ドットなど量子ナノ構造並びにナノフォトニック構造作製による電子状態ならびに光子状態の制御、(II)ナノテク技術による単一の量子ドット取り出しとその評価、(III)電子のペアリングによる新たな光子生成過程制御、(IV)ナノフォトニック構造に埋め込んだ量子ドットによる高い光子取り出し効率と高性能光子源の実現と、これを用いた量子情報処理への応用を目指している。

2. 研究成果

(a) 超伝導LEDにおける超伝導効果の理論解析

現在量子情報通信・量子情報処理の分野では、互いに強い相関を持つ量子もつれあい光子対を用いた高度の量子情報通信、通信距離を増すための量子リピータの研究、もつれあい光子対を用いた量子情報処理などの研究が活発となっており量子もつれあい光子対光源の重要性が増している。これまでパラメトリック下方変換(PDC)が標準的に使用されてきているが、光子対の個数状態は励起レーザ光源のコヒーレンスと不確定性関係にあり、ランダムなポアソン分布となってしまう。これに対して量子ドットにおける励起子・励起子分子発光による光子対発生が盛んに検討されているが、この方法では光子対は異なる時間に時系列的に発生し、PDCのような光子対の同時生成は望めない。これに対して我々は2006年に電子クーパ対と正孔対の発光再結合によるもつれあい光子対の発生法を提案し、超伝導発光ダイオード(LED)の研究を進めてきた。2008年にはInGaAs系超伝導LEDを試作し、LEDの表面にストライプ幅50 μm のニオブウム超伝導電極を形成し、その中央部分に幅150nm程度のスリット開口を設け、この部分からInGaAs発光層のエレクトロルミネッセンスを観測した。その結果、注入電流250 μA 一定の条件下で、ニオブウム超伝導臨界温度8.3K以下の温度領域において、温度の低下に対する急激な発光増強を観測した。これはNb電極が臨界温度以下で超伝導状態になり、そこから近接効果でInGaAs発光層に注入される電子クーパ対が、正孔との発光再結合過程においてその遷移確率を増大する効果を示したものと考えられ、

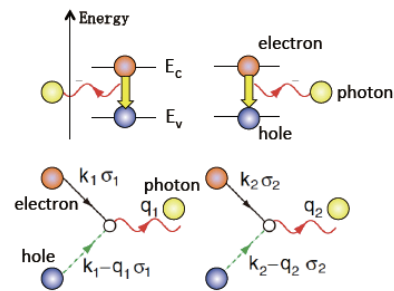


図1. 通常の電子-正孔対の発光再結合による光子生成過程。 E_c は伝導帯バンド端。 E_v は価電子帯バンド端。それぞれの光子生成過程は互いに独立に起こる。

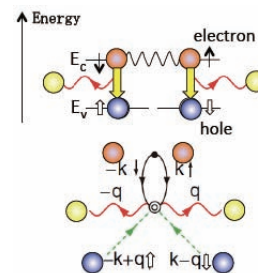


図2. 電子が互いにスピン反転したスピンスingレット対を作り、二つの正孔と発光再結合して光子対を同時生成する過程。電子系に超伝導効果を取り入れることによって発生する項であり、再結合確率に非常に大きな寄与を与える。

全く新しい物理現象を初めて確認すると共に、2006年の我々の提案を実現する突破口が開かれた。このような新現象をより明確に理解するために、その理論解析を行った。

具体的には、半導体のバンド間発光再結合を2次の摂動理論で取り扱い、電子系の扱いにBogoliubov変換を用いて超伝導効果を取り入れ、解析を行った。その結果、電子と正孔が発光再結合する際に、電子対がスピンスingレット状態（クーパ対）を形成することによって、正孔対と再結合するレートが大きく増大することが見いだされた。

図1に示すように、通常の電子（●）と正孔（●）が再結合して光子（●）を発生するプロセスを考える。 k_1 は電子の波数、 $k_1 - q_1$ は正孔の波数であり、発生する光子の波数 q_1 と運動量保存を満たしている。 σ_1 は電子・正孔のスピンであり、光子はスピンを持たない。もう一方の k_2 , $k_2 - q_2$, σ_2 も同様である。このような電子-正孔対から光子を発生する過程は通常、電子-正孔対ごとにそれぞれ独立である。それに対してBogoliubov変換を用いて電子系の扱いに超伝導効果を取り入れると、図2のようにスピンの互いに反転したスピンスingレット電子対を形成し、これと通常の正孔対とが発光再結合する項が非常に大きくなることが判った。この電子がクーパ対を形成して正孔対と再結合する過程は、超伝導効果を取り入れた場合にだけ起こる特有な現象である。

具体的な計算では散乱過程を取り込まないと発散を起こすので、図3に示す弾性散乱を考慮した場合と、非弾性散乱を考慮した場合を扱った。実験的に観測された超伝導臨

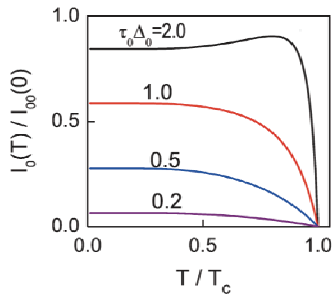


図3. 超伝導臨界温度(T_c)以下での発光強度の温度依存性の計算結果。 Δ_0 は絶対零度での超伝導ギャップ。 τ_0 は弾性不純物散乱時間であり、短くなるほど散乱の影響が大きくなり、発光増強効果が弱くなる。

界温度以下での発光増強が理論的に再現されている。電子がクーパー対を形成することによって発光過程が増強される物理的な要因としては、フェルミ粒子の電子がクーパー対を形成することによってボーズ粒子に変化し、そのエネルギー状態へボーズアインシュタイン凝縮(BEC)することである。言い方を変えれば、ノーマル粒子の正孔対と発光再結合する電子対の超伝導状態密度はBECによって大幅に増大し、これが発光遷移確率を増大すると解釈できる。なお電子クーパー対はボーズ粒子として空間的にコヒーレントに広がっており、光学遷移の対象となる正孔対としては、エネルギー保存と運動量保存を満たす電子クーパー対のコヒーレント体積中に存在するすべての正孔対が対象となり、必ずしも空間の同じ場所に正孔対が分布する必要はない。またこの発光再結合で光子対を発生する過程はコヒーレントであり、発生する光子対は互いに識別できない、量子もつれあい状態の光子2個を同時に生成する発光過程となっている。

(b) InAsP/InPナノワイヤからの単一量子ドット発光ピークの観測

ナノ構造に関する研究は、現在、量子ドット、ナノ粒子とともに、ナノワイヤの研究が活発化している。半導体ナノワイヤは光学的、電子的に新規な物性を示し、特にヘテロ構造を内包したナノワイヤは、内部に量子ドットを形成し、ナノワイヤと量子ドット間のキャリア輸送に関する知見を高めるとともに、量子ドットに効率よく電子、正孔を注入できる可能性がある。このような新たな可能性を探るとともに、安全安心な情報通信基盤に関する研究におけるナノワイヤのポテンシャルを確認する検討を行った。

具体的には、北大情報科学研究科、本久・福井研究グループでInAsP/InP半導体ナノワイヤ量子ドットを作製し、これを末宗グループの高分解能光学測定系で詳細な光学評価を行う共同研究を実施した。より具体的にはマイクロPL測定系を用いて、ナノワイヤの1ミクロン程度の微小領域に関して高分解能スペクトル測定を行い、1本のナノワイヤを計測することで内部に形成された単一量子ドット状態の評価を進めた。

測定を行ったナノワイヤは、選択MOVPE（有機金属気相成長）した試料である。(111)A InP基板表面にスパッタ

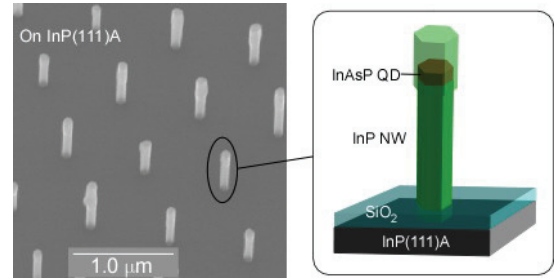


図4. MOVPEで(111)A InP基板上に選択成長されたInAsP/InPナノワイヤ量子ドット。

法でSiO₂膜を形成し、電子ビーム露光を用いて1 μm程度の間隔で直径100 nm程度の開口を形成する。このサンプルをMOVPE装置の中で表面クリーニングし、SiO₂膜開口部分だけにナノワイヤを選択的に成長させる。このようにして成長したサンプルを走査型電子顕微鏡(SEM)で観察した結果を図4に示す。

このようにして作製したナノワイヤを4Kまで冷却し、20倍の対物レンズを用いて一つのナノワイヤについてその発光特性を測定した。励起には波長800 nmのTi:Sapphireレーザを用いた。観測した発光スペクトルの例を図5(a)に示す。ナノワイヤのInPバリアにより量子閉じ込めされたInAsP単一量子ドットからのきれいな単峰ピークが観測される。励起強度を増していくと1.0 meV低エネルギー側にもう一つのピークが現れ、その相対強度が励起強度とともに増大する。対数プロットしたその傾きが互いに約2倍異なることから、傾きが緩やかで弱励起から観測されるピークが中性励起子(X⁰)発光、傾きがその2倍となっているピークが中性励起子分子(XX⁰)発光と特定される(図5(b))。

これまでの報告では、InPナノワイヤは基板のセン亜鉛鉱構造を引き継いだ結晶構造を主体とし、その中にウルツ鉱構造が多数入り込んだ状態になっていることが多くの場合で観察されている。このように両者の結晶構造が混合した状態ではバンド接続がType-IIとなり、伝導帯の電子と価電子帯の正孔が空間的に分離されるため、再結合寿命が長くなることが報告されている。実際文献では~8 nsと長い再結合寿命が報告されている。一方今回測定したナノワイヤではほぼ完全にウルツ鉱構造となっているがその中に

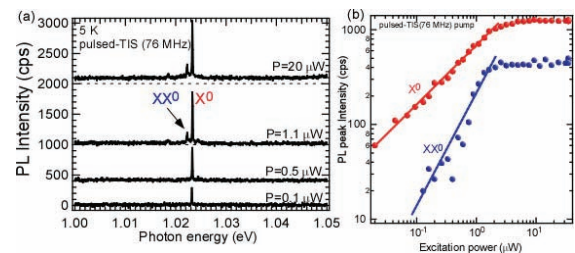


図5. (a) 弱励起でナノワイヤ中の単一量子ドットから観測されるシャープな発光ピーク。発光線幅(FWHM)は~46 μeV。(b) 発光強度の励起強度依存性

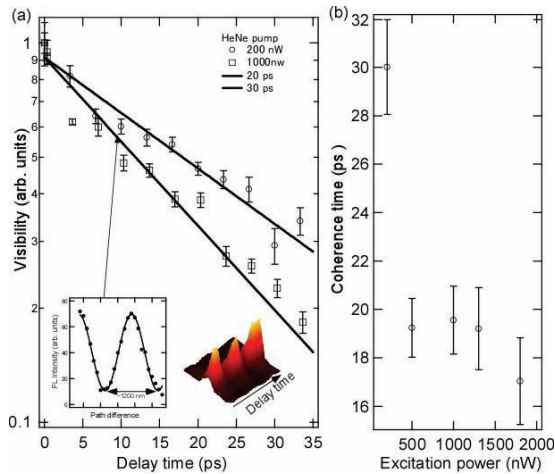


図6. (a) InAsP 量子ドットからの励起子発光について、可干渉度 (Visibility) の干渉計行路長差依存性を測定した結果。図の挿入図は光路中に挿入した位相板の傾きを変えたときの干渉強度変化。これからコヒーレンス時間 (T_2 時間) が見積もられる。(b) コヒーレンス時間の励起依存性。

4%程度のセン亜鉛銦構造が積層欠陥として存在していることが透過電子顕微鏡観察で確認されている。0.5 nm のバンド幅のフィルターにより X^0 発光と XX^0 発光を選択し、ストリークカメラを用いた再結合寿命を測定した結果、上記の Type-II より充分短い 2.8 ns と 0.87 ns とそれぞれ求めた。

ナノ構造から発生する光子を量子情報処理・通信に応用する際に、そのコヒーレンス時間が発光線幅とフーリエ変換極限にあること、またコヒーレンス時間がより長く取れることは、量子状態の重ね合わせを基本とする量子情報応用では特に重要である。そこで InP ナノワイヤ中の単一 InAsP 量子ドットから励起子発光した光子について、1 次光子相関フーリエ分光測定を行った。測定結果の一例を図6に示す。図の実線は Visibility が指数関数的に減衰していることを示しており、この傾きからコヒーレンス時間 (T_2 時間) を見積もることができる。この指数関数的な減衰から、発光線がローレンツ形のエネルギー広がりを示すこと、従って環境との相互作用が比較的抑えられた状態にあることがわかる。励起強度を減少させ、余剰キャリアとの相互作用を抑制すると 30 ps までコヒーレンス時間が長くなることがわかる。特に励起強度 200 nW では発光線幅 ΔE は 44 μ eV であり、コヒーレンス時間と $\Delta E = 2\hbar/T_2$ のフーリエ変換の関係にあり、いわゆるフーリエ変換限界性能を持つ光子がナノワイヤから発生できていることが確認できた。

3. 今後の研究の展望

今年度の研究により、クーパ対に関与した発光プロセスを理論面から明確化することができた。今後はさらに理論と実験の対応をより定量的に検討して、新発光プロセスに対する理解を深めると共に、量子もつれ合い光子対発生の確認を行っていく。さらに超伝導 LED へ量子ドットを導

入してオンデマンド動作を実現することを目指していく。このためには、上記で議論した光子対の発生プロセスに加えて、発生した光子対を効率よく外部に取り出す新機軸も必要であり、現在並行して検討を進めている。

単一光子、単一光子対を発生する新しいナノ構造として半導体ナノワイヤについても検討を進めた。その結果、ナノワイヤ中に埋め込まれた単一量子ドットのシャープな発光を観測すると共に、中性励起子、中性励起子分子発光の同定と、Type-I バンド構造を確認した。さらに 1 次の光子相関測定により光子源のコヒーレンス時間を評価し、低励起強度では 30 ps とコヒーレンス時間が長く取れること、また発光線幅とフーリエ変換限界の理想的な特性を示すことが確認できた。しかしながら観測したコヒーレンス時間は発光寿命と比較して 2 桁程度短く、量子性低下の物理的要因を探求する必要がある。また 2 次の光子相関測定により、励起子発光光子のアンチバンチングを測定して単一光子発生を確認する。また励起子、励起子分子発光光子のバンチングを確認して、もつれあい光子対発生の可能性を探る。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) J. Ibanez, E. Alarcon-Llado, R. Cusco, L. Artus, D. Fowler, A. Patane, K. Uesugi, and I. Suemune: "LO Phonon-plasmon Coupled Modes and Carrier mobilities in Heavily Se-doped Ga(As,N) Thin Films" *Journal of Materials Science: Materials in Electronics* **20** (2009) pp. S425-S429.
- 2) H. Kumano, S. Ekuni, H. Kobayashi, H. Sasakura, I. Suemune, S. Adachi, and S. Muto: "Spin-flip Quenching in Trion State Mediated by Optical Phonons in a Single Quantum Dot" *phys. stat. sol. B* **246** (2009) pp. 775-778.
- 3) Y. Idutsu, S. Miyamura, and I. Suemune: "Improved Luminescence Efficiency of InAs Quantum Dots Grown on Atomic Terraced GaAs Surface Prepared with In-situ Chemical Etching" *phys. stat. sol. C* **6** (2009) pp. 868-871.
- 4) Y. Idutsu, M. Takada, Y. Hayashi, T. Akazaki, H. Sasakura, H. Kumano, and I. Suemune: "Observation of Enhanced Luminescence Emitted from InAs Quantum Dots with Direct Contact to Superconducting Niobium Stripe" *phys. stat. sol. C* **6** (2009) pp. 849-852.
- 5) Y. Asano, I. Suemune, H. Takayanagi, and E. Hanamura: "Luminescence of a Cooper Pair" *Phys. Rev. Lett.* **103** (2009) 187001.
- 6) H. Sasakura, H. Kumano, I. Suemune, J. Motohisa, Y. Kobayashi, M. van Kouwen, K. Tomioka, T. Fukui, N. Akopian, and V. Zwiller: "Exciton Coherence in Clean Single InP/InAsP/InP Nanowire Quantum Dots Emitting in Infra-red Measured by Fourier Spectroscopy" *J. Phys.* **193**

(2009) 01232.

- 7) R. Inoue, H. Takayanagi, T. Akazaki, K. Tanaka, and I. Suemune: "Transport Characteristics of a Superconductor-based LED" *Supercond. Sci. Technol.* **23** (2010) 034025.
- 8) H. Kumano, H. Nakajima, S. Ekuni, Y. Idutsu, H. Sasakura, and I. Suemune: "Quantum-dot-based Photon Emission and Media Conversion for Quantum Information Applications" *Advances in Mathematical Physics* Vol. 2010, No. 391607 (2010) 1-13 (Review Paper).
- 9) I. Suemune, Y. Hayashi, S. Kuramitsu, K. Tanaka, T. Akazaki, H. Sasakura, R. Inoue, H. Takayanagi, Y. Asano, E. Hanamura, S. Odashima, and H. Kumano: "A Cooper-pair Light Emitting Diode: Temperature Dependence of both Quantum Efficiency and Radiative Recombination Lifetime" *Appl. Phys. Exp.* Vol. **3** (2010) 054001.
- 10) S. Ekuni, H. Nakajima, H. Sasakura, I. Suemune, and H. Kumano: "First-order Photon Interference of a Single Photon from a Single Quantum Dot" *Physica E* Vol. **42** (2010) 2536-2539.
- 11) S. N. Dorenbos, H. Sasakura, M. P. van Kouwen, N. Akopian, S. Adachi, N. Namekata, M. Jo, J. Motohisa, Y. Kobayashi, K. Tomioka, T. Fukui, S. Inoue, H. Kumano, C. M. Natarajan, R. H. Hadfield, T. Zijlstra, T. M. Klapwijk, V. Zwiller, and I. Suemune: "Position-controlled Nanowires for Infrared Single-photon Emission" *Appl. Phys. Lett.* Vol. **97**, No. **17** (2010) 171106.
- 12) H. Takayanagi, R. Inoue, T. Akazaki, K. Tanaka, and I. Suemune: "Superconducting Transport in an LED with Nb Electrodes" *Physica C* **470** (2010) 814-817.
- 13) H. Nakajima, S. Ekuni, H. Kumano, Y. Idutsu, S. Miyamura, D. Kato, S. Ida, H. Sasakura, and I. Suemune: "Strongly Suppressed Multi-photon Generation from a Single Quantum Dot in Metal-embedded Structure" *Phys. Stat. Solidi C* **1-3**, (2010) 201000519.

4.4 著書

- 1) 末宗幾夫:「自己組織化ハンドブック」エヌ・ティー・エス出版、国武豊喜監修、2009年11月13日(分担執筆) 937ページ
第8章 電子デバイス
第1節 ドライ薄膜形成
第1項 MOCVD

4.7 講演

a. 招待講演

- 1) I. Suemune, Y. Idutsu, M. Takada, D. Kato, S. Ida, J.-H. Huh, H. Sasakura, H. Kumano: "Semiconductor Quantum Dots in Metallic Nanostructures", 22nd International Mi-

croprocesses and Nanotechnology Conference (MNC 2009), Sapporo, November 16-19, 2009, 18B-4-1, pp. 74-75. (Invited)

- 2) I. Suemune: "Superconducting Optoelectronics" 2010 SPIE Photonic West Conference, Opto, Physics and Simulation of Optoelectronic Devices XVIII, January 23-28, 2010, San Francisco, CA, USA, paper 7597-15 (Invited).
- 3) 末宗幾夫、熊野英和、笹倉弘理、井上修一郎、行方直人:「単一量子ドットからの単一光子発生・電子スピンへの状態変換・単一光子検出とその量子情報応用」日本学術振興会ワイドギャップ半導体光・電子デバイス第162委員会(第64回)研究会資料(平成21年7月3-4日 登別) pp. 27-33.
- 4) 末宗幾夫、熊野英和、笹倉弘理:「半導体光子源の現状と超伝導フォトニクスの最近の展開」第4回量子ICT運営会議(平成21年10月1-2日 東京)。

b. 一般講演

i) 学会

- 1) 和田雅樹、笹倉弘理、熊野英和、末宗幾夫:「量子リング構造における核磁場の双安定特性」2009年(平成21年)秋季第70回応用物理学関係連合講演会(平成21年9月8日-11日、富山大学) 8p-TH-11.
- 2) 井筒康洋、許載勳、末宗幾夫:「金属埋め込み半導体ピラー構造作製における界面 SiO₂ 表面状態制御効果」2009年(平成21年)秋季第70回応用物理学関係連合講演会(平成21年9月8日-11日、富山大学) 10p-TH-17.
- 3) 中島秀朗、熊野英和、宮村壮太、井筒康洋、笹倉弘理、末宗幾夫:「金属埋め込み単一InAs量子ドットからの単一光子発生」2009年(平成21年)秋季第70回応用物理学関係連合講演会(平成21年9月8日-11日、富山大学) 8p-TH-7.
- 4) 笹倉弘理、熊野英和、末宗幾夫、本久順一、小林靖典、富岡克広、福井孝志、N. Akopian, M. van Kouwen, V. Zwiller:「1.2 μ m帯単光子源としての単一InP/InAsP/InP ナノワイヤ量子ドット発光のコヒーレンス測定」2009年(平成21年)秋季第70回応用物理学関係連合講演会(平成21年9月8日-11日、富山大学) 8p-TH-6.
- 5) 笹倉弘理、倉光周平、田中和典、赤崎達志、熊野英和、末宗幾夫:「低電流駆動による超伝導発光ダイオードの発光寿命の評価」2009年(平成21年)秋季第70回応用物理学関係連合講演会(平成21年9月8日-11日、富山大学) 8p-TH-9.
- 6) 許載勳、末宗幾夫:「超伝導Nb電極のナノパターンニングにおける低温現象の効果」2009年(平成21年)秋季第70回応用物理学関係連合講演会(平成21年9月8日-11日、富山大学) 11a-ZF-9.
- 7) 井田惣太郎、加藤大望、末宗幾夫:「有限差分時間領域(FDTD)法による金属埋め込みInAs QDs ピラー構造の解析」第45回応用物理学学会北海道支部合同学術講演会(平成22年1月8日-9日、札幌) C-23.

- 8) 江国晋吾、中島秀朗、熊野英和、末宗幾夫：「多色励起による単一量子ドット中の荷電状態制御」第45回応用物理学学会北海道支部合同学術講演会(平成22年1月8日-9日、札幌) C-15.
 - 9) 加藤大望、井田惣太郎、宮村壮太、中島秀朗、熊野英和、末宗幾夫：「金属埋め込み量子ドットピラー構造を用いた単一光子源の解析」2010年(平成22年)春季第57回応用物理学関係連合講演会、(平成22年3月17日-20日、東海大学湘南キャンパス) 17a-TM-4, 講演予稿集 p.14-041.
 - 10) 中島秀朗、江国晋吾、熊野英和、宮村壮太、加藤大望、井田惣太郎、笹倉弘理、末宗幾夫：「金属埋め込み量子ドットによる高効率単一光子源の検討」2010年(平成22年)春季第57回応用物理学関係連合講演会、(平成22年3月17日-20日、東海大学湘南キャンパス) 17a-TM-5, 講演予稿集 p.14-041.
 - 11) 江国晋吾、中島秀朗、熊野英和、笹倉弘理、末宗幾夫：「単一量子ドット励起子偏光モードを用いた1光子2モード干渉」2010年(平成22年)春季第57回応用物理学関係連合講演会、(平成22年3月17日-20日、東海大学湘南キャンパス) 18a-L-3, 講演予稿集 p.04-003.
 - 12) 宮村壮太、飯島仁史、定昌史、加藤大望、井田惣太郎、中島秀朗、江国晋吾、熊野英和、末宗幾夫：「AlGaAs犠牲層を用いた金属埋め込み半導体ピラー構造の作製」2010年(平成22年)春季第57回応用物理学関係連合講演会、(平成22年3月17日-20日、東海大学湘南キャンパス) 19a-TS-4, 講演予稿集 p.14-097.
 - 13) 井田惣太郎、加藤大望、宮村壮太、中島秀朗、熊野英和、末宗幾夫：「金属埋め込み量子ドット-半導体ピラー構造における光子取り出し効率の埋め込み金属依存性」2010年(平成22年)春季第57回応用物理学関係連合講演会、(平成22年3月17日-20日、東海大学湘南キャンパス) 19a-TS-5, 講演予稿集 p.14-098.
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) J.-H. Huh, Y. Idutsu, and I. Suemune, "Nano-Patterning of Nb by Combination of Special Effect Appeared to Line Pattern Edges" 第28回電子材料シンポジウム(EMS-28) Laforet Biwako, 2009年7月8-10日、D-11.
 - 2) Jae-Hoon Huh, Y. Hayashi, Y. Idutsu, I. Suemune: "Nanofabrication of Niobium Electrodes for Superconducting Light Emitting Diodes" 51st Electronic Materials Conference, University Park, Pennsylvania, June 24-26, 2009, NN5, p. 91.
 - 3) Y. Idutsu, M. Takada, S. Ito, H. Sato, J.-H. Huh, D. Kato, S. Ida, H. Sasakura, H. Kumano, and I. Suemune: "Nano-fabrication and Optical Characterization of InAs QDs Pillar Structures Embedded with Niobium" 51st Electronic Materials Conference, University Park, Pennsylvania, June 24-26, 2009, B2, p. 15.
 - 4) M. Takada, Y. Idutsu, D. Kato, S. Ida, S. Ito, H. Sato, J.-H. Huh, H. Sasakura, H. Kumano, and I. Suemune: "Drastic Enhancement of Luminescence from InAs Quantum Dots Embedded in Niobium Metal, the 14th International Conference on Modulated Semiconductor structures (MSS-14), Kobe, July 19-24, 2009, Tump42, p.156.
 - 5) H. Kumano, H. Nakajima, S. Ekuni, H. Sasakura and I. Suemune: "Two-mode photon interference in a quantum-dot single photon emitter", the 14th International Conference on Modulated Semiconductor structures (MSS-14), Kobe, July 19-24, 2009, Tump13 p.127.
 - 6) I. Suemune: "Superconducting Photonics in Semiconductor Nanostructures" International Workshop on Photons and Spins in Nanostructures, Sapporo, July 27-28, 2009.
 - 7) D. Kato, M. Takada, Y. Idutsu, S. Ida, S. Ito, J.-H. Huh, H. Sasakura, and I. Suemune: "High Photon Extraction Efficiency from InAs Quantum Dots Embedded in Niobium Metal: FDTD Simulation and Measurements" SPIE Optics+Photonics 2009, NanoScience+Engineering, Nanophotonic Materials VI, San Diego, CA, 2-6 August 2009, 7393-17, Proc. of SPIE, Vol. 7393, 73930I-1~8, 2009.
 - 8) H. Sasakura, H. Kumano, I. Suemune, J. Motohisa, Y. Kobayashi, K. Tomioka, T. Fukui, N. Akopian, M. van Kouwen, and V. Zwiller: "Exciton Coherence in Clean Single InP/InAsP/InP Nanowire Quantum Dots Emitting in Infra-red Measured by Fourier Spectroscopy" 16th International Conference on Electron Dynamics in Semiconductors, Optoelectronics and Nanostructures (Edison 16), Montpellier, August 24-28, 2009.
 - 9) R. Inoue, H. Takayanagi, T. Akazaki, K. Tanaka, and I. Suemune: "Transport Characteristics of a Superconductor-Based LED" 9th European Conference on Applied Superconductivity (EUCAS2009), Dresden, Germany, September 13-17, 2009.
 - 10) R. Inoue, H. Takayanagi, T. Akazaki, K. Tanaka, and I. Suemune: "Transport Characteristics of a Superconductor-Based LED" 6th International Conference in School Format on Vortex Matter in Nanostructured Superconductors (VORTEX VI), Rhodes, Greece, September 17-24, 2009.
 - 11) Jae-Hoon Huh, Y. Hayashi, I. Suemune: "Suppression of Back-scattering Effect in Electron-beam Lithography and Precise Control of Nb Etching Processes" 22nd International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC2009) Sapporo, November 16-19, 2009, 18D-7-56.
 - 12) Y. Idutsu, S. Odashima, H. Nakajima, D. Kato, S. Ida, H. Sasakura, H. Kumano, and I. Suemune: "Drastic Enhancement of Luminescence and Single Photon Emission from InAs QDs Pillar Structures Embedded in Niobium Layer" 22nd International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC2009) Sapporo, November

16-19, 2009, 18D-7-36.

- 13) H. Sasakura, H. Kumano, I. Suemune, J. Motohisa, Y. Kobayashi, K. Tomioka, T. Fukui, M. van Kouwen, N. Akopian, and V. Zwiller: "Photon Emission Properties of Single InP/InAsP/InP Nanowire Quantum Dots Measured by Fourier Spectroscopy" 3rd International Symp. on Global COE Program of Center for Next-generation Information Technology Based on Knowledge Discovery and Knowledge Federation, Sapporo, January 18-20, 2010, D-16, pp.58-61.

4.9 共同研究

d. 受託研究 (研究担当者、機関名、研究題目、研究期間、研究内容)

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

4.10 予算獲得状況

a. 科学研究費補助金 (研究代表者、分類名、研究課題、期間)

- 1) 笹倉弘理、若手研究B (2008～2009年度) フーリエ分光法に基づく量子ドットで発生する単一光子の偏光状態測定装置の開発
- 2) 末宗幾夫、基盤研究A (2009～2011年度) 金属微小光共振器埋め込み量子ドットにおける電子-光子状態変換に関する研究
- 3) 熊野英和、若手研究(A) (2009年度～2011年度) 形状揺らぎ許容度が高いもつれ合い光子対発生源の作製に関する研究

4.12 社会教育活動

a. 公的機関の委員

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

b. 国内外の学会の主要役職

- 1) 末宗幾夫: 電子情報通信学会 レーザ・量子エレクトロニクス研究専門委員会専門委員 (平成7年5月20日～現在)
- 2) 末宗幾夫: JJAP/APEX編集委員 (2003年4月1日～現在)

g. 北大での担当授業科目 (対象、講義名、担当者、期間)

- 1) 工学研究科、情報エレクトロニクス特別演習、末宗幾夫、熊野英和、2009年4月1日～2010年3月31日
- 2) 工学研究科、光電子物性学特論、末宗幾夫、熊野英和、

2009年4月1日～2010年9月30日

- 3) 工学部 (情報エレクトロニクス学科) 電子デバイス工学、末宗幾夫、2009年4月1日～2010年9月30日
- 4) 工学部 (情報エレクトロニクス学科) 統計力学、熊野英和、2009年10月1日～2010年3月31日
- 5) 工学部 (情報エレクトロニクス学科) 電子情報工学実験、熊野英和、笹倉弘理 2009年4月1日～2010年3月31日
- 6) 全学共通、光・バイオ・分子で拓くナノテクノロジー、末宗幾夫、2009年4月1日～2010年9月30日
- 7) 大学院共通講義、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論Ⅰ、末宗幾夫、2009年4月1日～2010年9月30日 (集中講義7月25-27日)

i. ポスドク・客員研究員など

許 載勳 (情報科学研究科GCOE)

小田島聡 (電子科学研究所)

j. 修士学位及び博士学位の取得状況

・修士学位

- 1) 加藤大望: 「金属埋め込みピラー構造を用いた単一光子源の研究」
- 2) 倉光周平: 「Nb/n-InGaAs/p-InP 超伝導発光ダイオードの動作特性評価」
- 3) 宮村壮太: 「金属埋め込み半導体ピラー構造の作製と光学特性の評価」

電子機能素子研究部門

研究目的

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



量子機能素子研究分野

教授 石橋 晃（東大院、理博、2003. 01～）

講師 近藤憲治（早大院、工修、2003. 04～）

助教 海住英生（慶大院、工博、2004. 09～）

院生

博士課程

Nubla Basheer、山形整功、川口敦吉

修士課程

Susanne White

1. 研究目標

従来の「ボトムアップとトップダウンの統合」が両者の“いいとこ取り”で、長所を各々活かしてナノ構造を作るというもの（積集合）であったのとは異なり、我々は両者の相互乗り入れを可能とする(接続・統合による和集合)の観点から取組んでいる。両者の構成原理が大きく異なるため、勿論容易ではないが、もしトップダウン・ボトムアップの両系を繋ぐことができれば、今後ナノテク・ナノサイエンス分野で得られる新しい効果や機能を既存のSiベースのITインフラ構造と接続し相乗効果を引出しつつナノとマクロを結合することができる。

ムーアの法則に代表されるロードマップに沿った展開を示しつつも遂に限界が指摘され始めたSiベースのLSIは、その構造が外在的ルールで決まるトップダウン型のシステムの代表格であるが、素子サイズ上、動作パワー上、及び製造設備投資上の限界がいわれて久しい。スパイラルヘテロ構造を基に、極限高清浄環境を実現するクリーンユニットシステムプラットフォーム(CUSP)を利用して、金属薄膜のエッジ同士が対向した量子十字デバイス、特に次世代超高密度メモリーや、高効率の光電変換素子創製を目指している。トップダウン系に対するアンチテーゼとして最近その重要性が認識されてきた一つの流れは、自律分散型相互作用など内在的ルールにより構造が決まっていくボトムアップ系である。バイオ系に代表される自律分散系その他、たとえば半導体量子ドットなど無機物のセルフアセンブル系を含め、広くボトムアップ系に期待が集まっている。しかしながら、両系は未だに専ら独立で、トップダウン、ボトムアップ両系の間に橋渡しすることは極めて重要にも係らず、未だ実現されていない。当研究室では、このような課題を解決しながら、新しい量子機能を創出することを目指した研究を実験と理論の両面から進めている。

2. 研究成果

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

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

非常に高い清浄度を実現可能なクリーンユニットシステムプラットフォーム(CUSP)の展開として、モバイルタイプに続き、人が内部に入れるタイプ(L-CUSP)を開発した。

フォトンの進行方向とフォトキャリアの移動方向を直行させ、かつフォトンの進行方向に沿ってバンドギャップの昇降順を配した複数の半導体ストライプを有する新しい光電変換素子を提案している(図1)。地球環境保全、石油資源の有効活用上も、太陽エネルギーのユビキタスな利用を可能とすることが急務であることに鑑み、フレキシブル基板を用いた光電変換素子・太陽電池の作製可能性を探っている。特に、熱力学的限界のため高効率を得ることが難しい、温度差の小さい黒体放射源に対応するべく、黒体放射の全スペクトル巾に亘って高効率に光電変換を達成し、グリーンIT用電源として供する可能性も検証することを目指す。この新型の素子では高効率の光電変換が期待できる。

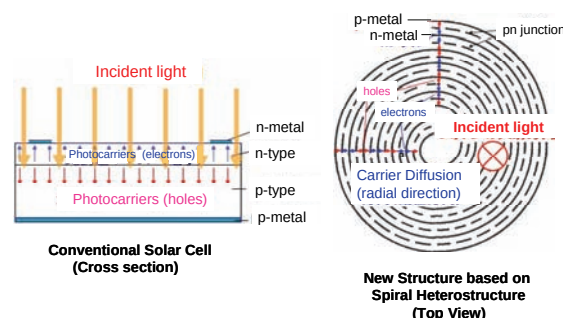


図1. 従来型(左)と渦巻き型光電変換素子構造(右)

(a2) スピン量子十字デバイスの作製とその評価

次世代超高密度メモリーやBeyond CMOSスイッチングデバイスへの応用、並びに、単一/少数分子系のキャラクタリゼーションを目指し、我々は強磁性体/有機分子/強磁性体ナノスケール接合(=スピン量子十字デバイス)を提案している。スピン量子十字デバイスは強磁性薄膜のエッジとエッジの間に有機分子が挟まれた構造になっていて、そのエッジは互いに直交している。この構造では、強磁性薄膜の膜厚 d によって接合面積 $S(=d \times d)$ が決まるため、例えば、膜厚1~20 nmの強磁性薄膜を用いれば、 $1 \times 1 \sim 20 \times 20 \text{ nm}^2$ の超微小接合が作製可能となる。これにより、高いon/off比を有するスイッチング効果や新規な磁気抵抗効果が期待できる。また、単一/少数分子系のキャラクタリゼーションも可能となる。今回、我々はこのような新機能デバイスの実現に向け、Ni/P3HT:PCBM/Niスピン量子十字デバイスの作製、並びに、その電気的評価を行った。

図2にNi/P3HT:PCBM/Niスピン量子十字デバイスの作製方法を示す。初めに、抵抗加熱式真空蒸着装置を用いて、

ポリエチレンナフタレート (PEN) 有機膜 (帝人デュポン社製 TEONEX Q65、幅 2 mm、膜厚 25 μm) 上に Ni 薄膜を蒸着した。Ni の蒸着パワーは 350 W、蒸着時の真空度は $\sim 10^{-3}$ Pa、蒸着膜厚レートは 0.93 nm/min とした。次に、Ni 薄膜/PEN 有機膜をポリメタクリル酸メチル (PMMA) で挟み、Ni 薄膜のエッジを機械化学研磨法により研磨した。研磨剤には 0.1、0.3、1.0 μm 粒径の Al_2O_3 スラリーを用いた。研磨回転数は 75 rpm、研磨圧力は 6.5 psi とした。最後に、Ni 薄膜のエッジとエッジの間に [6,6]-phenyl-C61 butyric acid methyl ester (PCBM): Poly-3-hexylthiophene (P3HT) を挟み、スピン量子十字デバイスを作製した。膜厚測定には He-Ne レーザーによる透過光強度測定法を用いた。表面観察には原子間力顕微鏡 (AFM) を用いた。構造解析には透過型電子顕微鏡 (TEM)、及び、電子線回折 (ED) を用いた。電流電圧測定には室温直流 4 端子法を用いた。

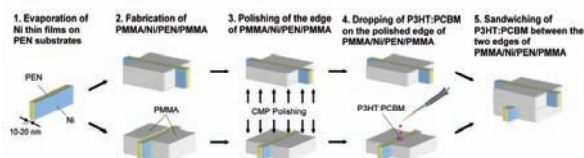


図 2. Ni/P3HT:PCBM/Ni スピン量子十字デバイスの作製方法

図 3(a)(b) に PEN、及び、Ni(16 nm)/PEN の表面 AFM 像を示す。PEN、及び、Ni(16 nm)/PEN の表面粗さ R_a はそれぞれ 1.3 nm、1.1 nm で、表面が平坦であることがわかる。図 3(c) に Ni(20 nm)/PEN の断面 TEM 像を示す。Ni 原子は PEN 有機膜内に潜り込まず、界面が明瞭であることがわかる。また、Ni 薄膜は多結晶であることもわかる。高分解能 TEM 像 (図 3(d)) からは Ni の fcc(110) 面が明瞭に確認できる。図 3(e) に Ni/PEN の ED パターンを示す。ED パターンからも Ni は fcc 構造であることが確認でき、bulk-Ni と同等の結晶成長をすることがわかった。

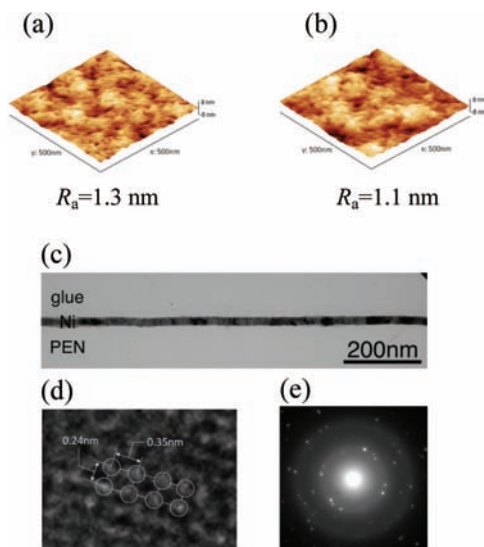


図 3. (a) PEN、(b) Ni/PEN の表面 AFM 像。(c) Ni/PEN の断面 TEM 像。(d) Ni/PEN の高分解能 TEM 像。(e) Ni/PEN の ED パターン。

図 4 に Ni/P3HT:PCBM/Ni 量子十字デバイスの電流電圧特性を示す。Ni の膜厚は 16 nm としたので、接合面積は $16\text{ nm} \times 16\text{ nm}$ となる。図 4 からわかるように、オーミック特性が得られ、その抵抗は $32\ \Omega$ であった。この実験結果を説明するため、アンダーソンモデルによる理論計算を行った。計算では 2 つのエネルギー準位をもつ分子が Ni のエッジとエッジに挟まれている構造を仮定した。接合面積は $1\text{ nm} \times 1\text{ nm}$ 、Ni 電極と挟まれた分子のカップリング定数は 10 meV とした (強結合状態)。その結果、オーミック特性が得られ、その抵抗は $6.7\text{ k}\Omega$ となった。ここで、スピンは縮退しているので、伝導チャンネルの数は $n=4$ となる。実験では、接合面積が $16\text{ nm} \times 16\text{ nm}$ であるので、伝導チャンネルの数は $n=1024 (=4 \times 16 \times 16)$ となる。したがって、抵抗は $26\ \Omega$ ということになり、実験で得られた抵抗値 $32\ \Omega$ と定量的に良い一致を示す。これは、ナノスケールの分子内では、電子は散乱を受けず、バリスティックに伝導することを示唆している。理論計算では弱結合において巨大なスイッチング効果を示すことから、今後は、弱結合を有するスピン量子十字デバイスの創製を目指す。

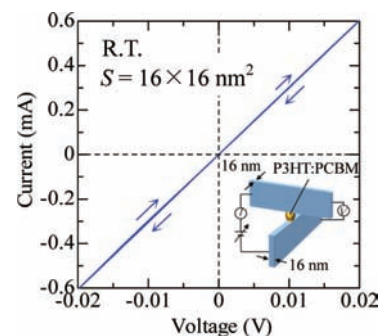


図 4. Ni/P3HT:PCBM/Ni スピン量子十字デバイスの電流電圧特性

(b) スピン量子十字構造デバイスの輸送特性の理論的検討
量子十字構造の電極に強磁性金属を用いた場合をスピン量子十字構造デバイスと呼び、この構造に 2 準位分子を挟んだときに、電極の磁化がノンコリニアな場合について、非平衡グリーン関数を用いて、スピン伝導の一般式を得た。図 5 にノンコリニアな磁性がある場合のスピン量子十字構造デバイスの模式図と計算に用いたモデルを示す。

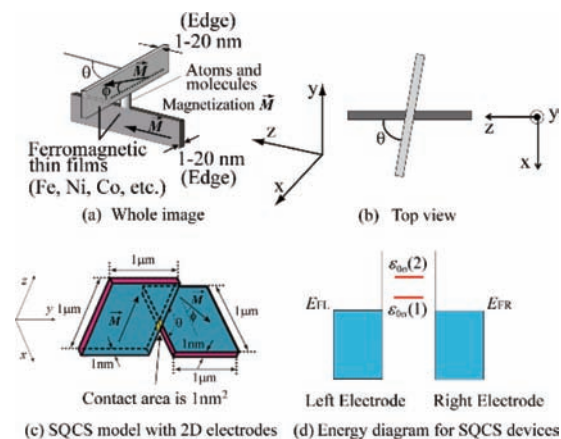


図 5. 計算に用いたスピン量子十字構造素子のモデルとエネルギー図

従来、ノンコリニアな系の計算において、角度 θ は考慮されていたが、 ϕ は考慮されていなかった。今回、初めて、方位角 ϕ を考慮した一般式を得ることに成功した。その結果、方位角は輸送方程式には、頭に見えなく、スピン伝導は、両方の磁化（スピン）を古典ベクトルと見た場合の内積のなす角度 θ にのみ依存する事がわかった。但し、電極間にある分子において、伝導スピンのフリップすることを許すと、分子のエネルギー準位が方位角 ϕ の影響で、分裂することもわかった。このことから、もし分子の準位の分裂が観測されれば、分子内でスピンがフリップしている事がわかる。ノンコリニアな系の一般式は、次式ようになる。

$$I = \frac{e}{h} \int_{E_{FR}}^{E_{FR}+eV} d\epsilon \sum_i \left[\Gamma_L^{11} \Gamma_R^{11} (|G_i^{r11}|^2 + |G_i^{r11}|^2) + \Gamma_L^{11} \Gamma_R^{11} (|G_i^{r11}|^2 + |G_i^{r11}|^2) \right] \times [f(\epsilon - eV - E_{FR}) - f(\epsilon - E_{FR})].$$

分子内でスピンがフリップしない場合に上式で計算した電流-電圧特性を図6に示す。また電流の θ 依存性を図7に示す。

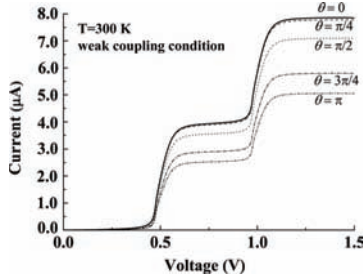


図6. ノンコリニアな場合の電流電圧特性

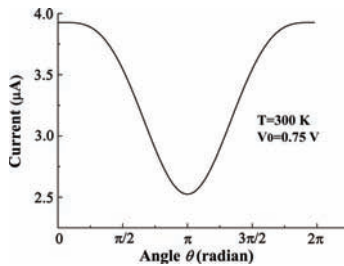


図7. 電流の θ 依存性

3. 今後の研究の展望

本研究の目指すダブルナノバウムクーヘン構造は、既存の素子の特性を飛躍的に向上させる可能性も持っている。リボンの厚みと巾を独立制御できることにより、例えば、分子素子では従来の Break Junction 電極 (Reed, 1997) や 40nm 程度の粗大な Cross-bar 構造 (Williams, 2002) と異なり、配線抵抗は小さく抑えながらも、対向2電極のクロスセクションを極めて小さく押さえ真に少数の分子系を挟む事ができるのみならず、原子層オーダーで急峻な D_{2d} 対称性もつサドルポイント状のナノスケール電極配置の創成と同電極に挟まれた活性エレメントの物性評価を行うことができる。2次元電子液体において、さらに厳密な解を得るために、バーテックス補正を取り入れた GW Γ 法を開発し、適

用する。密度汎関数法の基礎に関わる交換・相関カーネルについて新しいカーネルの提案を行う。またすでに結果が得られつつあるが、ナノコンタクトにおけるコンタクト物質の次元性とコンダクタンスについての関係を明らかにする。また磁気記録応用でも超高密度化の可能性が期待できる。ダブルナノバウムクーヘン構造により得られる多重並列エッジ対向金属リボン交差構造により(2次元的な)ナノとマクロの世界とをつなぎ、トップダウン・ボトムアップ両系の統合に端緒をつける可能性が出てくる。またスパイラルヘテロ構造を用いた新型太陽電池の応用も期待される。

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

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) H. Kaiju, K. Kondo, A. Ono, N. Kawaguchi, J.H. Won, A. Hirata, M. Ishimaru, Y. Hirotsu and A. Ishibashi: "Fabrication of Quantum Cross Devices Using Ni Thin Films on Polyethylene Naphthalate Organic Substrates", *J. Magn. Soc. Jpn.* Vol. 33 pp. 242-246 (2009)
- 2) A. Ishibashi, N. Kawaguchi, K. Kondo, H. Kaiju and S. White: "Spiral-heterostructure-based new high-efficiency solar cells", *Int. Symp. Environ. Con. Des. Inv. Man. Proc.*, pp. 55-58 (2009)
- 3) A. Ishibashi, S. Miyatake, Md.D. Rahaman, H. Kaiju, N. Kawaguchi and N. Basheer: "Clean Unit System Platform line-up for small-footprint productions", *Int. Symp. Environ. Con. Des. Inv. Man. Proc.*, pp. 819-822 (2009)
- 4) K.Kondo, H.Kaiju and A.Ishibashi : "A Theoretical Study and Realization of New Spin Quantum Cross Structure Devices Using Organic Materials", *Mat. Res.*

Soc. Symp. Proc., 1198 : E07-01-1-E07-01-6 (2010)

- 5) K.Kondo : “Theoretical Modeling of Spin Quantum Cross Structure Devices with Noncollinear Ferromagnetic Electrodes”, *J. Appl. Phys.*, 107 : 09C709-1-09C709-3 (2010)
- 6) H. Kaiju, K.Kondo, A. Ono, N. Kawaguchi, J.H.Won, A. Hirata, M. Ishimaru, Y. Hirotsu and A. Ishibashi : “The fabrication of Ni quantum cross devices with a 17 nm junction and their current-voltage characteristics”, *Nanotechnology*, 21 : 015301-1-015301-6 (2010)

4.6 特許

・国内特許

- 1) 石橋晃 : 「クリーンユニット」 特願2009-213516
- 2) 石橋晃 : 「太陽電池および光電変換素子」 特願2009-108593
- 3) 石橋晃 : 「高清浄環境装置」 実願2009-006840
- 4) 石橋晃 : 「高清浄環境装置」 特願2009-232303
- 5) 石橋晃、平坂雅男 : 「光電変換素子評価装置、光電変換素子評価方法および光電変換素子の製造方法」 特願2009-235966
- 6) 石橋晃 : 「クリーンユニット」 実願2009-007365
- 7) 石橋晃、海住英生 : 「プローブおよびその製造方法ならびにプローブ顕微鏡ならびに磁気ヘッドおよびその製造方法ならびに磁気記録再生装置」 特願2009-154644
- 8) 海住英生、石丸学、弘津禎彦、小野明人、石橋晃 : 「ニッケル薄膜およびその形成方法ならびに強磁性ナノ接合およびその製造方法ならびに金属細線およびその形成方法」 特願2009-534258

・国際特許

- 1) A. Ishibashi : 「Clean Working Chamber with Dust Filtration」 Pat. 130394 (Singapore)
- 2) Y. Hirotsu, A. Ishibashi, M. Ishimaru, H. Kaiju, A. Ono : “Formation of nickel film on polyethylene terephthalate substrate for formation of metal fine wire and manufacture of ferromagnetic nano-joining element used for magneto-resistive element for electronic device such as mobile telephone” WO2009041239-A1

4.7 講演

b. 一般講演

i) 学会

- 1) 海住英生*、近藤憲治、石橋晃 : 「トンネルバリアをもつ量子十字素子のトランスポート理論計算」、日本物理学会秋季大会 熊本大学 25pPSB-11 (2009-09)
- 2) 海住英生*、小野明人、川口敦吉、近藤憲治、元鍾漢、平田秋彦、石丸学、弘津禎彦、石橋晃 : 「磁場中及び無磁場中蒸着によるポリエチレンナフタレート有機膜上のニッケル薄膜に関する研究」、日本物理学会秋季大会 熊本大学 26pPSB-19 (2009-09)
- 3) 近藤憲治*、海住英生、石橋晃 : 「スピン量子十字構造

素子の輸送特性の理論的研究とその実験検証」、日本物理学会秋季大会 熊本大学 25pPSA-21 (2009-09)

- 4) K. Kondo*, H. Kaiju and A. Ishibashi : “Theoretical and Experimental Results of Electronic Transport of Spin Quantum Cross Structure Devices”, International Symposium of Post-Silicon Materials and Devices Research Alliance Project, Ichou Kaikan of Osaka University, Osaka, P-15, p.54 (2009-09)
- 5) K. Kondo*, H. Kaiju and A. Ishibashi : “A Theoretical Study and Realization of New Spin Quantum Cross Structure Devices using Organic Materials”, 2009 Material Research Society Fall Meeting, Boston, Massachusetts E7.1 (2009-11~12)
- 6) スザン ホワイト*, 澤田隆二、近藤憲治、川口敦吉、海住英生、平坂雅男、石橋晃 : 「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光電変換素子のための基礎評価」、日本応用物理学会2010年春季大会、東海大学湘南キャンパス (2010-03)
- 7) K. Kondo* : “Theoretical Modeling of Spin Quantum Cross Structure Devices with Noncollinear Ferromagnetic Electrodes”, 11th Joint MMM-Intermag Conference, Washington, DC, USA (2010-01)
- 8) K. Kondo*, H. Kaiju and A. Ishibashi : “Theoretical and Experimental Results of a Large Thermoelectric Voltage at Point Contacts of Spin Quantum Cross Structure Devices”, 11th Joint MMM-Intermag Conference, Washington, DC, USA (2010-01)
- 9) H. Kaiju*, N. Basheer, K. Kondo and A. Ishibashi : “A Study of Ni and Ni78Fe22 Thin Films on Polyethylene Naphthalate Organic Substrates for Spin Quantum Cross Devices”, 11th Joint MMM-Intermag Conference, Washington, DC, USA (2010-01)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) A. Ishibashi*, N. Kawaguchi, K. Kondo, H. Kaiju and S. White : “Spiral-heterostructure-based new high-efficiency solar cells”, 6th International Symposium on Environmentally Conscious Design and Inverse Manufacturing, Royton Sapporo, Sapporo, ST1-1M-1 (2009-12)
- 2) A. Ishibashi*, S. Miyatake, M.D. Rahaman, H. Kaiju, N. Kawaguchi and N. Basheer : “Clean Unit System Platform line-up for small-footprint productions”, 6th International Symposium on Environmentally Conscious Design and Inverse Manufacturing, Royton Sapporo, Sapporo, GT3-3E-2 (2009-12)
- 3) H. Kaiju*, K. Kondo and A. Ishibashi : “Fabrication and current-voltage characteristics of spin quantum cross devices”, International Workshop on Photons and Spins in Nanostructures, Hokkaido University Sousei Conference room, Sapporo, Japan, p. 57 (2009-07)
- 4) 海住英生*、近藤憲治、石橋晃 : 「量子十字デバイス ～

新機能デバイスの創製に向けて～」第1回北海道大学・富士電機 共同シンポジウム、北海道大学 創成研究機構 (2009-08)

- 5) 石橋晃* :「高清浄環境CUSPシステム」、2009国際ナノテクノロジー・ナノバイオ展示会、東京ビッグサイト (2009-02)
- 6) 石橋晃* :「ナノ・バイオ実験・産業に好適なCUSP 高清浄環境ラインアップ」第8回国際バイオ EXPO (2009-07)
- 7) 海住英生*、近藤憲治、石橋晃 :「スピン量子十字デバイスの作製とそのトランスポートに関する研究」平成21年度アライアンス G2 分科会シンポジウム、北海道大学創成科学研究棟5階 大会議室 p. 27 (2009)
- 8) N.Kawaguchi * , K.Kondo, S.White, H.Kaiju and A.Ishibashi : “Light Intensity Dependence of Current-Voltage Characteristics in Organic Bulk Heterojunction Solar Cells”, International Symposium of Joint Recerch Network on Advanced Materials and Devices “chou”, HOTEL-NIDOM,HOKKAIDO (2010-03)
- 9) H.Kaiju*, K.Kondo, N.Basheer, N.Kawaguchi, S.White, A.Hirata, M.Ishimaru, Y.Hirotsu and A.Ishibashi : “Fabrication and Evaluation of Ni/P3HT:PCBM/Ni Nanoscale Junctions”, International Symposium of Joint Research Network on Advanced Materials and Devices, Tomakomai (2010-03)

4.10 予算獲得状況

a. 科学研究費補助金 (研究代表者、分類名、研究課題、期間)

- 1) 近藤憲治 (日本学術振興会 科学研究補助金基盤研究 (C)) :「スピン伝導の基礎理論構築と新規なデバイスの設計」、2009-2011年度、4,680千円
- 2) 海住英生 (文部科学省 科学研究補助金若手研究 (B)) :「量子十字素子における巨大磁気抵抗効果に関する研究」、2009-2010年度、4,290千円

c. 大型プロジェクト・受託研究

- 1) 石橋晃 (科学技術振興機構 産学共同シーズイノベーション化事業「顕在化ステージ」):「引き伸ばし型一体成型による繊維状光電変換素子の可能性の検証」、2008-2009年度、8,000千円
- 2) 海住英生 (科学技術振興機構 戦略的創造研究推進事業 (さきがけ)):「スピン量子十字素子を用いた新規な高性能不揮発性メモリの創製」、2009-2012年度、52,000千円
- 3) 海住英生 (科学技術振興機構 重点地域研究開発推進プログラム (シーズ発掘試験A)):「強磁性ナノ接合を用いた熱電高変換効率材料の開発とその応用」、2009年度、2,000千円

f. その他 (研究代表者、分類名、研究課題、期間)

- 1) 石橋晃 (産業技術総合研究所 計測標準研究部門) :「コンパクトな超高清浄度空間の性能実証」、2009年度、

15,000千円、高清浄環境 CUSP の高機能化/高性能化を行う。

- 2) 石橋晃 (シーズテック株式会社) :「クリーンユニットシステムプラットフォーム (CUSP) の展開」、2009年度、150千円、高清浄環境 CUSP の応用展開を検討する。
- 3) 石橋晃 (前川財団助成事業) :「高清浄環境 CUSP の高機能化」、2009年度、500千円
- 4) 石橋晃 (ノーステック財団研究開発助成事業) :「清浄環境測定器付きモバイル高清浄環境の開発」、1800千円
- 5) 海住英生 (新世代研究所研究助成) :「ナノエッジ法による単分子プロセッシングと巨大スイッチング効果」、2008-2009年度、1,400千円

4.12 社会教育活動

b. 併任・兼業

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

e. 新聞・テレビ等の報道

・新聞

- 1) 石橋晃 : 日本経済新聞 2009年11月10日「待合室、2次感染防ぐ小型クリーンブース開発」
- 2) 石橋晃 : 北海道新聞 2009年11月12日「菌の拡散防止、清浄ボックス開発」
- 3) 石橋晃 : 北海道医療新聞 2009年11月13日「北大発ベンチャー CUSP を実用化、クリーンブース開発」

・放送

- 1) 石橋晃 : NHK まるごとニュース北海道 (18:10～) 2009年12月21日「大学発ベンチャー C'sTEC 社の連結 Clean Unit System Platform (CUSP)」、S-CUSP, A-CUSP, M-CUSP, iBox が紹介された。」

・その他

- 1) 石橋晃 : 日経 BP 先端技術事業化 2009年11月9日「北海道大学発ベンチャーで、小型クリーンルーム製造などを行っているシーズテック (札幌市、大橋美久社長) は、小型の清浄環境「iBox」を商品化したことを明らかにした。」

g. 北大での担当授業科目 (対象、講義名、担当者、期間)

- 1) 理学院、半導体物理学Ⅱ、石橋晃、2009年10月1日～2010年3月31日
- 2) 理学院、量子デバイス物理学、近藤憲治、2009年10月1日～2010年3月31日
- 3) 全学共通、複合科目 環境と人間「ナノテクノロジー」(分担)、石橋晃、2009年4月1日～2009年9月30日
- 4) 工学部、基礎物理学Ⅰ、石橋晃、2009年4月1日～2009年9月30日
- 5) 全学共通、現代物理学 (分担)、石橋晃、2009年4月1日～2009年9月30日

j. 修士学位及び博士学位の取得状況

・修士課程 (1名)

Susanne White

光波制御材料研究分野

教 授 西井準治（都立院、工博、2009.7～）

助 教 眞山博幸（北大院、工博、2009.7～）

1. 研究目標

透過性の高い無機酸化物ガラスや有機系材料あるいは有機無機ハイブリッド材料をベースにして、成膜やエッチングなどの各種真空プロセスと光/電子ビームリソグラフィーを駆逐することで、光導波、回折、光閉じ込め、反射防止などのフォトニック機能の発現を目指す。特に、ガラスインプリント法による位相板、回折素子、反射防止レンズなどの研究開発を企業と連携して進める。また、表面プラズモン増強場としての1次元、あるいは2次元の金属コート回折格子を開発し、細胞や生体分子の高感度蛍光イメージング技術や高感度化学センシング技術の研究を実施する。さらに、日常的にも工業的に有用である様々な濡れ現象を理解するための基礎的解析に関する研究に取り組む。

2. 研究成果

(a) インプリント法に関する研究

これまで樹脂材料に限定されていたインプリント成形プロセスをガラスに展開し、より高精度で信頼性の高い光学素子を開発することを目指して、民間企業との共同研究に取り組んだ。機械的強度と耐熱性に優れたSiCモールドの表面に、ドライプロセスで微細加工を行った。モールドとガラスの離型性を考慮して、エッチング条件の最適化によって微細構造の側壁傾斜角度を制御した。ランプ加熱方式のプレス機を用い、モールド表面の酸化と空気溜まりを防止するために成形室内を1Paまで減圧した後に、ガラスの屈伏点(At)近傍でインプリントを実施した。

図1に示すように、同じ周期で先端の形状が異なる2種類のモールドを作製し、同一条件でリン酸塩ガラス(住田光学KPSK-100、At=415℃)を成形した。得られた周期構造の断面観察より、先端に平坦な領域が存在しないモールドの方が、成形体の構造高さが高くなった。このことは、有限要素法による成形シミュレーションの結果ともよく一致しており、成形時のガラスの停滞領域の存在が得られる構造高さに大きく影響を与えることがわかる1)。

一方、成形軸にロードセルを装着して、成形および離型に要する力の測定を試みた。先端が球面加工されたSiCプローブを、同一粘度に加熱されたホウ酸塩系およびリン酸塩系ガラスに押し込み、一定時間後の離型力を求めたところ、相対的にリン酸塩系ガラスの離型力が大きかった。モールド表面にダイヤモンドライクカーボン(DLC)とアモルファスカarbonを成膜して離型力低減を図ったところ、耐久性を考慮しなければ後者が極めて優れた離型力低減効果があった。

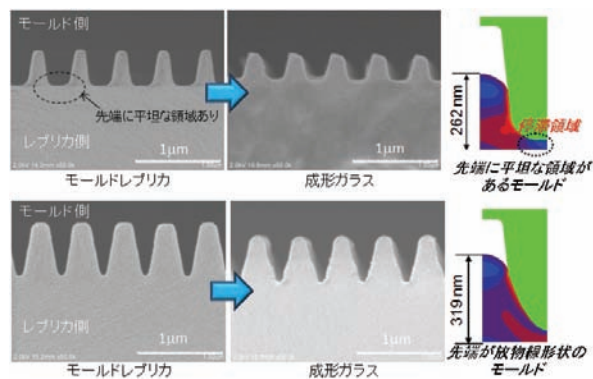


図1. 先端形状が異なる1次元周期構造モールドと成形体(KPSK-100)の断面写真と有限要素法による計算結果

上述のような基礎的解析成果をベースとして、独自開発の $\text{GeO}_2\text{-Bi}_2\text{O}_3\text{-B}_2\text{O}_3$ 系高屈折率ガラス($n_d 1.82$, At 468℃)の両面に周期300nmの1次元構造を形成し、構造的複屈折長板としての特性を評価した。位相差の実測値とRCWAでの計算値を図2に示す。現時点での位相差は0.23(波長400nm)であり2)、現在、0.25を目指して、さらなる構造の高アスペクト比化に取り組んでいる。

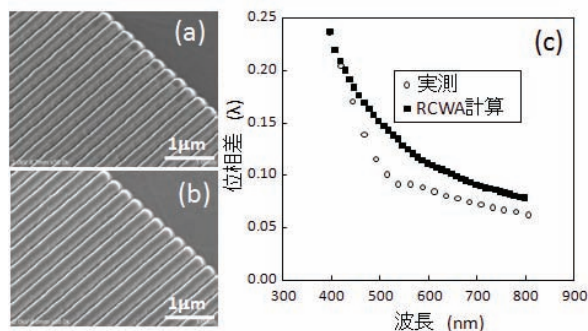


図2. 高屈折率ガラスの両面に形成した1次元周期構造(a: 上面、b: 下面)と位相差の波長依存性(c)

この他、色収差を抑えた集光レンズを実現するために、ガラスレンズ表面に100nmレベルの周期構造やミクロンオーダーの周期の同心円状回折格子を形成する技術にも取り組んでいる。前者の成形技術を利用して、高精度な反射防止ガラスレンズの開発に世界ではじめて成功した。また後者においては、ダイヤモンドバイトで加工した高耐熱性金属モールドで、独自に開発した高屈折・低分散ガラス($\text{Li}_2\text{O-Nb}_2\text{O}_5\text{-P}_2\text{O}_5$ 系, $n_d 1.66$, At 457℃, $v_d 49$)のレンズ成形を行うと同時に、その表面に回折格子を形成することに成功した。広い波長帯域で高い回折効率と小さな色収差を兼ね備えた光学レンズが実現されつつある。

(b) 表面プラズモン増強蛍光イメージングの研究

微弱な蛍光を検出する手法として、表面プラズモン共鳴(SPR)を励起場として界面の蛍光分子を励起させる表面プラズモン励起増強蛍光分光(SPFS)が知られている。本研究では、金属回折格子に結合した表面プラズモン共鳴場

(GC-SPR)による蛍光検出(1)の高感度化に取り組んだ。

2 光束干渉露光法とドライエッチング法を用いてシリカ基板表面に周期構造を形成し、この表面に rf スパッタ法で Ag (膜厚200nm) と SiO₂ (膜厚20nm) を成膜した。図3は、成膜後の代表的な1次元および2次元格子基板である。類似の構造は、樹脂インプリント法でも作製可能である。

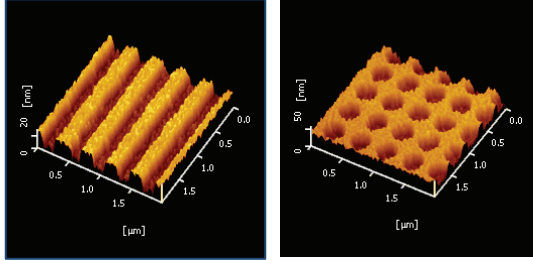


図3. 表面に Ag(200nm厚)、SiO₂(20nm厚)を成膜した1次元および2次元SiO₂基板のAFM像

1次元格子の表面に蛍光(Cy5)標識蛋白質を固定化し、He-Ne レーザー光(p-偏光)の入射角を変化させながらゼロ次の反射光強度と Cy5 からの蛍光強度を測定した。格子深さが20nm、デューティー比0.43(格子周期に対する格子幅の比)の場合、空気中では入射角度31度付近、水中では8度付近で SPR の励起によって反射光が弱くなり、厳密結合波解析(RCWA)の計算結果と一致した。また、格子深さおよびデューティー比と SPR の関係を調べた結果、強い SPR を励起するには、格子深さ20nm 付近、デューティー比0.4~0.5 が好ましいことがわかった。

GC-SPRの長所は、SPRの励起角度を構造周期で調整して励起角度を対物レンズのNA以下にできる点にある。すなわち、CCDカメラを搭載した市販の落射型蛍光顕微鏡で、蛍光標識された細胞やタンパクなどの鮮明な蛍光イメージングが容易にできる。図4はハロゲンランプを励起光源として、10倍対物レンズ(NA=0.3)でCy5標識されたタンパクの蛍光を観測した結果である。Agコートした周期400nmの1次元および2次元構造と平板、およびAgコートなしの平板で蛍光強度を比較すると、2次元が最も明るく、Agコートした平板基板の場合の25倍以上、1次元周期構造基板に対しても2.5倍以上の強度が得られた。1次元より2次元の方が明るい理由は、励起光の中でSPRの励起に寄与する偏光成分及び入射角成分の割合が増大したためと考えられる。

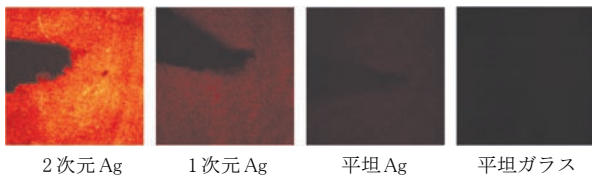


図4. 基板に固定されたCy5標識タンパクの蛍光イメージ

励起光：ハロゲンランプ
10倍対物レンズ(NA=0.3)で観測
写真1辺=750 μm。

(c) 濡れ現象の物理的解析に関する研究

1 本の円柱状欠陥の濡れ：濡れは様々な現象と密接に関連している。特に水や油を完全に弾く表面は日常的にも工業的にも大変重要であるため、実用化に向けた研究が精力的に行なわれている。その中でも微細構造作製技術を用いて作製されたサイズが数~数十マイクロメートルのピラーが密生したマルチピラー表面が作製され、表面の濡れ性との関係について世界的なレベルで実験的・理論的研究が行なわれている。具体的には、ピラーのサイズ(直径、ピラー間距離、ピラーの長さ)、接触角履歴、ピラー断面形状が濡れ性(接触角)に及ぼす効果などを実験的に調べる研究や異方的な濡れ広がりを制御する研究が行なわれている。しかしながら、個別の実験結果を説明する理論があっても、濡れ現象全体を包括的に理解するための理論が存在しない状況が続いている。その原因の一つは自由エネルギー的な観点(熱力学)の欠落である。従来の表面張力のレベルで濡れ現象の理解では表面形状を反映した表面エネルギーや自由エネルギー変化を取り扱うことができない。そこでマルチピラー表面での濡れを理解するだけでなく、様々な濡れ現象を理解するための基礎的知見として、1本の円柱状欠陥の濡れについて研究を行った(図5)。

濡れの前後での自由エネルギー変化 ΔG は次式となる。

$$\Delta G = (\gamma_{SL} - \gamma_S)A'_{SL} + \gamma_L(A'_L - A_L) \quad (1)$$

ここで γ_S 、 γ_L 、 γ_{SL} はそれぞれ気固界面(基板表面)、気液界面(液体表面)、固液界面(濡れた表面)の表面エネルギー密度(表面張力)であり、 A_L 、 A'_L 、 A'_{SL} はそれぞれ濡れる前の気液界面面積、濡れた後の気液界面面積と固液界面面積である。特に A'_{SL} は濡れた表面の幾何学的形状を直接反映する量である。 A_L 、 A'_L 、 A'_{SL} を接触角 θ と表面の幾何学的形状からなる関数とすれば、様々な幾何学的表面での濡れについて取り扱うことが可能となる。さらに(1)式の最小条件から熱力学的に安定な濡れの状態を議論することができる。その結果、平らな表面での濡れではYoungの式が熱力学的安定条件として得られた。

以上の平らな表面での濡れは円柱状欠陥の断面に液体を置いたときの濡れと物理的に等価である。次に液滴の体積が増えて、液滴がピラー側面に回り込んだ時の ΔG について考察を行った。側面に回り込んだ液滴の A'_L 、 A'_{SL} は第1種と第2種の不完全楕円積分からなる関数で表わされる。

$$A'_L = 4\pi(ax_1 + x_2)x_2E(\phi, k) \quad (2)$$

$$A'_{SL} = 4\pi x_1[ax_1F(\phi, k) + x_2E(\phi, k)] \quad (3)$$

ここで $F(\phi, k)$ と $E(\phi, k)$ はそれぞれ第1種不完全楕円積分、第2種不完全楕円積分であり、 x_1 と x_2 はピラーの半径と側面に回り込んだ液膜の最大厚みである。液滴の体積 V_L 一定の下で準静的に液体が側面に侵入したときの ΔG と液滴の侵入長の関係を計算した結果、図6のようなプロファイルが得られた。ここで、 R をピラー半径としたとき、規

格化した液滴体積 $\bar{V}_L = V_L/R^3$ 、規格化した自由エネルギー変化 $\Delta\bar{G} = \Delta G/R^2$ である。液滴がピラーに侵入する際にエネルギー障壁が存在することが明らかとなった。以上の議論から、1本の円柱状欠陥の濡れの現象を自由エネルギーのレベルで初めて明らかにした。

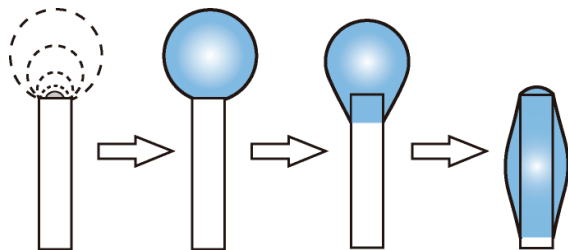


図5. 円柱状欠陥の濡れ

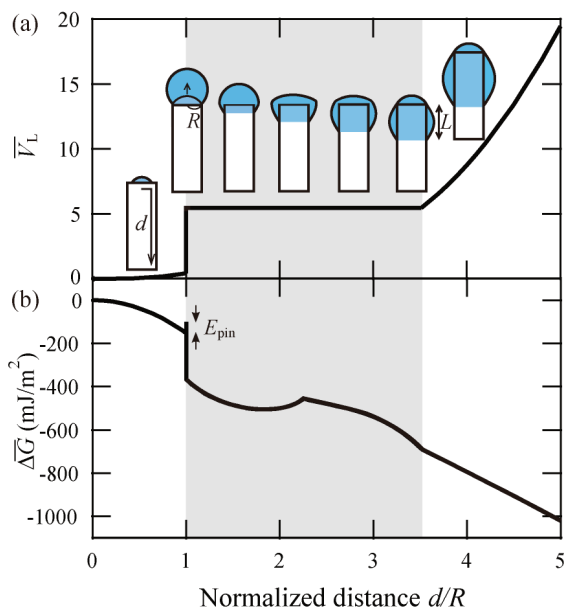


図6. 1本の円柱状欠陥の濡れにおける自由エネルギー変化。

3. 今後の研究の展望

インプリント法に関する研究においては、微細構造の高精度な転写だけでなく、新たな機構を付与することで材料そのものを改変させる技術の開発に取り組む。例えば、上下のモールド間に高電圧を印加したり、成形室に活性ガスを導入することで、これまでのプロセスでは得ることのできない新たな光学的、電気的機能を有する新材料の探索に取り組む。

回折格子型表面プラズモン共鳴場の応用に関する研究においては、蛍光イメージングだけでなく、高感度センシングへの応用にも展開する。そのために、これまでの2次元だけでなく3次元周期構造やMEMS機能の付与などにも着手する予定である。

濡れ現象の研究においては、1本の円柱状欠陥の濡れの現象を自由エネルギーのレベルでの議論を複数本のピラーが存在する表面（マルチピラー表面）に拡張し、これまでに報告されているマルチピラー表面での濡れ現象を理解する。さらに実際にマルチピラー表面での濡れの実験を行い、実験結果と理論との比較を行うとともに表面構造により濡れの制御を行なうための表面構造設計の指針を得る。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) K. Chiba, K. Monde, M. Yoshida, M. Hashimoto, H. Mayama and K. Tsujii : “Super Water- and Highly Oil-Repellent Films Made of Fluorinated Poly(alkylpyrroles)”, *Colloids Surf. A*, 354 : 234-239 (2010)
- 2) Y. B. Melnichenko, H. Mayama, G. Cheng and T. Blach : “Monitoring Phase Behavior of Sub- and Supercritical CO₂ Confined in Porous Fractal Silica with 85% Porosity”, *Langmuir*, 26 : 6374-6379 (2010)
- 3) M. Mizoshiri, H. Nishiyama, J. Nishii and Y. Hirata : “Three-dimensional SiO₂ surface structures fabricated using femtosecond laser lithography”, *Applied Physics A*, 98 : 171-177 (2010)
- 4) X. Cui, K. Tawa, H. Hori and J. Nishii : “Tailored plasmonic gratings for enhanced fluorescence detection and microscopic imaging”, *Adv. Func. Mat.*, (20) : 546-553 (2010)
- 5) X. Cui, K. Tawa, K. Kintaka and J. Nishii : “Enhanced fluorescence microscopic imaging by plasmonic nanostructures: from a 1D grating to a 2D nanohole array”, *Adv. Func. Mat.*, , 20(6) : 945-950 (2010)
- 6) H. Mayama and T. Naito : “Correlation between Curie temperature and system dimension”, *Physica E*, 41(10) : 1878-1881 (2009)
- 7) T. Mori, N. Yamashita, H. Kasa, K. Fukumi, K. Kintaka and J. Nishii : “Periodic sub-wavelength structures with large phase retardation fabricated by glass nanoimprint”, *J. Ceramic Society of Japan*, 117(1370) : 1134-1137 (2009)
- 8) Y. Yokota, K. Ueno, S. Juodkazis, V. Mizeikis, N. Murawaza, H. Misawa, H. Kasa, K. Kintaka and J. Nishii : “Nano-textured metallic surfaces for optical sensing and detection applications”, *J. Photochem. Photobiol. A: Chem.*, (207) : 126-134 (2009)
- 9) X. Cui, K. Tawa, H. Hori and J. Nishii : “Duty ratio-dependent fluorescence enhancement through surface Plasmon resonance in Ag-coated gratings”, *Appl. Phys. Lett.*, 95(13) : 113117/1-113117/3 (2009)
- 10) M. Mizoshiri, H. Nishiyama, J. Nishii and Y. Hirata : “SiO₂-based microstructures fabricated by femtosecond

laser lithography”, Journal of Physics: Conference Series, 165 : 012048-1-012048-4 (2009)

4.2 総説・解説・評論等

- 1) 眞山博幸:「フラクタルナノテクノロジーの最新動向と産業応用」、電子材料、工業調査会、49(2): 21-25 (2010)
- 2) 西井準治、田中康弘、波多野卓史:「ガラスインプリント法によるサブ波長光学素子の形成」、応用物理、応用物理学会、78(7): 655-658 (2009)
- 3) 西井準治、金高健二、田和圭子、微細構造の創製と光学素子への応用、化学工業、60(10)、pp.58-64、2009年10月
- 4) 西井準治、金高健二、田和圭子、高強度プラズモン共鳴場創成のための周期構造とその応用、機能材料、29(11)、pp.35-42、2009年11月
- 5) 西井準治、サブ波長周期構造素子の開発ー現状と今後の展望、工業材料、58(3)、pp.29-32、2010年3月

4.3 著書

- 1) 眞山博幸:「メンガースポンジ (第2編第8章)」、自己組織化ハンドブック、NTS出版 (2009)
- 2) 田和圭子、西井準治、プラズモン材料の設計・応用の新展開、第6章2節、P.228-234、シーエムシー出版、2009年7月

4.4 講演

a. 招請講演

- 1) J. Nishii, K. Kintaka, X. Cui, K. Tawa, 100-Fold Enhancement of Fluorescence Imaging by Two-Dimensional-Grating-Coupled Surface Plasmon Resonance, The 3rd Taiwan-Japan Joint Symposium on Organized Nanomaterials and Nanostructures Related to Photoscience, March 22-24, 2010, Hualien, Taiwan.
- 2) J. Nishii, Glass-imprinting for optical device fabrication, Advances in Optical Materials (AIOM) part of the Fall OSA Optics & Photonics Congress, 2009.October 15, San Jose, USA.
- 3) 西井準治、ガラスインプリント法の現状とサブ波長光学素子への応用、第50回ガラスおよびフォトンクス材料討論会、2009年11月、京都

b. 一般講演

i) 学会

- 1) 内田欣吾、西川直樹*、眞山博幸、小島優子、横島智、中村振一郎、辻井薫、入江正浩:「ジアリールエテンのミクロ結晶表面の光誘起形状変化 ロータス効果とペタル効果の発現制御」、日本化学会第90回春季大会、近畿大学本部キャンパス (2010-03)
- 2) 引間貴子、眞山博幸、野々村美宗*:「寒天ゲル表面の濡れ」、日本化学会第90回春季大会、近畿大学本部キャンパス (2010-03)

3) 眞山博幸*、野々村美宗:「濡れ現象の考察: 濡れの熱力学、静力学、動力学」、日本物理学会第65回年次大会、岡山大学津島キャンパス (2010-03)

4) 森田裕介、引間貴子、眞山博幸、野々村美宗*:「フラクタル表面構造を持つ寒天ゲルの濡れ」、日本物理学会第65回年次大会、岡山大学津島キャンパス (2010-03)

5) 森田晋平*、三ツ石方也、宮下徳治、田和圭子、西井準治:「CdSe ナノ粒子を含む高分子ナノ集積体からなる微小共振器の発光特性」、第57回応用物理学関係連合講演会、平塚 (2010-03)

6) 西山宏昭*、溝尻瑞枝、西井準治、平田好則:「フェムト秒レーザー露光による化学増幅型レジストでの特異的な屈折率増加」、第30回レーザー学会、千里ライフサイエンスセンター (2010-02)

7) 西山宏昭*、溝尻瑞枝、西井準治、平田好則:「Three-dimensional silica surfaces fabricated using femtosecond laser lithography」、Photonics West 2010、San Francisco, USA (2010-01)

8) H. Nishiyama*, M. Mizoshiri, J. Nishii and Y. Hirata: “Three-dimensional surfaces fabricated using fs laser nonlinear lithography”, 35th International Conference on Micro&Nano Engineering, Ghent, Belgium (2009-09)

9) 眞山博幸*、小野祐輔、辻井薫:「フラクタル立体の細孔構造」、日本物理学会2009年秋季大会、熊本大学黒髪キャンパス (2009-09)

10) 眞山博幸*:「ファットブルーミングのメカニズム」、第62回コロイドおよび界面化学討論会、岡山理科大学 (2009-09)

11) 笠晴也*、梅谷誠、山田和宏、田村隆正、田中康弘、西井準治:「ガラス成型による反射防止構造の作製」、日本セラミックス協会 秋期シンポジウム、愛媛大学 (2009-09)

12) 大向啓正*、茶谷原昭義、杵野由明、西井準治:「モールド法によるガラス成型における離型特性の評価」、日本セラミックス協会 秋期シンポジウム、愛媛大学 (2009-09)

13) 坂本太地*、山崎新、西井準治:「ガラスインプリント法による周期構造の形成」、日本セラミックス協会 秋期シンポジウム、愛媛大学 (2009-09)

14) 溝尻瑞枝*、西山宏昭、西井準治、平田好則:「フェムト秒レーザーリソグラフィにおけるレジスト露光部での屈折率変化」、第70回秋季応用物理学関係連合講演会、富山大学 (2009-09)

15) 笠晴也*、西井準治、梅谷誠、山田和宏、田村隆正、田中康弘:「ガラスインプリント用反射防止構造モールドの形状の最適化」、第70回 応用物理学会学術講演会、富山大学 (2009-09)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

1) 眞山博幸*、西井準治:「Young's law, hysteresis and pinning effect in wetting phenomena」、International

Symposium of Joint Research Network on Advanced Materials and Devices "Chou", Hotel-Nidom, Hokkaido, Japan (2010-03)

- 2) 眞山博幸*, 西井準治: 「Critical temperature of fractal spin system」、International Symposium of Joint Research Network on Advanced Materials and Devices "Chou", Hotel-Nidom, Hokkaido, Japan (2010-03)
- 3) 眞山博幸*: 「濡れ現象の熱力学」、つくばソフトマター研究会2010、産業技術総合研究所 つくばセンター つくば中央 (つくば市) (2010-02)
- 4) 西井準治*: 「デジタルカメラやブルーレイに使われる最新光学レンズ」、関西学院大学シンポジウム、東京 (2009-12)
- 5) 西井準治*: 「ナノ構造を金型で作る」、日本光学会光設計研究会、東京 (2009-12)
- 6) 西井準治*: 「ガラスインプリント法によるサブ波長光学素子の形成」、応用物理学会ナノインプリント研究会、東京 (2009-12)
- 7) 西井準治*: 「ガラスナノインプリント技術の現状と課題」、オプトメカトロニクス協会セミナー、東京 (2009-12)
- 8) 眞山博幸*: 「フラクタル強磁性体のキュリー温度」、ワークショップ「創発現象の世界」、九州大学西新プラザ (福岡市) (2009-10)
- 9) 西井準治*, 金高健二、田和圭子: 「表面プラズモン励起増強 蛍光イメージング」、化学者のためのプラズモン講座 ― 光と物質の究極的な相互作用実現に向けて ―、東京 (2009-09)
- 10) J. Nishii*, K. Tawa and K. Kintaka: "Fluorescence imaging using grating coupled surface plasmon field", International Symposium of Postsilicon Materials and Devices Research Alliance Project, 大阪大学 (2009-09)
- 11) M. Mizoshiri*, H. Nishiyama, J. Nishii and Y. Hirata: "Femtosecond laser induced nonlinear lithographic properties for micro-optical elements of inorganic materials", 5th Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium, 大阪 (2009-09)
- 12) 眞山博幸*: 「単一高分子鎖の化学物理: 1本の高分子鎖がつくりだす世界 (invited)」、2009年度北海道高分子若手研究会、洞爺サンパレス (2009-08)

4.5 予算獲得状況

- a. 科学研究費補助金 (研究代表者、分類名、研究課題、期間)
 - 1) 西井準治、特定領域研究、光-分子強結合反応場のための微細光学素子の創成と集積化、2006～2010年度
- b. その他 (研究代表者、分類名、研究課題、期間)
 - 1) 西井準治、NEDO 委託事業、次世代光波制御材料素子化技術、2006～2010年度
- c. 民間との共同研究

- 1) 西井準治、パナソニック(株)、コニカミノルタ(株)、日本山村硝子(株)、五鈴精工(株)、次世代光波制御材料・素子化技術(2006～2010年)

4.6 受賞

- 1) 田村隆正、西井準治、田中康弘: ベストプレゼンテーション賞「ガラス成形による反射防止レンズの作製」(精密工学会秋季大会学術講演会) 2009年9月

細胞機能素子研究分野

教 授 上田哲男（北大院、薬博、1998.2～）
准教授 中垣俊之（名大院、学博、2000.11～2010.3）
助 教 高木清二（名大院、学博、2003.9～）
博士研究員 三枝 徹（北里大院、医博、2005.4～2009.6）
博士研究員 手老篤史（北大院、理博、2006.4～2010.3）
博士研究員 田中良巳（京大院、博士（人間・環境学）、
2009.4～2010.3）
院 生 山口将大（M2）、加渡大貴（M1）、永井秀和（M1）

1. 研究目標

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

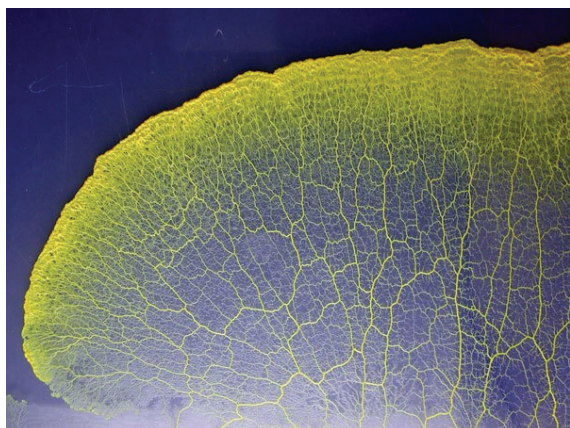


図1. 寒天上を這う粘菌変形体。

2. 研究成果

(a) 細胞骨格の自己組織化

真正粘菌の変形体は時間的・空間的に調和のとれた収縮弛緩運動を行うことで原形質を効率よく輸送し、粘菌の重心を移動させ、また、自由自在に細胞の形を変える事により環境に柔軟に適應する能力を持つ。これらは自発的に秩序だった構造を形成する細胞骨格系であるアクチン・ミオシン繊維によって行われている。そこで、移動する数百 μm 程度の変形体において、細胞骨格の動的な構造変化を、液晶偏光顕微鏡を用いて非侵襲観察した。この顕微鏡は通常の偏光顕微鏡とは異なり、ポラライザーの方向を45°ずつ回転させることで偏光面の異なる3種類の入射光で試料を照明し、

各々で得られた画像から試料の各点における複屈折繊維の偏光方向と偏光の強さ（リタデーション）を求める。

大きさが数百 μm で一方向に移動している変形体はオタマジャクシ型の細胞形態を示す。そのとき収縮弛緩振動の位相は最後尾が一番進んでおり、後部から前方へ収縮弛緩の波が伝播する。収縮弛緩運動により生じる静水圧差に駆動されて原形質は往復流動を示すが、この方向性のある収縮弛緩パターンにより流動パターンは前後非対称となるため、原形質の重心は前方に移動する。このときの複屈折繊維の構造を観察すると、細胞の前方には明確な線維構造は見られず、細かい構造のみ形成されていることが分かる。一方、細胞の後部ではその進行方向に対して垂直方向に太い線維構造が形成され、収縮期（図2b）にはその構造が弛緩時（図2a）と比して明確になる。つまり、線維構造の配向性は収縮弛緩リズムと同期して変化し、収縮期に配向性の強い線維構造が形成される。また、細胞の移動とともにこの線維構造の位置は粘菌の這っている基質に対してほぼ静止している。このことは細胞の各部分は周囲に対して静止していることを示しており、細胞は尾部を壊して、新たに先端を作ることにより移動していると考えられる。

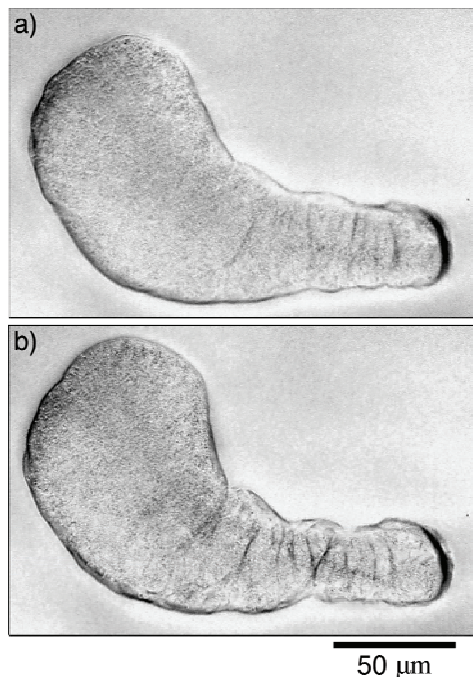


図2. 液晶偏光顕微鏡による副屈折繊維の観察。左上方向に移動する変形体の弛緩期a)と収縮期b)における副屈折繊維の分布。グレーレベルはリタデーション（位相差）を表し、濃い色ほど高い値に相当する。

(b) 粘菌による大規模ネットワークのデザイン

変形体は上述のような細胞骨格系の自己組織化により細胞を変形させ、環境に応じて細胞形状を変化させる。特に、図1に見られるような管ネットワークを形成することが大きな特徴であり、管を通じて原形質は秒速最大1mmにも及ぶ速さで輸送される。このような管を張り巡らす事により、

粘菌の一部が光にさらされて危険な状況に成った場合や、エサなど良い環境を見つけた場合に管を通じて細胞内を素早く移動することができる。このように、管ネットワークを張り巡らしながら環境を探索することは、生き残りという視点からみると極めて合理的である。複数のエサ場が散在する場合には変形体はエサを管でつなぐような形状を取り一つの細胞を維持している。しかし、どのような管でも形成すれば良い訳ではなく、やはり生き残りという視点で効率の良いネットワークを形成すると考えられる。そこでヒトが設計した物流ネットワークを粘菌に自己組織的に設計させてみることで、管ネットワークの性質を調べた。

25cm×30cmのサイズの容器に寒天ゲル(1.5%)をしき、海に相当する部分をプラスチックシートで覆い、陸地に相当する領域だけを探索させた。関東の30程の主要な駅をピックアップし、その場所に餌であるオートミールをおき、東京の位置に変形体(オートミール上で密に培養したもの約2cm×2cm)を移植し暗所にて放置した。変形体は伸展開始から数時間は多くの管を形成しながら周囲に広がりエサを覆っていくが、徐々に細い管のほとんどが消滅し、エサを結ぶ小数の管が太く成長して残り、粘菌が餌のある領域全体を探索する頃(26 hr)には、ネットワークはほぼ定常状態に落ち着いた。コスト、断線補償性、平均二点間距離によりネットワークの効率を調べたものを図4に示す。

粘菌の管成長について、2点間のえさ場に対して構築した数理モデルを多点間に拡張し、多点間を結ぶネットワーク形成をシミュレートした。管の成長ルールは成長率が原形質の流量の増加関数であるとし、流量の多い管が成長し少ない管が減衰するという実験事実を反映させた。管を流れる原形質の流量は、管ネットワークを電気回路と見なし、エサに相当する二点間で圧力差を与え、管の伝導率はポワズイユ流を仮定して求め、オームの法則に従って流量を計算した。有限要素メッシュにより空間を埋め尽くすようにネットワークを張り巡らせ、エサ場に相当する場所を実験に対応させて30点程設定した。ランダムにえさ場2点を選び、その間で上記の成長ルールを適用し、次々にえさ場のペアを変えていくと、エサ場を結ぶ管が成長した(図3下)。最終的なネットワークの形状は成長関数のパラメータに応じて変わる。

えさ場をノードとする最小全域木(サイクルが無く全長が最小のグラフ、MST)を基準にネットワークの効率を調べた結果(図4)、粘菌の作る管ネットワークはMSTのように融通の利かないものではなく、また、無駄な管を残しすぎる訳でもない。そして、ヒトが長年かけて作り上げた鉄道網と似通った性質のネットワークを形成することが明らかになった。

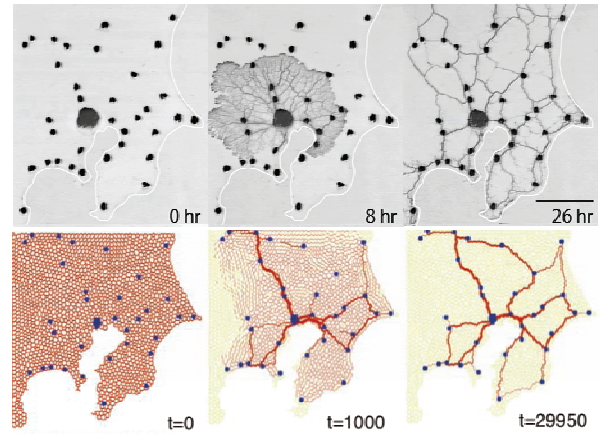


図3. 35点の餌を結ぶ管ネットワークの形成過程。上段：変形体による管ネットワーク形成。右図のスケールバーは5 cm。下段：数値シミュレーションによるネットワーク形成。

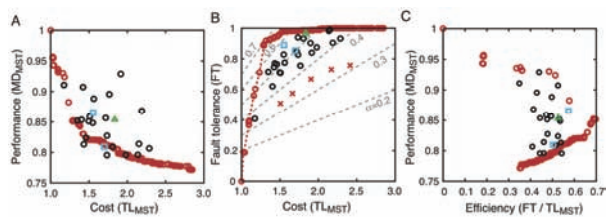


図4. 粘菌、シミュレーション、実際の鉄道網のネットワークの比較。コスト Cost (ネットワークの全長 Total Length。ただし、最小全域木の全長で規格化した。)、効率 Performance (都市間の距離)、断線補償性 Fault tolerance、エフィエンスー Efficiency (断線補償性をコストで割った指標。)のグラフ。黒丸は実験で得られたネットワークの値。赤丸は数理モデルのシミュレーションの値。三角が現実の関東圏のJRのネットワーク。

3. 今後の研究の展望

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

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

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) T. Umedachi, K. Takeda, T. Nakagaki, R. Kobayashi and A. Ishiguro : “Fully decentralized control of a soft-bodied robot inspired by true slime mold”, *Biol. Cybern.*, 102 : 261-269 (2010)
- 2) A. Tero, T. Nakagaki, T. Kazutaka, Y. Kenji and R. Kobayashi : “A method inspired by Physarum for solving the Steiner problem”, *International Journal of Unconventional Computing*, 6 : 109-123 (2010)
- 3) T. Yamamoto, S. Mitsuru, K. Takashi, M. Seiji, M. Yamaguchi, A. Tero, S. Takagi and T. Nakagaki : “Kinetic study of anti-viral ribavirin uptake mediated by hCNT3 and hENT1 in *Xenopus laevis* oocytes”, *Biophysical Chemistry*, 147 : 59-65 (2010)
- 4) S. Takagi and T. Ueda : “Annihilation and creation of rotating waves by a local light pulse in a protoplasmic droplet of the *Physarum plasmodium*”, *Physica D*, 239 : 873-878 (2010).
- 5) A. Tero, S. Takagi, T. Saigusa, K. Ito, D. P. Bebbler, M. D. Fricker, K. Yumiki, R. Kobayashi and T. Nakagaki : “Rules for biologically-inspired adaptive network design”, *Science*, 327 : 439-442 (2010)

4.2 総説、解説、評論等

- 1) T. Nakagaki : “The Birth of *Physarum* Computing”, *International Journal of Unconventional Computing*, 6 : 75-77 (2010)
- 2) 中垣俊之 : 「単細胞生物研究に見る北海道の「開拓者精神」」、月刊クオリティ姉妹誌うおんつ、79 : 1-20 (2009)
- 3) 中垣俊之 : 「かしこい粘菌の話」、朝日小学生新聞 (2009)
- 4) 中垣俊之 : 「「薬学」から「粘菌の迷路解き」へ」、ファルマシア、45 : 547-552 (2009)
- 5) 中垣俊之 : 「イグノーベル賞授賞式顛末記」、*Journal of English Teaching, Unicorn Journal, Bun-endo*, (69) : 31-33 (2009)

4.3 国際会議議事録等に掲載された論文

- 1) K. Takeda, T. Umedachi, T. Nakagaki, R. Kobayashi and A. Ishiguro : “Taming Many Degrees of Freedom: Fully Decentralized Control of a Soft-bodied Robot Inspired by True Slime Mold”, *2009 IEEE/RSJ International Conference on Intelligent Robots and Systems (IROS) Workshop/Tutorial Proceedings* (2009)
- 2) T. Umedachi, T. Kitamura, T. Nakagaki, R. Kobayashi and A. Ishiguro : “A modular robot driven by protoplasmic streaming”, *DISTRIBUTED AUTONOMOUS ROBOTIC SYSTEMS 8* (Eds. H.Asama et al.) Springer : 193-202 (2009)

4.7 講演

b. 一般講演

i) 学会

- 1) 石黒章夫*、梅舘拓也、武田光一、中垣俊之、小林亮 : 「真性粘菌変形体から探る自律分散制御のからくりと大自由度ロボット制御への応用」、第19回日本数理生物学会、東京大学 (2009-09)
- 2) 手老篤史*、小林亮、中垣俊之 : 「真性粘菌に学ぶ最適ネットワーク」、第19回日本数理生物学会、東京大学 (2009-09)
- 3) 中垣俊之* : 「Ethology of slime mold in response to chemical stimulation」、日本味と匂学会第43回大会、旭川市民文化会館 (2009-09)
- 4) 中垣俊之* : 「単細胞の情報処理」、第48回日本医用工学会大会、東京 (2009-04)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) T. Nakagaki* : “Ethology of amoeba viewed from nonlinear dynamics”, *La 13e Rencontre du Non Lineaire* (2010), Paris, France (2010-03)
- 2) 中垣俊之* : 「粘菌の経路探索と多目的最適化」、オペレーションズリサーチ学会関西支部シンポジウム「ORによらない新しい解法の試み」、兵庫県立大学 (2009-11)
- 3) T. Nakagaki* : “Ethological smartness and dynamics in true slime mold - A cooperative society of amoeba -”, *Symposium on Microorganism and Sociality: Intricate Multi-level Interactions*, Tsukuba (2009-11)
- 4) 中垣俊之* : 「粘菌の記憶と迷いのエソロジカルダイナミクス」、京都大学数理解析研究所研究集会「生物数学の理論とその応用」、京都 (2009-11)
- 5) T. Nakagaki* : “Smart behaviors of a living cell based on nonlinear dynamics”, *2009 International Symposium on Nonlinear Theory and its Applications*, Sapporo (2009-10)
- 6) A. Tero, M. Yamaguchi, R. Kobayashi and T. Nakagaki* : “Negotiating multi-purpose optimization problem by means of the adaptive method inspired by a single celled organism *Physarum*”, *4th International Workshop on Natural Computing*, Himeji (2009-09)
- 7) T. Nakagaki* : “Solving a multi-purpose optimization problem by amoeboid computing”, *8th International Conference on Unconventional Computation, Workshop on Novel Computing Substrates*, University of Aozores, Ponta Delgada, Portugal (2009-09)
- 8) 秋山正和*、手老篤史、小林亮 : 「卵割の数理解モデル」、広島大学大学院理学研究科数理分子生命理学専攻設立10周年記念シンポジウム／明治大学広島大学グローバルCOE「現象数理学の形成と発展」広島キックオフフォーラム、広島大学 (2009-09)
- 9) 中垣俊之* : 「粘菌行動の情報処理とダイナミクス」、豊田理研ソフトマター第六回研究会、小樽市公会堂

(2009-08)

- 10) 中垣俊之*:「アメーバのエソロジー」、生物物理学会若手の会夏の学校、支笏湖ユースホテル (2009-08)
- 11) T. Nakagaki*: “Dynamic problem solving in natural systems”, HFSP awardee meeting 2009, Tokyo (2009-06)
- 12) 中垣俊之*:「単細胞の賢さを探る」、日本科学未来館科学週間イベントセミナー、日本科学未来館 (2009-04)
- 13) T. Nakagaki*, R. Kobayashi and A. Tero: “Biologistics learned from adaptable transport network of food locations in slime mold”, The 2nd Ladenburger Kolleg meeting on “From Bio-inspired Logistics to Logistics-Inspired Bio-Nano-Engineering”, Berlin, Germany (2009-04)

iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 中垣俊之*:「考える粘菌の不思議ーイグノーベル賞を受賞してー」、UHB 大学、札幌 道新ホール (2010-01)
- 2) 中垣俊之*:「ある基礎科学特別研究員のその後ーイグノーベル賞を受賞するまでー」、理化学研究所基礎科学特別研究員キャリアセミナー講演会、理化学研究所 (2009-10)
- 3) 中垣俊之*:「不思議生物粘菌の賢さを探る」、札幌市青少年科学館 先端科学技術講座、札幌市青少年科学館 (2009-10)
- 4) 中垣俊之*:「単細胞が迷路を解く!」、日本学術会議北海道地区会議主催サイエンスカフェ、函館市地域交流まちづくりセンター (2009-09)
- 5) 中垣俊之*:「アメーバのエソロジーー賢さとそれをもたらすダイナミクス」、公立はこだて未来大にてセミナー、公立はこだて未来大 (2009-09)
- 6) T. Nakagaki*: “Ethology of amoeba -Behavioral smartness of Physarum-”, Seminar in Institute of Mathematical Sciences, Imperial College London, Imperial College London (2009-09)
- 7) 中垣俊之*:「アメーバ行動に見る賢さとそれをもたらすダイナミクス」、物性若手夏の学校、志賀高原 (2009-08)
- 8) 中垣俊之*:「単細胞の底力」、広島大学数学科一般公開講座、広島大学 (2009-08)
- 9) 中垣俊之*:「真正粘菌変形体のアメーバ運動ー往復原形質流動に基づく重心の移動ー」、兵庫県立大学理学部生物学科 新免・園部研セミナー、兵庫県立大学 (2009-07)
- 10) 中垣俊之*:「単細胞の賢さを探る」、北海道大学薬学部東京同窓会総会、東京学士会館 (2009-07)
- 11) 中垣俊之*:「粘菌の行動にみる賢さとそのしくみ」、東京大学薬学部セミナー、東京大学 (2009-07)
- 12) 中垣俊之*:「アメーバの賢さとそれをもたらすダイナミクス」、龍谷大学数理情報学科特別講義、龍谷大学 (2009-06)
- 13) 中垣俊之*:「単細胞の賢さを探る」、自然を考える会、

札幌エルプラザ (2009-06)

- 14) 中垣俊之*:「単細胞生物粘菌に学ぶ賢い計算法」、北海道大学大学祭理学際模擬講義、北海道大学 (2009-06)
- 15) 中垣俊之*:「Ethology of Physarum」、東大物理学会佐野研セミナー、東京 (2009-06)
- 16) T. Nakagaki*: “Behavioral smartness of slime mould -evaluation and modelling-”, Seminar at University of Uppsala, Uppsala, Sweden (2009-05)
- 17) T. Nakagaki*: “Multi-purpose optimization in Physarum”, Human Frontier Science Program Group Meeting in Uppsala, Uppsala, Sweden (2009-05)
- 18) 中垣俊之*:「単細胞生物の情報処理能力」、千葉大学先進科学センター オムニバスセミナー、千葉 (2009-04)
- 19) T. Nakagaki*: “Behavioral smartness in slime mold”, Seminar at Institut f 醇 B Experimentelle Physik, Otto-von-Guericke-Universit 醇 Bt Magdeburg, Magdeburg, Germany (2009-04)
- 20) T. Nakagaki*, T. Saigusa, A. Tero and Y. Kuramoto: “Cells anticipate periodic events”, Seminar at Interdisciplinary Research Institute, Univ. Sciences et Technologies, Lille, France (2009-04)

4.10 予算獲得状況

a. 科学研究費補助金 (研究代表者、分類名、研究課題、期間)

- 1) 中垣俊之、基盤研究B 一般 (2)、時間記憶能の系統進化に対する実験的評価と非線形動力学構造、2008～2012年度
- 2) 高木清二、若手研究B、動的パターンの遍歴による単細胞生物の脳機能発現メカニズム、2008～2010年度

f. その他 (研究担当者、機関名、研究題目、研究期間、総経費、研究内容)

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

4.12 社会教育活動

b. 国内外の学会の役職

- 1) 上田哲男: 生物物理学会・運営委員 (2001年4月1日～現在)

c. 併任・兼業

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

d. その他

- 1) 中垣俊之：日本ゆらぎ現象研究会 運営委員 (2002年11月28日～現在)
2) 中垣俊之：editor, International Journal of Unconventional Computing (2008年5月1日～現在)

e. 新聞・テレビ等の報道

・新聞

- 1) 中垣俊之：朝日小学生新聞 2009年7月25日「週間ママタイムズ、「かしこい粘菌の話」第8回「小さな命にも驚きがいっぱい」(中垣筆)」
2) 中垣俊之：朝日小学生新聞 2009年7月18日「週間ママタイムズ、「かしこい粘菌の話」第7回「絶妙なコース取りに脱帽！」(中垣筆)」
3) 中垣俊之：朝日小学生新聞 2009年7月11日「週間ママタイムズ、「かしこい粘菌の話」第6回「生き物の賢さはどこから？」(中垣筆)」
4) 中垣俊之：朝日小学生新聞 2009年7月4日「週間ママタイムズ、「かしこい粘菌の話」第5回「粘菌流、迷路クリア術」(中垣筆)」
5) 中垣俊之：朝日小学生新聞 2009年6月27日「週間ママタイムズ、「かしこい粘菌の話」第4回「脳もないのに迷路をクリア」(中垣筆)」
6) 中垣俊之：朝日小学生新聞 2009年6月20日「週間ママタイムズ、「かしこい粘菌の話」第3回「最短距離を結び、えさにありつく」(中垣筆)」
7) 中垣俊之：朝日小学生新聞 2009年6月13日「週間ママタイムズ、「かしこい粘菌の話」第2回「粘菌の能力試す「テスト」考えた」(中垣筆)」
8) 中垣俊之：朝日小学生新聞 2009年6月6日「週間ママタイムズ、「かしこい粘菌の話」第1回「「単細胞」とばかにしないで！」(中垣筆)」

・雑誌

- 1) T. Nakagaki : New Scientist 2009年7月1日 “「Memristor minds: The future of artificial intelligence」(By Justin Mullins) という記事の中で、粘菌のパズルを解く計算能力や時間記憶能について、memristor 素子を用いた電子回路による実装との関連で紹介された。”
2) 中垣俊之、石黒章夫、小林亮 : AXIS 2009年6月1日「未来技術報告第20回、「生物の知性の仕組みを解き明かす粘菌ロボットは創発するか」、Pp. 118-122, Vol. 139」
3) T. Nakagaki, T. Saigusa, A. To' th, H. Yamada, A. Tero and Y. Kuramoto : The American Scholar 2009年4月1日 “Vol. 78, No. 2, p. 15にて、Smarter than dirt という記事で我々の単細胞の情報処理研究、特にパズルを解くことと時間記憶があるということが紹介された。”

・テレビ・ラジオ

- 1) 中垣俊之：NHK総合テレビ爆笑問題の日本の教養 爆問学問「単細胞は天才なのだ！」2009年12月15日「30

分の番組で粘菌の賢さを探る我々の研究が紹介された」

f. 外国人研究者の招聘 (氏名、国名、期間)

- 1) Bernd Meyer, Australia (2010年1月24日～2010年2月4日)
2) Serge Bielawski, France (2009年10月29日～2009年11月1日)
3) Christophe Szwaj, France (2009年10月29日～2009年11月1日)
4) Dennis Bray, UK (2009年7月11日～2009年7月15日)
5) Mark D. Fricker, UK (2009年6月14日～2009年6月16日)
6) Kai Ramsch, Germany (2009年3月16日～2009年4月10日)

g. 北大での担当授業科目 (対象、講義名、担当者、期間)

- 1) 理学部、生物高分子科学、中垣俊之、2009年7月22日
2) 全学共通、トポロジー理工学特別講義1、中垣俊之、2009年6月26日
3) 理学院、生命理学概論、中垣俊之、2009年6月17日
4) 理学院、細胞情報学特論、中垣俊之、2009年6月9日～2009年7月28日
5) 全学共通、光・バイオ・分子で拓くナノテクノロジー、中垣俊之、2009年4月17日

i. ポスドク・客員研究員など

・ポスドク (3名)

田中良巳、手老篤史、三枝徹

電子計測制御研究部門

研究目的

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



光システム計測研究分野

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

院 生

博士課程

シャハルル・カドリ・アヨブ

修士課程

石黒裕康、太田宏紀

研究生

齊君

1. 研究目標

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

2. 研究成果

(a) 金属ナノ構造中に誘起される光局在場の散乱型近接場イメージング

金属ナノ構造、特に10 nm以下のギャップ有する金ナノ粒子ダイマー構造に光を照射すると、局在プラズモン共鳴によりナノギャップにおいて高強度の光を閉じ込めることができる。このナノギャップ局在プラズモンを分子と相互作用させることにより、単一分子からの表面増強ラマン散乱やインコヒーレント光源による非線形光反応等の物理的に興味深く技術的にも重要な現象が数多く報告されている。我々は、電子線ビームリソグラフィ／リフトオフ法により、図1aで示すナノギャップ有する金ナノダイマーを精度良く作製し、我々が開発してきた散乱型近接場顕微鏡を用いて光局在場マッピングを行った。その結果、ギャップ部分において回折限界を遥かに越える（5回の繰り返し測定の結果、半値全幅 $9.2 \pm 0.5 \text{ nm} \sim \lambda/100$ ）微小光局在スポットの観測に成功した（図1b）。一方、偏光方向を90°変え、ナノギャップからの散乱光強度が弱くなる事が確認され、数値解析的な予測とよく一致することから、本結果が局在

プラズモンに基づくものであることが確認された。

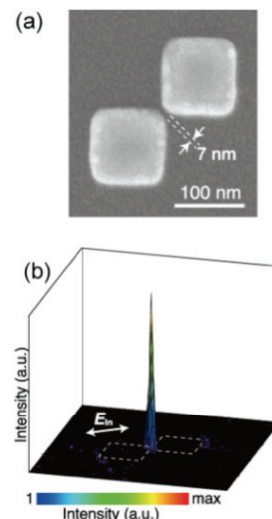


図1. 金ナノダイマーの(a)SEM像と(b)近接場像

(b) テーパーファイバ結合微小球共振器を介した金コートチップへの光集光

近年、光入出力を制御できかつ高いQ値を持つ微小共振器としてファイバ結合微小球共振器が注目されている。このファイバ結合微小球に金属ナノ構造体を結合させたシステムは、局在プラズモン共鳴と共振器の共鳴効果により、ナノメートルスケールの微小空間に電場増強を効率良く誘起することが可能となる。本研究では、ファイバ結合微小球を介した金属ナノ構造体への高効率光結合を実証するため、金薄膜をコートしたAFMチップをファイバ結合微小球共振器に近接させながら透過スペクトルの測定を行った。実験では、テーパーファイバと微小球共振器を接触させ、完全なOver-coupling条件となるようにした。このファイバ結合微小球共振器に金コートAFMチップを徐々に近づけながら透過スペクトルの変化を観測した結果を図2に示す。AFMチップが微小球表面よりも十分遠方にある場合、AFMチップの影響は現れず、系全体はOver-coupling状態にあり、

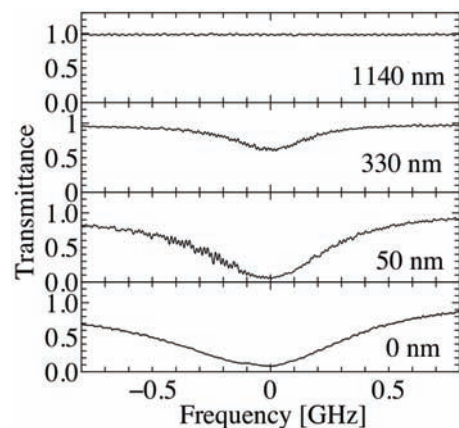


図2. オーバーカップリング状態にあるテーパーファイバ結合微小球に金コートAFMチップを近づけた時の透過率スペクトル変化。

透過率はほぼ1となる。一方、AFMチップが近づいてくると、透過率にディップが現れ、そのディップ深さや幅が大きくなっていく様子が確認できる。ある距離においてCritical-coupling条件となると透過率がほぼ0となり、さらに距離を近づけるとディップ深さが浅くなりながら幅が広がっていく、Under-coupling条件となる事が確認できた。この結果は、Critical-coupling条件において、ファイバを介して入射した光がほぼ全て金コートAFMチップで散乱されている事を示しており、テーパファイバ結合微小球共振器を介した金ナノ構造への高効率な光集光や電場増強の可能性を示唆している。

(c) 高Q値トロイド共振器の作製

近年、新規ナノフォトニックデバイスを実現するため微小共振器が注目されているが、様々な微小共振器の中でもテーパファイバ結合トロイド共振器は高いQ値と小さいモード体積、さらに、高効率光入出力が可能な優れた微小共振器のひとつとして動作する。本研究では、トロイド共振器を用いたナノフォトニックデバイスの実現を目指し、本研究所内の西井教授のグループと共同で高Q値のトロイド共振器の作製を試みた。Si基板上のSi酸化膜（厚さ3 μm ）を光露光、エッチング技術により酸化膜のマイクロディスクを作製した。このマイクロディスクをCO₂レーザーによりアニールする事により、トロイド共振器を作製した（図3(a)）。しかしながら、作製したトロイド共振器のQ値を測定した所、 $10^4 \sim 10^5$ 程度と、目標値である 10^7 に比べて極めて低い値となった。作製過程の検討を行った結果、マイクロディスク作製時に付着したSiの残りカスや大気中のゴミの付着により、その後に作製するトロイド共振器の形状に著しい影響が発生する事が明らかとなり、CO₂レーザーアニール直前に、濃度1%のフッ化水素溶液でマイクロディスク表面のクリーニングを行った後、アニールングによりトロイド共振器を作製した所、Q値の著しい向上が

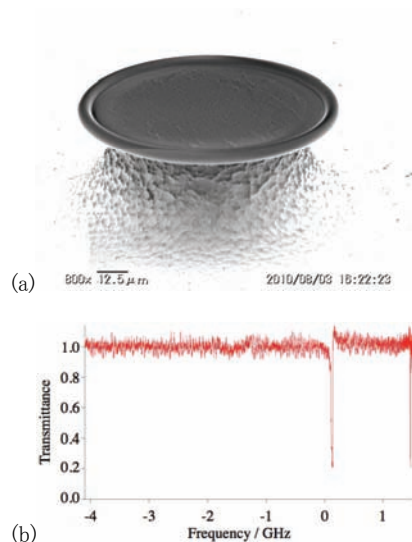


図3. トロイド共振器の電子顕微鏡画像共鳴スペクトル。

確認された（図3(b)）。この結果、安定してQ値 10^7 以上の高Q値トロイド共振器構造の作製が可能となった。

(d) 金ナノ構造を用いたナノ粒子トラッピング

プラズモン光局在場を利用した溶液中微粒子の光捕捉は、集光レーザーに比べ低い光照射強度で捕捉可能であることから、近年注目されている。我々は、サイズや形状に依存する金属ナノ構造のプラズモン特性に着目し、入射レーザー光の波長や偏光によって制御可能な新しいナノ光マニピュレーション・パターニング技術の開発に取り組んでいる。図4aに示す、プラズモン特性に偏光異方性を示すナノギャップ有する金ダイマーのアレイを電子線ビームリソグラフィで作製し、350nmの粒子を対象に光捕捉実験を行った。入射波長に共鳴の大きい偏光の場合、図4bのように光照射することにより微粒子の光捕捉が確認された。一方、偏光方向を90°変えると、入射波長におけるプラズモン共鳴は弱くなり、微粒子が捕捉されなくなった（図4c）。さらにダイマーを形成する金ナノブロックの一辺の長さを100 nm, 80 nm, 70 nm, 60 nm とかえて光捕捉実験を行ったところ、入射光波長におけるプラズモン共鳴が大きい金ナノダイマーアレイの方が、微粒子が安定に捕捉されることを明らかにした。本研究は、我々が提案する新しいナノ光マニピュレーション・パターニング技術の開発に向けた第一歩である。

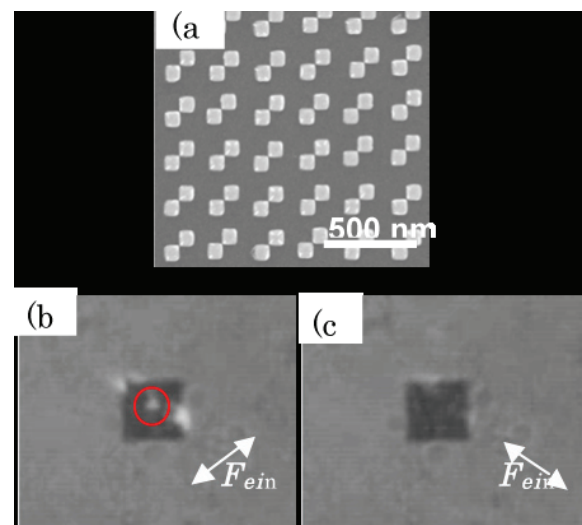


図4. (a) 金ナノダイマーアレイのSEM像. (b, c) 金ナノダイマーアレイによる350nm粒子の光捕捉実験. F_{ein} は入射レーザーの偏光方向を示す。赤い丸印は光捕捉した粒子を示す。

(e) 光駆動したAFM探針のFANO共鳴

我々は、AFM探針の振動スペクトル中においてFANO共鳴に類似した現象を観測した。外部から波長780nmのLDレーザーの照射によって光熱的に振動を誘起し、AFM探針の変位を光てこ技術によりナノメートルオーダーの精度で測定を行った。振動信号は、LDレーザーの変調周波数においてロックイン検出を行い、実部と虚部成分のそれぞれを記録した。その結果、振動スペクトル中のピーク形状にFANO

共鳴のような非対称性を確認し、その非対称性がAFM探針の励起位置に強く依存する事が分かった。熱的なランダムな揺らぎとFANO共鳴項を導入した簡単な振動物理モデルを用いて、振動スペクトル中に隠れた共鳴成分と連続成分の抽出とその解析に成功した(図5)。この手法を用いる事によって、位相に敏感なAFM測定やマイクロマシンデバイス等への応用が期待される。

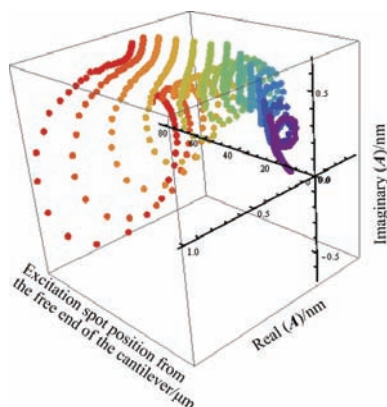


図5. V型AFM探針の振動スペクトル(走査周波数: 6-18kHz)のナイキストプロットの励起位置依存性(測定位置: 自由端から21μm)。

(f) 金属ランダム構造の欠陥における局在モード解析

金属表面のラフネス等は、近年、プラズモン共鳴増強によるラマン散乱等を増強させる簡便な光反応場として注目されている。一方、我々はこれまでに、ランダムに配置された散乱体構造(ランダム構造)中の局在モードを簡便に制御する方法として、構造内に設けた欠陥領域を利用した局在モードの制御方法について提案を行っている。本年度の研究では、これらのプラズモン共鳴と光局在現象の相乗効果を目指し、ドルーデローレンツモデルを導入した2次元FDTD法を用いて金属ランダム構造内の欠陥領域における光局在現象の解析を行った。図6は、金を仮定した散乱体円柱の直径を80, 100, 120, 200nmと変化させ、構造全体を600THz付近の周波数においてTEモード励振した時の光局在場の分布を示している。結果を見ると、サイズに依存してプラズモン共鳴に対応する600THz付近のブロードな共鳴ピークが変化し、強度分布からはどの直径の散乱体においても中心の欠陥付近に強い局在が発生している様子

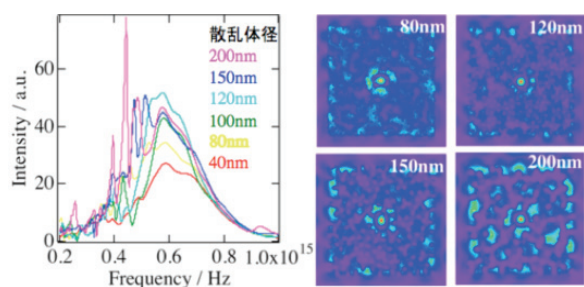


図6. 中心に点欠陥を持つ金属ランダム構造の(a)欠陥におけるスペクトルと(b)570THzにおける強度分布の散乱体サイズ依存性。

が確認できる。励振源の振幅を1とし、その増強度を大まかに見積もった所、散乱体直径120nmにおいて約100倍にも達し、非常に高い増強度が得られる可能性を示唆している。

3. 今後の研究の展望

本研究分野では現在、科学研究費課題として、「超狭帯域レーザー顕微分光イメージングを用いた高次機能性構造の光局在反応解析」、「金属表面ラフネス内の欠陥領域を利用したプラズモン制御技術の開発」、「1分子光捕捉を目指したプラズモニックナノ構造の作製」の研究を遂行中である。また、科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業のプロジェクトとして「ランダム構造内の欠陥領域を利用した光局在モード制御」の研究を遂行中である。これらのプロジェクトの展開として、(a) テーパーファイバ結合微小球・トロイド構造を用いた光子制御デバイスの開発、(b) 輻射場を制御した単一分子の分光計測、(c) もつれ合い光子を用いた量子リソグラフィ要素技術開発、(d) 高空間分解分光イメージングシステムの構築、(e) 単一光子制御デバイスの作製と特性解析、(f) ナノ構造体による光制御技術の開発、(g) 光ナノ計測を用いた微粒子間相互作用力測定、等の研究テーマを遂行する予定である。

4. 資料

4.1 学術論文等

a. 学術論文

- 1) H. Oka, H. Fujiwara, S. Takeuchi and K. Sasaki : "Nonlinear optical phase shift obtained from two-level atoms confined in a planar microcavity", J. Appl. Phys., 107(5) : 054310-1-054310-6 (2010)
- 2) Y. Tanaka and K. Sasaki : "Selection and transfer of individual plasmon-resonant metal nanoparticles", Appl. Phys. Lett., 96(5) : 053117/1-053117/3 (2010)
- 3) H. Fujiwara, Y. Tanaka, H. Ishiguro, A. Saito and K. Sasaki : "Direct Observation of Localized Fields in Nanogaps", Appl. Phys. Exp., 2(10) : 102002-1-102002-3 (2009)
- 4) Y. Tanaka, H. Yoshikawa, T. Itoh, and M. Ishikawa: "Laser-induced self-assembly of silver nanoparticles via lasmonic interactions", Opt. Exp., 7(21)18760-18767 (2009)
- 5) H. Fujiwara, Y. Hamabata and K. Sasaki : "Numerical analysis of resonant properties of a waveguide structure within a random medium", Opt. Exp., 17(13) : 10522-10528 (2009)
- 6) Y. Tanaka and H. Yoshikawa: "Surface enhanced raman scattering from pseudoisocyanine on Ag nanoaggregates produced by optical trapping with a linearly polarized laser beam", J. Phys. Chem. C., 113(27): 11856-11860 (2009)

- 7) T. Chiba, H. Fujiwara, J. Hotta, S. Takeuchi and K. Sasaki : “Dynamical Analysis of Triplet Lifetime of Single Molecules by a Photon Interdetection Time Analysis Method”, Journal of Physical Chemistry C, 113(27) : 11652-11656 (2009)

4.4 著書

- 1) 笹木敬司:「光科学研究の最前線2」、強光子場科学研究懇談会(JILS) (2009)
- 2) H. Fujiwara and K. Sasaki : “Molecular Nano Dynamics Vol.1” (Chapter 7: Dynamic Analysis Using Photon Force Measurement), Wiley-VCH (2009)

4.7 講演

a. 国際会議招待講演

- 1) H. Fujiwara*, Y. Tanaka, H. Takashima and K. Sasaki : “Analysis of photon-localization within integrated functional structures using narrow-band laser microimaging spectroscopy”, The3rd Taiwan-Japan Symposium on Organized Nanomaterials and Nanostructures Related to Photoscience, Silks Place Taroko Hotel, Hualien, Taiwan (2010-03)
- 2) K. Sasaki* : “Quantum photonic technology beating the classical limit”, Visiting Professor Seminar, Swinburne University of Technology, Melbourne, Australia (2010-01)
- 3) K. Sasaki* : “Photon technology beating the classical limit”, RIES-CIS Mini-workshop on Nano/Bio/Quantum Science, National Chiao Tung University or Hsinchu Jiao Tong University, Taiwan, Taiwan (2009-12)
- 4) K. Sasaki* : “Observation of entangled photon interference beating the diffraction limit” , 2009 International Conference on Optical Instrument Technology (OIT 2009), Shanghai Everbright Convention & Exhibition Center, China (2009-10)
- 5) S. Takeuchi, R. Okamoto*, J. L. O’Brien, H. F. Hofmann, T. Nagata and K. Sasaki : “Realization of optical quantum circuits: an entanglement filter”, SPIE Optics+Photonics, San Diego Convention Center, USA (2009-08)
- 6) H. Fujiwara* : “Manipulation of modal properties in random structures”, International Workshop on Photons and Spins in Nanostructures, Hokkaido University, Japan (2009-07)
- 7) S. Takeuchi, R. Okamoto*, J. L. O’Brien, H. F. Hofmann, T. Nagata and K. Sasaki : “Experimental realization of an optical entanglement filter”, CLEO/Europe-EQEC 2009, ICM Center of the New Munich Trade Fair Center, Germany (2009-06)

b. 国内会議招待講演

- 1) 藤原英樹、田中嘉人、高島秀聡、笹木敬司* : 「顕微分光イメージングによる光局在場解析」、2010年春季 第57回 応用物理学関係連合講演会シンポジウム「プラズモニクスと分子制御」、東海大学 (2010-03)
- 2) 笹木敬司* : 「光局在場におけるフォトンのふるまい」、化学者のためのプラズモン講座— 光と物質の究極的

な相互作用実現に向けて 一、日本科学未来館 (2009-09)

c. 国際会議一般講演

- 1) H. Takashima*, Y. Tanaka, H. Fujiwara and K. Sasaki : “Coupling between fiber-coupled microspheres and metal coated optical fiber tips microscope”, International Symposium of Joint Research Network on Advanced Materials and Devices “Chou”, Hotel-Nidom, Japan (2010-03)
- 2) K. Sasaki* : “Observation of localized fields in metal nanostructures using a scattering-type near-field microscope”, International Symposium of Joint Research Network on Advanced Materials and Devices “Chou”, Hotel-Nidom, Japan (2010-03)
- 3) S. Takeuchi, M. Tanida*, T. Nagata, R. Okamoto and K. Sasaki : “Highly-pure heralding single-photon sources for linear optics quantum computation”, International Symposium on Joint Research Network for Advanced Material and Devices “Chou”, Hotel-Nidom, Japan (2010-03)
- 4) S. Takeuchi, H. Zhao*, M. Fujiwara, H. Takashima and K. Sasaki : “NV-center investigation in diamond nano granules by laser scanning confocal microscopy”, International Symposium on Joint Research Network for Advanced Material and Devices “Chou”, Hotel-Nidom, Japan (2010-03)
- 5) K. Shahrul*, H. Fujiwara and K. Sasaki : “Analysis of photothermally induced vibration in metal coated AFM cantilever”, Southeast Asian International Advanced in Micro/nano-technology Advances (SAIAM 2010), Montien Hotel, Bangkok, Thailand (2010-03)
- 6) H. Takashima*, K. Toubaru, M. Fujiwara, H. Fujiwara, K. Sasaki and S. Takeuchi : “Tapered fiber coupling to microspheres at cryogenic temperature medium”, SPIE Photonics West 2010, The Moscone Center, San Francisco, California, USA (2010-01)
- 7) K. Sasaki* : “Numerical analysis of random lasing properties in a waveguide structure surrounded by a random medium”, SPIE Photonics West 2010, The Moscone Center, San Francisco, California, USA (2010-01)
- 8) S. Takeuchi, M. Fujiwara*, H. Takashima, K. Toubaru, H. Zhao and K. Sasaki : “Toward the realization of the strong coupling between a Diamond NV center and a microsphere resonator with a tapered fiber”, 13th SANKEN International Symposium 2010, ホテル日航関西空港 (2010-01)
- 9) Y. Tanaka*, H. Ishiguro, H. Fujiwara and K. Sasaki : “Direct observation of localized fields in nanogaps between gold nanoparticles using a scattering-type near-field microscope”, The 7th Asia-Pacific Conference on Near-Field Optics (APNFO-7), International Convention Center JEJU, Korea (2009-11)
- 10) S. Takeuchi, R. Okamoto*, J. L. O’Brien, H. F. Hofmann, T. Nagata and K. Sasaki : “Experimental realization of an

- optical entanglement filter FrF-10 pp122”, International Symposium on Quantum Nanophotonics and Nanoelectronics (ISQNN), Komaba Research Campus, the University of Tokyo (2009-11)
- 11) K. Shahrul* and K. Sasaki : “Photo-induced forces on AFM cantilever by externally modulated laser”, 2009 International Conference on Optical Instrument Technology (OIT 2009), Shanghai Everbright Convention & Exhibition Center, China (2009-10)
 - 12) Y. Tanaka*, H. Fujiwara and K. Sasaki : “Spatially mapping of localized field enhancements in the noble metal nanostructures”, International symposium of Post-Silicon Materials and Devices Research Alliance Project, Ichou Kaikan of Osaka University (2009-09)
 - 13) H. Fujiwara* and K. Sasaki : “Resonant and lasing properties at a defect region within a random structure”, International Workshop on Microcavities and Their Applications (WOMA2009), Seoul University, Korea, Korea (2009-08)
 - 14) S. Takeuchi, T. Nagata*, R. Okamoto and K. Sasaki : “Analysis of errors in linear-optics C-NOT gates”, SPIE Optics + Photonics Quantum Communications and Quantum Imaging VII, San Diego Convention Center, USA (2009-08)
 - 15) H. Takashima*, M. Takahashi, H. Fujiwara, K. Sasaki and S. Takeuchi : “Analysis of input-output characteristic of fiber-coupled microsphere laser using rate equation models”, International workshop on photons and spins in nanostructures (IWPSN), Hokkaido University, Sapporo (2009-07)
 - 16) 竹内繁樹、永田智久*、岡本亮、笹木敬司 : 「Toward high-fidelity operation of linear-optics quantum gates」、International Workshop on Photons and Spins in Nanostructures (IWPSN)、北海道大学創成科学研究棟5階大会議室 (2009-07)
 - 17) Y. Tanaka*, H. Fujiwara and K. Sasaki : “Spatially mapping of localized field enhancements in the metal nanostructures”, International Symposium on Advances in Nanostructure-Enhanced Photochemical Reactions and Photoenergy Conversion, Faculty Club, Leuven, Belgium (2009-07)
 - 18) H. Fujiwara*, T. Ikeda and K. Sasaki : “Photon manipulation in random structures”, International Symposium on Advances in Nanostructure-Enhanced Photochemical Reactions and Photoenergy Conversion, Faculty Club, Leuven, Belgium (2009-07)
 - 19) K. Sasaki* : “Analysis of photon-localization within integrated functional structures”, International Symposium on Advances in Nanostructure-Enhanced Photochemical Reactions and Photoenergy Conversion, Faculty Club, Leuven, Belgium (2009-07)
 - 20) S. Takeuchi, M. Tanida*, T. Nagata, R. Okamoto and K. Sasaki : “Highly-pure heralding single-photon sources for linear optics quantum computation”, 18th INTERNATIONAL LASER PHYSICS WORKSHOP (LPHYS'09), World Trade Center Barcelona, Spain (2009-07)
- d. 国内会議口頭発表**
- 1) 笹木敬司*、田中嘉人、高島秀聡、藤原英樹 : 「Highly efficient photon-molecule-coupling field combining microcavity and localized plasmon」、物質・デバイス領域共同研究拠点発足記念シンポジウム、大阪大学コンベンションセンター 3階 MOホール (2010-03)
 - 2) 高島秀聡*、北嶋千誉、田中嘉人、藤原英樹、笹木敬司 : 「金属コートチップとファイバ結合微小球とのカップリング」、2010年春季 第57回 応用物理学関係連合講演会、東海大学 (2010-03)
 - 3) 田中嘉人*、石黒裕康、藤原英樹、横田幸恵、上野貢生、三澤弘明、笹木敬司 : 「散乱型近接場顕微鏡による金属ナノ構造の光局在解析 (2)」、2010年春季 第57回 応用物理学関係連合講演会、東海大学 (2010-03)
 - 4) 笹木敬司* : 「微粒子散乱体を塗布したテーパファイバーの光透過特性」、2010年春季 第57回 応用物理学関係連合講演会、東海大学 (2010-03)
 - 5) 高島秀聡*、田中嘉人、藤原英樹、笹木敬司 : 「金属ナノ構造とファイバ結合微小球共振器による光増強結合場」、特別教育研究経費「附置研究所間連携事業」最終成果報告会、東京国際フォーラム (2010-03)
 - 6) 田中嘉人*、藤原英樹、笹木敬司 : 「超狭帯域 レーザー顕微分光イメージングを用いた高次機能性構造の光局在反応解析—金属ナノ粒子の光局在解析とマニピュレーション技術の開発—」、特定領域研究「光—分子強結合反応場の創成」第6回公開シンポジウム、九州大学西新プラザ (2010-01)
 - 7) 笹木敬司* : 「超狭帯域 レーザー顕微分光イメージングを用いた高次機能性構造の光局在反応解析」、特定領域研究「光—分子強結合反応場の創成」第6回公開シンポジウム、九州大学西新プラザ (2010-01)
 - 8) S. Takeuchi, M. Tanida*, T. Nagata, R. Okamoto and K. Sasaki : “Highly-pure heralding single-photon sources for linear optics quantum computation”, 13th SANKEN International Symposium 2010, ホテル日航関西空港 (2010-01)
 - 9) 池田匠*、藤原英樹、笹木敬司 : 「ランダム構造内欠陥領域におけるレーザー発振特性の数値解析」、第45回応用物理学会北海道支部／第6回日本光学会北海道地区合同学術講演会、北海道大学 学術交流会館 (2010-01)
 - 10) 太田宏紀*、藤原英樹、笹木敬司 : 「金薄膜表面上の単一CdSe/ZnS量子ドットのトラップ準位の時間応答解析」、第45回応用物理学会北海道支部／第6回日本光学会北海道地区合同学術講演会、北海道大学 学術交流会

- 館 (2010-01)
- 11) 笹木敬司*:「金ナノ構造中に誘起される光局在場の散乱型近接場イメージング」、第45回応用物理学会北海道支部/第6回日本光学会北海道地区合同学術講演会、北海道大学 学術交流会館 (2010-01)
 - 12) 高島秀聡*、高橋 雅英、藤原英樹、笹木敬司、竹内繁樹:「ファイバ結合微小球レーザーの光入出力特性の解析」、日本光学会年次学術講演会 Optics Photonics Japan 2009、朱鷺メッセ:新潟コンベンションセンター (2009-11)
 - 13) 藤原英樹*:「ランダム構造内の欠陥領域を利用した光局在モード制御」、さきがけ「物質と光作用」第7回領域会議、加賀観光ホテル (石川県加賀市) (2009-11)
 - 14) 藤原正澄*、高島秀聡、桃原 清太、趙 洪泉、笹木敬司、竹内繁樹:「テーパーファイバ・微小球結合系における強結合状態の実現に向けて」、第21回量子情報技術研究会、電気通信大学 (2009-11)
 - 15) 竹内繁樹、川瀬大輔、尾崎雄亮*、青木俊介、宮本洋子、武田光夫、笹木敬司:「パラメトリック蛍光光子対の軌道角運動量もつれ合い状態の検出」、第21回量子情報技術研究会(QIT21)、電気通信大学 (2009-11)
 - 16) 高島秀聡*、藤原英樹、竹内繁樹、笹木敬司:「ファイバ結合微小球レーザーの光入出力特性の解析」、アライアンスG2「新機能ナノエレクトロニクス」グループ分科会、北海道大学電子科学研究所創成科学研究棟 (2009-10)
 - 17) K. Shahrul*, H. Fujiwara and K. Sasaki: “Photo-induced forces on cantilever by externally modulated laser”, 若手研究者支援のための産学協同GCOEシンポジウム 2009, 京王プラザホテル札幌 (2009-09 ~ 2009-10)
 - 18) 竹内繁樹、宮本洋子*、青木俊介、武田光夫、笹木敬司:「軌道角運動量重ね合わせ状態検出における余分な方位角成分Ⅱ」、日本物理学会2009年秋季大会、熊本大学黒髪キャンパス (2009-09)
 - 19) 竹内繁樹、岡本亮*、オブライエン L. ジェレミー、ホフマン F. ホルガ、永田智久、笹木敬司:「もつれ合いフィルタの実証実験」、日本物理学会2009年秋季大会、熊本大学黒髪キャンパス (2009-09)
 - 20) 太田宏紀*、藤原英樹、笹木敬司:「金薄膜表面上の単一CdSe/ZnS量子ドットのトラップ準位寿命解析」、2009年秋季 第70回 応用物理学会 学術講演会、富山大学 (2009-09)
 - 21) 藤原英樹*、池田匠、笹木敬司:「ランダム構造内導波路におけるレーザー発振特性の利得分布依存性」、2009年秋季 第70回 応用物理学会 学術講演会、富山大学 (2009-09)
 - 22) 田中嘉人*、笹木敬司:「AFMと顕微分光システムを組み合わせた単一金属ナノ粒子マニピュレーション」、2009年秋季 第70回 応用物理学会 学術講演会、富山大学 (2009-09)
 - 23) 石黒裕康*、田中嘉人、藤原英樹、笹木敬司:「散乱型近接場顕微鏡による金属ナノ構造の光局在解析」、2009年秋季 第70回 応用物理学会 学術講演会、富山大学 (2009-09)
 - 24) 高島秀聡*、浅井健志、桃原清太、藤原正澄、藤原英樹、笹木敬司、竹内繁樹:「ファイバ結合微小球共振器を用いた量子位相ゲートの開発に向けて」、第6回AMO検討会、大阪大学豊中キャンパスΣホール (2009-06)
 - 25) 竹内繁樹、岡本亮*、オブライエン L. ジェレミー、ホフマン F. ホルガ、永田智久、笹木敬司:「もつれ合いフィルタの実証実験」、第6回AMO討論会、大阪大学豊中キャンパス Σホール (2009-06)
 - 26) 竹内繁樹、谷田真人*、永田智久、岡本亮、笹木敬司:「高い2光子干渉性を持つ伝付単一光子源の実現」、第6回AMO討論会、大阪大学豊中キャンパス Σホール (2009-06)
 - 27) 藤原英樹*:「マイクロ・ナノ構造を用いた光捕集・局在・反応解析」、ナノテクノロジー研究センター講演会、北海道大学 (2009-05)
 - 28) 竹内繁樹、岡本亮*、オブライエン L. ジェレミー、ホフマン F. ホルガ、永田智久、笹木敬司:「もつれ合いフィルタの実験的な実現」、第20回量子情報技術研究会(QIT20)、広島大学 東広島キャンパス 学生会館2階レセプションホール (2009-05)
 - 29) 藤原英樹*:「ランダム構造内の欠陥領域を利用した光局在モード制御」、さきがけ「物質と光作用」第6回領域会議、大分県別府市 杉乃井ホテル (2009-05)
 - 30) 藤原英樹*、笹木敬司:「超狭帯域レーザー顕微分光イメージングを用いた高次機能性構造の光局在反応解析:微小共振器構造を用いた光強結合反応場の実現」、特定領域研究第5回シンポジウム、京都大学 百周年時計台記念館 (2009-05)
 - 31) 笹木敬司*、田中嘉人、藤原英樹:「超狭帯域レーザー顕微分光イメージングを用いた高次機能性構造の光局在反応解析:金属ナノ構造の高空間分解光局在イメージング」、特定領域研究第5回シンポジウム、京都大学 百周年時計台記念館 (2009-05)
 - 32) 竹内繁樹、岡本亮*、オブライエン L. ジェレミー、ホフマン F. ホルガ、永田智久、笹木敬司:「もつれ合いフィルタの実証実験」、ナノ量子情報エレクトロニクス公開シンポジウム、東京大学理学部1号館小柴ホール小柴ホール (本郷キャンパス) (2009-04)
 - 33) 藤原英樹*、池田匠、笹木敬司:「ランダム構造内導波路におけるランダムレーザー発振特性の解析」、2009春季第56回応用物理学関係連合講演会、筑波大学 筑波キャンパス (2009-03 ~ 2009-04)
 - 34) 市橋和明*、藤原英樹、笹木敬司:「3次元フォトンフオーズ計測システムを用いた2粒子間相互作用解析」、2009春季第56回応用物理学関係連合講演会、筑波大学 筑波キャンパス (2009-03~2009-04)

- 35) 笹木敬司*:「微小共振器構造体における光局在場解析」、2009春季第56回応用物理学関係連合講演会、筑波大学筑波キャンパス (2009-03～2009-04)

4.9 共同研究

a. 海外機関との共同研究

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

d. 受託研究

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

f. その他

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

4.10 予算獲得状況

a. 科学研究費補助金

- 1) 笹木敬司: 基盤研究A「放射圧を利用した非破壊光子検出法の開発」(2006～2009)
- 2) 笹木敬司: 特定領域研究「超狭帯域レーザー顕微分光イメージングを用いた高次機能性構造の光局在反応解析」(2007～2010)

4.12 社会教育活動

a. 公的機関の委員

- 1) 笹木敬司: 日本学術振興会科学研究費委員会 専門委員 (2009年12月1日～2010年11月30日)
- 2) 笹木敬司: 科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業 (CREST) 領域アドバイザー (2008年5月26日～2012年3月31日)
- 3) 笹木敬司: 日本学術振興会産学協力研究委員会「フォトニクス情報システム第179委員会」委員 (2006年4月1日～2011年3月31日)
- 4) 笹木敬司: 科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業 (さきがけ) 領域アドバイザー (2005年6月9日～2011年5月31日)

c. 併任・兼業

- 1) 笹木敬司: 九州大学先端物質科学研究所 外部評価委員 (2010年3月5日～2010年3月6日)
- 2) 笹木敬司: Swinburne University of Technology, Visiting Professor (2010年1月1日～2010年3月31日)
- 3) 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4月1日～2011年3月31日)

- 4) 藤原英樹: 科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業 個人研究型 (さきがけ) 委嘱研究者 (2007年10月1日～2011年3月31日)

f. 外国人研究者の招聘

- 1) Daniel Day, Australia (2009年6月1日～2009年6月10日)
- 2) 雲林院宏, Belgium (2010年2月8日～2010年2月14日)

g. 北大での担当授業科目 (対象、講義名、担当者、期間)

- 1) 情報科学研究科、電子情報工学演習Ⅱ、笹木敬司、2009年10月1日～2010年3月31日
- 2) 情報科学研究科、情報エレクトロニクス特別研究第一、笹木敬司、2009年10月1日～2010年3月31日
- 3) 情報科学研究科、光情報システム学特論、笹木敬司、2009年10月1日～2010年3月31日
- 4) 工学部、電磁気学、藤原英樹、2009年10月1日～2010年3月31日
- 5) 工学部、光エレクトロニクス、笹木敬司、2009年4月1日～2009年9月30日
- 6) 情報科学研究科、情報エレクトロニクス特別研究第二、笹木敬司、2009年4月1日～2010年3月31日
- 7) 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、2009年4月1日～2010年3月31日
- 8) 工学部、電子情報工学実験、藤原英樹、2009年4月1日～2010年3月31日

i. ポスドク・客員研究員など

・ポスドク (2名)

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

j. 修士学位及び博士学位の取得状況

・博士課程 (1名)

- 1) 永田智久:「多光子量子干渉を用いた光量子回路の実現とその計測への応用に関する研究」

生体物理研究分野

教 授 根本知己（東工大院、理博、2009.9～）

博士研究員 日比輝正（2009.12～2010.3）

1. 研究目標

本研究分野は、平成21年度9月より新研究分野として発足した。本研究分野は、超短光パルスレーザー、遺伝子工学、電気生理学、光機能分子など多岐にわたる科学技術を活用することで、生きた個体、組織での、「光による観察」と「光による操作」を同時に実現する新しい生命機能のイメージング法を展開させ、新たな学際的な研究領域「光・細胞生物学」「光・脳科学」を生み出すことを目標とする。

2. 研究成果

(a) 2光子顕微鏡は、近赤外域のフェムト秒光パルスにより生じる非線形光学過程である2光子励起過程を利用する顕微鏡法であり、他の顕微鏡法では観察が困難な、生体組織深部の観察が可能である。現在、生物個体中で細胞や生体分子機能の非侵襲的な可視化解析が可能な方法論として、期待されている。我々は、この顕微鏡法の黎明期より、その確立と生命科学への応用を先導し、現在、脳表面から約0.9mmという世界で最も深い深部到達性とサブマイクロメートルの分解能を実現する世界で最も優れた**生体用“in vivo”2光子顕微鏡システム**を構築することに成功していた(図1)。この方本論を用いて、神経回路網の発達や再構成に関する知見を得た[1, 2]。しかし、他の臓器、観察対象では、同様の観察に成功したという報告は少なく、脳神経系ほどには盛んに使用されているとは言いがたい。我々は一連の**“in vivo”2光子顕微鏡システム**を用いた研究によって、その原因は光学的なパラメーターの、標本の種類や観察部位に依存した非一様性や多様性であることを見出した。また、生組織中での観察しながらの細胞、分子の標識は極めて有用でありが、観察との同時実行は、組織由来の波長依存的な収差のため困難であった。これらの問題点を克服すべく、光学的パラメーターの計測とレーザー光導入光学系の改良を開始した。

(b) 着任以降も旧所属の生理学研究所において教授を兼任したが、その際に開始した企業との共同研究により、新たに**2光子 in vivo FRAP 法**を開発し、特許出願を行った。本法により生体肝代謝活性の *in vivo* 測定することで、麻酔下のマウス生体肝細胞における薬物代謝活性を非侵襲的に可視化することを可能とした。また、同様に、自然科学研究機構バイオ分子センサープロジェクトの支援を受け、基礎生物学研究所野中茂紀准教授と共に、身体左右差獲得の Ca^{2+} イメージングに関する研究を実施した。この哺乳動物の身体の左右非対称性は発生時の初期胚ノード流の一方

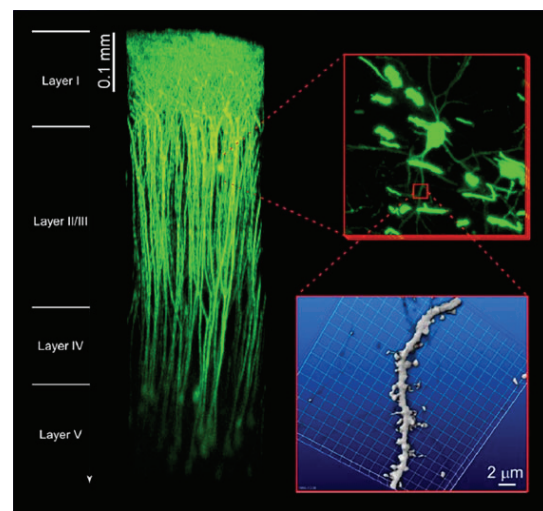


図1. “in vivo”2光子顕微鏡は生体内の組織の深部を高分解能で長期観察が可能である。麻酔下のマウス大脳新皮質の神経細胞。我々は世界で最深部の可視化に成功した。

性に由来することが知られているが、その「方向性」がどのような生化学的、細胞生理学的なシステムに継承され、具体的な発現に至るかは不明である。そこで、その分子機構を検討するために、マウス初期胚において2光子顕微鏡を用いて低侵襲的な Ca^{2+} イメージングを実施したところ、胚の体軸の左右において非対称な Ca^{2+} 振動が発生していることが明らかになった。また、本年度終了した科学研究費特定領域研究「トランスポートソーム」においては、水・イオンチャネル AQP12 の生理機能や低分子量 GTP ファミリー Rap1 の名駅細胞動態における機能について共同研究を実施し原著論文を出版した[4, 5]。また、高血糖刺激時の脂肪細胞のグルコース受容体 GLUT4 の動的分布変化による調節機能や、 GABA_A 受容体結合分子 PRIP の生理機能に関する研究を推進した。

(c) 旧所属時に開始していた JST・CREST の受託研究は、北大着任以降も電子科学研究所において新たに受託契約を行い、**超解像イメージング**に関する研究を実施した。光は波動としての性質のために回折限界が存在するため、レンズを用いた場合、波長程度の有限な大きさまでしか絞ることができない。これが光学顕微鏡の空間分解能の限界の1つの大きな原因となっており、300nm程度である。従って、シナプス小胞を始め、生理機能を担っている細胞内器官や構造を捉えることは原理的に極めて困難である。そこで、我々は2光子顕微鏡の同時多重染色性を利用して、輸送小胞や融合細孔のサイズをナノメートルの精度で決定するための方法論を開発してきた。しかし、この方法では情報を抽出しているのであり、細胞内の構造物についてある種の形態学的な仮定を必要とする。そこで、我々はこのような仮定無しに直接的に、回折限界を越える蛍光イメージングを可能とする方法論を、「ベクトルビーム」を用いて開発を開始した。特に、“light needle”と呼ばれる直径100-200nmの細いレーザー光を励起光源とすることで、共焦点顕微鏡法、

2光子顕微鏡法の双方において、その空間分解能を著しく向上させることに成功した(図2)。本法は本年度末、共同研究者、協力企業と共に特許出願を行った。

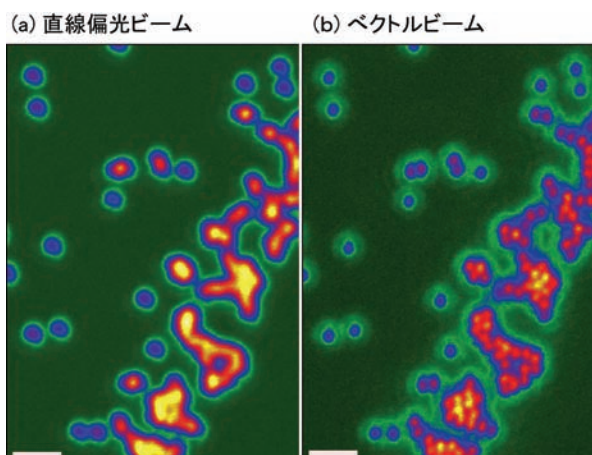


図2. 直径173nmの蛍光ビーズの共焦点蛍光像
ベクトルビームにより、著しい空間分解能の向上が認められる。

3. 今後の研究の展開

今後の我々の研究目標は、生命科学的な立場からは、生体脳・中枢神経系モデルにおいて、SNARE分子やその結合因子など、開口放出を引き起こす分子機械の解明とその生理機能、破綻として病理の理解にある[3]。そのためには、この分子機械の有力な候補分子の動態、複合体形成などを同時多重可視化し、生合成分子の放出に伴う分子過程を定量化する方法論を開発することが重要であると我々は考える。また、これらの方法論を拡張し、がん組織、骨組織など多様な生組織の深部解像能を向上させ、可視化と光操作の同時実行による生体分子動態の高精度解析を可能としたい。その為に、このような実験を広く可能とするプラットフォームの確立や研究コア・グループの形成が必要であろう。その意味において、現在、新たにがん組織における“*in vivo*”イメージング手法の開発を目指して新しい共同研究プロジェクトへ参加を開始した。ここでは、新しい特殊なレーザー光源を用いた多光子顕微鏡の設計を完了させつつある。さらに、先述のように深部断層イメージングに成功しているマウス大脳新皮質と、その他の生体臓器との間の光学的な差異についても検討し、その結果を反映してレーザー顕微鏡の光学系の改良に努めることが肝要であろう。また、アップコンバージョン粒子を用いた方法論の共同開発にも着手している。この希土類を用いた超微小粒子は、毒性等の問題が低い上に、2光子顕微鏡同様の断層イメージングが可能であると期待している。このようにイメージング技術を展開させることと、真の生体内部で生じている現象の定量的、統合的に理解することを縦糸・横糸とすることで、我々の身体における生理機能や病理の理解を推進し、広く国民の福祉へと還元していきたいと考える。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) Y. Takatsuru, M. Yoshitomo, T. Nemoto, K. Eto and J. Nabekura : “Maternal separation decreases the stability of mushroom spines in adult mice somatosensory cortex”, *Brain Res.*, 1294: pp.45-51 (2009)
- 2) Y. Takatsuru, D. Fukumoto, M. Yoshitomo, T. Nemoto, H. Tsukada and J. Nabekura : “Neuronal circuit remodeling in the contralateral cortical hemisphere during functional recovery from cerebral infarction”, *J. Neurosci.*, 29: pp.10081-6 (2009)
- 3) M. Naoto, L. Hui, F. Yuko, N. Jun, G. Hongfeng, M. Sujay, T. Nemoto, F. Masaki and Poo Mu-ming : “Differential Activity-Dependent Secretion of Brain-Derived Neurotrophic Factor from Axon and Dendrite”, *J. Neurosci.*, 29(45) : 14185-14198 (2009)
- 4) E. Ohta, T. Itoh, T. Nemoto, J. Kumagai, S. B. Ko, K. Ishibashi, M. Ohno, K. Uchida, A. Ohta, E. Sohara, S. Uchida, S. Sasaki and T. Rai : “Pancreas-specific aquaporin 12 null mice showed increased susceptibility to caerulein-induced acute pancreatitis”, *Am. J. Physiol. Cell Physiol.*, 297(6) : C1368-78 (2009)
- 5) Y. Ebisuno, K. Katagiri, T. Katakai, Y. Ueda, T. Nemoto, H. Inada, J. Nabekura, T. Okada, R. Kannagi, T. Tanaka, M. Miyasawa, N. Hogg and T. Kinashi : “Rap1 controls lymphocyte adhesion cascade and interstitial migration within lymph nodes in a RAPL-dependent and -independent manner”, *Blood.*, 115(4) : 804-14 (2010)
- 6) T. Nemoto : “Potential of “in vivo” Two-photon microscopy in visualization of 3D structure and functional information in living body”, *J. Pharmacolog. Sci.*, 112: p.45P (2010)

4.2 総説・解説・評論等

- 1) 根本知己 : 「超短光パルスレーザーによる細胞、生体分子の動態の可視化解析」、レーザー医学会誌、(vol.30) : pp.435-440 (2010)
- 2) 根本知己 : 「レーザーを用いた開口放出や細胞膜機能・形態の新規的な可視化手法」、膜、35 : pp.57-62 (2010)

4.4 著書

- 1) T. Nemoto : Ch.18:Two Photon Microscopy for *in vivo* Analysis of Neural and Secretory Activities, “Nanomedicine :Design of Particles, Sensors, Motors, Implants, Robots, and Devices (ed. M. J. Schulz, et. al.)”, Artech House, Inc. (2009)

4.7 講演

a. 招待講演

i) 学会

- 1) 根本知己*:「多光子顕微鏡による深部組織の *in vivo* (生きたまま) イメージングの技術」、レーザー学会東京支部秋セミナー、慶応義塾大学理工学部、横浜市 (2009-10)
- 2) 根本知己*:「インビボイメージングにおける2光子顕微鏡。非線形光学顕微鏡の特徴と可能性」、第32回日本分子生物学会年会、パシフィコ横浜 (2009-12)
- 3) 根本知己*:「多光子顕微鏡を用いた生きた個体内部での細胞機能・活性の *in vivo* 可視化解析」、第83回日本薬理学会年会、大阪国際会議場 (2010-03)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 根本知己*:「超短光パルスレーザーを用いた細胞生理機能の可視化解析技術の展開」、若手研究者支援のための産学協同 GCOE シンポジウム2009、札幌京王ホテル、札幌市 (2009-10)
- 2) 根本知己*:「2光子顕微鏡による生体計測」、第7回医用分光学会研究会、東邦大学医療センター大橋病院、東京都 (2009-11)
- 3) 根本知己*:「2光子顕微鏡法の原理と応用」、第14回細胞生物学ワークショップ、北海道大学、札幌市 (2009-11)
- 4) 根本知己*:「輸送小胞、膜融合の生理機能における多光子イメージングの展開」、生体膜輸送体特定班公開シンポジウム、大阪市 (2010-03)
- 5) T. Nemoto*: “Two-photon Microscopic Analysis of Secretion and Fine Intracellular Structure of Living Cell”, International Symposium of Joint Research Network on Advanced Materials and Devices, Hotel NIDOM, Tomakomai, Japan (2010-03)

iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 根本知己*:「計測・解析法1 (細胞イメージング)」、日本生理学会主催生理学若手サマースクール2009、岡崎コンファレンスセンター、岡崎市 (2009-09)
- 2) 根本知己*:「非侵襲的なバイオ分子機能イメージングを可能とするパルスレーザーを用いた光学顕微鏡法の開発」、第1回 BioOpto Japan カンファレンス、パシフィコ横浜 (2009-09)
- 3) T. Nemoto*: “Recent development in functional analysis of biological specimen by using two-photon microscopy”, International Symposium of Joint Research Network on Advanced Materials and Devices, Hotel NIDOM, Tomakomai, Japan (2010-03)

b. 一般講演

i) 学会

- 1) M. Sawada*, N. Kaneko, H. Wake, H. Inada, Y. Kato, Y. Yanagawa, T. Nemoto, J. Nabekura and K. Sawamoto: “Sensory input-dependent remodeling of cell composition

in the adult olfactory bulb glomeruli”, 第32回日本神経科学大会、名古屋国際会議場、名古屋市 (2009-09)

- 2) T. Hibi*, Y. Kozawa, A. Sato, H. Yokoyama, S. Sato and T. Nemoto: ““Enhancement of lateral resolution of confocal and two-photon laser scanning microscopy by using higher-order radially polarized laser beams””, Focus On Microscopy 2010, Shanghai, China (2010-03)
- 3) 根本知己、岸本 拓哉*、大西 通博、鍋倉 淳一、安田 章夫:「多光子励起法による初代培養肝細胞内 CYP 酵素活性の測定」、日本薬学会第130回年会、岡山市 (2010-03)

ii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 根本知己*:「『光』を用いた生体イメージングの原理と展望」、電子科学研究所研究交流会、札幌市 (2010-01)
- 2) 根本知己*、日比 輝正:「多光子励起過程を用いた細胞生理機能の可視化技術」、電子科学研究所研究交流会、札幌市 (2010-01)

4.6 シンポジウムの開催

- 1) 今村健志、根本知己: シンポジウム「インビボ分子生物学 ～光技術を駆使した新たな分子生物学～」、第32回日本分子生物学会年会、パシフィコ横浜 (横浜) (2009年12月12日)

4.9 共同研究

d. 受託研究

- 1) 根本知己 (科学技術振興機構): 「CREST」、2008～2012年度、「ベクトルビームの光科学とナノイメージング」(東北大・佐藤俊一教授・代表) における「生命科学におけるナノイメージング」

4.10 予算獲得状況

a. 科学研究費補助金 (研究代表者、分類名、研究課題、期間)

- 1) 根本知己、特定領域研究、トランスポートソーム小胞輸送における膜融合機構の多光子励起過程を用いた可視化解析、2005～2009年度

d. 奨学寄付金 (研究担当者、機関名、研究課題、期間)

- 1) 根本知己、日比輝正 (金原一郎記念医学医療振興財団): 「第24回基礎医学医療研究助成金」、2009～2010年度、「超短光パルスレーザーを用いた *in vivo* 断層イメージングによる破骨細胞の生理機能の分子基盤の解明
- 2) 根本知己、日比輝正 (持田記念医学薬学振興財団): 「第27回研究助成金」、2009～2010年度、「骨代謝バランス破綻の発症・治療の基盤研究のためのインビボ光イメージング法の開発」

4.12 社会教育活動

b. 国内外の学会の役職

- 1) 根本知己: 日本分光学会・生細胞分光部会、幹事 (2006

年1月1日～現在)

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

c. 併任・兼業

- 1) 根本知己：(財)癌研究会癌研究所 非常勤研究員 (2008年10月1日～2010年3月31日)
- 2) 根本知己：自然科学研究機構・生理学研究所教授 (兼任) (2009年9月1日～2010年03月31日)
- 3) 根本知己：「生理学若手サマースクール」講師 (2009年9月10日～2009年9月20日)
- 4) 根本知己：科学技術振興機構 (2009年12月1日～2009年12月31日)

e. 新聞・テレビ等の報道

・新聞

- 1) 根本知己：科学新聞 2009年12月4日「第32回日本分子生物学会年会でオーガナイズするシンポジウムについての記事が掲載された。」

・雑誌

- 1) 根本知己：せいりけんニュース (平成22年1月号) のブレインミステリー10「生き物らしさとは何か？」において多光子顕微鏡に関する記事が掲載された。」

g. 北大での担当授業科目

- 1) 工学部、応用物性工学、根本知己、2009年10月1日～2010年3月31日
- 2) 工学部、科学技術英語演習、根本知己、2009年10月1日～2010年3月31日
- 3) 情報科学研究科、脳機能工学特論、根本知己、2009年10月1日～2010年3月31日

i. ポスドク・客員研究員など

・ポスドク (1名)

- 1) 日比輝正

分子生命数理研究分野

教 授 小松崎民樹（総研大、理博、2007.10～）
准教授 Chun Biu Li（テキサス大、PhD、2008.3～）
助 教 寺本 央（東大院、博(学術)、2008.6～）
助 教 西村吾朗（阪大院、理博、2007.10～）
博士研究員 馬場昭典（2007.10～）
日本学術振興会特別研究員 河合信之輔（2008.4～）
博士研究員 Kamlesh Awasthi（2009.4～2010.3）
博士研究員 Kitsakorn Locharoenrat（2009.5～2010.3）
博士研究員 伊藤正寛（2009.6～）
博士研究員 Mesfin Asfaw Taye（2009.7～）
学 生
博士課程後期
清 一人（特別研究学生、神戸大学大学院理学研究科）、
Tahmina Sultana（生命科学院生命融合科学コース）
博士課程前期
永幡 裕（理学院数学専攻）
宮川尚紀（理学院数学専攻）
学部生
桜井大督（理学部数学科）
北村裕人（理学部数学科）

1. 研究目標

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

自然科学研究において革命的な発展をもたらすものは、多くの場合、新しい実験技術とその新しい実験事実に基づいた理論・概念の転回である。近年、1分子計測技術等の飛躍的な進展により、「観測」の在り方が大きな変貌を遂げ、サブミリ秒程度の時間分解能で、1分子レベルの大規模構造変形や細胞の分化の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越えた理解を目指している。

2. 研究成果

(a) 超分子モーターのための新しい一分子時系列解析手法の開発：変化点/トレンド解析

ATP合成酵素はADPと無機リン酸(Pi)からATPを合成する酵素であり、自発的に回転する生体分子として最小のものと考えられている。また、近似的に3回対称性をもつATP合成酵素は回転子F₁の回転運動とATP合成過程が複雑かつ巧妙にカップルしていることが分かっている(e.g., Yasudaら *Nature*, 410, 898 (2001); Englishら *Nat. Chem. Bio.*, 2, 97 (2006))。ATP合成酵素において未解決である最も重要な問題は化学―力学エネルギー変換を含めたエナジエティックスの理解である。本研究の最終目的はデータ駆動型数理モデリング理論を新規に開発し、ATP合成酵素系の一分子観察実験の時系列情報からこの分子のエネルギー伝達機構を明らかにすることである。

本年度は、分子モーターの観測から得られる一分子時系列情報から、背後に存在する状態遷移ネットワークを抽出するため、停止レベル、回転レベルのdwell-time（インターバル、滞在時間）の自動検出手法を情報理論に依拠する変化点解析とトレンド解析を融合し開発した。図1(b)に、ナノメーターかつマイクロ秒の空間時間分解能を持つサバユニットに取り付けた金ビーズの1分子観察（図1(a)）の角度時系列データを示した。また、この方法により評価されたF₁の停止レベルおよび回転レベルの統計分布が図1(c)および(d)である。停止レベルおよび回転レベルの滞在時間分布の両方に複数の時間スケールの存在が認められる：これは、分子モーターの停止期(～1 ms)および回転期(～0.1 ms)に複数の状態が内在していることを示唆するものと考えられる。特に、回転期(～0.1 ms)に関する統計は、暗視野顕微鏡を用いた上野らの高解像度測定システムを用いて初めて解析することが可能となったものである。また、連続した停止レベル（停止→停止→…→停止）と連続した回転レベル（回転→回転→…→回転）の（総）滞在時間の間には相関がないこと、反面、レベルの種類が変化する停止→回転および回転→停止の、近接した2つの滞在時間の間には、顕著な相関が存在することが分かった(図1(e)-(f))。“停止”→回転→“停止”、および“回転”→停止→“回転”のように、現在の停止期とひとつ前の停止期の間には、平均して～2 ms以上の時間の開きが存在することから、F₁の動態記憶は、2 msないしはそれ以下の時間スケールをもつであろうことなどが判明した。

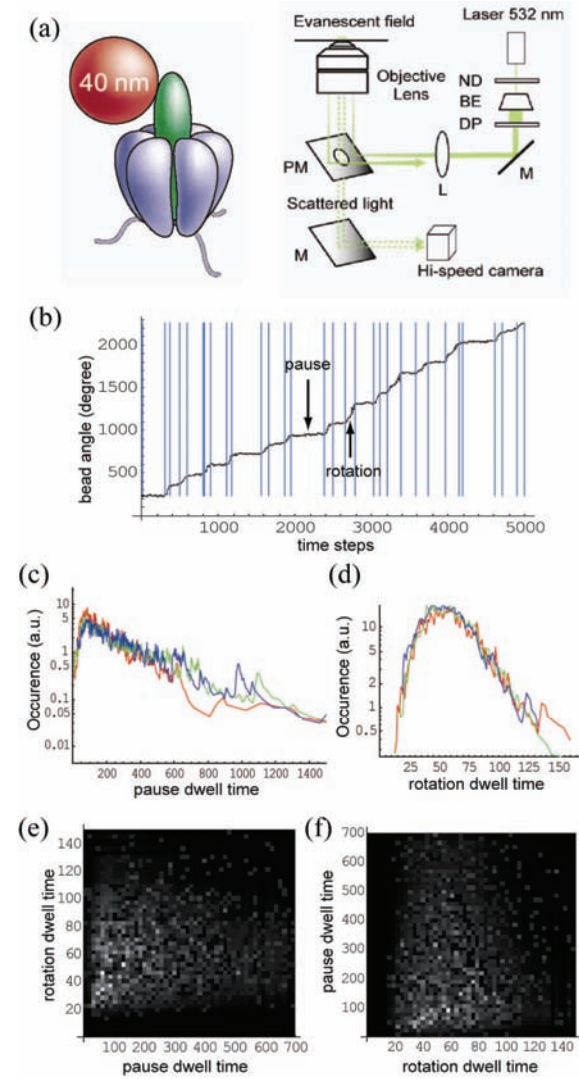


図 1. (a) F_1 -ATPase 回転の観察法。 γ サブユニットに40nm の金ビーズを取り付けて暗視野顕微鏡で観察する[上野ら *Biophys. J.*, 98, 2014, (2010)]。 (b) 停止および回転レベルの変化点(青線)の自動検出手法。 (c)-(d) 複数の時間スケールの存在を示唆する停止、回転滞在時間分布の log-linear プロット。3つの線は F_1 の3つの異なる停止、回転を意味する。系の三回対称性からほとんど同じ分布を示すことがわかる。 (e)-(f) 連続して生じる停止→回転、回転→停止の相互相関ヒストグラム。

(2) 一分子時系列情報から構築する状態遷移ネットワークの新しい構成手法の開発

変化点/トレンド解析により抽出された停止→回転 dwell-time 時系列は背後に存在する F_1 -ATPase の状態遷移ネットワーク (=キネティックスキーム KS) を構成するうえで大変有用である。しかしながら、イオンチャネルにおいて議論されているように (e.g. Kienker, *Proc. R. Soc. Lond. B*, 236, 269 (1989)), dwell-time 時系列データの自己相関関数などの統計量が与えられたとき、それを再現する KS は原理的に無数に存在する。換言すると、dwell-time 時系列データの統計的な相関情報から KS を一義的に同定することができない (図 2(a)-(d))。我々は「すべての可能な KS のなかで、同等の予測性能をもち、最小かつ客観的 (unbiased) な KS が何であるか」を問うことを通して、背後に存在する KS をデータから抽出する方法論を新規に開発した。

最小の KS を時系列情報から求められる (定常状態分布関数で評価される) すべての高次相関を再現する KS の集合 (図 2(d) に例示している) で一番状態数が少ないものとして定義する (図 2(d) の上二つの KS に対応)。更に、最小の KS の集合の中から、観測された時系列データから読み取れる情報を越えて系に対する性質を導入しないという基準に立って、最も unbiased な KS を以下のように定義する。すなわち、図 2(e) は二つの最小な KS を例示しているが、下段の KS では、状態 $\{a_i\}$ の間、および状態 $\{b_i\}$ の間に遷移が存在していないのに対して上段の KS ではそれらの間になんらかの遷移が存在する。 a, b の2値的な観測データからは、背後に存在する状態 $\{a_i\}$ および状態 $\{b_i\}$ の内部の遷移に関しては、一切読み取ることが不可能である。それゆえ、下段の KS のほうがより biased が掛っていると判断される。実際

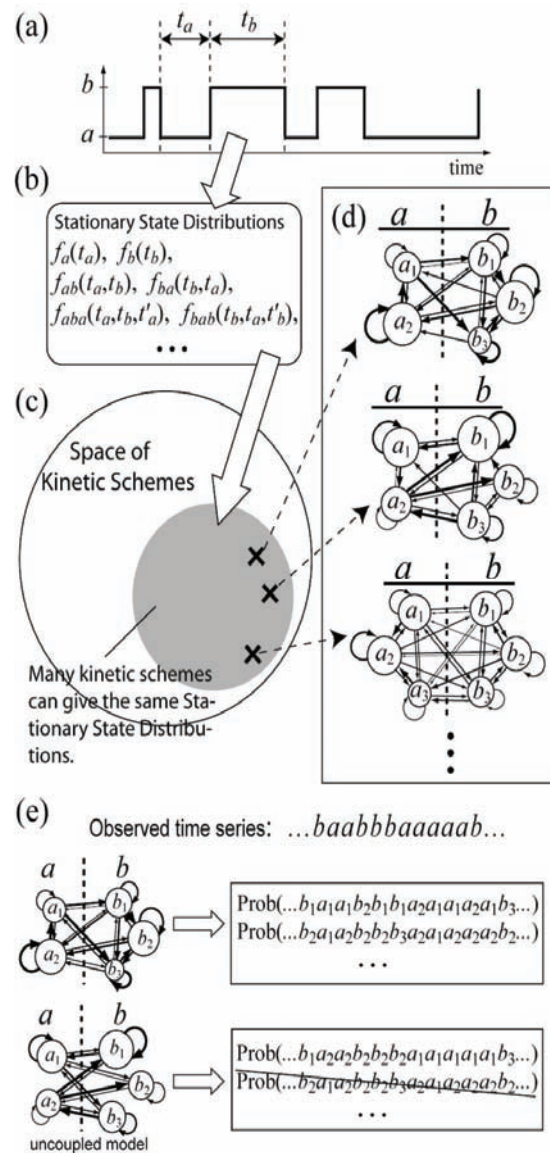


図 2. 最小で予測性能が高く unbiased な KS の構築方法: (a) 有限個のレベルから構成される時系列。 (b) その時系列情報から求められるすべての高次相関を表す定常状態分布関数 f 。 (c) KS 空間のなかで (b) の定常状態分布を再現する KS 領域。 (d) その部分 KS 領域内の“等価”な KS の例。最小な KS = 状態数が最も少ない KS。 (e) もっとも unbiased な KS の概念図。

は、状態 $\{a_i\}$ および状態 $\{b_i\}$ の内部遷移の付与の仕方において、恣意性の強弱を情報理論におけるシャノンのエントロピーに基づいて評価し、最も unbiased な KS を同定する。

現在、 F_1 -ATPase における動態構造を解明するうえで、回転状態(および停止状態)に対してビーズの角速度データも取り込むことを計画している。角速度情報は、回転エネルギーの周囲の環境へのエネルギー散逸に関係しているため、構成された KS の停止および回転状態におけるエネルギー論が展開できるものと期待される。最終的に得られた KS に対して、今後、さらに我々が近年開発した状態遷移の不均一性の定量化手法などを融合することで、 F_1 -ATPase における化学—力学エネルギー変換の機序が解明されるものと期待される。なお、(1)(2)は大阪大学産業科学研究所野地博行教授とのアライアンス共同研究である。

(3) 時系列の符号化可能性に関する基礎研究

「時系列データからその系のモデルをどの程度任意性なく構築できるか？」という問題は(測定などによって得られた)時系列データからその系に内在する性質を知るうえで重要な基礎問題である。大沢文夫氏は「ダイナミクスを解明するにあたっての重要な鍵はそのダイナミクスにとっての状態とは何かを問うこと」であると主張している。しかし、現在に至るまで、系のモデルを真に任意性なく構築できる方法論は提案されていないし、そもそも仮に実験誤差が存在しない理想化された条件下にあっても“原理的に可能であるか?”ということに関してもほとんどわかっていない。図3に示されるように、状態間の遷移ネットワークは、明らかに何文字の符号(図3上が3文字、下が2文字での符号化)で符号化されるのかに依存して変わる。更には、どのように測定量の空間を分けるのか、ということにも一般的には依存し得るので、任意の符号化に対して、対応する遷移ネットワークが一意的に決まるか?という問に対する答えは明らかに否である。

今回は、符号化可能性に関する原理的な理解を目的として、オリジナルの時系列の位相エントロピーと呼ばれる情報を最大限保持するマルコフ分割に対して、符号化と遷移ネットワークの一意性の関係を単純な一次元写像系を用いて考察した。その結果、ある条件の下では、あるマルコフ

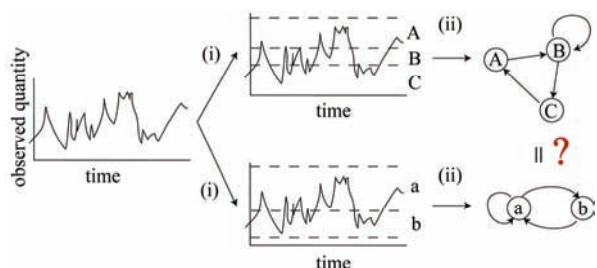


図3. 時系列を符号化する方法の概念図。得られた1次元時系列(左)。測定された値をいくつかの領域に分け、各時刻で測定された値がどの領域に入るかで、A, B, C (a, b)等で符号化する(中央)。時間に沿って、どの符号からどの符号に遷移したかを遷移ネットワークとして表現した図(右)。一般に得られる遷移ネットワークのつながり方等は、符号化する方法(ii)に依存する。

分割から得られた符号間の遷移ネットワークは別のマルコフ分割から得られたものと本質的には同じになる(＝一方の遷移ネットワークから得られる符号列が他方のそれと一対一で対応する)が、マルコフ分割に符号化の方法を限ったとしても原理的には取り除けない任意性が生じることが数学的に証明された。

すなわち、実験誤差がなく、背後に存在する系が一次元写像系に限った条件下に対しても、図3のような時系列のモデル化には限界があることを意味している。しかしながら、この解析は「符号化によらない系の内在的な量は何か」という基本問題を考える出発点に繋がるものと考えられる。

(4) 化学反応の“する・しない”を一義的に決定づける相空間構造 —高エネルギー領域における新規な反応様式—

与えられた初期条件が化学反応を起こすか否かが決定される仕組みを解明することは、反応動力学の研究において重要な問いの1つである。多くの反応において、系のポテンシャル面には鞍点と呼ばれる場所が存在し、ある方向には極大、その他の方向には極小になっている。このポテンシャルが極大になる方向がナイーブな「反応座標」であり、

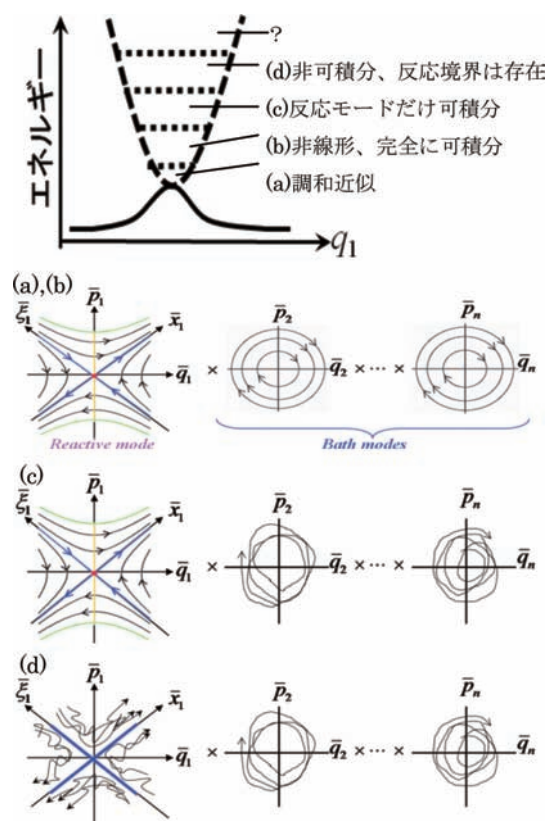


図4. 鞍点を持つ化学反応における力学構造の概念図。ナイーブに定義した反応座標 q_1 の方向にポテンシャルエネルギーを示す。反応モード q_1 と垂直な方向に複数の振動モードが存在し(点線)、 q_1 と相互作用する。エネルギーが低い順に以下のように構造が変化する。(a), (b): 完全に可積分であり、適切な座標を取る事により反応モードと振動モードが独立になる。(c): 振動モードの構造が失われるが、反応モードはそれらと分離されて綺麗な構造が残る。(d): 反応モードにおいても層状のきれいな流れは失われるが、化学反応の起こる軌道と反応しない軌道との境界(青線)は頑健に残っている。さらに高いエネルギーにおいては、(少なくとも現在の手法では)構造の見出せない領域が存在する。

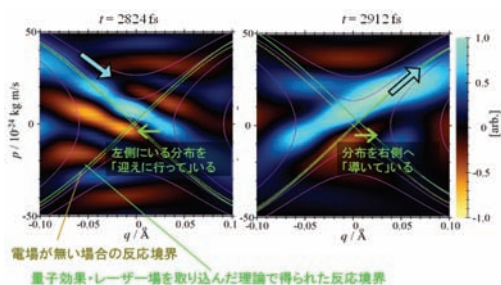


図5. 相空間内の反応境界がレーザー場とともに動き、反応をコントロールしている様子。時間発展する系のWigner分布と、本研究で得られた反応境界とを重ねて示す。境界線で仕切られる上半分が反応性の領域である。分布が左(反応物)側にある時は境界が左に動いて迎えに行き、そのあと右(生成物)側に動いて一緒に系を導いている。

この方向に反応障壁を越えられるかどうか第一義的には反応性を決定する。多数の自由度がある系でエネルギーが大きくなってくると、自由度間の相互作用により複雑な運動が生じ、上記の反応座標1つだけで化学反応を議論することはできなくなる。

これまでの我々の先行研究で、ある程度の高エネルギー領域までは、自由度間相互作用の影響を取り込んだ非線形な座標変換によって独立した1つの反応座標を抽出し、カオス的な反応の本質を1次元に帰着できることが示されている。当該年度は、自由度間相互作用の影響がさらに大きくなり、独立な反応座標が消失する高エネルギー領域においても、座標変換への要請を弱めることにより、反応する軌道と反応しない軌道を一義的に分(わ)かつ分割面は頑健に存在すること(図4参照)、ならびに、この描像はハミルトン系(気相孤立分子を記述)でもランジュバン方程式で与えられる系(液相など、熱的にゆらぐ環境にさらされた系)でも同様に成立することを明らかにした。

(5) レーザー場で制御された反応のダイナミクス

近年のレーザー技術の発展により、適切に設計された形のレーザーパルスを照射することで化学反応をコントロールすることが可能になってきている。しかしながら、望みの反応を起こすように *ad hoc* に最適化されたパルスがどのようなメカニズムで反応を実際に促進・制御するのかに関しては全く未解明である。我々の先行研究により、反応の運命を一義的に決定づける相空間構造の存在が古典力学

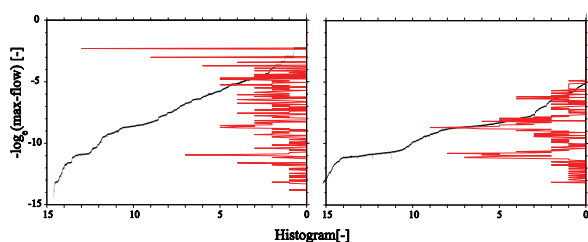


図6. 電子移動一分子計測に対して得られた状態遷移ネットワーク(Liら *PNAS* (2008))に対するTRDG(黒線)。左: 30 ms、右: 500 msの時間スケールに対する状態遷移ネットワークから構成されたTRDG。縦軸はボトルネックに付随する安定性の度合いを表す。また、ボトルネックの安定性分布(赤線)を併記している。

系の枠内で明らかにされている。ここでは、レーザー場の影響を受ける量子系に拡張し、反応する・しないを分かつ分割面がレーザー場の影響でどう変化するかを調べた。Weyl表示と呼ばれる手法を用いることによって、量子力学的な系においても近似を入れずに上述のような古典的な「反応境界」という描像を得ることに成功した。数値計算の結果、レーザー場によって反応分割面が動かされ、系の初期分布のうち出来るだけ多くを反応する領域内に捕えるようにしていること、さらに時間が経つと分割面が生成物側に向かって動き、系を生成系へ誘導していることが新規に見出された。本研究は、背後に存在する原理を逆に積極的に利用した、*ad hoc*でない、新しいパルス設計の指針を与えるものであり、レーザー場制御に関する新手法につながるものと期待される。

(6) 詳細つり合いが成立しない状態遷移ネットワークから構成される有効エネルギー地形

生命機能(たとえば、(1)の分子モーター)は平衡から離れた非平衡状態において生起し、そこでは詳細つり合いは満たされていない。自由エネルギー地形概念は詳細つり合いを前提とするため、この概念は適用外にあるのは自明なことである。我々は一分子時系列情報から、非平衡定常成分を階層的に抽出し、非平衡定常状態遷移ネットワークを抽出する解析理論を開発してきたが、依然、抽象的であり直観的に分かりづらい欠点をもつ。

そこで、一分子時系列情報から抽出される状態遷移ネットワークから、詳細つり合いが満たされない非平衡定常状態に対するエネルギー地形表現を導出する方法論を新規に開発した。端的に言えば、ネットワークを構成する状態間では詳細つり合いが一般に破れているが、ネットワークを二分する断面で分割されるサブネットワークのあいだでは“定常性から”詳細つり合いが満たされることを利用する。最も遷移頻度の少ないボトルネックとなる断面から始めて階層的にネットワークのモジュールを網羅的に探索することにより、非平衡定常状態ネットワークから有効な反応のボトルネックに関する階層構造(ツリー構造 transition disconnectivity graph, TRDG)を書き下すことができる。

図6に時間スケールの増大とともに非ブラウン拡散からブラウン拡散へ移行するフラビン還元酵素の構造揺らぎ(Yangら *Science* 2003)に対するTRDGを示す。図6の左が非ブラウン拡散を示す30 ms、図6の右がブラウン拡散を示す500 msの状態遷移ネットワーク(Liら *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* 2008)から構成されたものである。ここで、縦軸は「 $-\log$ (ボトルネックを越える最大流)」を表し、平衡状態では自由エネルギーに相当する物理量である。図より、これらは時間スケールの大小にあまり依らずに大域的には単一ベイスンのエネルギー地形を有することが分かる。しかしながら、ボトルネックの安定性分布(=時定数分布)から、ボトルネックを通過する時間スケールの多様性(分布幅、分布形状)が非ブラウン拡散を示す30 msのほうが500 msよりも高いことが示唆される。これはYangら(Yangら *Science* 2003)の推測を裏付ける結果となっている。

現在、我々は階層的に抽出されたボトルネックにおいて、状態間の詳細つり合いの破れがツリーの深度や時間スケールに対してどのように変化しているかを情報理論的に定量化することを試みている。

(7) 近赤外波長域における生体組織分光技術の開発と応用 近赤外蛍光プローブのイメージング技術の研究

腫瘍の検査およびモニタリングでは、PETやX線CT、MRIと言った大型機器が広く用いられている。この内、X線CT、MRIの場合は主として組織の構造的変化の特徴から病変部を検出する手法であり、構造的変化の現れる前の早期ガンなどの検出は難しい。一方、PETは分子プローブを用い、標的細胞を特異的に検出する方法であるが、放射性物質を用い、また極めて大掛かりな施設が必要となり、マスキングや経時変化をしばしばモニタするような用途に向かない。蛍光イメージング手法は、それらの欠点を補完する方法として有効であると期待されている。特に組織透過性が高く「生体の窓」と呼ばれる波長領域700～1100 nmの近赤外蛍光イメージングが有用であるが、これまでの光イメージングシステムにおいては、生体内の蛍光プローブの定量化が難しい。本年度は、近赤外光を用い、小動物(*in vivo*)に入れた蛍光プローブを可視化するシステムを試作し、定量化を議論した。

組織内部にある蛍光プローブを可視化するうえで組織による光散乱と吸収が大きな問題である。特に散乱により空間的な情報が破壊され蛍光の定量化が失われる。ここでは、定量的な蛍光イメージングを実現するために、組織を伝播する光の時間を測り散乱により失われた光の空間的広がり情報を補完する。それを用いて局在する蛍光物質の位置情報を得て、蛍光強度の正確な定量化へと結びつける。

ピコ秒レーザーシステムと時間相関単一光子計数システムの組み合わせにより時間分解蛍光測定システムを製作した。さらに、ファイバスイッチャを用い、マルチポイントの時間分解計測システムを試作した。POM樹脂を用いた円柱状散乱体ファントムに埋め込まれたインドシアニグリーン蛍光ターゲットを用い、異なる照射点と検出点の組み合わせで時間応答関数を測定した(図7上側)。このシステムでは、大きさは直径2 mmのターゲットまで、濃度は1 μM

以下で計測可能であることもわかった。実験によりインドシアニグリーン濃度を変えたデータを取得し、それに対する画像再構成を行った。特に、再構成画像の吸収値との比例関係と位置に関して定量化を検討した。最終的な再構成された吸収値の相対変化は0.1～1 μM の濃度に対し、平均12%のずれであった。絶対値は予測される値よりかなり小さいが再構成されたターゲットが本来より広がっているためと考察できた。一方、位置に関しては、やや円筒の外側にずれる傾向があったが、0.2 μM より濃い濃度ではほぼ一定の場所に再現できた(図7下側)。

これらは、解析のアルゴリズムに今回用いている平均応答時間だけでなく高次のパラメータを組み込むことなどによる改善が可能と期待される。そのために今後は実験的に時間応答関数に含まれるターゲット情報の量とノイズなどを評価し、パラメータを選択する。また*in vivo*でより实际的に近い条件での定量化に挑み、生体組織の蛍光イメージング手法として確立する。

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 ($\sim k_B T$) 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、1分子生物学における自由エネルギー地形概念そのものの再考、生体分子系ダイナミクスと熱揺らぎの拮抗関係、時空間スケールの異なる階層間の情報伝達、環境に適応しながら時々刻々変化する階層ネットワーク構造の遍歴現象などを考察していき、1分子基礎学の創出を目指していく予定である。

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

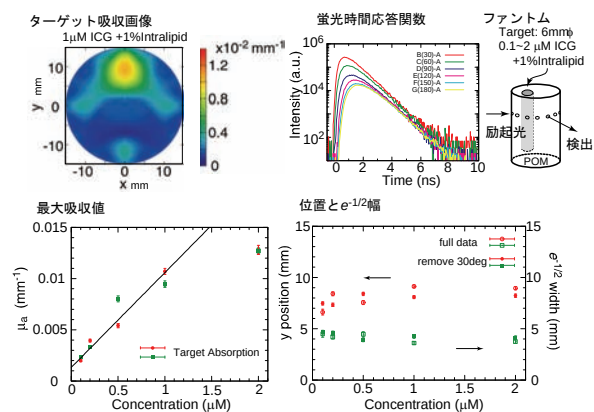


図7. ファントムを用いた蛍光画像再構成とその定量化

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) C. Li, H. Yang and T. Komatsuzaki : “New Quantification of Local Transition Heterogeneity of Multiscale Complex Networks Constructed from Single-Molecule Time Series”, *Journal of Physical Chemistry B*, 113(44) : 14732-14741 (2009)
- 2) S. Kawai and T. Komatsuzaki : “Dynamic pathways to mediate reactions buried in thermal fluctuations. I. Time-dependent normal form theory for multidimensional Langevin equation”, *J. Chem. Phys.*, 131 : 224505-11pages (2009)
- 3) S. Kawai and T. Komatsuzaki : “Dynamic pathways to mediate reactions buried in thermal fluctuations II: numerical illustrations using a model system”, *J. Chem. Phys.*, 131 : 224506-9pages (2009)

4.7 講演

a. 招待講演

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 小松崎民樹 : 「Exploring Multiscale Complex Network and Effective Free Energy Landscape by using Single-Molecule Time Series」、階層性を持つ大自由度力学系の時系列解析、理研和光キャンパス (2009-05)
- 2) 小松崎民樹 : 「1 分子時系列情報からわれわれは何を読み解くことができるのか?」、第1回バイオ単分子研究会、新世代研究所(東京都文京区) (2009-05)
- 3) G. Nishimura : “Time-Resolved Spectroscopy for Quantitative Characterization of Optical Properties in Tissue -- Simplified Methodologies”, 4th Asian and Pacific Rim Symposium on Biophotonics (APBP2009), The Shilla Hotel, Jeju, Korea (2009-05)
- 4) 小松崎民樹 : 「状態変化における『偶然と必然』の数理」、2009年度プロジェクト「諸科学の共通言語としての数学の発掘と数理科学への展開」研究会、国際高等研究所 (京都府) (2009-06)
- 5) A. Baba and T. Komatsuzaki : “Free energy landscape from single molecule time series of biomolecules”, 多体化学系の反応ダイナミクスに関する国際シンポジウム、京都大学、京都市 (2009-06)
- 6) T. Komatsuzaki : “Multiscale Complex Network and Effective Free Energy Landscape extracted from Single-Molecule Time Series”, Telluride Workshop on Single Molecule Dynamics, Telluride, CO, USA (2009-06)
- 7) T. Komatsuzaki : “Free Energy Landscape for Single Molecule”, Telluride Workshop on The Complexity of Dynamics and Kinetics in Many Dimensions, Telluride, CO USA, USA (2009-06 ~ 2009-07)
- 8) 小松崎民樹 : 「時系列情報から読み解く数理モデル —

生体分子の階層的な構造揺らぎを例に—」、第15回創発システム・シンポジウム 創発夏の学校2009、インテック大山研修センター(富山市) (2009-08)

- 9) 小松崎民樹 : 「状態変化の数理: 化学反応の起源を探る」、Dynamics of complex systems 2009 -複雑系解析における未解決問題への新しい挑戦、札幌市 (2009-08 ~ 2009-09)
 - 10) 李振風 : 「What is the Relevant Information in Modeling the Dynamics of Complex Systems from Measurements?」、Dynamics of complex systems 2009 -複雑系解析における未解決問題への新しい挑戦、札幌市 (2009-08 ~ 2009-09)
 - 11) T. Komatsuzaki : “Dynamical Origin of Change of States in Chemical Reactions and Conformation Changes--Toward Biological Functions under Thermal Fluctuation”, RIES-CIS Mini-workshop on Nano/Bio/Quantum Science, National Chiao Tung University, Taiwan (2009-12)
 - 12) S. Kawai : “Analysis of chemical reaction dynamics by normal form I -What determines the fate of reaction?-", Workshop on dynamical systems theory and reaction dynamics toward large systems, Kyoto (2010-01)
 - 13) S. Kawai : “Analysis of chemical reaction dynamics by normal form II-Effect of external force-", Workshop on dynamical systems theory and reaction dynamics toward large systems, Kyoto (2010-01)
 - 14) C. Li : “Transition to Chaos above the Reaction Threshold: Bifurcations, Resonances and Future Challenges”, Workshop on dynamical systems theory and reaction dynamics toward large systems, Kyoto (2010-01)
 - 15) H. Teramoto : “High-dimensional folding patterns of stable/unstable manifolds and their physical implications”, Workshop on dynamical systems theory and reaction dynamics toward large systems, Kyoto (2010-01)
 - 16) H. Teramoto : “Discussion on the convergence properties of Lie Canonical Transformation”, Workshop on dynamical systems theory and reaction dynamics toward large systems, Kyoto (2010-01)
 - 17) S. Kawai : “Nonlinear Dynamics of Chemical Reactions through a Saddle Point”, The 69th Okazaki Conference on “New Frontier in Quantum Chemical Dynamics”, Conference Center, NINS, Okazaki (2010-02)
 - 18) T. Komatsuzaki : “Extracting a Multidimensional Free Energy Landscape from a Scalar Single-Molecule Time Series”, International Symposium of Joint Research Network on Advanced Materials and Devices 「彫」, Hotel NIDOM, Hokkaido (2010-03)
- #### iii) コロナキウム・セミナー等・その他
- 1) T. Komatsuzaki : “Extracting Multiscale Complex Network of Protein Fluctuation from Single-Molecule Time Series”, Seminar at Max Planck Institute fur Mol. Physiologie,

- Dortmund University, Germany (2009-09)
- 2) T. Komatsuzaki : “Multiscale Complex Network extracted from Single Molecule Time Series”, Seminar at Department of Chemistry, Univ. Zurich, Department of Chemistry, Univ. Zurich, Switzerland (2009-09)
 - 3) T. Komatsuzaki : “The Underlying Unique Reaction Scheme Extracted from Single-Molecule Time Series”, Seminar at NIDDK, National Institute of Health, Bethesda, MD, USA (2010-02)
 - 4) T. Komatsuzaki : The Underlying Unique Reaction Scheme Extracted from Single-Molecule Time Series, P-Chem Seminar at Department of Chemistry, MIT, Cambridge, MA(2010-3)

b. 一般講演

i) 学会

- 1) 寺本央、小松崎民樹：「安定/不安定多様体の折り畳みパターンを通じた分子動力学の解明」、理論化学討論会、東京大学本郷キャンパス 武田先端知ビル 武田ホール (2009-05)
- 2) H. Teramoto and T. Komatsuzaki : “Understanding high dimensional molecular dynamics in terms of stable/unstable manifolds”, 反応化学討論会、大宮ソニックシティ (さいたま市) (2009-06)
- 3) G. Nishimura, K. Awasthi, K. Locharoenrat, S. Okawa, and Y. Yamada, Time-domain Fluorescence Diffuse Optical Tomography using Total Light Reconstruction Algorithm, 11th International Conference on Methods and Applications of Fluorescence (MAF11), (Congress Center of the Eotvos Lorand University, Budapest, Hungary, 2009.9.6-9)
- 4) 馬場昭典、小松崎民樹：「一分子観測時系列に基づく多次元自由エネルギー地形の構成」、第3回 分子科学討論会、名古屋大学東山キャンパス、名古屋 (2009-09)
- 5) 河合信之輔、小松崎民樹、Pascal Larregaray : 「反応 $O+OH \rightarrow H+O_2$ における非統計性と反応動力学」、第3回 分子科学討論会、名古屋大学東山キャンパス、名古屋 (2009-09)
- 6) 寺本央、小松崎民樹：「多自由度系における安定/不安定多様体の折り畳みパターンおよびそれを通じた力学系の理解」、日本物理学会2009年秋季大会、熊本大学、熊本市 (2009-09)
- 7) 寺本央、小松崎民樹：「水の集団運動の解析およびそれを通じた溶質分子と水分子の動力学の相互作用の解明」、第47回日本生物物理学会年会、アスティとくしま (徳島市) (2009-10~2009-11)
- 8) 清一人、小松崎民樹：「機械受容型イオンチャネルダイナミクスの統計的解析」、第47回日本生物物理学会年会、アスティとくしま (2009-10 ~ 2009-11)
- 9) C. Li, H. Yang and T. Komatsuzaki : “Quantifying the Local Transition Heterogeneity of Multiscale Complex

Networks Reconstructed from Single-Molecule Time Series”, 第47回日本生物物理学会年会、アスティとくしま (2009-10 ~ 2009-11)

- 10) K. Awasthi, K. Locharoenrat, G. Nishimura, S. Okawa and Y. Yamada, Time-domain approach of angle projected diffused optical tomography: fluorescence probes and their environmental dependency, Optics Japan 2009, 新潟朱鷺メッセ, 2009.11.24-26
- 11) K. Locharoenrat, K. Awasthi, G. Nishimura, S. Okawa and Y. Yamada, Time-domain approach of angle projected diffused optical tomography: Geometrical dependency, Optics Japan 2009, 新潟朱鷺メッセ, 2009.11.24-26
- 12) T. Komatsuzaki : “Extracting Complex Network and Effective Free Energy Landscape of Protein Fluctuation From Single Molecule Time Series”, Biophysical Society 2010 Annual meeting, San Francisco, USA (2010-02)
- 13) 寺本央、小松崎民樹：「溶質分子の構造変化に際しての水の役割」、日本物理学会 第65回年次大会、岡山大学津島キャンパス (2010-03)
- 14) 河合信之輔、小松崎民樹：「熱ゆらぎ環境下での化学反応の偶然と必然」、日本物理学会 第65回年次大会、岡山大学津島キャンパス (2010-03)
- 15) 伊藤正寛、馬場昭典、李振風、小松崎民樹：「複雑ネットワークから階層的なツリー構造 (disconnectivity graph) を構成する方法論に関する一考察」、日本物理学会 第65回年次大会、岡山大学津島キャンパス (2010-03)
- 16) 宮川尚紀、李振風、小松崎民樹：「多変数確率過程の背後に存在する集団運動の数理」、日本物理学会第65回年次大会、岡山大学津島キャンパス、岡山市 (2010-03)
- 17) 桜井大督、李振風、寺本央、小松崎民樹：「粘菌の自己組織化的な環境適応モデルのダイナミクス」、日本物理学会第65回年次大会、岡山大学津島キャンパス、岡山市 (2010-03)
- 18) 永幡裕、李振風：「可積分系でのエルゴード性を仮定しない反応速度定数の導出」、日本物理学会第65回年次大会、岡山大学津島キャンパス、岡山市 (2010-03)
- 19) 河合信之輔、小松崎民樹：「強レーザー場による反応制御における力学構造」、日本化学会第90春季年会、近畿大学 本部キャンパス (2010-03)
- 20) 伊藤正寛、馬場昭典、李振風、小松崎民樹：「複雑ネットワークから階層的なツリー構造 (disconnectivity graph) を構成する方法論に関する一考察」、日本生物物理学会 2009年度北海道支部例会、北海道大学理学部 (2010-03)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 小松崎民樹：「熱揺らぎ環境下における反応の決定性：生体分子機能の頑健な発現原理の解明を 目指して」、特定領域研究「実在系の分子理論」第4回公開シンポジウム、東京大学本郷キャンパス 武田先端知ビル 武

- 田ホール (2009-05)
- 2) 小松崎民樹、馬場昭典:「1分子時系列情報から読み解く(有効)自由エネルギー地形」、特定領域研究「膜超分子モーターの革新的ナノサイエンス」班会議、万国津梁館、名護市 (2009-06)
 - 3) C. Li and T. Komatsuzaki: “Innovative Multiscale Modeling of Biological Systems on the Single Molecule Level”, 特定領域研究「膜超分子モーターの革新的ナノサイエンス」班会議、万国津梁館、名護市 (2009-06)
 - 4) A. Baba and T. Komatsuzaki: “Construction of an Effective Free Energy Landscape from Single-Molecule Time Series”, 多体化学系の反応ダイナミクスに関する国際シンポジウム、京都大学百周年時計台記念館、京都市 (2009-06)
 - 5) S. Kawai and T. Komatsuzaki: “Determinism and fluctuation in condensed phase chemical reactions”, 多体化学系の反応ダイナミクスに関する国際シンポジウム、京都大学、京都市 (2009-06)
 - 6) 清一人、李振風、小松崎民樹: “Time series analysis of mechanosensitive ion channel dynamics”, 多体化学系の反応ダイナミクスに関する国際シンポジウム、京都大学、京都市 (2009-06)
 - 7) C. Li, M. Toda and T. Komatsuzaki: “Does No-return Transition State always exist above the Reaction Threshold?”, 多体化学系の反応ダイナミクスに関する国際シンポジウム、京都大学、京都市 (2009-06)
 - 8) 寺本央:「多自由度Hamilton系における安定/不安定多様体の可能な折り畳みパターンとそれらの力学系の性質との関係」、力学系研究集会「双曲型力学系から大自由度力学系へ」、京都市 (2009-08)
 - 9) 李振風: “Data-driven Multiscale Modeling of Single Molecule Experiments from Time Series Analysis”, International Symposium ;Innovative Nanoscience of Supermolecular Motor Proteins、京都大学芝蘭会館、京都市 (2009-09)
 - 10) Mesfin Asfaw Taye、Sung Wokyung: 「Stochastic resonance of flexible Polymer」、International Symposium ; Innovative Nanoscience of Supermolecular Motor Proteins、京都大学芝蘭会館、京都市 (2009-09)
 - 11) S. Kawai and T. Komatsuzaki: “Nonlinear dynamics of chemical reactions in thermal fluctuating environments”, International Symposium on “Molecular Theory for Real Systems”, Fukui Institute for Fundamental Chemistry, Kyoto University (2010-01)
 - 12) S. Kawai and T. Komatsuzaki: “Time-dependent quantum normal form and control of chemical reactions”, International Symposium on “Molecular Theory for Real Systems”, Kyoto (2010-01)
 - 13) 桜井大督、李振風、小松崎民樹:「粘菌の作るネットワークの時間発展」、定量生物学の会、大阪大学銀杏会館、吹田市 (2010-01)
 - 14) 寺本央、小松崎民樹:「Roles of water molecules for structural transitions of solute molecules」、International Symposium on Joint Research Network for Advanced Material and Devices “彫”、ホテルニドム、苫小牧市 (2010-03)
 - 15) A. Baba and T. Komatsuzaki: “Multidimensional Energy Landscapes in Single Molecule Biophysics”, International Symposium on Joint Research Network for Advanced Material and Devices “彫”、ホテルニドム、苫小牧市 (2010-03)
 - 16) C. Li, H. Yang and T. Komatsuzaki: “Extracting and Quantifying the Multiscale Complex Networks Constructed from Single-Molecule Time Series”, International Symposium on Joint Research Network for Advanced Material and Devices “彫”、ホテルニドム、苫小牧市 (2010-03)
- #### 4.8 シンポジウムの開催
- 1) 寺本央:「高次元相空間幾何学と化学反応や高分子ダイナミクスの接点を探る (第3回「力学系ルネッサンス」ワークショップ)」、北海道大学電子科学研究所 (札幌市) (2009年5月18日～2009年5月20日)
 - 2) 小松崎民樹 ら:「International Symposium on “Reaction Dynamics of Many-Body Chemical Systems” (RDMCS 2009)」、京都大学百周年時計台記念館 (京都市) (2009年6月22日～2009年6月24日)
 - 3) 小松崎民樹 ら:「The Complexity of Dynamics and Kinetics in Many Dimensions」、Telluride Science Research Center (Telluride, CO. USA) (2009年6月29日～2009年7月3日)
 - 4) H. Teramoto and T. Komatsuzaki: “Workshop on dynamical systems theory and reaction dynamics toward large systems”, Kyoto University (Kyoto) (2010年1月5日～2010年1月6日)
 - 5) 小松崎民樹 ら:「International Symposium of Joint Research Network on Advanced Materials and Devices 彫」、ホテルニドム (苫小牧市) (2010年3月25日～2010年3月26日)
- #### 4.9 共同研究
- ##### a. 海外機関との共同研究
- 1) 小松崎民樹、寺本央、清一人(北大電子研)、高橋聡、鎌形清人、小井川浩之(東北大多元研)、Haw Yang (プリンストン大)、Irina V. Gopich(NIH): “JSPS-NSF International Project “Development of New Single Molecule Measurement Technology for Understanding the complexity and diversity of Biomolecular Systems”」、2009年度～2010年度、日米の研究者が独立に開発してきた諸手法を有機的に統合し、一分子計測の「生の観測値」

から、背後に存在する“多次元自由エネルギー地形”ならびに状態遷移ネットワークを抽出する汎用な解析手法を開発し、たんぱく質の折り畳み過程のように大きな構造変化を長時間追跡することを可能とする新しい分子計測系などに適用し、その有用性を検討する。日米合同で特集号“*Single Molecule Biophysics: Experiments and Theories*” *Advances in Chemical Physics*, John-Wiley & Sons, Inc. (2011) を出版。

- 2) T. Komatsuzaki and M. Peyrard (リヨン高等師範学校・電子科学研究所): “たんぱく質フォールディングダイナミクスにおける統計性”、日仏博士課程コンソーシアム制度による博士課程学生の派遣受入や電子研-リヨン高等師範学校の学術協定締結を通して、多角的な共同研究を推進する。

b. 所内共同研究 (研究担当者、機関名、研究題目、研究機関、研究内容)

- 1) 小松崎民樹 (電子科学研究所): 「プロジェクト研究 A」、2008～2009年度、電子研-リヨン高等師範学校との共同研究
- 2) 李振風 (電子科学研究所): 「プロジェクト研究 (B) 若手国際共同研究」、2009年度、500 千円、Identifying the Fingerprints of Catalytic Specificity on the Energy Landscape from the Multiparameter Single Molecule Experiments

d. 受託研究 (研究担当者、機関名、研究題目、研究期間、研究内容)

- 1) 高橋聡、小松崎民樹、三本木至宏、鈴木誠 (東北大学・電子科学研究所・広島大学・東北大学): 「JST/CREST 「蛋白質の折り畳み運動解明を目指した一分子観測法の確立 (一分子観察実験のための新しいデータ解析手法の開発)」」、2004～2009年度、遷移過程の直接観測実験を通して、遷移の非統計性、遷移状態概念の再考、熱揺らぎと蛋白質ダイナミクスのあいだの競合・協同性などを解明するため、生体分子時系列情報からその背後に潜む系の動的構造 (= 状態空間構造) を抽出・解析する新しい分子時系列解析手法を開発する。新しい一分子観察法から得られる時系列情報を解析し、「ダイナミクスから見た」蛋白質の折れ畳み運動の新しい構築原理を考察する。
- 2) 西村吾朗 (独立行政法人 新エネルギー・産業技術総合開発機構): 「分子イメージング機器研究開発プロジェクト/新規悪性腫瘍分子プローブの基盤技術開発/分子プローブ評価システムの開発」、2008～2009年度、時間分解蛍光分光法を用い、組織中に含まれる蛍光性分子プローブの位置や濃度を定量的に計測するシステムを開発する。
- 3) 西村吾朗 (JST 重点地域研究開発推進プログラム(育成研究)): 「リアルタイム分光イメージングによる食品の安全性モニタリング技術の開発」、代表 澤山一博(北海道工業試験所)、2009-2011年度、自家蛍光を用いた

肉類評価技術を研究する。

4. 10 予算獲得状況

a. 科学研究費補助金 (研究代表者、分類名、研究課題、期間)

- 1) 小松崎民樹、特定領域研究「分子基礎理論」、複雑反応系におけるダイナミクス理論の基礎構築、2008～2009年度
- 2) 小松崎民樹、基盤研究 B、生体機能における時空階層を繋ぐ選択性と統計性動的構築原理の創出、2009～2011年度
- 3) 李振風、特定領域研究「革新的ナノバイオ」、1 分子時系列情報に基づく革新的マルチスケールリングモデル、2009～2010年度
- 4) 李振風、基盤研究 C、単一ドットのプリンキング機構の解明・制御に向けた新しい解析理論の開発、2009～2011年度
- 5) 寺本央、若手研究 B、タンパク質と水の動的相互作用を通じた機能の解明、2009～2011年度

4. 12 社会教育活動

a. 公的機関の委員

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

b. 国内外の学会の役職

- 1) 小松崎民樹: (財) 新世代研究所「バイオ単分子研究会(佐々木裕次<東京大学大学院新領域物質系教授>委員長)」研究会委員(2009年4月1日～H24年3月31日)
- 2) 小松崎民樹: (財) 国際高等研究所「諸科学の共通言語としての数学の発掘と数理科学への展開(高橋陽一郎<京都大学数理解析研究所教授>委員長)」研究会委員(2009年4月27日～H24年3月31日)
- 3) 西村吾朗: 日本光学会幹事(2009年4月1日～2011年3月31日)

c. 併任・兼業

- 1) 小松崎民樹: 北海道大学数学連携研究センター 兼任教授(2008年4月1日～現在)
- 2) 小松崎民樹: 福井大学医学部 講師(医科学特論 学内セミナー)(2009年12月14日～16日)
- 3) 小松崎民樹: 財団法人 国際高等研究所、「諸科学の共通言語としての数学の発掘と数理科学への展開」研究プロジェクトメンバー(2009年4月1日～2012年3月31日)
- 4) 李振風: 北海道大学数学連携センター 兼任准教授(2009年11月1日～現在)

d. その他

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

(2004年10月1日～2010年3月31日)

f. 外国人研究者の招聘 (氏名、国名、期間)

- 1) Dr. Pai-Chi Li, Washington Univ. St Louis, USA (2009年4月6日)
- 2) Dr. Xavier Michalet, UCLA, USA (2009年10月05日)
- 3) Prof. Kerstin Blank, Radboud University Nijmegen, the Netherlands (2009年11月1日～2009年11月6日)
- 4) Ms. Tatyana Terentyeva, Katholieke Universiteit Leuven, Belgium (2009年11月1日～2009年11月9日)
- 5) Prof. Henning Mootz, TU Dortmund University, Germany (2009年11月2日～2009年11月3日)
- 6) Prof. Johan Hofkens, Katholieke Universiteit Leuven, Belgium (2009年11月7日)
- 7) Prof. Anders Liljas, Department of Molecular Biophysics, Lund University, Sweden (2009年11月18日)

g. 北大での担当授業科目 (対象、講義名、担当者、期間)

- 1) 生命科学院、生命分子科学概論、小松崎民樹、2009年4月1日～2009年9月30日
- 2) 生命科学院、分子情報解析学特論、小松崎民樹、2009年4月1日～2009年9月30日
- 3) 生命科学院、生命科学論文購読、小松崎民樹、2009年4月1日～2009年9月30日
- 4) 生命科学院、生命科学実習、小松崎民樹、2009年4月1日～2009年9月30日
- 5) 生命科学院、生命科学研究、小松崎民樹、2009年4月1日～2009年9月30日
- 6) 生命科学院、生命科学特別研究、小松崎民樹、2009年10月1日～2009年03月31日
- 7) 全学共通、環境と人間 (光・バイオ・分子で拓くナノテクノロジー)、小松崎民樹、2009年4月1日～2009年9月30日
- 8) 全学共通、一般教育演習(フレッシュマンセミナー)解析力学基礎 (論文指導)、寺本央、2009年4月1日～2009年9月30日
- 9) 全学共通、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論I (ナノバイオシステム論)、小松崎民樹、2009年5月13日～2009年5月15日
- 10) 全学共通、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論 I (ナノバイオシステム論)、李振風、2009年5月13日～2009年5月15日
- 11) 全学共通、英語演習(上級) Introduction to Time Series Analysis with Applications to Real Complex Systems、李振風、2009年10月1日～2010年3月31日

h. 北大以外での非常勤講師 (担当者、教育機関、講義名、期間)

- 1) 小松崎民樹、第15回創発システム・シンポジウム 創発夏の学校2009、インテック大山研修センター(富山市)、時系列情報から読み解く数理モデル ―生体分子の階層的な構造揺らぎを例に一、2009年8月9日
- 2) 小松崎民樹、福井大学医学部、医科学特論「1分子生物学：我々は1分子時系列情報から何が学べるのか」、

2009年12月15日

- 3) 李振風、福井大学医学部、医学特論 "A Handy Guide to Analyze Time Series from Biological Systems: Some Simple but Powerful Tools"、2009年12月16日

i. ポスドク・客員研究員など

・ポスドク

- 1) 博士研究員 馬場昭典 (2007. 10～)
日本学術振興会特別研究員 河合信之輔 (2008. 4～)
- 2) 博士研究員 Kamlesh Awasthi (2009.4～2010.3)
- 3) 博士研究員 Kitsakorn Locharoenrat (2009.5～2010.3)
- 4) 博士研究員 伊藤正寛 (2009.6～)
- 5) 博士研究員 Mesfin Asfaw Taye (2009.7～)

ナノシステム生理学研究分野

教授 永井健治（東大院、医博、2005.1～）
准教授 谷 知己（東大院、理博、2005.3～2010.3）
助教 松田知己（阪大院、理博、2008.4～）
学振特別研究員 谷 真紀
博士研究員 小寺一平
博士研究員 小笠原 希実
DC3 野村真未
DC1 張 郁芬
MC2 植松利亮
MC2 永井大輔
MC1 木村太郎
BC4 高橋里佳

1. 研究目標

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

2. 研究成果

(a) 光安定性とプロトン非感受性を兼ね備えた、群青色蛍光タンパク質の開発

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

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

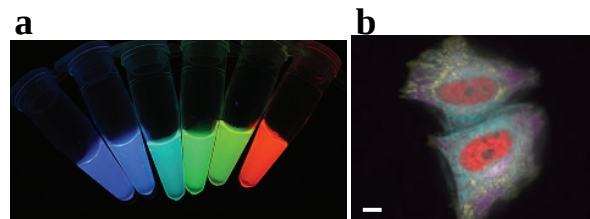


図1. *Aequorea* GFP 変異体の Sirius の精製タンパク質と Sirius を核に発現させ、4重染色した HeLa 細胞。

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

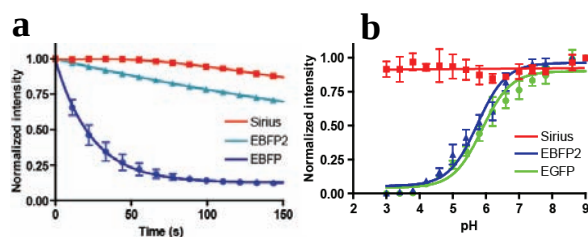


図2. Sirius と既存の蛍光タンパク質の光安定性及び、プロトン感受性の比較。

(b) FRET をベースとした蛍光タンパク質指示薬設計の新しい指針

蛍光タンパク質を利用した FRET 蛍光指示薬の FRET 効率を向上させるためには、円順列変異体やリンカーのスクリーニング等によりドナー・アクセプター間の距離と方向を最適化する必要があるが、こうした従来の方法だけでは予測通りの最適化を行うことは困難であり指示薬を設計する新しい指針が求められていた。我々は、オワンクラゲ由来の蛍光タンパク質の二量体形成能が FRET ベースの指示薬の性能に大きく影響していると考え、既存の指示薬において二量体形成と FRET 効率、ダイナミックレンジとの関

係をシステマティックに解析した。

初めに、Ca²⁺ 指示薬 Cameleon YC3.60 について、FRET ドナーとアクセプターの両方の蛍光タンパク質に二量体形成を阻害又は促進する変異を導入し解析した。その結果、蛍光タンパク質の二量体化を阻害する変異(A206K)がCa²⁺ 濃度が高い時のFRET 効率を低下させることが明らかとなった。一方で二量体化を促進する変異(S208F、V224L)は、Ca²⁺ 濃度が低い時のFRET 効率を増大させた。これらの結果より、蛍光タンパク質の二量体形成能がFRET 効率に大きく影響し、二量体能が低すぎても高すぎてもダイナミックレンジの低下を引き起こすことが明らかになった。同様の結果が、別のCa²⁺ 指示薬TN-XLにおいても観察され、オワンクラゲ由来の蛍光タンパク質に一般的に起こる現象であることが示唆された。これらの知見を元に、ATP 指示薬Ateamに導入されていた蛍光タンパク質間二量体化を抑制するための変異を弱い相互作用を示す二量体を形成する野生型に戻すことでダイナミックレンジを大幅に改善することに成功した。

本研究によりオワンクラゲ由来の蛍光タンパク質を用いたFRET ベース指示薬においてはアンチパラレル構造の二量体形成能を調節することにより、高いダイナミックレンジをもたらすことが明らかになった。この設計指針は広くFRET 指示薬作製に貢献することが期待される。

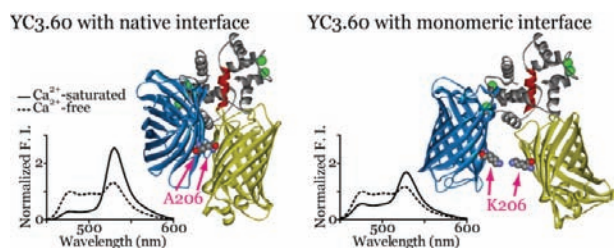


図3. YC3.60における二量体界面変異がFRET 効率に及ぼす影響と指示薬構造の概念図。

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

生細胞内で機能するタンパク質の構造変化を1分子単位、リアルタイムで観察する計測技術を開発している。一般に励起した蛍光分子が発する光は等方的に放射されるのではなく、その蛍光の放射方向にはある偏りが存在する。この偏りがあるために、そのデフォーカス像の空間パターンは蛍光分子の方向を反映したものとなる。1990年代後半より、蛍光1分子のデフォーカス像から分子の配向を計測する試みが始まっていたが、発光双極子と観察光軸方向がなす角度の定量性の低さや、1分子像が得られない高濃度の観察対象には適用できないこと等の問題がある。本研究ではこれらの問題を解決するための新しい光学的計測法の開発を行った。

対物レンズを通して、観察光軸に対して平行な発光双極子を持つ蛍光分子を観察した場合、対物レンズ後焦点面における蛍光の偏光方向は光軸を中心として放射状に並ぶ。

一方、観察光軸に直交する発光双極子を持つ蛍光分子を同様に観察した場合、対物レンズ後焦点面における蛍光の偏光方向は、発光双極子の方向にほぼ平行となる。そこで本研究では蛍光分子が持つ発光双極子モーメントのZ軸成分、Y軸成分およびX軸成分を定量すること目的とし、偏光透過軸が光軸を中心として放射状の偏光子と、同心円状の偏光子を組み合わせることにより、対物レンズ後焦点面を通過する蛍光偏光の軸対称性を定量する光学系を構築した。この光学系を用いることにより、ガラス表面上に固定したGFPの蛍光を放射偏光子と同心円偏光子を通過した成分に二分しその蛍光強度比をGFP 発光双極子のZ軸成分に反映させることに成功した(図4)。さらに、末梢神経様細胞株PC12細胞内での神経成長因子受容体TrkAの構造変化の計測を試みている。

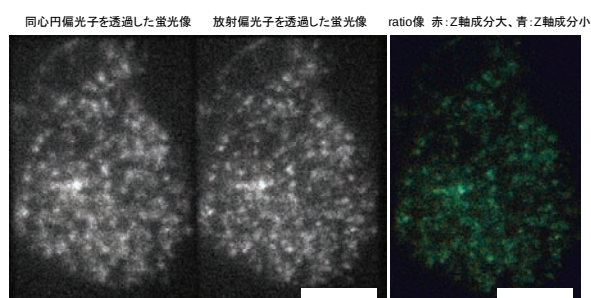


図4. PC12細胞に発現したTrkA-EGFPの分子配向1分子観察
スケールバー、5μm

3. 今後の研究の展開

ヒューマングノムの全貌が明らかになった現在、タンパク質間相互作用を網羅的に解析するプロテオーム解析が生物学研究の主流の1つになっている。その結果、細胞内分子反応に関わる分子群とそれらの相互作用に関する莫大な量の情報が蓄積してきた。しかしながら、個々の生理現象に潜む一般原理の理解には至っていない。それはひとえに細胞内の様々な事象に関与する分子と分子を矢印で結んだ“静的”理解に留まっているからである。そのようなデータのほとんどが百万個以上の細胞をすりつぶして調製した試料を生化学的に調べるという方法から得られるものであるが、このような方法は生理現象の時空間的スケールを全く無視している。より包括的・根源的な理解のためには個々の生理反応がいつ、どこで、どの程度起こるのか、つまり時空間的な“動的”情報を得る必要があるであろう。また、細胞レベルだけでなく、個体レベルでの情報も得なければならない。そのためには生理機能を可視化する技術、個体レベルのイメージング技術、そしてリアルタイムに観察しながら生理機能を“いじる”技術の開発が必要不可欠である。当研究室では、新しい技術を用いた解析による新しい現象の発見を目指して、機能指示薬開発、生理機能操作技術開発、顕微鏡技術開発、生理現象解析の4位1体型研究を今後も展開していくことで、生命の謎に迫りたい。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) I. Kotera, T. Iwasaki, H. Imamura, H. Noji and T. Nagai : “Reversible dimerization of *Aequorea victoria* fluorescent proteins increases the dynamic range of FRET-based indicators.”, *ACS Chem Biol.*, 5 : 215-222 (2010)
- 2) H. Lütcke, M. Murayama, T. Hahn, D. Margolis, S. Astori, S. Borgloh, W. Göbel, Y. Yang, W. Tang, S. Kügler, R. Sprengel, T. Nagai, A. Miyawaki, M. Larkum, F. Helmchen and M. Hasan : “Optical recording of neuronal activity with a genetically-encoded Ca²⁺ indicator in anesthetized and freely moving mice.”, *Frontiers in Neural Circuit*, 4 : 1-12 (2010)
- 3) J. Hong, C. Min, B. Jeong, T. Kojiya, E. Morioka, T. Nagai, M. Ikeda and K. Lee : “Intracellular calcium spikes in rat suprachiasmatic nucleus neurons induced by BAPTA-based calcium dyes.”, *PLoS ONE*, 5(e9634) (2010)
- 4) H. Imamura, K. Nhat, H. Togawa, K. Saito, R. Iino, Y. Kato-Yamada, T. Nagai and H. Noji : “Visualization of ATP levels inside single living cells with fluorescence resonance energy transfer-based genetically encoded indicators.”, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, 106 : 15651-15656 (2009)
- 5) M. Iwano, T. Entani, H. Shiba, H. Kakita, T. Nagai, H. Mizuno, A. Miyawaki, T. Shoji, K. Kubo, A. Isogai and S. Takayama : “Fine-tuning of the cytoplasmic Ca²⁺ concentration is essential for pollen tube growth.”, *Plant Physiology*, 150 : 1322-1334 (2009)
- 6) W. Tomosugi, T. Matsuda, T. Tani, T. Nemoto, I. Kotera, K. Saito, K. Horikawa and T. Nagai : “An ultramarine fluorescent protein with increased photostability and pH insensitivity.”, *Nature Methods*, 6 : 351-353 (2009)

4.2 総説、解説、評論等

- 1) 永井健治 : 「Dual FRET法を利用した複数の生理機能イメージング」、*シングルセル解析の最前線*、シーエムシー出版 : 61-69 (2010)
- 2) 永井健治、小林健太郎 : 「1波長励起Dual FRETによる生細胞内における複数現象の可視化」、*実験医学*, 28 : 589-598 (2010)
- 3) 野地博行、永井健治 : 「生命システムの階層間をまたぐイメージング技術」、*蛋白質 核酸 酵素*, 54 : 1913-1917 (2009)
- 4) 堀川一樹、永井健治 : 「細胞結合振動システムを対象にした超高感度大規模イメージング」、*蛋白質 核酸 酵素*, 54 : 1945-1951 (2009)
- 5) 永井健治、松田知己 : 「生細胞内でのタンパク質動態測定とその意義」、*生物物理*, 49 : 181-186 (2009)
- 6) 永井健治、松田知己 : 「光スイッチング蛍光タンパク質

を用いた生細胞内でのタンパク質動態定量法」、*日本組織細胞化学会編、組織細胞化学2009* : 99-105 (2009)

- 7) 永井健治 : 「酸性の環境でも光る蛍光タンパク質」、*化学*, 64 : 72-73 (2009)
- 8) 小寺 一平、永井健治 : 「ワンステップ全自動プラスミド構築方法」、*細胞工学*, 28 : 402-407 (2009)
- 9) 永井健治 : 「光スイッチング蛍光タンパク質を用いた超解像観察法」、*分光研究*, 58 : 7-9 (2009)
- 10) 永井健治 : 「蛍光タンパク質開発秘話-Pericam-」、*蛋白質 核酸 酵素*, 53 : 1858-1864 (2009)

4.5 講演

a. 招待講演

i) 学会

- 1) 永井健治 : “Visualization of Cellular Functions and Dynamics by the Smart Use of Fluorescent Proteins” 30th iCeM Seminar 京都 (2009-9)
- 2) Nagai T: Rational design of photoswitchable fluorescent probes and its use for bioimaging 238th American Chemical Society Meeting Washington DC, USA (2009-8)
- 3) Nagai T: Deciphering enigma of biological function by a genetically-encoded fluorescent indicator Gordon Research Conferences (Fertilization & Activation Of Development) Plymouth, USA (2009-7)
- 4) 永井健治 : 「生理機能・動態を計測するための蛍光タンパク質技術」、第9回日本蛋白質科学会年会、熊本 (2009-05)

ii) 研究会

- 1) 永井健治: Toward elucidation of dynamic living system by hierarchical molecular imaging 第2回 スイス-日本 生命化学シンポジウム 東京 (2009-9)
- 2) Nagai T: Perspective of bioimaging and biomanipulation techniques International Symposium of post-silicon materials and devices research alliance projecInternational Symposium “Innovative Nanoscience of Supramolecular Motor Proteins Kyoto, Japan (2009-9)
- 3) Nagai T: “Molecular Nano-Mechanics & Bio-Mechanics Research Group(G3)” International Symposium of post-silicon materials and devices research alliance project Osaka, Japan (2009-9)
- 4) T. Nagai: “Deciphering Enigma of Biological Function by Genetically-encoded Molecular Spies”, International Symposium on Biological Rhythm & International Joint Symposium on Photonic bioimaging, Sapporo, Japan (2009-8)
- 5) T. Nagai: “Measurement of Diffusion Coefficient of Biomolecules by Fluorescence Decay After Photostimulation of Photoswitchable Fluorescent Proteins in Living Cells.”, 第9回 NIBB-EMBL シンポジウム, 岡崎 (2009-4)
- 6) 松田知己、永井健治 : “光変換蛍光タンパク質による生

きた細胞内のタンパク質動態測定” 光イメージング若手の会「光塾」第一回、神戸市 (2009-8)

- 7) 松田知己、永井健治: “光変換蛍光タンパク質による生きた細胞内のタンパク質動態測定” 第8回北陸ポストゲノム研究フォーラム、金沢 (2009-6)
- 8) 永井健治: 「蛍光プローブの利用」、第11回細胞生物学ワークショップ、神戸 (2008-08)
- 9) 松田知己、永井健治: “光変換蛍光タンパク質による生きた細胞内のタンパク質動態測定” 第8回北陸ポストゲノム研究フォーラム、金沢 (2009-6)

iii) コロキウム・セミナー・その他

- 1) 永井健治: 「GFPは何故光る? -機能指示薬作成法と生理機能の可視化? -機能指示薬作成法と生理機能の可視化/フェルスター共鳴エネルギー移動 (FRET) を利用したバイオセンサー作成法」、第5回ライブセルイメージング講習会、つくば (2009-10)
- 2) 永井健治: 新規蛍光タンパク質の開発とバイオイメージングへの応用 BioOpto Japan 2009 横浜 (2009-9)
- 3) 永井健治: Deciphering enigma of biological functions by genetically-encoded molecular spies 東大医科研大学院セミナー「分子と生命現象の可視化」東京 (2009-9)
- 4) 永井健治: 「蛍光・化学発光タンパク質の基礎と応用」、第18回浜松医科大学メディカルホトニクス・コース (2009-8)
- 5) 永井健治: 「蛍光タンパク質テクノロジーの最前線」、第34回組織細胞化学会講習会、徳島 (2009-07)
- 6) Takeharu Nagai: “Tracking the behavior and structural dynamics of single membrane receptors in living cells”, Application Trends of Live Cell Imaging, Ewha Woman University (梨花大学) Seoul, Korea (2009-07)
- 7) Tomomi Tani: “Uncovering biological Phenomenon at Evanescence Depth: TIRF”, Uncovering biological Phenomenon at Evanescence Depth: TIRF, Biopolis (Singapore) (2009-08)
- 8) Tomomi Tani: “Dynamics of neurotrophin signaling and trafficking at the growth cone: a single molecule analysis”, Cell Division and the Cytoskeleton, Biopolis (Singapore) (2009-06)

b. 一般講演

i) 学会

- 1) Kazuki Horikawa: “Constructive role of noise in self-organized pattern formation in social amoeba”, The Third q-bio Conference on Cellular Information Processing, Santa Fe (USA) (2009-08)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) Kazuki Horikawa: “Constructive role of noise in self-organized pattern formation in social amoeba”, Workshop for rhythmic phenomena: Summer 2009 リズム現象の研究会2009年夏、下高井郡山ノ内町 (長野県) (2009-07)

4.6 特許

・国内特許

- 1) 永井健治、小寺一平、岩崎卓也: 特願2009-149338、蛍光温度プローブおよびそれを用いた温度測定装置、北海道大学、特願2009-149338

4.7 予算獲得状況

a. 科学研究費補助金 (研究代表者、分類名、研究課題、期間)

- 1) 永井健治、特定領域研究「バイオ操作」公募班、光操作によるマルチスケール機能イメージング法の開発、08~09年度
- 2) 永井健治、挑戦的萌芽研究、光スイッチングバイオセンサーの開発、08~09年度
- 3) 松田知己、若手研究A、立体構造情報を利用した高輝度蛍光タンパク質の合理的なデザイン法の開発、09~12年度

c. 大型プロジェクト・受託研究

- 1) 谷知己、科学技術振興機構、戦略的創造研究推進事業 さきがけ研究、タンパク質1分子モーションキャプチャー技術の開発、2006~2009年度
- 2) 永井健治、厚生労働省、萌芽的先端医療技術推進事業、ナノレベルイメージングによる分子の機能および構造解析、2007~2009年度
- 3) 永井健治、科学技術振興機構、戦略的創造研究推進事業 さきがけ研究、ナノサイズ高輝度発光光源の創生と生命機能計測への応用、2008~2013年度

4.8 共同研究

b. 民間との共同研究

- 1) 永井健治 (ニコン・インストルメンツカンパニー): 「機能指示タンパク質を効率よく観察するための顕微鏡開発」、2009年度~

4.12 社会教育活動

a. 公的機関の委員

- 1) 谷知己: 科学技術振興機構 研究開発戦略センター 計測技術常設委員会委員 (2008年6月1日~2010年3月)

g. 北大での担当授業科目 (対象、講義名、担当者、期間)

- 1) フレッシュマンセミナー「最先端のイメージングテクノロジーで生命を観る」、永井健治・谷知己、2009年11月1日~2010年1月31日
- 2) 理学院、発生進化学特論、永井健治、2009年10月1日~2009年12月31日
- 3) 理学部、実験生物科学、永井健治、2009年10月1日~2009年1月31日
- 4) 理学部、生物高分子科学、永井健治・谷知己、2009年7月8日
- 5) 理学院、生命理学概論、永井健治・谷知己、2009年6月3日

- 6) 全学共通、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論Ⅰ、
永井健治、2009年5月14日
- 7) 全学共通、光・バイオ・分子で拓くナノテクノロジー、
永井健治、2009年5月8日
- 8) 工学部、基礎生物学Ⅰ、永井健治、2009年4月1日～2009
年7月31日

h. 北大以外での非常勤講師

- 1) 永井健治、熊本大学、Vivid visualization of biological
functions using fluorescent protein-based molecular spies、
2009年9月16日
- 2) 永井健治、東京大学大学院医学系研究科、Deciphering
enigma of biological functions by genetically-encoded
molecular spies、2009年9月14日
- 3) 永井健治、東京大学医学部、革新的蛍光タンパク質技
術による生命現象の解明に向けて、2009年9月3日
- 4) 永井健治、長崎大学医学部、階層間分子イメージング
による動的生命システム解明へのアプローチ、2009年7
月3日

i. ポスドク・客員研究員など

・ポスドク（3名）

- 1) 谷 真紀（日本学術振興会特別研究員）
- 2) 小寺一平（博士研究員）
- 3) 小笠原希実（博士研究員）

j. 修士学位及び博士学位の取得状況

・修士課程（2名）

- 1) 植松利亮：長時間生理機能イメージングを目指した赤
方化指示薬の開発（2009年3月）
- 2) 永井大輔：FRET 指示薬における遷移双極子モーメン
ト、FRET 効率、及びダイナミックレンジの相関関係
（2009年3月）

電子情報処理研究部門

研究目的

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



情報数理研究分野

教 授 西浦廉政（京大理院、理博、1995.4～）

助 教 柳田達雄（総研大、学術博、1995.6～）

飯間信（京大理院、理博、1999.4～）

事務補佐員

辻田由香（2009.4～）

佐々木喜代（2009.8～2010.3）

電子科学研究所研究員

齋藤宗孝

VBL 研究員 渡辺毅、袁曉輝、岩田友紀子

院 生

・博士課程 西 慧

・修士課程 高島朋之、前田太朗、大賀淳史、
及川智絵、鈴木悠介

1. 研究目標

人間を含めた自然の営みを理解する方法は様々であるが、本研究分野は計算機の中に小自然を作り、その数理的構造を明らかにすることにより、その本質を解明することを目指す。いわば数理の実験工房とでもいうべきものである。対象は一般に複雑かつ大自由度であるが、具体的な実体に基づきつつも、それにとらわれない普遍的構造を取り出すを試みる。平成21年度は2相対流におけるパルスの衝突と漸近挙動、回転流体系における流れの階層構造の解明、疑似束縛系における局在化運動と緩和現象の解明等を主目標においた。

2. 研究成果

(a) 2相対流におけるパルスの衝突と漸近挙動

水とエタノールの混合物のように二種類の物質を混ぜることによって得られる流体を二成分混合流体という。このような流体に温度勾配を与えると一種流体の場合とは大きく異なる様々な流れが形成される。一種流体の場合 Rayleigh-Benard 対流として良く知られている空間周期的で定常なロール構造が現れるが、二成分混合流体ではこのような定常な対流解の他に、空間周期的な定常進行波や空間局在型の対流など、様々な流れが観察されることが知られている。本研究では主に空間局在型の対流解に注目し、以後、空間局在対流をパルスと呼ぶことにする。パルスには定常パルスと周期進行パルスがある。周期進行パルス解はパルス自体がその形を変えつつ進行するもので、パルス全体が動く速度と一緒に移動する座標系から見ると時間周期解を構成している。したがってこのパルスを解として求めようとした場合、パルス全体が動く速度と、パルスの変形の周期、という二つの未知数について同時に考える必要がある。このため数値的扱いが困難であり、これまで詳しく調べられてこなかったが、本研究では、従来時間周期解を求める

のに利用されてきた Poincare 断面の不動点計算法を拡張し、周期進行パルスを解として求める手法を新たに開発することに成功した。これによって周期進行パルス解の様々な性質について詳しく調べることができるようになった。パルス解は従来、熱伝導解と対流解が共に安定な双安定領域内に形成されるホモクリニック軌道として理解されてきたが、今回新たに、背景となる熱伝導解が不安定な領域で安定に存在するパルス解が見つかった。このようなパルスの存在は物理的にも非常に興味あるものであり、詳しく調べた結果、空間サイズの有限性とパルスのフロント部分において熱伝導部分からの擾乱が吸収される安定化機構が明らかになった。図1に着目している解の大域分岐図を示した。

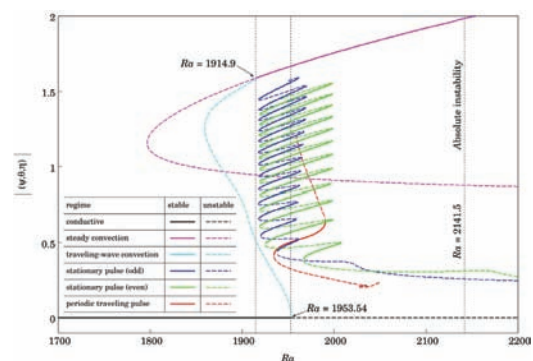


図1. 各色が熱伝導解からパルス解までの Rayleigh 数依存の様子を示す。同じパラメータ値においてセル数が異なる定常対流解が共存しているが、これはスネーク構造とよばれる。

(b) 回転流体系における流れの階層構造の解明

流体現象において、流体運動を支配するパラメータの一つである粘性率を大きい値からだんだん小さくしていくと、流れの構造があるところで遷移をおこす。粘性率が大きい場合の流れを層流と呼び、小さい場合の流れを乱流と呼ぶ。このような遷移は円柱周りの流れ、管の中の流れなど様々なところで見られるが、遷移の詳細についてはまだ分かっていないことが多い。ここでは実験系として底面が等速回転する円柱内に入れられた液体の運動を考える。この系では底面の回転数がある条件を満たすと液体表面の形状が2状態の間を動的に変化する“Surface switching”という現象 [Suzuki, Iima, and Hayase, Physics of Fluids, 18(2006)101701] が報告されており、切り替わりの時間スケールは回転速度とくらべて非常に遅いことが分かっている。この現象の本質については、当初より流れの層流-乱流遷移に伴う中央部圧力の下降および上昇が予想されていたが、計測による同定には至っておらず、また遷移点近傍の数値構造も明らかではなかった。この系に対して超音波流速分布計を用いたデータ解析により流れの乱流強度を測定し、流れの遷移及びその履歴構造を初めて明らかにした。同時に、“Surface switching”における流れの乱れ強度と水面形状の同時計測により遷移過程においても両者が強い相関をもつことを明らかにした。これらの結果によりこの現象の本質が層流-乱流遷移であること、状態遷移が水面形状の遷移として現れることがわかった。

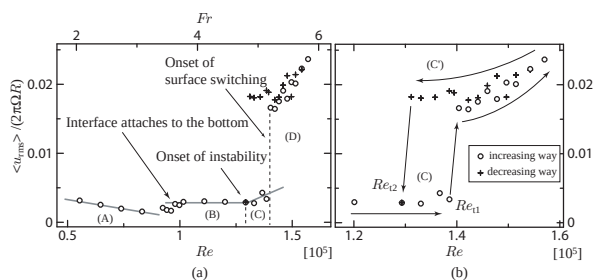


図2. 回転流体における流れの乱流強度の分岐構造。横軸はレイノルズ数（底面の回転数に比例）、縦軸は正規化された乱れ強さを表す。(a) 広い範囲のレイノルズ数における乱れ強さを表す。 $Re=1.4 \times 10^5$ 付近で遷移がみられる。(b) (a)を拡大した図。乱れ強さの遷移と共に履歴が観測されている。

(c) 疑似束縛系における局在化運動と緩和現象

運動に束縛があるシステムは熱平衡状態においても局所運動エネルギーが等分配されない事が知られている。このような状況は運動が厳密に束縛された系特有の性質であり、実際の物理系（如何に強く結合していても厳密な束縛にはならない）にはない性質である。従って、疑似束縛系、すなわち、粒子間に強い相互作用があり一見ではあたかも束縛的な運動するシステムでさえ熱平衡状態では、粒子の局所運動エネルギーは等分配される。疑似束縛系モデルとして粒子（質点）がバネで一次的に強く結合したシステムを考え、運動の局在化の数理解析を行った。このような疑似束縛系においても熱平衡状態に達する有限時間の間では運動エネルギーの局在化が観測される事を示した。しかも、運動エネルギーの局在化が観測される時間は相互作用の強さによって指数関数的に増大する事を数値的に示し、理論的解釈を与えた。従って、強い相互作用で結びついているシステム、例えば、タンパク質、DNA、カーボンナノチューブにおいても運動エネルギーの局所化が起り、また、観測しうる可能性が示唆される。

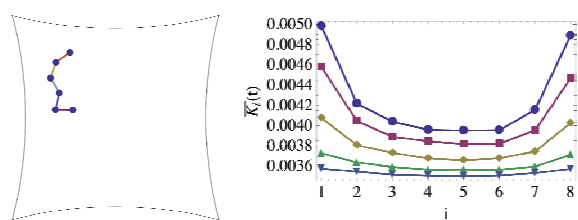


図3. 左図：1次元疑似束縛系モデル。右図：局所エネルギーの緩和の様子。初期では一次元強束縛系の両端にエネルギーが局在化する（青丸）。時間と共に局在化運動は緩和し最終的には等分配則を満たす運動が実現される（青三角）。ただし、緩和時間は束縛の強さに対して指数関数的に増大する。

3. 今後の研究の展望

時間的、空間的な階層構造、異なるスケールの共存は複雑な系を取り扱うときには常に考慮せねばならない重要な要素である。具体的には、異なる階層あるいは異なるダイナミクスの領域へ転移するきっかけは何であろうか？ ま

たどのような数理的機構がそれを駆動しているのであろうか？ などが直ちに自然な疑問として出てくる。これらに統一的に答える枠組みはまだできていないが、不安定な解の集合から成るネットワークの構造の解明はひとつの鍵を与えていると思われる。単純化された、しかし本質を捉えたいいくつかの数理モデルにおいて具体的に検証を積み重ね、大きな枠組みの基盤作りが今後の重要な課題となる。

(a) 有限サイズ効果によるパルスの安定化は「有限と無限」の狭間の現象として非常に興味深い。有限ではあるが、領域サイズが大きくなると単独でパルスが存在することが困難となって熱伝導部分で攪乱が大きく成長し、最終的に複数のパルスが存在する安定な状態が実現される。また定常パルスは高い対称性が要求されるため領域サイズが大きくなると実現されることはほとんどなくなり、最終的には衝突過程を経て、すべてが周期進行パルスになってしまう。このとき系のサイズが有限だと最終的にどちらか一方の進行方向のみが選ばれ、最終的に不等間隔で並ぶ有限個のパルスによるパルストレイン構造が実現される。系のサイズが無限の場合にはこのような進行方向の選択は起こらないと予想されるが、それについては今後検証していく必要がある。

(b) 気象現象や生命系など、現象の階層性をもつ系は多い。それぞれの階層間ダイナミクスが分離できる場合は、各階層のダイナミクスを縮約する手法はいくつか知られているが、階層間の分離が困難な場合、縮約の指針を与えることすら簡単ではない。本研究で解析している系は流れのミクロな構造の遷移がマクロな水面形状を顕著に変える例であり、階層分離が困難な非線形系の一例である。このような系を解析し、縮約された系を記述・解析することで、非線形大自由度系の理解に繋がると考えられる。

(c) 局在運動はポリマー、タンパク質、カーボンナノチューブなど様々な系で観測されている。また、このような運動の局在化は例えばタンパク質のような系では機能と深く関わりがあると予想される。これらの局在化運動の背後に潜む数理構造を解明する事により、タンパク質の機能やそのような運動を生成する機構が明らかにできよう。さらに、このような数理構造の解明は将来の物質設計に向けての基礎付けを与える事ができよう。例えば、特定の分子構造（粒子間ポテンシャル）を設計する事により、与えられた粒子に激しい局所運動が励起する機能分子の設計に応用できる可能性がある。本研究はそのような設計指針の数理的な基礎付けを与えよう。ここでみられる運動の局在化は過渡的現象であり、最終的には熱平衡状態になり一様な運動エネルギー分布となる。そこで、疑似束縛系での運動の局在化が実験観測にかかるように、運動エネルギー局在化を励起し、定常状態とする時間変動する外場の設計を試みる。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) T. Yanagita and T. Onozaki : “Dynamics of Market Structure Driven by the Degree of Consumer’s Rationality”, *Physica A*, Elsevier, 389 : 1041–1054 (2010)
- 2) 西浦廉政:「人類が抱える諸問題に数理科学はどう貢献できるか — 「つながる知」を求めて —」、信学技法 (IEICE Technical Report)、社団法人 電子情報通信学会、109(269) : 139–141 (2009)
- 3) T. Teramoto, K. Suzuki and Y. Nishiura : “Rotational motion of traveling spots in dissipative systems”, *Phys. Rev. E*, 80(4) : 046208– (2009)
- 4) S. Ei, Y. Nishiura and K. Ueda : “Pulse dynamics for reaction-diffusion systems in the neighborhood of codimension two singularity”, *Journal of Math-for-industry*, 1 : 91–95 (2009)
- 5) Y. Tasaka and M. Iima : “Flow transitions in the surface switching of rotating fluid”, *J. Fluid Mech.*, 636 : 475–484 (2009)
- 6) T. Yanagita : “Energetic motion of end-particles in constrained dynamical systems”, *Journal of Statistical Mechanics*, IOP Publishing Ltd and SISSA, L09001 (2009)
- 7) Y. Nishiura : “Dynamics of Particle Patterns in Dissipative Systems — Splitting · Destruction · Scattering —”, *SUGAKU EXPOSITIONS*, American Mathematical Society, 22(1) : 37–55 (2009)
- 8) T. Teramoto, X. Yuan, M. Baer and Y. Nishiura : “Onset of Unidirectional Pulse Propagation in an Excitable Medium with Asymmetric Heterogeneity”, *Phys. Rev. E*, The American Physical Society, 79 : 046205–1–046205–16 (2009)

4.2 総説・解説・評論等

- 1) 西浦廉政:「Turing から Ertl まで〜パターンダイナミクスの半世紀〜」、現象数理学: 冬の学校「パターンダイナミクス1–2–3」報告集 : 5–22 (2010)
- 2) 田坂裕司、村井祐一、武田靖、飯間信:「超音波を用いた回転自由界面流れの流動場計測」、第87期日本機械学会流体力学部門講演会講演概要集 : 1802– (2009)
- 3) 飯間信:「飛翔と泳ぎの数理解析」、日本応用数理学会 2009年度年会講演予稿集 : 213–214 (2009)
- 4) 田坂裕司、飯間信:「回転自由界面の不規則スイッチング現象における表面張力の影響」、日本流体力学会年会 2009講演論文集 (2009)
- 5) 飯間信、平井規央、泉田啓:「アサギマダラ飛行の2次元モデルにおける大摂動からの回復過程に関する数値的研究」、日本流体力学会年会2009講演論文集 (2009)
- 6) 渡邊毅、鳥谷部和孝、飯間信、西浦廉政:「二成分混合流体中に現れる局在型対流解の分岐構造と相互作用」、

日本流体力学会年会2009講演論文集 (2009)

- 7) 飯間信:「昆虫飛翔の数値モデルと理論モデル」、研究集会 PPM2008報告集 : 54–59 (2009)
- 8) 西浦廉政:「書評:「若き数学者への手紙」 イアン・スチュアート著」、数学通信、14(1) : 139–141 (2009)

4.3 国際会議議事録等に掲載された論文

- 1) K. Senda, M. Iima and N. Hirai : “Modeling and emergence of flapping flight of butterfly based on experimental measurements”, *The 3rd International Symposium on Mobili-gence* : 393–398 (2009)
- 2) M. Iima : “An application of generalized Blasius formula to insect’s flapping flight”, *Proceedings of ISABMEC 2009* (2009)

4.5 その他

- 1) Y. Nishiura : “Strength in Numbers”, *The Japan Journal*, 6(5) : 28–31 (2009)
- 2) 西浦廉政:「非平衡ダイナミクスの数理」、岩波書店 (2009)

4.7 講演

i) 学会

- 1) 飯間信*、及川智絵:「球形微生物の遊泳シミュレーション」、日本物理学会第65回年次大会、岡山 (2010–03)
- 2) 柳田達雄*、ミハイロフ アレクサンダー:「マルコフ連鎖モンテカルロ法による位相振動子網の設計と解析」、日本物理学会 第64回年次大会、岡山大学 (2010–03)
- 3) 柳田達雄*:「非束縛力学系に現れる緩和と揺らぎ〜 束縛運動の陰II」、日本物理学会 第65回年次大会、岡山大学 (2010–03)
- 4) M. Iima* : “A paradox of hovering insects in two-dimensional space”, 62th Annual Meeting of the Division of Fluid Dynamics (APS meeting), Minneapolis, USA (2009–11)
- 5) 飯間信*:「飛翔と泳ぎの数理解析」、日本応用数理学会 2009年度年会、大阪 (2009–09)
- 6) 小西哲郎*、柳田達雄:「非束縛力学系に現れる緩和と揺らぎ〜 束縛運動の陰」、日本物理学会 第64回年次大会、熊本大学 (2009–09)
- 7) 飯間信*、ミハイロフ アレクサンダー:「連続する緩和過程で駆動される微小推進体の流体力学的推進機構」、日本物理学会2009年秋季大会、熊本 (2009–09)
- 8) 田坂裕司*、飯間信:「回転自由界面の不規則スイッチング現象における表面張力の影響」、日本流体力学会年会2009、東京 (2009–09)
- 9) 飯間信*、平井規央、泉田啓:「アサギマダラ飛行の2次元モデルにおける大摂動からの回復過程に関する数値的研究」、日本流体力学会年会2009、東京 (2009–09)
- 10) 渡辺毅*、鳥谷部和孝、飯間信、西浦廉政:「二成分混合流体中に現れる局在型対流解の分岐構造と相互作用

- 用」、日本流体力学会年会2009、東京（2009-09）
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) M. Iima*, A. Mikhailov and C. Oikawa: “Hydrodynamics of micro-size swimmers”, International symposium of joint research network on advanced materials and devices “Chou”, Tomakomai (2010-03)
 - 2) 柳田達雄*, 小西哲郎: 「Slow relaxation to equipartition in spring-chain systems」、合同国際シンポジウム「彫」、北海道苫小牧市（2010-03）
 - 3) 柳田達雄*, 小西哲郎: 「Slow Relaxation to Equipartition in Hamiltonian Dynamics with Different Time Scales」、共同研究拠点発足記念シンポジウム、大阪大学（2010-03）
 - 4) Y. Nishiura*: “Collision dynamics and rotational motion of dissipative particles”, Japanese French Meeting ReaDiLab 2010 Spatio-Temporal Patterns from Mathematics to Biomedical Applications, Archamps, France (2010-03)
 - 5) 寺本敬、鈴木勝也、西浦廉政*: 「Rotational motion of traveling spots in dissipative systems」、文部科学省特別教育研究経費「附置研究所間連携事業」最終成果報告会「新産業創造物質基盤技術研究センター」、東京国際フォーラム、東京都（2010-03）
 - 6) 飯間信*, 平井規央、泉田啓: 「アサギマダラ蝶の2次元自由飛翔モデルにおける数理解造を活用した飛翔制御の試み」、第5回移動知シンポジウム、松島（2010-03）
 - 7) 泉田啓*, 飯間信、平井規央: 「蝶の羽ばたき飛翔における環境創成による移動知発現のメカニズム」、第5回移動知シンポジウム、松島（2010-03）
 - 8) 泉田啓*, 小早川豊範、小原卓也、飯間信、平井規央: 「蝶の羽ばたきの実験計測に基づく運動制御の解析」、第5回移動知シンポジウム、松島（2010-03）
 - 9) 泉田啓*, 小原卓也、飯間信、平井規央: 「環境創成と身体の制御による蝶の羽ばたき飛翔の安定化について」、第5回移動知シンポジウム、松島（2010-03）
 - 10) 泉田啓*, 横井浩司、小原卓也、飯間信、平井規央: 「翅の構造柔軟性を考慮した蝶の羽ばたき飛翔の数値シミュレーションによる解析について」、第5回移動知シンポジウム、松島（2010-03）
 - 11) 西浦廉政*: 「つながる知を目指してーJST 数学領域の活動と展望ー」、拡がっていく数学ー社会からの期待、東京大学駒場キャンパス（2010-02）
 - 12) Y. Nishiura*: “Aiming for “Connective Knowledge” – On the Activities of the JST Mathematics Program –”, The First CREST-SBM International Conference “Random Media”, Sendai International Center (2010-01)
 - 13) 飯間信*: 「蝶はなぜ飛ぶかー渦を用いた飛翔の数理解造ー」、研究部会数理解造 第10回研究集会、名古屋（2009-12）
 - 14) 及川智絵*、飯間信: 「粘性が大きい流体中で泳ぐ球状微生物のシミュレーション」、2009年度応用数学合同研

- 究集会、瀬田（2009-12）
- 15) 大賀淳史*、飯間信、寺本敬、佐竹暁子、西浦廉政: 「植物における花成の数理解造モデルーネットワーク上の化学物質輸送は花や葉の分布をどう決めるのか?ー」、2009年度応用数学合同研究集会、瀬田（2009-12）
 - 16) 飯間信*: 「3次元空間における空中停止飛行の理論解析」、2009年度応用数学合同研究集会、瀬田（2009-12）
 - 17) 渡辺毅*、鳥谷部和孝、飯間信、西浦廉政: 「二成分混合流体中に現れる対流パルスの安定化機構」、2009年度応用数学合同研究集会、瀬田（2009-12）
 - 18) X. Yuan*, T. Teramoto and Y. Nishiura: “Eigenvalue Behaviors and Bifurcation for Spot Dynamics in Heterogeneous Media”, 2009年度応用数学合同研究集会、龍谷大学 瀬田キャンパス（2009-12）
 - 19) 西慧*、寺本敬、西浦廉政: 「フロント・バック型パルスの非一様媒質中でのふるまい」、2009年度応用数学合同研究集会、龍谷大学 瀬田キャンパス（2009-12）
 - 20) 西浦廉政*: 「数学は新たな世界観をもたらさうか」、岡山大学創立60周年記念特別講演会「数理解造と諸科学の融合に向けて」、岡山国際交流センター2階 国際会議場（2009-12）
 - 21) Y. Nishiura*: “Rotational motion of traveling spots in dissipative systems”, SNP2009「非線形問題に現われる特異性の解析」、関西セミナーハウス（京都市左京区）（2009-11~2009-12）
 - 22) Y. Nishiura*: “Collision Dynamics for Particle Patterns in Dissipative Systems”, Collective Dynamics and Pattern Formation in Active Matter Systems, Berlin, Germany (2009-11)
 - 23) K. Senda*, M. Iima and N. Hirai: “Modeling and emergence of flapping flight of butterfly based on experimental”, The 3rd International Symposium on Mobiligence, 兵庫（2009-11）
 - 24) 西浦廉政*: 「人類が抱える諸問題に数理解造はどう貢献できるか」、電子情報通信学会 非線形問題研究会（NLP2009）、屋久島環境文化村センター（鹿児島県）（2009-11）
 - 25) 柳田達雄*: 「結合振動子網の設計とその統計的性質」、電子情報通信学会 非線形問題研究会、(11月11日開催、会場：屋久島環境文化村センター)（2009-11）
 - 26) 西浦廉政*: 「散逸系粒子解の斜め衝突ダイナミクス」、RIMS 研究集会「非線形波動現象の数理解造と応用」、京都大学大学院理学研究科3号館（2009-10）
 - 27) T. Yanagita*: “Statistical Properties of Synchrony Designed Network”, Frontiers in network science – advances and applications, Harnack-House, Berlin, Germany (2009-09)
 - 28) Y. Nishiura*: “Aiming for “Connective Knowledge” – on the activities of the JST Mathematic Program”, Symposium: Frontiers in network science, ベルリン（ドイツ）

Germany (2009-09)

- 29) Y. Tasaka*, M. Iima and Y. Sato: "Statistics and dynamical analysis of surface switching in rotating fluid", 16th International Couette-Taylor Workshop, Princeton, USA (2009-09)
- 30) T. Yanagita*: "Statistical Properties of Synchrony Designed Network", Dynamics Days Europe 2009, Max Planck Institute for Dynamics and Self-Organization, Gottingen, Germany (2009-08~2009-09)
- 31) M. Iima*: "An application of generalized Blasius formula to insect's flapping flight", ISABMEC2009, 上海, 中国 (2009-08~2009-09)
- 32) Y. Nishiura*: "Oblique collisions in dissipative systems", The Second International Conference on Reaction-Diffusion Systems and Viscosity Solutions, The Department of Applied Mathematics, Providence University, Taichung, Taiwan (2009-07)
- 33) Y. Nishiura*: "Collision dynamics in dissipative systems", International Workshop on Self-organization in Chemical and Biological Systems: Modeling, Analysis and Simulation, Shikon-Kan, Surugadai Campus (Tokyo), Meiji University (2009-07)
- 34) 柳田達雄*: 「動的モンテカルロ法による力学システムの稀な軌道の探索と設計」、アライアンス G3 分科会、ラフォーレ蔵王 (2009-06)
- 35) T. Yanagita*: "Extracting Rare Trajectories in Chaos and Designing Network Synchrony by MCMC", Research Innovation Center Advanced Monte Carlo Algorithm Research Group 1st Workshop, Institute of Statistical Mathematics (Tokyo) (2009-06)

iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 飯間信*: 「昆虫飛翔の数理解析」、精密工学会北海道支部講演会、札幌 (2009-12)
- 2) 飯間信*: 「はばたき飛翔に埋め込まれた数理構造」、第7回早稲田大学「流体数学セミナー」、東京 (2009-12)
- 3) 西浦廉政*: 「生まれ、広がり、ぶつかる世界 —パターンダイナミクス入門—」、現象数理学: 冬の学校、明治大学紫紺館 (2009-12)
- 4) 柳田達雄*: 「河川の数理モデリング〜大蛇行流の再現に向けて」、N.L.P.M. コロキウム、広島大学 (2009-12)
- 5) 飯間信*: 「飛行と泳ぎの流体力学モデルの解析」、北陸 M 倶楽部セミナー、金沢 (2009-11)
- 6) 飯間信*: 「Hydrodynamical study of flapping models」、東北大学工学部石黒研究室セミナー、仙台 (2009-11)
- 7) 西浦廉政*: 「非線形散逸系ダイナミクスの最近の話題」、京都大学物理学第一教室談話会、京都大学物理学教室第一教室 (2009-10)
- 8) M. Iima*: "Hydrodynamical study of flapping models", "Complex Nonlinear Processes in Chemistry and Biology", Berlin, Germany (2009-07)

- 9) 西浦廉政*: 「散逸系空間局在解の強い相互作用をめぐって (Strong interactions for dissipative solitons)」, 九州大学数理学研究院談話会、九州大学数理学研究院 (2009-06)
- 10) 飯間信*: 「昆虫飛翔の数理解析」、千葉大学劉研究室セミナー、千葉 (2009-04)
- 11) 西浦廉政*, 寺本敬、上田肇一、袁曉輝: 「散逸系粒子解の強い相互作用をめぐって」、非線形科学コロキウム、早稲田大学理工学術院西早稲田キャンパス55号館 S 棟 2 階第 4 会議室 (2009-04)

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

- 1) M. Iima, T. Nagai, Y. Nishiura, Y. Oshita and I. Tsuda: "Sapporo Winter School 2010 for nonlinear nano-system science", 41 人, Enyuu Gakusha, Hokkaido University (Sapporo) (2010年2月17日~2010年2月19日)
- 2) 柳田達雄: 「地形のダイナミクスとパターンとその境界領域」、20 人、九州大学応用力学研究所 (福岡) (2009年11月26日~2009年11月27日)
- 3) F. Peper, H. Umeo, N. Matsui, T. Isokawa and Y. Nishiura: "IWNC 2009 Final Program Fourth International Workshop on Natural Computing", イーグレ姫路 (兵庫県姫路市) (2009年9月23日~2009年9月25日)
- 4) T. Takada and Y. Nishiura: "One Day Workshop "Recent Topics in Mathematical Biology"", RIES, Hokkaido University (Sapporo) (2009年7月26日)
- 5) M. Mimura, Y. Nishiura, D. Ueyama and T. Yamaguchi: "International Workshop on Self-organization in Chemical and Biological Systems: Modeling, Analysis and Simulation", Shikon-Kan, Surugadai Campus (Tokyo), Meiji University (Tokyo) (2009年7月7日~2009年7月9日)
- 6) 佐藤譲、飯間信、後藤晋: 「Long-term workshop: Time-series analysis and statistics of hierarchical dynamics with large degrees of freedom」、理化学研究所 (和光) (2009年5月25日~2009年5月30日)

4.10 予算獲得状況

- a. 科学研究費補助金 (研究代表者、分類名、研究課題、期間)
 - 1) 西浦廉政、新学術領域研究 研究領域提案型、ヘテロな動的パターンの数理解析、2009~2013年度
 - 2) 飯間信、若手研究 B、生物における飛翔・推進の流体力学的理論の新展開、2009~2010年度
 - 3) 西浦廉政、基盤研究 B 一般、散逸系孤立波の相互作用理論の新展開、2009~2012年度
 - 4) 西浦廉政、基盤研究 B 一般、フェイズフィールド法を基点とした数理解析の展開、2009~2012年度
 - 5) 柳田達雄、基盤研究 C 一般 (1)、ネットワーク結合力学系の機能的設計とその普遍性、2009~2010年度

6) 西浦廉政、萌芽研究、計算論ホモロジーの応用による材料科学の展開、2007～2009年度

7) 西浦廉政、基盤研究 S、非線形非平衡反応拡散系理論の確立、2006～2010年度

f. その他 (研究担当者、機関名、研究題目、研究期間、総経費、研究内容)

1) 柳田達雄 (九州大学応用力学研究所): 「地形のダイナミクスとパターンおよびその境界領域」、2009年度、300千円、多くの地形変化のダイナミクスは流体運動とそれに伴う物質移動からなっている。物質移動は、流体運動を規定している境界条件を変化させ、その変化が流れにフィードバックする極めて非線形性の強い現象である。地形変化の代表的な例は、河川 流路変化・河岸変化・砂丘移動・鍾乳石形成・熱収縮割れ目の形成と多岐にわたり、各分野で異なる対象・異なる方法論で取り扱われてきた。本研究集会では、これらの現象を流れとそれに伴う物質移動による境界の自発的運動として捉え、異分野での理論、数値計算、実験・観測など異なる方法論の研究者が最新の知識を共有することにより、新たな知見を見いだすことを目的とした。

2) 柳田達雄 (統計数理研究所): 「マルコフ連鎖モンテカルロ法による機能的力学系の設計」、2009年度、350千円、本共同研究では決定論的力学系の初期値をサンプリングし直接的数値計算では得ることが難しい「珍しい現象」を求める。ここで、珍しい現象とは、不安定な極限集合に収斂する軌道や平均値とは遠い統計的性質を示す軌道である。さらに、サンプリングを初期値空間とパラメータ空間の直積空間へ拡張することにより、大域分岐構造の解明に向けての応用を試みる。

3) 西浦廉政、寺本敬 (三菱レイヨン(株)): 「光重合誘起相分離による自己組織化現象のメカニズム解明に関する研究」、2009年度、909千円、平行UV光照射での光重合反応により相分離構造が誘起される。その規則化挙動の要因を、動力学シミュレーションにより数値解析し、キーパラメーターを抽出する。共同研究を通じ、機能性フィルム製造技術の高度化を確立する。

4.12 社会教育活動

a. 公的機関の委員

1) 西浦廉政: 日本学術会議連携委員 (2006年8月20日～現在)

2) 柳田達雄: 科学技術政策研究所 科学技術動向センター 専門調査員 (2004年4月1日～現在)

3) 柳田達雄: 雑誌「物性研究」編集委員 (2009年4月1日～現在)

b. 国内外の学会の役職

1) 飯間信: 2010年度日本流体力学会年会実行委員会委員 (2010年1月1日～2010年9月30日)

2) 飯間信: 日本物理学会 領域11役員 (2009年5月1日～

2010年4月30日)

3) 西浦廉政: Chaos, Associate Editor (2009年1月1日～現在)

4) 西浦廉政: 日本応用数理学会評議員 (2006年4月1日～現在)

5) 西浦廉政: 日本数学会評議員 (2006年3月1日～現在)

6) 西浦廉政: European Journal of Applied Mathematics, Associate Editor (2005年1月1日～現在)

7) 西浦廉政: Physica D, Editor (2002年4月1日～現在)

8) 西浦廉政: Japan Journal of Industrial and Applied Mathematics, Associate Editor (1997年4月1日～現在)

9) 西浦廉政: Hokkaido Mathematical Journal, Editor (1995年4月1日～現在)

c. 併任・兼業

1) 西浦廉政: (独) 科学技術振興機構「数学と諸分野の協働によるブレイクスルーの探索」領域 研究総括 (2007年5月1日～現在)

d. 受賞

1) 飯間信: ベストオーサー賞 (論文部門) 「蝶の飛翔に潜む数理構造」(日本応用数理学会) 2009年9月

e. 新聞・テレビ等の報道

・新聞

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

g. 北大での担当授業科目 (対象、講義名、担当者、期間)

1) 全学教育科目「環境と人間: 光・バイオ・分子で拓くナノテクノロジー」西浦廉政 (分担) 2009年4月1日～2010年3月31日

2) 理学院、共通科目「数理科学概説」、西浦廉政 (分担) 2009年4月1日～2010年3月31日

3) 理学院、数学研究、西浦廉政、2009年4月1日～2010年3月31日

4) 理学院、数学基礎研究 I, II, III, IV、西浦廉政、2009年4月1日～2010年3月31日

5) 理学部、数理科学演習、柳田達雄、2009年10月1日～2010年3月31日

6) 理学部、数理科学A、飯間信、2009年10月1日～2010年3月31日

7) 理学院、数学研究、柳田達雄、2009年4月1日～2010年3月31日

8) 理学部、数学卒業研究、柳田達雄、2009年4月1日～2010年3月31日

9) 理学院、数学基礎研究I、柳田達雄、2009年4月1日～2010年3月31日

10) 理学部、数学卒業研究、飯間信、2009年4月1日～2010年3月31日

11) 理学院、数学基礎研究 I、飯間信、2009年4月1日～2010年3月31日

i. 北大以外での非常勤講師

1) 西浦廉政、京都大学理学研究科、非線形・非平衡ダイ

ナミクスの数理、2009年10月28日～2009年10月30日

- 2) 西浦廉政、九州大学理学府、散逸系における孤立波の相互作用について、2009年6月1日～2009年6月5日

i. ポスドク・客員研究員など

- ・ポスドク（4名）

齋藤宗孝（電子科学研究所）、渡辺毅（工学部VBL）、岩田友紀子（工学部VBL）、袁曉輝（工学部VBL）

j. 修士学位及び博士学位の取得状況

- ・修士課程（5名）

高島朋之、前田太朗、大賀淳史、及川智絵、鈴木悠介

- ・博士後期課程（1名）

西 慧

- ・修士論文

- 1) 大賀淳史：植物における花成の数理モデル～ネットワーク上の化学物質輸送は花や葉の分布をどう決めるか？
- 2) 及川智絵：粘性の大きい流体中を泳ぐ球状微生物のシミュレーション
- 3) 鈴木悠介：浅水方程式を用いた津波の数値解析

神経情報研究分野

准教授 青沼仁志（北大院、理博、2001.1～）

助 教 西野浩史（岡山大院、学博、2000.10～）

博士研究員 佐倉 緑（北大院、工博、2005.10～）

勝又綾子（岩手大、農博、2009.4.～2009.5）

1. 研究目標

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

2. 研究成果

生物は、長い時間をかけて様々な適応機能を進化させてきた。そのひとつが脳機能である。動物は、外界の環境変化に応じて行動を決定し発現する。動物は、しばしば集団や社会を形成する。社会は、ひとつの環境要因がとして働き、それぞれの個体行動を拘束する。我々は、動物が社会環境の中で状況に応じて行動を決定し発現する適応的なメカニズムの解明を目指した。

我々は、昆虫で見られる闘争行動に焦点をあて、動物が刻々と変化する社会環境の中で、実時間で行動を決定し発現する際の神経生理機構を明らかにし、適応行動の発現メカニズムを理解しようとしてきた。昆虫は脊椎動物に比べ体が小さく、脳神経系は小規模でわずか 10^6 個程の細胞から構成されている。ところが、昆虫は、その小規模な脳を使い、優れた感覚受容、情報処理、運動発現などのメカニズムをもち、環境に適応している。動物の学習・記憶・知能をはじめ、動機づけによる行動の修飾、階層的ルールに基づく行動選択や決定など、高次行動制御の神経生理学的機序を解明するためには、従来の行動観察や細胞レベルでの生理学的な解析に、構成論的アプローチを取り入れて、社会適応のメカニズムの解明に挑んできた。

社会的な経験に基づく柔軟な行動発現を司るメカニズムを解明するため、昆虫クロコロギの闘争行動を題材に研究を進めた。攻撃行動を誘発する体表フェロモンの成分の化学分析と有機合成、異なるモダリティの刺激が攻撃行動の発現に与える影響、一酸化窒素(NO)やオクトパミン(OA)をはじめとした生体アミンが攻撃行動の発現に及ぼす効果を薬理的、生理学的な実験で調べ、その結果をも

とに、動的行動モデルと神経生理モデルを改良し妥当性の検討を進めた。

行動発現の神経機構には、神経伝達や神経修飾の働きが重要である。薬理行動学実験から、闘争行動の発現には、NO/cGMP シグナル系が重要な役割を担うことを示した。闘争の開始15分前に予めNOS 阻害剤 L-NAME を頭部に注入し対戦させると、通常と同様に闘争が観察できる。ところが、対戦後隔離してから再び両者を対戦させると、敗者は再び相手を攻撃することが分かった。同様の結果は、sGC の阻害剤 ODQ を頭部に注入しても観察され、NO/cGMP シグナル伝達系が、闘争行動に深くかかわることがわかった。

一方、生体アミンのオクトパミン(OA)も闘争行動の発現に深く関与する。闘争の前後で、コロギの脳内の生体アミンレベルの変化を比較すると、闘争の終結直後には、敗者ではより顕著に OA レベルが低下することが分かった。さらに、OA レベルの低下が闘争開始前の状態に戻るまでの時間は、敗者ではおよそ1時間程度かかり、勝者では敗者に比べて比較的早くもとの状態に戻ることを示唆された。

次に、OA が攻撃行動の発現や闘争性の強さにどのように影響を与えるか調べるため、薬理的に OA の機能を阻害し攻撃行動を観察した。その結果、OA 阻害剤ミアンセリンを投与すると、有意に攻撃性が低下した。一方、NO は、脳内 OA レベルを低下させる働きをもつ。闘争時の NO は、OA の働きを抑制する働きがあり、それにより攻撃行動が抑えられ、敗者では他個体に対して忌避行動を発現することが示唆された。そこで、NO 供与剤と OA 阻害剤を同時に投与し、攻撃行動の発現にかかわる影響を調べた。OA の阻害剤を頭部に投与すると、攻撃行動の回復には有意に長い時間がかかるようになったが、これらの薬物はどれも闘争の直後に投与してもその効果は現れなかった。ところが、NOS 阻害剤と OA 阻害剤を同時に投与すると、それぞれの薬物の効果が打ち消されることが分かった。即ち、NO と OA が中枢神経系のなかでは協調して働くことで、それぞれの個体の攻撃性を調節していることが示唆された。

昆虫の行動発現には、化学感覚情報が重要な役割を担う。化学感覚情報処理やその発達の神経基盤の解明には、ワモンゴキブリを使って研究に取り組んだ。自然界に無数に存在する匂いを識別するしくみについては、受容体の匂い分子との緩い結合性の発見や一遺伝子・一糸球体ルール（同一の受容体を発現する感覚細胞の軸索が特定の糸球体に収束する）の発見によってその全容が明らかになりつつある。対照的に、匂いの位置や方向をどのように符号化しているのかについての研究は極めて少ない。匂い分子の嗅受容器への接触は数十ミリ―数百ミリ秒のオーダーに過ぎず、しかもその接触頻度は匂い源から離れるほどより間欠的となる。この問題を動物がどのように克服して、正確な匂い源定位を行うのかを明らかにするため取り組んだ。

昆虫のワモンゴキブリは夜行性で、採餌や交尾相手の発見をほぼ全面的に嗅覚に依存しており、匂い源への正確な定位能力を持つ。性フェロモンの位置検出に寄与する嗅覚

介在ニューロンの同定に成功した。蛍光色素を充填したガラス管微小電極を脳内に刺入し、触角葉（一次嗅覚中枢）中に樹状突起を持ち、軸索を脳高次ニューロパイルに伸ばす嗅覚介在ニューロン（投射ニューロン）からの細胞内記録を行った（図1左）。その結果、触角へのどの領域の刺激に対しても良く似た応答を示す介在ニューロンが1本存在すること（図1右）、触角の特定領域に受容野を持つ小さなニューロンが複数存在することを突き止めた。さらに触角神経に別の蛍光色素を注入することで、介在ニューロンの樹状突起と嗅感覚細胞の軸索終末との位置関係を共焦点レーザー顕微鏡にて精査したところ、嗅感覚細胞の位置依存性投射マップと良い対応関係がみられることを明らかにした。

つぎに、性フェロモン処理に寄与する糸球体の後胚発生様式を解明した。雄の触角葉には隣接する2個の大糸球体があり、各々は異なる性フェロモン成分の処理に特化している。ゴキブリは孵化後、10回の脱皮を経て成虫になる。成長とともに触角内の嗅受容細胞数は増加し、糸球体の体積も増加する。各ステージの幼虫の触角神経に色素を注入し、糸球体に投射する求心線維の体積や投射パターンを調べた。その結果、1) 孵化直後の1齢幼虫にも成虫と同数の糸球体が存在していること、2) 2個の大糸球体（図1左、A、B糸球体）の成長の経時変化はそれぞれ大きく異なっていること、3) 性フェロモン受容細胞の求心線維に見られる細胞体位置依存的組織化は高齢幼虫になるほど顕著になること、4) 雌にも雄の巨大糸球体と相同の糸球体が存在するが、これらの糸球体の中齢幼虫以降の成長率が低いため、雄の1/30程度の体積に留まること、などを明らかにした。

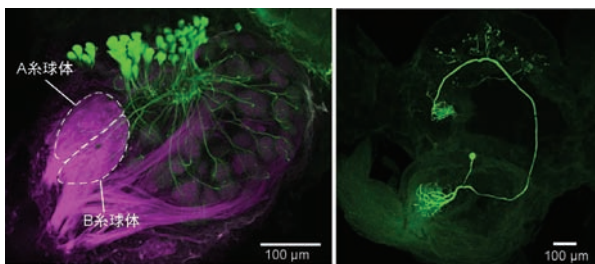


図1. オスゴキブリ触角葉中で性フェロモンを処理する2つの糸球体（左）とB糸球体から出力する投射ニューロン（右）

これらの知見をもとに、動的行動モデルと神経生理学モデルの構築を行い、その計算機シミュレーションで妥当性を検討してきた。また、実際の昆虫の行動とシミュレーション結果を比較しながらモデルの改良を共同で進めた。また、その過程で、個体密度にともなって闘争性が変化する行動発現のメカニズムについて、内部状態として働くNOやOAの役割を仮説として想定し、内部状態の形成過程について考察した。行動モデルから、個体密度を変化させた時に起こる個体行動の挙動が、実際の昆虫を使い行動実験した時と似た挙動を示すのかを検証実験したところ、昆虫の集団では、構築したモデルと同様に、それぞれの個体が

他個体と接触し、その相互作用で常に内部状態が更新されることが適応的な行動の発現に重要であることが示唆された。同様に、NO/OA系の働きをもとに構築した神経生理学モデルでも、オープンループモデルでは高密度状態の行動の挙動が説明できず、脳内での情報処理過程でのフィードバックと、他個体との接触による社会環境を通したフィードバックという多重フィードバック構造（図2）が社会適応を創り出す上で重要なメカニズムであることが理解できた。

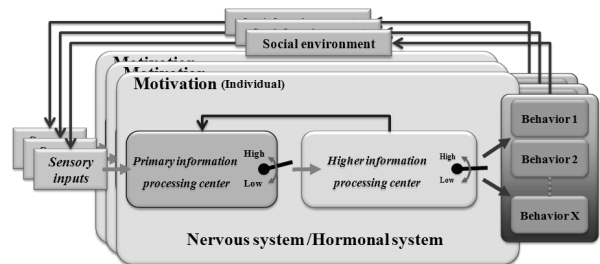


図2. 社会適応を創り出す重フィードバック構造。脳神経系におけるフィードバック構造は、神経系と液性系が関与していると考えられる。社会環境を通したフィードバック構造は、他個体との相互作用や個体群間の相互作用などで形成される。

3. 今後の研究の展望

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

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

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) H. Nishino, A. Yoritsune and M. Mizunami: “Postembryonic development of sexually dimorphic glomeruli and related interneurons in the cockroach *Periplaneta americana*.”, *Neurosci. Lett.*, Elsevier, 469 : 60–64 (2010)
- 2) A. Nakanishi, H. Nishino, H. Watanabe, F. Yokohari and M. Nishikawa: “Sex-specific antennal sensory system in the ant *Camponotus japonicus*: structure and distribution of sensilla on the flagellum.”, *Cell Tissue Res.*, Springer, 338 : 79–97 (2009)
- 3) Y. Nakatani, Y. Matsumoto, Y. Mori, D. Hirashima, H. Nishino, K. Arikawa and M. Mizunami: “Why the carrot is more effective than the stick: different dynamics of punishment memory and reward memory and its possible biological basis”, *Neurobiol Learn Mem*, Elsevier, 92(3) : 370–380 (2009)
- 4) H. Nishino, A. Yoritsune and M. Mizunami: “Different growth patterns of two adjacent glomeruli responsible for sex-pheromone processing during postembryonic development of the cockroach *Periplaneta americana*”, *Neurosci. Lett.*, 462 : 219–224 (2009)
- 5) H. Nishino, M. Nishikawa, M. Mizunami and F. Yokohari: “Functional and topographic segregation of glomeruli revealed by local staining of antennal sensory neurons in the honeybee *Apis mellifera*”, *J. Comp. Neurol.*, 515 : 161–180 (2009)
- 6) M. Ashikaga, M. Sakura, M. Kikuchi, T. Hiraguchi, R. Chiba, H. Aonuma and J. Ota: “Establishment of social status without individual discrimination in the cricket”, *Advanced Robotics*, 23 : 563–578 (2009)

4.2 総説、解説、評論等

- 1) K. Kawabata, H. Aonuma, J. Ota and H. Asama: “Modeling of Neuromodulation for Behavior Selection of the Cricket : Synthetic Neuroethology”, *Workshops/Tutorials Proceedings of the 2009 IEEE/RSJ International Conference on Intelligent Robots and Systems, Workshop: Mobiligence: Adaptive Motor Function through Dynamic Interactions among the Body, Brain and Environment*, IEEE : 16–21 (2009)
- 2) H. Aonuma, M. Sakura, J. Ota and H. Asama: “Social Adaptive Functions in Animals –Learning from Insect Social Behaviors–”, *Workshops/Tutorials Proceedings of the 2009 IEEE/RSJ International Conference on Intelligent Robots and Systems, Workshop: Mobiligence: Adaptive Motor Function through Dynamic Interactions among the Body, Brain and Environment*, IEEE : 10–15 (2009)
- 3) 青沼仁志、安藤則泰、伊藤悦朗、岡田龍一、小川宏人、

佐倉緑、竹内秀明:「身近な動物を使った学実験4 ミツバチ コオロギ スズメガ」、身近な動物を使った学実験4 ミツバチ コオロギ スズメガ、三共出版(鈴木範男編):1–88(2009)

- 4) 青沼仁志:「昆虫の記憶・学習と神経可塑性の分子機構」、「動物は何を考えているのか?:学習と記憶の比較生物学」、共立出版、第4巻:159–175(2009)
- 5) 西野浩史:「昆虫の擬死:無駄な抵抗はやめよう」、動物の多様な生き方(全5巻)2.動物の生き残り術:行動とそのしくみ、共立出版、2:58–77(2009)
- 6) S. Yano, Y. Ikemoto, H. Aonuma, T. Nagao and H. Asama: “Modeling of Self-organized Competition Hierarchy with Body Weight Development in Larval Cricket, *Gryllus bimaculatus*”, *Distributed Autonomous Robotic Systems 8*, Springer Berlin Heidelberg : 97–107 (2009)
- 7) 藤井喬、川端邦明、青沼仁志、佐倉緑、鈴木剛、太田順、浅間一:「クロコオロギの行動選択機構のモデリングに関する研究 ~触角からの感覚入力感受性による群行動の変容についての考察~」、第22回自律分散シンポジウム・シンポジウム予稿集、10SY0002:213–218(2010)
- 8) 矢野史朗、池本有助、青沼仁志、浅間一:「空間構造を考慮したコオロギの闘争行動モデルと個体順位の空間的分布に関する考察」、第22回自律分散シンポジウム・シンポジウム予稿集、10SY0002:219–222(2010)
- 9) 西野浩史:「Comparative and Evolutionary Neuroethology: Its Japanese Roots」、科学、岩波書店、79(6):630–635(2009)

4.3 国際会議議事録等に掲載された論文

- 1) H. Aonuma, J. Ota, K. Kawabata, D. Kurabayashi, R. Kanzaki and H. Asama: “Understanding social adaptive functions in animals”, *The 3rd international Symposium on Mobiligence*, 3 : 74–78 (2009)
- 2) K. Kawabata, T. Fujii, H. Aonuma, T. Suzuki, M. Ashikaga, J. Ota and H. Asama: “A neuro-modulation model of behavior selection in the fighting behavior of male crickets”, *The 3rd international Symposium on Mobiligence*, 3 : 271–276 (2009)
- 3) S. Yano, Y. Ikemoto, H. Aonuma and H. Asama: “Forgetting curve derived by serotonin hypothesis in cricket, *Gryllus bimaculatus*”, *The 3rd international Symposium on Mobiligence*, 3 : 324–327 (2009)
- 4) M. Sakura, M. Kikuchi and H. Aonuma: “Role of nitric oxide and octopamine in the aggressive behavior of the cricket”, *The 3rd international Symposium on Mobiligence*, 3 : 328–331 (2009)
- 5) T. Mizuno, M. Sakura, M. Ashikaga, H. Aonuma, R. Chiba and J. Ota: “Modeling of the effects of multi-modal inputs on the aggressive behavior using handicapped crickets”,

The 3rd international Symposium on Mobiligence, 3 : 332-337 (2009)

- 6) J. Ota, H. Aonuma and H. Asama: "Mobiligence: Emergence of Adaptive Motor Function through Interaction among the Body, Brain and Environment", *Workshops/Tutorials Proceedings of the 2009 IEEE/RSJ International Conference on Intelligent Robots and Systems, Workshop: Mobiligence: Adaptive Motor Function through Dynamic Interactions among the Body, Brain and Environment*, IEEE : 3-9 (2009)
- 7) R. D. Guerra, H. Aonuma, K. Hoshoda and M. Asada: "Using Micro-robots as a Tool for Insect Behavior Studies", *Workshops/Tutorials Proceedings of the 2009 IEEE/RSJ International Conference on Intelligent Robots and Systems, Workshop: Mobiligence: Adaptive Motor Function through Dynamic Interactions among the Body, Brain and Environment*, IEEE : 39-44 (2009)

4.7 講演

i) 学会

- 1) 深谷緑、西野浩史、高梨琢磨:「マツノマダラカミキリの触角「迎え打ち」反応における視覚情報と振動情報の協力作用」、日本応用動物昆虫学会第54回大会、千葉大学・西千葉キャンパス (2010-03)
- 2) 高梨琢磨、深谷緑、久保島吉貴、石田厚、神崎菜摘、中野亮、小池卓二、西野浩史:「振動に対するマツノマダラカミキリの反応性及びマツの「自己」振動の特性」、日本応用動物昆虫学会第54回大会、千葉大学・西千葉キャンパス (2010-03)
- 3) 山崎まどか、佐倉緑、青沼仁志、松山茂、秋野 順治、山岡亮平:「ついに解明!!クロコオロギ雄の喧嘩行動誘起フェロモン」、第54回日本応用動物昆虫学会大会、千葉大学 (2010-03)
- 4) 佐倉緑、岡田龍一、青沼仁志:「セイヨウミツバチの偏光知覚機構の解明」、CompBiol 2009大会、千里ライフサイエンスセンター (大阪) (2009-10)
- 5) 岡田龍一、赤松 忠明、岩田可南子、池野英利、木村敏文、大橋瑞江、青沼仁志、伊藤悦朗:「ミツバチの尻振りダンスとコロニーの集蜜量の関係」、CompBiol 2009大会、千里ライフサイエンスセンター (大阪) (2009-10)
- 6) 西野浩史、頼経篤史:「不完全変態昆虫の嗅覚経路にみられる性的二形の形成機構」、日本比較生理生化学会第31回大会CompBiol2009、大阪 (千里ライフサイエンスセンター) (2009-10)
- 7) 渡邊英博、西野浩史、西川道子、横張文男:「ゴキブリ嗅覚情報処理過程における触角葉局所介在ニューロンの役割」、日本比較生理生化学会第31回大会 CompBiol 2009、大阪 (千里ライフサイエンスセンター) (2009-10)
- 8) 中西あき、西野浩史、渡邊英博、横張文男、西川道子:「クロオオアリ触角感覚系における雌特異性」、日本比

較生理生化学会第31回大会 CompBiol2009、大阪 (千里ライフサイエンスセンター) (2009-10)

- 9) 西野浩史、頼経篤史、岩崎正純:「昆虫の嗅覚糸球体はダイナミックな発生過程をたどる」、日本動物学会第80回大会、静岡グランシップ (2009-09)
 - 10) 渡邊英博、西野浩史、西川道子、横張文男:「ワモンゴキブリ嗅覚投射ニューロンの時空間的情報処理」、日本動物学会第80回大会、静岡グランシップ (2009-09)
 - 11) 中西あき、西野浩史、渡邊英博、横張文男、西川道子:「クロオオアリ触角における雌特異的感覚子」、日本動物学会第80回大会、静岡グランシップ (2009-09)
 - 12) 中西あき、西野浩史、渡邊英博、横張文男、西川道子:「クロオオアリ触角葉における雌特異的糸球体群」、日本動物学会第80回大会、静岡グランシップ (2009-09)
 - 13) 岡田龍一、池野英利、木村敏文、大橋瑞江、青沼仁志、伊藤悦朗:「採集行動におけるミツバチの8の字ダンスの効果」、日本動物学会第80回大会、東静岡グランシップ (2009-09)
 - 14) 佐倉緑、菊地美香、青沼仁志:「クロコオロギの攻撃行動発現における一酸化窒素およびオクトパミンの関与」、日本動物学会第80回大会、東静岡グランシップ (2009-09)
 - 15) 石川由希、青沼仁志、佐々木謙、三浦徹:「兵隊シロアリの攻撃性に関する生体アミンシステム」、第11回日本進化学会大会、北海道大学 (2009-09)
 - 16) 矢野史朗、池本有助、青沼仁志、浅間一:「クロコオロギの闘争行動を修飾する脳内Serotonin の発達モデルと密度効果の影響」、第11回日本進化学会大会、北海道大学 (2009-09)
 - 17) S. Yano, Y. Ikemoto, H. Aonuma and H. Asama: "Development of Neurotransmitter Modulation on Aggression and Dominance Hierarchy in Cricket, *Gryllus bimaculatus*", ICROS-SICE International Joint Conference 2009, 福岡国際会議場 (2009-08)
 - 18) 藤井喬、川端邦明、青沼仁志、鈴木剛、足利昌俊、太田順、浅間一:「クロコオロギの行動選択機構のモデリングに関する研究 ―内部状態レベルによる行動選択に関する考察―」、ロボティクス・メカトロニクス講演会2009 (ROBOMECH 2009)、福岡国際会議場 (2009-05)
 - 19) 中西あき、西野浩史、渡邊英博、横張文男、西川道子:「クロオオアリ触角の性的二形と鞭節感覚子」、第62回日本動物学会九州支部大会、宮崎大学 (2009-05)
 - 20) 渡邊英博、西野浩史、西川道子、横張文男:「ワモンゴキブリ触角葉における糸球体構成」、第62回動物学会九州支部大会、宮崎大学 (2009-05)
- ##### ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) 青沼仁志:「コオロギの社会適応行動の構成論的研究」、国立情報学研究所・社会的知能発生学研究会・公開シンポジウム、学術総合センター (2010-03)
 - 2) 藤井喬、川端邦明、青沼仁志、佐倉緑、鈴木剛、太田

- 順、浅間一：「クロコオロギの行動選択機構のモデリングに関する研究－触角からの感覚入力感受性による群行動の変容についての考察－」、第22回自律分散システム・シンポジウム、名古屋大学（2010-01）
- 3) 矢野史朗、池本有助、青沼仁志、浅間一：「空間構造を考慮したコオロギの闘争行動モデルと個体順位の空間的分布に関する考察」、第22回自律分散システム・シンポジウム、名古屋大学（2010-01）
 - 4) 岩崎正純、池田正幸、西野浩史：「昆虫脳の単一ニューロンの活動記録・染色法」、第15回低温科学研究所技術報告会、北大・低温研・2階講義室（2009-12）
 - 5) A. Nakanishi, H. Nishino, H. Watanabe, F. Yokohari and M. Nishikawa: “Sex-specific antennal sensilla of the carpenter ant *Camponotus japonicus*.”, Memorial Symposium for the 25th International Prize for Biology “Biology of Sensing” Celebrating Dr. Winslow R. Briggs, Shiran Kaikan, Kyoto University (2009-12)
 - 6) H. Aonuma, J. Ota, K. Kawabata, D. Kurabayashi, R. Kanzaki and H. Asama: “Understanding social adaptive functions in animals”, The 3rd International Symposium on Mobiligence, Awaji (2009-11)
 - 7) K. Kawabata, T. Fujii, H. Aonuma, T. Suzuki, M. Ashikaga, J. Ota and H. Asama: “A neuro-modulation model of behavior selection in the fighting behavior of male crickets”, The 3rd International Symposium on Mobiligence, Awaji (2009-11)
 - 8) S. Yano, Y. Ikemoto, H. Aonuma and H. Asama: “Forgetting curve derived by serotonin hypothesis in cricket, *Gryllus bimaculatus*”, The 3rd International Symposium on Mobiligence, Awaji (2009-11)
 - 9) M. Sakura, M. Kikuchi and H. Aonuma: “Role of nitric oxide and octopamine in the aggressive behavior of the cricket”, The 3rd International Symposium on Mobiligence, Awaji (2009-11)
 - 10) T. Mizuno, M. Sakura, M. Ashikaga, H. Aonuma, R. Chiba and J. Ota: “Modeling of the effects of multi-modal inputs on the aggressive behavior using handicapped crickets”, The 3rd International Symposium on Mobiligence, Awaji (2009-11)
 - 11) J. Ota, H. Aonuma and H. Asama: “Mobiligence: Emergence of Adaptive Motor Function through Interaction among the Body, Brain and Environment”, IROS 2009: The 2009 IEEE/RSJ International Conference on Intelligent RObots and Systems, St.Louis, MO, USA (2009-10)
 - 12) H. Aonuma, M. Sakura, J. Ota and H. Asama: “Social Adaptive Functions in Animals -Learning from Insect Social Behaviors-”, IROS 2009: The 2009 IEEE/RSJ International Conference on Intelligent RObots and Systems, St.Louis, MO, USA (2009-10)
 - 13) K. Kawabata, H. Aonuma, J. Ota and H. Asama: “Modeling of Neuromodulation for Behavior Selection of the Cricket: Synthetic Neuroethology Approach”, IROS 2009: The 2009 IEEE/RSJ International Conference on Intelligent RObots and Systems, St.Louis, MO, USA (2009-10)
 - 14) G. D. Rodrigo, H. Aonuma, K. Hosoda and M. Asada: “Using Micro-robots as a Tool for Insect Behavior Studies”, IROS 2009: The 2009 IEEE/RSJ International Conference on Intelligent RObots and Systems, St.Louis, MO, USA (2009-10)
 - 15) 佐倉緑、菊地美香、青沼仁志：「クロコオロギの攻撃行動発現における一酸化窒素およびオクトパミンの効果」、無脊椎動物神経生物研究会、西表島上原多目的集会場（2009-09）
 - 16) 青沼仁志：「昆虫の行動解析ツールとしてのロボット」、無脊椎動物神経生物研究会、西表島上原多目的集会場（2009-09）
- #### 4.8 シンポジウムの開催
- ・一般のシンポジウム（組織者名、シンポジウム名、参加人数、開催場所、開催期間）
 - 1) 青沼仁志、浅間一、太田順：「IROS 2009 Workshop on Mobiligence: Social Adaptive Functions in Animals and Multi-Agent Systems」、参加人数30名 St. Louis, MO, USA, 2009年10月11日～2009年10月15日）
- #### 4.9 共同研究
- d. 受託研究（研究担当者、機関名、研究題目、研究期間、総経費、研究内容）
 - 1) 青沼仁志、高畑雅一（北海道大学、理化学研究所）：無脊椎動物脳プラットフォームの開発と運用、2005～2012年度、研究経費2,800千円、無脊椎動物を対象とする神経生理、化学、行動学に関連する情報を共有するシステムの開発、構築を進めるもので、NIJCにおけるプラットフォームの一貫として運用を進めていく。
- #### 4.10 予算獲得状況
- a. 科学研究費補助金（研究代表者、分類名、研究課題、期間）
 - 1) 西野浩史、基盤研究 C、匂い位置検出ニューロンの活動動態の解明、2008～2010年度
 - 2) 青沼仁志、特定領域研究、環境に適応するための高次行動を制御する神経生理機構のシステム的理解、2005～2009年度
- #### 4.11 受賞
- 1) 渡邊英博、西野浩史、西川道子、横張文男：最優秀発表論文賞（学会賞）「ゴキブリ嗅覚情報処理過程における触角葉局所所在ニューロンの役割」（日本比較生理生化学会）2009年10月

4.12 社会教育活動

b. 国内外の学会の役職

- 1) 青沼仁志：ニューロエソロジー談話会 世話人（2009年4月1日～2012年3月31日）
- 2) 青沼仁志：日本動物学会北海道支部 役員（2009年1月1日～2011年12月31日）
- 3) 青沼仁志：The Neuroinformatics Japan Center, Invertebrate Brain Platform委員（2006年4月1日～2010年3月31日）
- 4) 青沼仁志：移動知教科書出版ワークグループ委員（2008年4月1日～2010年3月31日）

g. 北大での担当授業科目（対象、講義名、担当者、期間）

- 1) 全学共通、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論I、青沼仁志、2009年5月12日～2009年5月15日
- 2) 生命科学院、細胞機能科学概論、青沼仁志、2009年4月1日～2009年9月30日
- 3) 生命科学院、生命システム科学基礎論、青沼仁志、2009年4月1日～2009年9月30日
- 4) 生命科学院、生命科学論文講読、青沼仁志、2009年4月1日～2010年3月31日
- 5) 生命科学院、行動システム制御科学特論、青沼仁志、2009年4月1日～2009年9月30日
- 6) 生命科学院、行動システム制御科学特論、西野浩史、2009年4月1日～2009年9月30日

i. ポスドク・客員研究員など

- ・ポスドク（2名）

j. 修士学位及び博士学位の取得状況

- ・大学院生・学位取得
博士課程（0名）

スマート分子研究分野

教授 玉置信之 (千葉大院、工博、2008.10～)
助教 亀井 敬 (東北大院、工博、2008.10～)
深港 豪 (九州大院、工博、2008.12～)
博士研究員 Meethale Chelaveettil Basheer (2008.10～
2010.3)
Thomas Reji (2009.4～)
技術補助員 館山 絵美
事務補助員 平出ありさ

1. 研究目標

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

2. 研究成果

1. 完全 ON-OFF を実現する光制御分子ブレーキの合成

ブレーキは、マクロな世界での自動車においてアクセルと同様に重要な機械であるのと同様に分子の世界でも重要である。Kelly らは、化学的刺激によって回転を制御する分子ブレーキを実現した。われわれは、アゾベンゼンの光異性化反応部位と分子内回転を起こす部位を連携させることで、新たに試薬を加えることなくクリーンな光反応で分子内の回転運動の速度を制御できないかと考えた。

合成した化合物の構造を図1に示す。化合物は、光応答性のアゾベンゼンと1, 5位で結合したナフタレンを含む環状構造を有している。そしてアゾベンゼン部位のトランス、シスの構造により光反応によって移行可能な2つの異性体を有する。その内、トランス体では、分子は伸びきった構造を有し、分子内側の空孔が狭いためにナフタレン部位の回転障壁が大きい。一方でシス体では分子内側の空孔は広がり、そのため、ナフタレン部位の回転はより自由になると考えられる。

ナフタレンの回転を止めた構造では面不斉による二つのエナンチオマーが存在し、そこではスペーサー中の各メチレンのプロトンは2種類に分裂する。温度可変NMRにおけるピークの融合温度とピーク幅から見積もったナフタレン

部位の回転速度は、トランス体とシス体でそれぞれ3.5rpmと120rpm (188Kにおいて)と異なった。これらの結果より、図1の化合物では、ナフタレンでできたプロペラ部位の回転速度を光化学反応によって変化させ得ることが証明された。

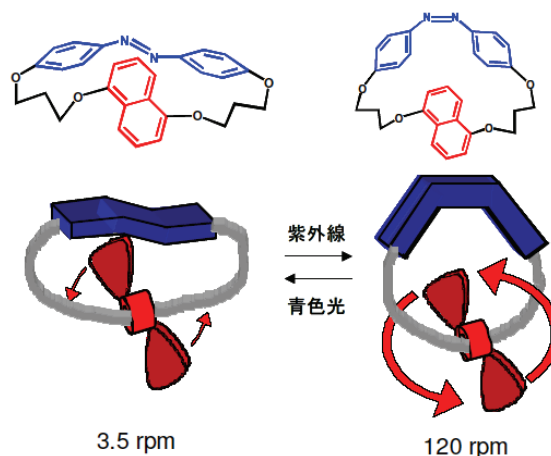


図1. 速度可変分子プロペラの構造と回転運動の模式図

上記の化合物では、ローター部の回転速度を低温に於いてある程度光制御できることを示した。しかし、分子ブレーキとしては完全に止まった状態を光反応によって達成できることが望ましい。このような完全な ON-OFF 制御は、大環状分子のスペーサー長とアゾベンゼン上の結合位置を調整することで達成された。図2に、完全な ON-OFF 制御が可能な分子プロペラの構造を示す。この化合物では、シス体では、ナフタレンローターの回転は自由に起こるが、トランス体では回転が完全に止まった。ローターの回転が止まったことは、この分子のトランス体が、面性不斉に基づく一对の鏡像異性体を有し、キラルカラムを用いる HPLC によりこれらを安定に分割することができることから証明された。

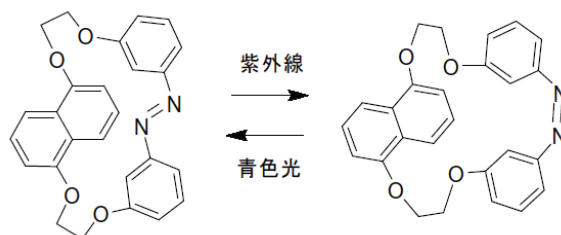


図2. ナフタレンローターの回転を完全に ON-OFF 光制御できる分子機械

2. フォトクロミズム表面によるモーター蛋白の運動機能の繰り返し光制御

キネシン/微小管系は、ATP の化学エネルギーを使って細胞内での物質移動を行うリニアモーター蛋白の一つである。本系の運動を人為的に望みの場所と時間で繰り返し制御するために、フォトクロミック分子表面の影響を調べ

た。石英またはガラス基板表面に、末端にリジンを導入したアゾベンゼンの単分子膜を設け、その上にモーター蛋白であるキネシンを吸着してATPによる微小管の移動速度を蛍光顕微鏡観察により調べた。その結果、アゾベンゼンがトランス体の時に比べてシス体リッチの時のほうが、移動速度が約15%速くなった。その変化は、366nm光と>500nm光を照射することにより繰り返された。また、単分子膜表面の接触角測定により、トランス体表面に比べてシス体リッチ表面のほうがより疎水的であり、この接触角変化も上記の光照射により繰り返されることがわかった。さらに、単分子膜表面に対する微小管の親和性を測定したところ、トランス体表面に比べてシス体リッチ表面のほうが親和性が低く、この変化も光照射によりある程度繰り返されることが判明した。以上の結果より、基板表面の性質の変化によるキネシンの活性の変化、もしくは微小管との親和性による微小管をつなぎとめるブレーキ機構の変化(図3)の2つの機構の可能性が示唆された。

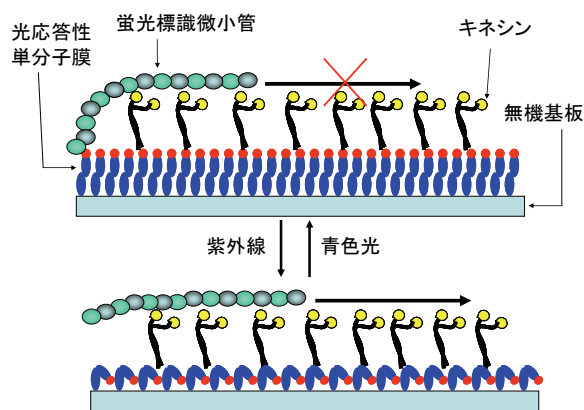


図3. 光応答性表面上でのキネシン／微小管系運動特性の光制御の模式図

3. 今後の研究の展望

今年度の研究で、単一分子系では、分子内の光応答性部位の構造変化により、別の部位の回転運動を厳密にON-OFF制御できる分子を、環状構造の精密設計により実現できた。今後は、このような仕組みを、光エネルギーによってマクロな運動を示す分子機械へと応用する。一方で、今回合成した化合物は、面性不斉に基づくキラル構造のラセミ化反応を光異性化反応によってスイッチできる分子であるとみなすことができる。そのラセミ化反応は環境のキラル場によって影響を受け、キラル場では一方の鏡像異性体に偏った平衡状態が達成されると考えられる。しかも、その偏りを光異性化反応によってラセミ化しない状態として固定できる。今後は、このような化合物の特徴を活かした、メモリー性を保持したキラルセンサーとしての機能を評価する。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) F. Zhang, M. Funahashi and N. Tamaoki : "Flexible field-effect transistors from a liquid crystalline semiconductor by solution processes", *Org.Electron.*, 11 : 363-368 (2010)
- 2) S. Furumi and N. Tamaoki : "Glass-Forming Cholesteric Liquid Crystal Oligomers for New Tunable Solid-State Laser", *Adv.Mater.*, 22(8) : 886-891 (2010)
- 3) Y. Matsuzawa, N. Tamaoki : "Photoisomerization of Azobenzene Units Controls the Reversible Dispersion and Reorganization of Fibrous Self-Assembled Systems", *J.Phys.Chem.B*, (114) : 1586-1590 (2010)
- 4) T. Fukaminato, M. Tanaka, T. Doi, N. Tamaoki, T. Katayama, M. Arabinda, Y. Ishibashi, H. Miyasaka and M. Irie : "Fluorescence photoswitching of a diarylethene-perylenebisimide dyad based on intramolecular electron transfer", *Photochem.Photobiol.Sci.*, 9 : 181-187 (2010)
- 5) M. Saitoh, T. Fukaminato and M. Irie : "Photochromism of a diarylethene derivative in aqueous solution capping with a water-soluble nano-cavitand", *J. Photochem. Photobiol. A-Chem.*, 207(1) : 28-31 (2009)
- 6) T. Fukaminato, T. Doi, M. Tanaka and M. Irie : "Photocyclization Reaction of Diarylethene-Perylenebisimide Dyads upon Irradiation with Visible (> 500 nm) Light", *J. Phys. Chem. C*, 113(27) : 11623-11627 (2009)
- 7) H. Akiyama, A. Tanaka, H. Hiramatsu, J. Nagasawa and N. Tamaoki : "Reflection colour changes in cholesteric liquid crystals after the addition and photochemical isomerization of mesogenic azobenzenes tethered to sugar alcohols", *J.Mater.Chem.*, 19 : 5956-5963 (2009)
- 8) M. Mathews and N. Tamaoki : "Reversibly tunable helicity induction and inversion in liquid crystal self-assembly by a planar chiroptic trigger molecule", *Chem.Commun* : 3609-3611 (2009)
- 9) Y. Norikane, R. Davis, Y. Nishimura, T. Arai and N. Tamaoki : "Drastic solvent effect on thermal back reaction of spiroperimidne photochromic compounds", *J.Photochem.Photobiol.A-Chem.*, 205 : 116-121 (2009)
- 10) T. Maki, N. Soh, T. Fukaminato, H. Nakajima, K. Nakano and T. Imato : "Perylenebisimide-linked nitroxide for the detection of hydroxyl radicals", *Anal. Chim. Acta*, 639(1-2) : 78-82 (2009)

4.2 総説、解説、評論等

- 1) 玉置信之 : 「面不斉型光応答性キラル添加剤」、液晶、日本液晶学会、14(1) : 32-38 (2010)
- 2) 玉置信之 : 「コレステリック液晶における選択反射の光制御」、光配向テクノロジーの開発動向、シーエムシー

出版：175-188 (2010)

4.6 特許

- 1) 玉置信之、マノジ マシューズ、長沢順一：2009-149586、光応答性キラル化合物、2009年6月24日

4.7 講演

b. 一般講演

i) 学会

- 1) 深港豪、入江正浩：「反応点に共役的に色素を導入したジアリールエテンのフォトクロミズム」、日本化学会第90春季年会、近畿大学本部キャンパス (2010-03)
- 2) 長沢順一、吉田勝、ミターレ チェラヴィッティル バッシーア、玉置信之：「面不斉を有する新規なアゾベンゼノフェンの合成と性質」、第20回基礎有機化学討論会、群馬大学工学部桐生キャンパス (2009-09)
- 3) 深港豪、土井孝夫、入江正浩、宮坂博、石橋千英、片山哲郎：「ペリレンビスイミド連結ジアリールエテンの分子内電子移動を利用した蛍光スイッチングと非破壊読み出し」、2009年光化学討論会、桐生市市民文化会館 (2009-09)
- 4) 深港豪、入江正浩、中村振一郎、横島智、篠田恵子、小林高雄：「蛍光色素を置換基に持つジアリールエテンの閉環反応における三重項の介在について」、2009年光化学討論会、桐生市市民文化会館 (2009-09)
- 5) 則包恭央、吉田勝、玉置信之：「大環状アゾベンゼンのシス・トランス異性化の理論的考察」、2009年 光化学討論会、群馬県桐生市市民文化会館 (2009-09)
- 6) 秋山陽久、吉田勝、玉置信之：「高分子水溶液中での光による球状散乱体の形成」、第58回高分子討論会、熊本大学工学部黒髪キャンパス (2009-09)
- 7) 秋山陽久、田中明日香、長沢順一、吉田勝、平松秀夫、玉置信之：「糖アルコールを骨格にもつ光応答性スメックチック液晶化合物」、2009年 日本液晶学会討論会、東京農工大学 小金井キャンパス (2009-09)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) N. Tamaoki：「A Light Controlled Molecular Brake with Complete ON-OFF Rotation」, International Symposium of Joint Research Network on Advanced Materials and Devices, HOTEL NIDOM (2010-03)
- 2) 玉置信之：「分子内回転運動の光化学的ON-OFF制御」、特別教育経費「附属研究所間関連事業」最終報告会「新産業創造物質基盤技術アライアンス」「ポストシリコン物質・デバイス創製基盤技術アライアンス」、東京国際フォーラム・D7ホール (2010-03)
- 3) 玉置信之：「分子内回転運動を完全にON-OFFする光分子ブレーキ」、特定領域研究「フォトクロミズムの攻めとメカニカル機能の創出」第5回シンポジウム、青山学院大学 (2010-01)
- 4) N. Tamaoki：「A light Controlled Molecular Brake with

Complete ON-OFF Rotation」, G-COE International Symposium on: "Dynamic Phenomena in Molecular Complex Chemistry", TOHOKU UNIVERSITY (2009-10)

- 5) 玉置信之、亀井敬：「光駆動の分子機械を創成するための基盤研究」、特定領域研究「フォトクロミズムの攻めとメカニカル機能の創出」第4回公開シンポジウム、北海道大学 学術交流会館 (2009-09)
- 6) 亀井敬：「生体モーターの高次運動システムの解明とそのメカニズムを利用したアクチュエーター創製への挑戦」、北海道高分子若手研究会、北海道 (2009-08)
- 7) N. Tamaoki, B. Meethale Chelaveetil and M. Mathews：「Planar Chiral azobenzenophanes as chiroptic switches for reversible reflection color control in induced chiral nematic liquid crystals」, SPIE Optics+Photonics, San Diego Convention Center, USA (2009-08)

iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 玉置信之：「面不斉の光可逆的制御」、クラスター講義一環 講演会、東京工業大学 (2009-11)
- 2) 玉置信之：「分子機械の回転運動の光ON-OFFスイッチ」、講演会「化学と生命のかけはし」、東京大学 (2009-09)

4.9 共同研究

d. 受託研究 (研究担当者、機関名、研究題目、研究機関、研究内容)

- 1) 玉置信之 (独立行政法人科学技術振興機構)：「輝度向上フィルムを目指した光応答性キラル液晶の実用化開発」、2009年度、キラル液晶の円偏光反射波長を光反応で変化させることにより、液晶の輝度向上フィルムを簡便に作製するための材料と作製方法の最適化を行う。
- 2) 深港豪 (科学技術振興機構(JST))：「単一分子蛍光計測で探るキラリティーの本質」、2008～2011年度、単一分子蛍光計測を応用し、円偏光励起および円偏光蛍光により分子一つ一つのキラリティーを直接計測する。

4.10 予算獲得状況

a. 科学研究費補助金 (研究代表者、分類名、研究課題、期間)

- 1) 深港豪、若手研究 B、フォトクロミズムに伴う幾何構造変化を利用した単一分子蛍光スイッチと非破壊読み出し、2009～2010年度
- 2) 玉置信之、特定領域研究、光駆動の分子機械を創成するための基盤研究、2007～2010年度

4.12 社会教育活動

c. 併任・兼業

- 1) 深港豪：さがけ「光の利用と物質材料・生命機能」領域研究者 (2008年10月1日～2012年3月31日)
- 2) 玉置信之：東京大学 大学院工学系研究科 教授 (2008年10月1日～2011年3月31日)

g. 北大での担当授業科目（対象、講義名、担当者、期間）

- 1) 全学共通、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論Ⅱ、
玉置信之、2009年12月16日～2010年12月18日
- 2) 理学院、分子組織科学特論、玉置信之、2009年10月19
日～2009年11月16日
- 3) 理学部、基礎物理化学、玉置信之、2009年4月1日～2009
年9月30日
- 4) 理学部、生物高分子科学、玉置信之、2009年7月15日
- 5) 全学共通、環境と人間、玉置信之、2009年7月3日

i. ポスドク・客員研究員など

・ポスドク（2名）

- 1) Meethale Chelaveettil Basheer
- 2) Thomas Reji

計算論的生命科学研究分野

教 授 津田一郎（京都大学、理博、2005.10～）
准教授 佐藤 譲（東京大学、博士(学術)、2006.4.～）
助 教 山口 裕（北海道大学、博士(理学)、2008.4～）
博士研究員 Kang Hunseok（ペンシルバニア州立大学、
理学(数学)、2008.4～2009.9）
学術研究員
田所 智（北海道大学、理博、2003.9～）
黒田 茂（北海道大学、修士(理学)、2005.4～2010.3）
研究生 安岡卓男（愛媛大学医、MD、2001.4～）
玉井信也（東京大学、修士(学術)、2006.4～）
事務補佐員 平 厚子（2003.9～）
高木由紀（2009.4～）
院 生 伊藤孝男(D3)、前田真秀(D3)、渡部大志(D3)、
黒田 拓(D3)、塚田啓道(D3)、太田康亮(M2)、
奈良貴仁(M2)、八反田由香(M1)

1. 研究目標

計算論的生命科学は、電子科学研究所と理学院数学専攻との共同事業の一環として構築された。分子、細胞、システムにまでわたる生命現象の複雑さを数理的に解明するとともに、新しい生命システム論の構築をめざしている。複雑系としての生命システムの機構を解明することを目指し、新しい複雑システム論を構築する。特に、記憶、思考・推論の脳神経機構および認知機構の解明のための数理的アプローチを確立するとともに、非線形大自由度力学系の理論の構築を目標とする。

2. 研究成果

1. ヘテロ結合系の情報構造

二つの Roessler model のヘテロな相互作用によっていくつかの特徴あるダイナミクスを観測した。ウェーブレット変換を使って、二つのシステム間の位相間の相互情報量などを計算し、ヘテロ結合によって位相の進み方による主従の関係が生まれることが分かってきた。これは類似の構造を持つシステムがヘテロな相互作用を行うことで、情報の送り手と受け手の役割分担が生じることを意味している。

2. 異種連想記憶間のコミュニケーション可能性

同種ニューラルネットが異なる記憶間を連続的に動的に連想しているとき、互いの記憶状態を学習できるかどうかを調べた。新規性駆動学習を導入することにより、互いに学習が可能であることが分かった。

3. より現実的な連想記憶モデルの構築

生理学的なニューロンモデルによって、連想記憶モデルが構築できた。

4. 模倣の数学モデル

非線形力学系モデルによって相手を模倣する過程の基礎

方程式を作った。ダイナミクスを模倣するとカオスの縁へと至るという金子らの過去の研究と関係して興味深い。

5. 数学によるニューロンの構築

進化ダイナミクスを使って、入力情報との相互情報量が最大になるという情報伝搬量最大化条件によって関数の選択を行うと、力学系として興奮型力学系、振動型力学系が結合強度に応じて選択されていくことが分かった。この選択過程は脳の学習過程でも表れるもので、他者の情報を受けとるための学習則と学習の結果選択される力学系が決定される問題への一つの解答を与えている。

6. エピソード記憶の数学モデル

海馬神経回路網におけるカントールコーディングを生物学的な詳細をとりいれた数学モデルによって実現した。人や動物にみられるエピソード記憶の形成過程を数理的、神経生理学的に研究した。まず神経回路網レベルで、空間パターンの時系列入力の情報表現について理論的、計算論的に行い、理論的予測を行い、実験によって検証した。実際、海馬のニューラルネットをモデル化し、海馬の役割に関する計算論的な研究を行った。カントールコーディングの可能な条件を明らかにし、CA1 はパターン系列の区別を、ハウスドルフ距離によって行っていることを発見した。生物進化の過程で、爬虫類から哺乳類への海馬の変化は劇的であり、ランダムネットワークから層状の組織化された構造へと進化したことによってパターン系列の区別と記憶が可能になったという仮説を提案している。(山口、黒田、津田)

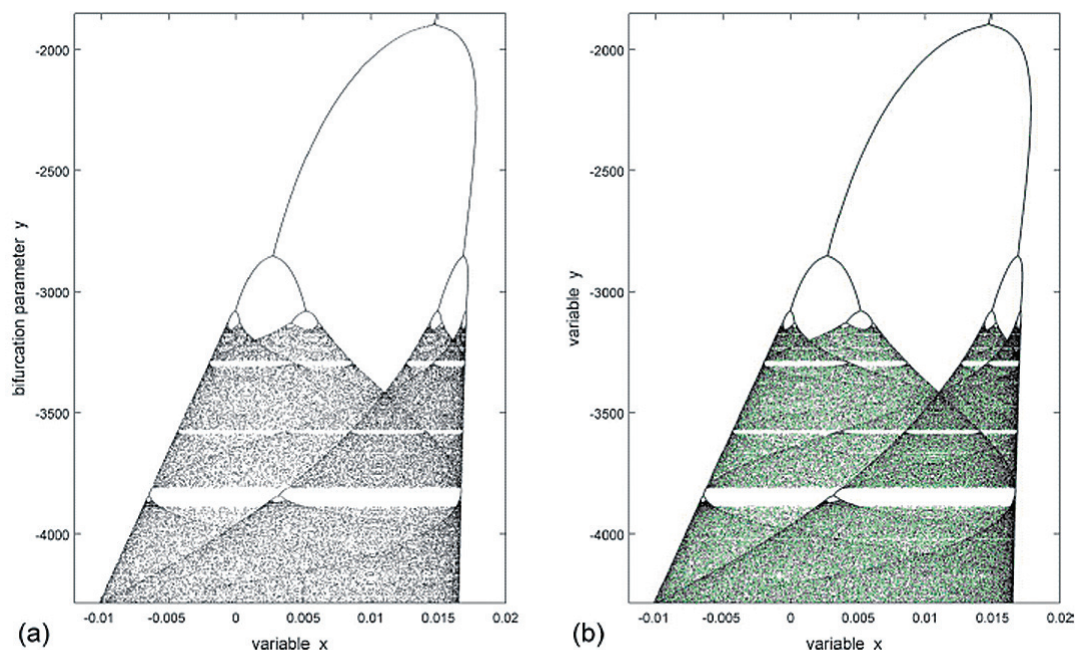
7. カオスの遍歴の機構に関する数学的な理論

昨年に引き続き、研究を行った。次のシナリオが考えられる。

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

8. ランダム力学系の研究

ランダムネスをもった力学系の研究を引き続き行っている。特に、カオス写像にノイズを引火したときに起こる現象はノイズ・インデューズド・オーダーや、ノイズ・インデューズド・カオスが知られているが、その分岐構造との関係を詳しく解析した。(佐藤)



図(a) 分岐構造 (b)ある初期値から出発した一本の軌道

3. 今後の研究の展望

脳神経系の高次機能である連続連想記憶、エピソード記憶、思考・推論に関する数理モデルによる研究は、理論の予測の一部が実証された。さらに、モデルと実験系を共に海馬全体、さらには海馬と新皮質相互作用系へと発展させ、動物の行動実験に伴う in vivo 計測やヒトの行動実験における脳活動計測によって、理論の予測するエピソード記憶に対するカオス的遍歴とカントルコーディングの実証を行っていききたい。さらに、コミュニケーションの脳内機構の解明を目指す。脳のダイナミクス、生命活動に対する正しい解釈を与えるための枠組みとして大自由度力学系、ゲーム理論、進化ダイナミクスに関する理論を提供したい。特に、遍歴の機構の解明と抽象化された雛形モデルの構築を目指す。また、ヘテロ相互作用系が持つ同期・脱同期の特徴をとらえ、コミュニケーション理解の数学機構の解明に結び付けたい。さらには、相空間の次元が変化するような新しい力学系—発展型力学系—の基礎理論の構築を目指す。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) S. Kuroda, Y. Fukushima, Y. Yamaguti, M. Tsukada and I. Tsuda : “Iterated function systems in the hippocampal CA1”, *Cognitive Neurodynamics*, 3(3) : 205–222 (2009)
- 2) Hunseok Kang and I. Tsuda : “On embedded bifurcation structure in some discretized vector fields”, *CHAOS*, 19 : 033132–1–033132–12 (2009)

- 3) I. Tsuda, Chaotic itinerancy reality in the dynamic brain—episodic memory formation, ICIAM 07: 6th International Congress on Industrial and Applied Mathematics (Zurich, Switzerland, 16–20 July 2007): Invited Lectures (Eds. R. Jeltsch and G. Wanner, European Mathematical Society, 2009) 365–380.

4.7 講演

i) 学会

- 1) Y. Yamaguti*, S. Kuroda and I. Tsuda : “Cantor Coding in a model of hippocampal CA1”, 第32回日本神経科学大会, 名古屋国際会議場 (2009–09)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) Y. Yamaguti*, K. Ota, S. Kuroda and I. Tsuda : “Fractal Encoding in a Model of Hippocampal CA1”, International Symposium of Joint Research Network on Advanced Materials and Devices, Hokkaido (2010–03)
- 2) S. Tadokoro*, Y. Yamaguti, H. Fujii and I. Tsuda : “Transitory Behaviors in Nonlinear Oscillators Interacting via Diffusion-Type Couplings”, International Symposium of Joint Research Network on Advanced Materials and Devices, Hotel-Nidom, Hokkaido (2010–03)
- 3) Y. Yamaguti*, S. Kuroda and I. Tsuda : “Representation of Time-series by a Self-similar Set in a Model of Hippocampal CA1”, The 2nd International Conference on Cognitive Neurodynamics, Hangzhou, China (2009–11)
- 4) H. Fujii*, K. Aihara and I. Tsuda : “Top-down Mechanism of Perception: A Scenario on the Role for Layer 1 and 2/3 Projections Viewed from Dynamical Systems Theory”, The

- 2nd International Conference on Cognitive Neurodynamics(ICCN'09), Hangzhou, China (2009-11)
- 5) I. Tsuda* : “Chaotic Dynamics, Episodic Memory, and Self-identity”, The 2nd International Conference on Cognitive Neurodynamics(ICCN'09), Hangzhou, China (2009-11)
 - 6) S. Kuroda*, Y. Fukushima, Y. Yamaguti, M. Tsukada and I. Tsuda : “Emergence of Iterated Function Systems in the Hippocampal CA1”, The 2nd International Conference on Cognitive Neurodynamics(ICCN'09), Hangzhou, China (2009-11)
 - 7) I. Tsuda* : “Evolution through maps”, What is Biological Evolution?, Coop-in-Kyoto, Kyoto (2009-10)
 - 8) 津田一郎* : 「Chaotic dynamics, episodic memory, and the dynamic model for the hippocampus」, 12th JAPAN - SLOVENIA SEMINAR ON NONLINEAR SCIENCE、University of Maribor、SLOVENIA (2009-10)
 - 9) Y. Yamaguti* : “Cantor Coding in a Model of Hippocampus”, 12th Japan-Slovenia Seminar on Nonlinear Science, Maribor, Slovenia (2009-10)
 - 10) Y. Tasaka*, M. Iima and Y. Sato : “Statistics and dynamical analysis of surface switching in rotating fluid”, 16th International Couette-Taylor Workshop, Princeton, USA (2009-09)
 - 11) 津田一郎* : 「海馬におけるカオスとフラクタルのデュアルな関係—エピソード記憶の神経機構に関する数理モデル: 予言と実証」、Dynamics of complex systems 2009—複雑系解析における未解決問題への新しい挑戦—、北海道大学理学部5号館 (2009-08 ~ 2009-09)
 - 12) 津田一郎* : 「エピソード記憶と推論からみた脳の数理: カオスの遍歴の役割」、生物物理夏の学校、支笏湖ユースホステル (2009-07 ~ 2009-08)
 - 13) 津田一郎* : 「エピソード記憶の神経機構に関する数理モデル: 予言と実証」、応用数学連携フォーラム 第8回ワークショップ「数学と脳科学」、東北大学 (2009-05)
 - 14) Kuroda, S. and Fukushima, Y. and Yamaguti, Y. and Tsukada, M. and Tsuda, I. 「Iterated function systems in the hippocampal CA1」、第32回日本神経科学大会、名古屋国際会議場 (2009-09)
 - 15) S. Kuroda*, 「Emergence of Contractive Affine Transformations in the Hippocampal CA1」 12th JAPAN - SLOVENIA SEMINAR ON NONLINEAR SCIENCE、University of Maribor、SLOVENIA (2009-10)
- iii) コロキウム・セミナー等・その他
- 1) I. Tsuda* : “Transitory dynamics and its possible roles in the perception and dynamic memory in the brain”, Department of Mathematics, Zhejiang University, Special Seminar, Zhejiang University, China (2009-11)
 - 2) 津田一郎* : 「Chaotic dynamics and episodic memory in the

brain」、Budapest University of Technology and Economics, Special Seminar、Budapest University of Technology and Economics、Hungary (2009-09)

- 3) 津田一郎* : 「Cantor coding: Theory and experimental verification」、Section of Biophysics, Institute for Atomic and Nuclear Physics, Hungarian Academy of Science, Special Lecture、Section of Biophysics, Institute for Atomic and Nuclear Physics, Hungarian Academy of Science、Hungary (2009-09)
- 4) I. Tsuda* : “Chaotic brain dynamics in the skew product transformations”, Section of Biophysics, Institute for Atomic and Nuclear Physics, Hungarian Academy of Science, Special Lecture, Section of Biophysics, Institute for Atomic and Nuclear Physics, Hungarian Academy of Science, Hungary (2009-09)
- 5) I. Tsuda* : “A short-term information representation of episodic time series in the hippocampus”, Invited talk, Honda-Europe, Honda-Europe, Offenbach, Germany (2009-07)
- 6) I. Tsuda* : “Dynamical systems and biological modeling: Application of chaotic dynamical systems to the brain dynamics”, Summer School on Dynamical Systems, Gottingen, Germany (2009-07)

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

- 1) M. Iima, T. Nagai, Y. Nishiura, Y. Oshita and I. Tsuda : “Sapporo Winter School 2010 for nonlinear nano-system science”, 41人, Enyuu Gakusha, Hokkaido University (Sapporo) (2010年2月17日~2010年2月19日)
- 2) 佐藤譲、飯間信、後藤晋 : 「Long-term workshop: Time-series analysis and statistics of hierarchical dynamics with large degrees of freedom」、理化学研究所 (和光) (2009年5月25日~2009年5月30日)

4.10 予算獲得状況

- a. 科学研究費補助金 (研究代表者、分類名、研究課題、期間)
- 1) 津田一郎、基盤研究 B 一般、カオスの遍歴のシナリオに関する研究、2006~2009年度
 - 2) 津田一郎、特定領域研究、エピソード記憶形成に関する海馬の数理モデルと実験的検証、2008~2009年度
 - 3) 津田一郎、特定領域研究、動的素子のネットワークに於ける環境に対する適用メカニズムの研究、2008~2009年度
 - 4) 津田一郎、萌芽研究、カオスネットワークの進化、2008~2010年度
 - 5) 津田一郎、新学術領域研究 研究領域提案型、ヘテロ複雑システムによるコミュニケーション理解のための神経機構の解明、2009~2013年度

- 6) 津田一郎、新学術領域研究 研究領域提案型、動的脳の情報創成とカオスの遍歴の役割、2009～2013年度

4.12 社会教育活動

c. 併任・兼業

- 1) 津田一郎、独立行政法人科学技術振興機構、「戦略的創造研究推進事業」領域アドバイザー (2009年4月1日～2010年3月31日)
- 2) 津田一郎、独立行政法人理化学研究所 分子情報生命科学特別研究ユニット、客員主管研究員 (2009年4月1日～2010年3月31日)
- 3) 津田一郎、独立行政法人理化学研究所 脳科学総合研究センター、客員主管研究員 (2009年4月1日～2010年3月31日)
- 4) 津田一郎、独立行政法人海洋研究開発機構、環境・社会システム統合研究フォーラム「複雑系情報の社会への発信システム」構成員 (2009年9月28日～2010年3月31日)
- 5) 津田一郎、科学技術動向研究センター、専門調査員 (2009年4月1日～2010年3月31日)
- 6) 津田一郎、北陸先端科学技術大学院大学、評価・審査委員会委員 (2009年4月1日～2010年3月31日)
- 7) 津田一郎、北陸先端科学技術大学院大学、アカデミックアドバイザー (2009年4月1日～2010年3月31日)
- 8) 津田一郎、玉川大学術研究所、非常勤特別研究員客員教授 (2009年4月1日～2010年3月31日)
- 9) 津田一郎、財団法人 国際高等研究所、特別委員 (2009年4月1日～2010年3月31日)
- 10) 津田一郎、財団法人 国際高等研究所、「生物進化の持続性と転移」研究プロジェクト研究代表者 (2009年4月1日～2010年3月31日)
- 11) 津田一郎、財団法人 国際高等研究所、「認識と運動における主体性の数理脳科学」研究プロジェクトメンバー (2009年4月1日～2010年3月31日)
- 12) 津田一郎、大阪大学工学研究科知能・機能創成工学専攻、招へい教員 (招へい教授) (2009年4月1日～2010年3月31日)
- 13) 津田一郎、九州大学、「数学・数理科学と他分野の連携・協力の推進に関する調査・検討～第4期科学技術基本計画の検討に向けて～」有識者検討委員会委員 (2009年10月1日～2010年3月31日)
- 14) 津田一郎、文部科学省、「数学・数理科学と他分野の連携・協力に関する勉強会」2009年4月10日～2010年3月31日)
- 15) 津田一郎、文部科学省、科学研究費委員会専門委員、2009年12月1日～2010年3月31日)
- 16) 津田一郎、北海道大学数学連携研究センター兼務教員 (2009年4月1日～2010年3月31日)
- 17) 佐藤譲、北海道大学数学連携研究センター兼務教員 (2009年4月1日～2010年3月31日)

- 18) 佐藤譲、独立行政法人理化学研究所 分子情報生命科学特別研究ユニット、客員研究員 (2009年4月1日～2010年3月31日)

- 19) 佐藤譲、独立行政法人理化学研究所 脳科学総合研究センター、客員研究員 (2009年4月1日～2010年3月31日)

- 20) 山口裕：北海道大学数学連携研究センター兼務教員 (2009年4月1日～2010年3月31日)

d. その他

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

e. 新聞・テレビ等の報道

- 1) 津田一郎：朝日新聞特別紙面 GLOBE 第33号特集面「数学という力」2010年2月1日「[第3回] 脳に潜む、数学的な構造。カオス理論で、メカニズムを説き明かしたい」
- 2) I. Tsuda : Vecer 紙 V soboto (土曜版) 2009年10月17日 “12th Japan - Slovenia Seminar on Nonlinear Scienceが10/7-9に開催され、津田教授が招待講演「Chaotic dynamics, episodic memory, and the dynamic model for the hippocampus」を行った。”

f. 外国人研究者の招聘 (氏名、国名、期間)

- 1) Villa Alessandro, Switzerland (2010年2月15日～2010年2月19日)
- 2) TOTH Janos, Hungary (2009年10月17日～2009年10月31日)

g. 北大での担当授業科目 (対象、講義名、担当者、期間)

- 1) 津田一郎、全学共通、微分積分学2、2009年10月1日～2010年3月31日
- 2) 津田一郎、全学共通、脳科学研究の展開Ⅳ、2009年10月1日～2010年3月31日
- 3) 津田一郎、全学共通、脳科学研究の展開Ⅳ、2009年10月1日～2010年3月31日
- 4) 津田一郎、理学部、数理解析学統論、2009年10月1日～2010年3月31日
- 5) 津田一郎、全学共通、一般教育演習、2009年4月1日～2009年9月30日
- 6) 津田一郎、全学共通、数理科学と情報科学の基礎、2009年4月1日～2009年9月30日
- 7) 津田一郎、理学部、現代数学への招待、2009年4月1日～2009年9月30日
- 8) 津田一郎、医学研究科、脳科学研究の展開Ⅳ「脳科学研究パラダイム」カオス理論、2009年4月1日～2010年3月31日
- 9) 理学部、コンピュータ、山口裕、2009年10月1日～2010年3月31日

h. 北大以外での非常勤講師 (担当者、教育機関、講義名、期間)

- 1) 津田一郎、大阪大学工学部、知能・機能創成工学に関

する研究と教育について、2009年4月1日～2010年3月31日

2) 津田一郎、九州大学システム情報科学府、情報工学特別講義、2009年4月1日～2010年3月31日

i. ポスドク・客員研究員など

・ポスドク

Kang Hunseok (電子科学研究所)

・学術研究員

田所 智 (電子科学研究所)

黒田 茂 (電子科学研究所)

・研究生

安岡卓男 (電子科学研究所)

玉井信也 (電子科学研究所)

並列分散処理研究分野(客員研究分野)

教授 池田富樹 (東京工業大学資源化学研究所)

教授 白尾隆行 (放射線医学総合研究所)

教授 矢島 収 (北海道新聞)

附属ナノテクノロジー研究センター

研究目的

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



極限フォトンプロセス研究分野

教 授 三澤弘明 (筑波院、理博、2003.5～)

准教授 上野貢生 (北大院、博 (理)、2010.1～)

助 教 村澤尚樹 (北大院、博(情報科学)、2008.6～)

院 生

博士課程

横田幸恵、Md. モニール・イスラム

修士課程

高島聡章、西 泰史、荒木 剛、池谷伸太郎、蝦名 渉

1. 研究目標

近年、化石燃料の枯渇や二酸化炭素の排出量の増加など地球規模の環境・エネルギー問題が顕在化しつつあり、光触媒や色素増感太陽電池などの光エネルギー変換に関する研究が注目を集めている。光を駆動源とした高性能なデバイスを開発するためには、その礎となる光を吸収した分子・物質からの化学反応を取り扱う「光化学」研究のさらなる探究が必要不可欠である。光化学反応は、光と分子・物質との相互作用から始まるため、より高効率な光化学反応を実現するためには、その相互作用を極限まで高めることができる方法論、すなわち、ある空間に存在する1個の分子を、1個あるいはそれ以上の光子と相互作用させることが可能な究極の「光-分子強結合反応場」を構築する必要がある。このような反応場を実現させるためには、光子を時間的にも空間的にも強く閉じ込める手法を開発することが必要不可欠である。近年、化学的に合成された金属ナノ微粒子や半導体微細加工によって作製された金属ナノ構造体への光照射によって金属表面に誘起される局在表面プラズモンを利用すれば、光子をナノ空間に束縛し、また時間的にも閉じ込めることが可能であり、大きな光電場増強効果(入射光電場強度の $\sim 10^5$ 倍)が得られることが明らかとなってきた。この光電場増強効果は、表面増強ラマン散乱(SERS)や高効率な高次高調波発生などの非線形光学現象を容易に誘起することが可能であることから、局在表面プラズモンに関する様々な研究が、現在実験・理論の両面から精力的に行われている。本研究グループでは、高度微細加工技術により金属ナノ構造体を高精度に作製し、高い光電場増強効果を示す金属ナノ構造を新規ナノ光化学反応場と位置づけ、種々の光化学反応へ適応するとともに、構造設計の最適化から光化学反応の選択率制御を達成する光化学反応場や光電変換デバイスを構築することを目的として研究を行っている。

2. 研究成果

電子線リソグラフィー／リフトオフ法を用いてガラス、シリコンなどの固体基板上に2つの金ナノブロック構造が

を作製し、ナノギャップ空間に局在された光電場増強場を利用することで、2光子吸収過程を介したフォトレジスト材料への空間選択的ナノ加工を実現できることを明らかにした。また、レーザー干渉露光法により高精度、かつ大面積に金属ナノ構造を作製する方法の開発を行った。作製した構造体基板を用いて、表面増強ラマン散乱(SERS)分光計測法により構造体が生ずる光電場増強効果について評価を行い、本作製方法の有用性について検討した。

(i) ナノギャップリソグラフィー

フォトマスクとして、図1(a)の設計略図に示すように、ガラス基板上に電子線リソグラフィー／リフトオフ法により2つの金ナノブロック構造($80 \times 80 \times 35 \text{ nm}^3$)を対角線上に配列したナノギャップ金ダイマー構造を作製した。スペクトル測定データのここでは示していないが、入射光偏光条件がダイマー構造に対して平行な場合は、800nmにプラズモン共鳴を示すことを確認している。時間領域差分法(FDTD)による電磁場解析シミュレーション結果から、図1(b)に示すように2つの金のナノ構造間(ナノギャップ)に増強された近接場光が局在し、入射光電場強度の 10^4 倍に及ぶ光電場増強が誘起されることが見積もられた。作製したフォトマスク基板上にネガ型フォトレジスト(SU-8 2002、化薬マイクロケム社)をスピンコートし、波長800nmのフェムト秒レーザービーム(2 kW/cm^2 , 82MHz, 100fs)を10ミリ秒間照射したところ、図1(c)に示すようにギャップの位置にネガレジストの2光子重合反応が空間選択的に進行することが現像後明らかになった。そこで、フォトマスクをポジ型フォトレジスト膜(TSMR-V90、東京応化工業(株))に

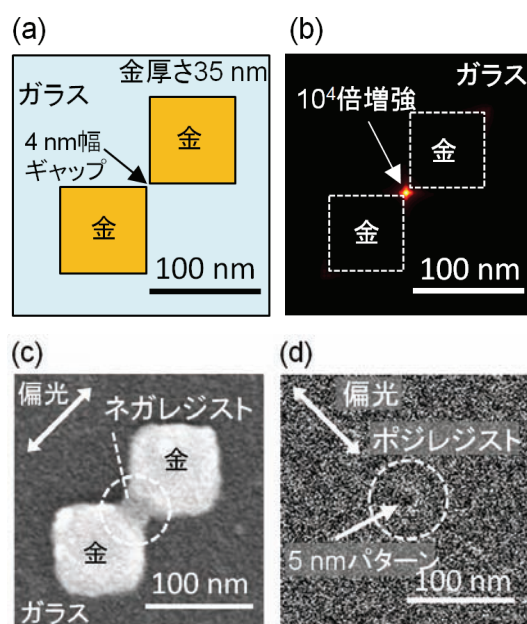


図1. (a) フォトマスクの設計略図、(b) FDTDシミュレーションによるフォトマスクの光電場強度分布、(c) ネガ型フォトレジストの2光子重合による光電場強度分布の可視化、(d) ポジレジスト膜への転写露光により形成した5 nmパターンの電子顕微鏡写真

近接させて、同様にレーザー光 (0.6 W/cm^2) を10秒間照射して現像を行ったところ、光照射面積全域に図1(d)に示すような5nmφのナノパターンがナノギャップの位置(アレイ状に配列しているためギャップの周期に対応して形成されることを確認)に対応してパターンニングされることを明らかにした。光リソグラフィーにより世界最小のピットの形成に成功した。

(ii) レーザー干渉露光法を用いた金属ナノ構造の作製と表面増強ラマン散乱測定

電子ビーム露光により構造体を作製する方法では、構造を精緻に作製することが可能であるが、スループットは低く、光電変換デバイスやバイオセンサーなどに応用する場合、より広範囲、かつ簡便に金属ナノ構造を作製する方法論の開発が必要となる。そのような観点から、本研究グループでは、西井準治教授と共同でレーザー干渉露光法により高精度、かつ大面積に金属ナノ構造を作製する方法の開発を行った。

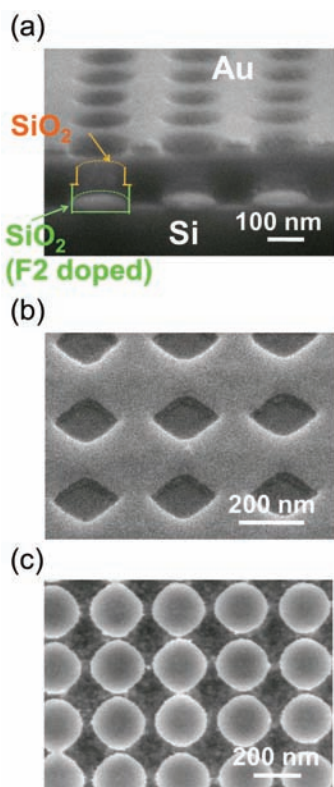


図2. 干渉露光法を用いて作製した金ナノ構造の電子顕微鏡写真 (a)基板No.1 (断面像)、(b)基板No.2 (斜め45°から観察)、(c)基板No.3 (上面から観察)

2層のSiO₂層(上層50nm:F₂ドーピングなし、下層50nm:6.353 mol% F₂ドーピング)をCVDにより成膜したSi基板上に反射防止剤及びポジ型フォトレジストをスピンコートした基板上に干渉露光を行った。He-Cdレーザービーム(波長325nm)を回折光学素子により2本のビームに分割して重ね合わせるにより干渉領域を形成し、フォトレジスト基板上で2回干渉露光を行い(2回目の露光は1回目の露光時から基

板を90度回転させる)、わずか220sの露光時間で20mmφの領域にほぼ均一に2次元的なレジストの空間パターンを得た。パターンの形状は、露光条件(レーザーパワー、露光時間)及びエッチング条件を調整することで、微細孔(図2(a),(b))またはピラー構造(図2(c))となる。現像後、ドライエッチングによりSiO₂層にパターンを形成し(図2(b),(c))、さらにF₂の有無によるSiO₂層のエッチングレートの違いを利用して3次元のナノ構造パターン(図2(a))を作製した。また、これらの構造上に金をスパッタリングにより成膜することで金ナノ構造を作製した(図2)。

それぞれの金ナノ構造を用いて測定したSERS強度(ピリジン分子の1014cm⁻¹)の濃度依存性を図3に示す。文献値の吸着平衡定数を基にLangmuir吸着等温式によるフィッティングを行うことで吸着分子数を見積もり、バルク測定結果と比較してラマン散乱強度の増強率を算出すると、基板No.1では最大で 2×10^{10} 倍の増強率が得られた。これは、図2(a)では金ナノ構造が上面と下面で完全に分離した状態で形成されているためであると考えられ、高い局在性を示す金属ナノ構造をF₂ドーピングの有無を利用した2層SiO₂膜を用いることにより作製可能であることを明らかにした。本作製方法は、高い光電場増強を示す金属ナノ構造基板を広範囲かつ簡便に作製することが可能であることから有用性が高い。

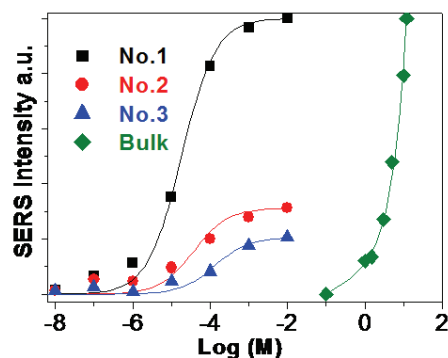


図3. 図2(a)-(c)それぞれの金ナノ構造を用いたSERS強度及びバルクラマン強度の濃度依存性

3. 今後の研究の展望

プラズモン共鳴に基づく光電場増強効果によって誘起されるレジスト材料のナノ空間選択的な2光子反応を利用して、ポジ型フォトレジスト基板上に10nm以下のナノパターンを形成することが可能であることを明らかにした。また、レーザー干渉露光法により高精度、かつ大面積に金属ナノ構造を作製する方法の開発を行った。作製した構造体は、SERS測定の結果から、高い光電場増強効果を示すことが明らかになった。今後は、酸化チタンなどの半導体基板上に金属ナノ構造体アレイを広範囲に作製し、半導体/金属ナノ構造体界面において効率的な電荷分離を誘起して、近赤外光照射でも駆動する光電変換システムや人工光合成系を構築することを目的として研究を展開する予定である。

4. 資料

4.1 学術論文

- 1) V. Mizeikis, S. Juodkakis, T. Balciunas, H. Misawa, S. I. Kudryashov, V. D. Zvorykin and A. A. Ionin: “Optical and Ultrasonic Signatures of Femtosecond Pulse Filamentation in Fused Silica”, *J. Appl. Phys.*, 105(12) :123106 (2009).
- 2) S. Juodkakis, H. Misawa, E. G. Gamaly, B. Luther-Davies, L. Hallo, P. Nicolai and V. T. Tikhonchuk: “Is the Nano-explosion Really Microscopic?”, *J. Non-Crystalline Solids*, 355(18-21) : 1160-1162 (2009).
- 3) K. Ueno, S. Juodkakis, T. Shibuya, V. Mizeikis, Y. Yokota and H. Misawa: “Nanoparticle-enhanced Photopolymerization”, *J. Phys. Chem. C*, 113(27): 11720-11724 (2009).
- 4) L. Wang, Y. Nishijima, K. Ueno, H. Misawa and N. Tamai: “Near-IR Vibrational Dynamics of Periodic Gold Single and Pair Nanocuboids”, *Appl. Phys. Lett.*, 95: 053116 (2009).
- 5) S. Juodkakis, Y. Nishi, H. Misawa, V. Mizeikis, O. Schecker, R. Waitz, P. Leiderer and E. Scheer: “Optical Transmission and Laser Structuring of Silicon Membranes”, *Opt. Exp.*, 17(17): 15308-15317(2009).
- 6) Y. Yokota, K. Ueno, S. Juodkakis, V. Mizeikis, N. Murazawa, H. Misawa, H. Kasa, K. Kintaka and J. Nishii: “Nano-textured metallic surfaces for optical sensing and detection applications”, *J. Photochem. Photobiol. A: Chem.*, (207): 126-134 (2009).
- 7) E. Brasselet, N. Murazawa, H. Misawa and S. Juodkakis: “Optical Vortices from Liquid Crystal Droplets”, *Phys. Rev. Lett.*, 103(10): 103903 (2009).
- 8) S. Juodkakis, V. Mizeikis and H. Misawa: “Three-dimensional Microfabrication of Materials by Femtosecond Lasers for Photonics Applications”, *J. Appl. Phys.*, 106(5) : 051101 (2009) .
- 9) E. Brasselet, T. Balciunas, N. Murazawa, S. Juodkakis and H. Misawa: “Light-Induced Nonlinear Rotations of Nematic Liquid Crystal Droplets Trapped in Laser Tweezers”, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, 512: 143-151 (2009).
- 10) V. Mizeikis, S. Juodkakis, T. Balciunas, S. I. Kudryashov, V. D. Zvorykin, A. A. Ionin and H. Misawa: “Optical and Ultrasonic Monitoring of Femtosecond Laser Filamentation in Fused Silica”, *Appl. Surf. Sci.*, 255(24): 9721-9723(2009).
- 11) V. Mizeikis, S. Kimura, N. V. Surovtsev, V. Jarutis, A. Saito, H. Misawa and S. Juodkakis: “Formation of Amorphous Sapphire by a Femtosecond Laser Pulse Induced Microexplosion”, *Appl. Surf. Sci.*, 255(24): 9745-9749(2009).
- 12) T. Dehoux, T. Kelf, M. Tomoda, O. Matsuda, O. Wright,

K. Ueno, Y. Nishijima, S. Juodkakis, H. Misawa, V. Tournat and V. E. Gusev: “Vibrations of Microspheres Probed with Ultrashort Optical Pulses”, *Opt. Lett.*, 34(23) : 3740-3742 (2009).

- 13) K. Sun, N. Suzuki, Z. Li, R. Araki, K. Ueno, S. Juodkakis, M. Abe, S. Noji and H. Misawa: “High-fidelity fractionation for single-strand DNA fragments differing in size by one-base on a spiral-channel electrophoretic chip”, *ELECTROPHORESIS*, 30(24): 4277-4284(2009).
- 14) M. M. Islam, K. Ueno and H. Misawa: “Redox Cycling Effect on the Surface-enhanced Raman Scattering Signal of Crystal Violet Molecules at Nanostructured Interdigitated Array Electrodes”, *Anal. Sci.*, 26(1): 19-24 (2010).
- 15) M. M. Islam, K. Ueno, S. Juodkakis, Y. Yokota and H. Misawa: “Development of Interdigitated Array Electrodes with Surface-enhanced Raman Scattering Functionality”, *Anal. Sci.*, 26(1): 13-18 (2010).
- 16) K. Ueno, S. Takabatake, Y. Nishijima, V. Mizeikis, Y. Yokota and H. Misawa: “Nanogap-assisted Surface Plasmon Nanolithography”, *J. Phys. Chem. Lett.*, 1(3): 657-662 (2010).
- 17) E. G. Gamaly, S. Juodkakis, V. Mizeikis, H. Misawa, A. V. Rode and W. Krolikowski: “Modification of Refractive Index by a Single Femtosecond Pulse Confined Inside a Bulk of a Photorefractive Crystal”, *Phys. Rev. B*, 81(5): 054113 (2010).
- 18) Q. Sun, S. Juodkakis, N. Murazawa, V. Mizeikis and H. Misawa: “Freestanding and movable photonic microstructures fabricated by photopolymerization with femtosecond laser pulses”, *J. Micrometh. Microeng.*, 20(3): 035004 (2010).

4.2 総説・解説・評論等

- 1) 上野貢生、三澤弘明: 「局在プラズモンを利用した非線形光化学」、機能材料、29(11) : 6-13 (2009).
- 2) 上野貢生、三澤弘明: 「金属ナノ構造による光局在場の創製と非線形光化学反応への応用」、化学工業、60(10) : 737-742 (2009).
- 3) 上野貢生、三澤弘明: 「プラズモン増強場の形成と光反応」、光学、38(9) : 448-455 (2009).
- 4) 上野貢生: 分子研研究会報告「プラズモニック物質と分子科学研究」、分子研レターズ、60 : 63-65 (2009).

4.3 国際会議議事録等に掲載された論文

- 1) Q. Sun, S. Juodkakis, N. Murazawa, V. Mizeikis and H. Misawa: “Femtosecond laser photopolymerization of photonic and free-movable microstructures in sol-gel hybrid resist”, *Proc. SPIE*, 7591: 75910K (2010)

4.4 著書

- 1) 三澤弘明、棚村好彦：「次世代遺伝子解析マイクロアレイの開発」、バイオチップの技術と応用、シーエムシー出版：113-117 (2009).
- 2) 三澤弘明：「光-分子強結合反応場」、光科学研究の最前線2、「光科学研究の最前線2」編集委員会：181 (2009).
- 3) 上野貢生、三澤弘明：「光-分子強結合反応場と多光子反応」、プラズモンナノ材料の最新技術、シーエムシー出版：138-146 (2009).
- 4) 三澤弘明：「光化学」、MEMS/NEMS 工学大全、株式会社 テクノシステム：156-164 (2009).
- 5) 上野貢生、三澤弘明：「光電場増強」、金属ナノ・マイクロ粒子の形状・構造制御技術、シーエムシー出版：29-42 (2009).
- 6) K. Ueno, S. Juodkazis, V. Mizeikis, H. Misawa: "Enhancement of optical near-field using metallic nanostructures tailored with high accuracy", Molecular Electronic and Related Materials-Control and Probe with Light, ed. by Toshio Naito, Transworld Research Network, 261-280 (2010).

4.6 特許

・国内特許

- 1) 加藤隆彦、渡辺精一、谷津茂男、萱島知、西口規彦、三澤弘明、朝倉清高：特願2009-125233、レーザー誘起表面ナノ配列構造の作製方法及びそれを用いて作製したデバイス構造、2009年5月25日.
- 2) 三澤弘明、西島喜明、上野貢生、村越敬：特願2009-205959、光電変換装置、光検出装置、及び光検出方法、2009年9月7日（優先権出願：2010年3月10日、特願2010-053093）
- 3) 奥津哲夫、三澤弘明、上野貢生：特願2009-211912、結晶化用容器、結晶化装置、結晶の製造方法、及び結晶化用基板、2009年9月11日
- 4) 上野貢生、三澤弘明：特願2010-045503、フォトレジストパターンの作製方法、2010年3月2日

4.7 講演

i) 学会

- 1) 上野貢生*、高島聡章、西島喜明、孫 凱、ミゼイキス ビガンタス、ヨードカジズ サウリウス、三澤弘明：「ナノ光リソグラフィによる金属ナノ構造の作製と評価」第56回応用物理学関係連合講演会、筑波大学、(2009-04).
- 2) H. Misawa*, K. Ueno, S. Takabatake, V. Mizeikis and S. Juodkazis: "Photochemical reactions on gold nanoparticles" 215th ECS Meeting, San Francisco, USA (2009-05).
- 3) S. Takabatake*, K. Ueno, Y. Nishijima, V. Mizeikis, S. Juodkazis, H. Misawa: "Nanogap lithography using local

photochemical reactions" XXIV International Conference on Photochemistry ICP2009, Toledo (2009-07).

- 4) Y. Yokota*, K. Ueno, S. Juodkazis, V. Mizeikis, H. Misawa: "Influence on plasmonic enhancement on surface-enhanced Raman scattering" XXIV International Conference on Photochemistry ICP2009, Toledo (2009-07).
- 5) S. Ikegaya*, K. Ueno, S. Juodkazis, V. Mizeikis, N. Murazawa, H. Misawa: "Scattering spectroscopy of nano engineered gold nanoblock pair" XXIV International Conference on Photochemistry ICP2009, Toledo (2009-07).
- 6) K. Ueno*, S. Juodkazis, V. Mizeikis, Y. Yokota, S. Takabatake, S. Ikegaya, H. Misawa: "Electromagnetic field enhancement effects on nano-engineered gold particles" XXIV International Conference on Photochemistry ICP2009, Toledo (2009-07).
- 7) K. Sun*, Z. Li, R. Araki, K. Ueno, M. Abe, S. Noji, H. Misawa: "On-chip Fraction Collection of Single-strand DNA Fragments Differing in Size by Only One Base with Electrophoretic Separation" Lab-on-a-Chip World Congress 2009, South San Francisco (USA) (2009-08).
- 8) Md. M. Islam*, K. Ueno, S. Juodkazis, H. Misawa: "Redox Cycling Effect on Surface-Enhanced Raman Scattering (SERS) -Electrochemical SERS Chips" Lab-on-a-Chip World Congress 2009, South San Francisco (USA) (2009-08).
- 9) 上野貢生*：「ナノ空間におけるプラズモン増強効果」第70回応用物理学学会学術講演会、富山大学 (2009-09).
- 10) Q. Sun*, S. Juodkazis, N. Murazawa and H. Misawa: "Photopolymerization of photonic micro-optical-elements by fs-laser pulses in sol-gel hybrid resist" 第70回応用物理学学会学術講演会、富山大学 (2009-09).
- 11) 横田幸恵*、上野貢生、Saulius Juodkazis、三澤弘明：「表面増強ラマン散乱における電磁効果の定量解析」第70回応用物理学学会学術講演会、富山大学 (2009-09).
- 12) 王 麗*、西島喜明、横田幸恵、上野貢生、Saulius Juodkazis、三澤弘明、麦野 遥一、大西大、邱建榮：「プラズモンアンテナを利用した光エネルギー変換システム」第70回応用物理学学会学術講演会、富山大学 (2009-09).
- 13) 池谷伸太郎*、上野貢生、村澤尚樹、西島喜明、横田幸恵、ビガンタス ミゼイキス、サウリウス ヨードカジズ、三澤弘明：「ナノギャップ金構造の散乱分光特性」第70回応用物理学学会学術講演会、富山大学 (2009-09).
- 14) 蝦名渉*、西島喜明、ビガンタス ミゼイキス、上野貢生、サウリウス ヨードカジズ、三澤弘明：「位相マスクを用いた多光束干渉による3次元周期構造の作製と評価」第70回応用物理学学会学術講演会、富山大学 (2009-09).
- 15) 北翔太*、西島喜明、三澤弘明、馬場俊彦：「水中アサ

- ーマルフोटニック結晶ナノレーザによる高分解能バイオセンシング」第70回応用物理学学会学術講演会、富山大学 (2009-09).
- 16) 北翔太*, 西島喜明、三澤弘明、馬場俊彦:「フォトニック結晶ナノレーザによるバイオセンシング」第70回応用物理学学会学術講演会、富山大学 (2009-09).
 - 17) 三澤弘明*, ヨードカジス サウリウス、ミゼイキス ビガンタス、孫 泉、上野貢生、高島聡章:「フェムト秒レーザーリソグラフィの開発とその3次元フォトニック結晶加工への応用」第58回高分子討論会、熊本 (2009-09).
 - 18) 村澤尚樹*, 青陽大輔、上野貢生、ミゼイキス ビガンタス、ヨードカジス サウリウス、三澤弘明:「積層型金ナノ構造のプラズモン分光特性」光化学討論会、群馬県桐生市 (2009-09).
 - 19) 西島喜明*, 上野貢生、ヨードカジス サウリウス、村越敬、三澤弘明:「TiO₂単結晶/Auナノ構造電極による光電変換」光化学討論会、群馬県桐生市 (2009-09).
 - 20) 治田将*, 上野貢生、横田幸恵、三澤弘明、奥津哲夫:「金ナノ構造を用いたタンパク質の光誘起結晶化」光化学討論会、群馬県桐生市 (2009-09).
 - 21) 横田幸恵*, 上野貢生、ヨードカジス サウリウス、三澤弘明:「表面増強ラマン散乱機構の電磁論的解析」光化学討論会、群馬県桐生市 (2009-09).
 - 22) 池谷伸太郎*, 上野貢生、村澤尚樹、西島喜明、横田幸恵、ミゼイキス ビガンタス、ヨードカジス サウリウス、三澤弘明:「顕微レイリー散乱分光法によるナノギャップ金構造のスペクトル特性」光化学討論会、群馬県桐生市 (2009-09).
 - 23) 西泰史*, ヨードカジス サウリウス、村澤尚樹、三澤弘明:「フェムト秒レーザーによるSiC表面へのリップル構造形成」光化学討論会、群馬県桐生市 (2009-09).
 - 24) 高島聡章*, 上野貢生、西島喜明、孫 凱、ヨードカジス サウリウス、三澤弘明:「プラズモンリソグラフィにより作製した金属ナノ構造の分光特性」光化学討論会、群馬県桐生市 (2009-09).
 - 25) 蝦名渉*, 西島喜明、ミゼイキス ビガンタス、ヨードカジス サウリウス、三澤弘明:「位相マスクを用いた多光子多光束干渉による3次元フォトニック結晶の作製と評価」光化学討論会、群馬県桐生市 (2009-09).
 - 26) Md. Monirul Islam*, Kosei Ueno, Yukie Yokota, Vygantas Mizeikis, Saulius Juodkazis, Hiroaki Misawa:「Amplification of surface-enhanced Raman scattering signals using electrochemical redox cycling」光化学討論会、群馬県桐生市 (2009-09).
 - 27) H. Misawa*: “Photophysical and Photochemical Processes on Nanoengineered Gold Structures” Optics and Photonics Taiwan 2009 (OPT 2009), Taipei, Taiwan (2009-12).
 - 28) 上野貢生:「プラズモン増強電場を使った光ナノ加工技術の開発」レーザー学会学術講演会第30回年次大会、千里ライフサイエンスセンター (2010-02).
 - 29) H. Misawa*: “Gold Nano-Structure Enhanced Photocurrent Generation System from Ultraviolet to Near-Infrared Wavelength” JAPAN NANO 2010, Tokyo (2010-02).
 - 30) 上野貢生:「金属ナノ構造を用いた光局在場の創製と光化学反応への応用」第57回応用物理学関係連合講演会、東海大学 (2010-03).
 - 31) 上野貢生、三澤弘明:「金属微細構造を用いたナノ光加工、太陽電池応用」第57回応用物理学関係連合講演会、東海大学 (2010-03).
 - 32) Q. Sun*, V. Mizeikis, N. Murazawa, K. Ueno and H. Misawa: “Acoustic diagnose of femtosecond laser filamentation in optical mediums”, 第57回応用物理学関係連合講演会、東海大学 (神奈川県平塚市) (2010-03).
 - 33) 旭秀典*, 孫 泉、西島喜明、村澤尚樹、上野貢生、三澤弘明:「石英ガラス中へのフェムト秒レーザー集光照射によって形成されたフィラメントのパルス幅依存性」、第57回応用物理学関係連合講演会、東海大学 (神奈川県平塚市) (2010-03).
 - 34) 村澤尚樹*, 青陽大輔、上野貢生、三澤弘明:「3次元的に配列制御されたナノギャップ金構造の作製と光学特性」第57回応用物理学関係連合講演会、東海大学 (神奈川県平塚市) (2010-03).
 - 35) 田中嘉人*, 石黒裕康、藤原英樹、横田幸恵、上野貢生、三澤弘明、笹木敬司:「散乱型近接場顕微鏡による金属ナノ構造の光局在解析 (2)」2010年春季 第57回 応用物理学関係連合講演会、東海大学 (2010-03).
 - 36) 王 麗*, 西島喜明、横田幸恵、上野貢生、三澤弘明、邱 建榮:「Stability of plasmonic spectral properties with and without titanium coated on the top of engineered silver nanorods」2010年春季 第57回 応用物理学関係連合講演会、東海大学 (2010-03).
 - 37) 横田幸恵*, 上野貢生、三澤弘明:「ナノギャップ金構造の表面増強ラマン散乱特性」、2010年春季 第57回 応用物理学関係連合講演会、東海大学 (2010-03).
 - 38) 荒木剛*, 西島喜明、村澤尚樹、上野貢生、西井準治、三澤弘明:「干渉露光法を用いた金ナノ構造体の酸化チタン基板上への大面積加工と光電変換特性」、2010年春季 第57回 応用物理学関係連合講演会、東海大学 (2010-03).
 - 39) 西島喜明*, 上野貢生、横田幸恵、村越敬、三澤弘明:「酸化チタン/金ナノ構造体を用いた光電変換」2010年春季 第57回 応用物理学関係連合講演会、東海大学 (2010-03).
 - 40) 北翔太*, 羽中田祥司、西島喜明、三澤弘明、馬場俊彦:「ナノスリット構造フォトニック結晶H0ナノレーザによる高分解能バイオセンシング」2010年春季 第57回 応用物理学関係連合講演会、東海大学 (2010-03).

- 41) 池谷伸太郎*, 上野貢生、村澤尚樹、三澤弘明:「制御されたナノギャップ金構造のプラズモン分光特性」日本化学会第90春季年会、大阪府東大阪市 (2010-03).
 - 42) 呉伯濤*, 上野貢生、村澤尚樹、孫 凱、三澤弘明:「金ナノ構造体によって促進される2光子フォトリソグラフィ反応の定量解析」日本化学会第90春季年会、大阪府東大阪市 (2010-03).
 - 43) 荒木剛*, 村澤尚樹、上野貢生、横田幸恵、西島喜明、西井準治、三澤弘明:「レーザー干渉露光法を用いたナノパターンニング技術による金ナノ構造の作製と光学評価」日本化学会第90春季年会、大阪府東大阪市 (2010-03).
 - 44) 治田将、三澤弘明、上野貢生、西井準治、横田幸恵、奥津哲夫*:「金ナノ構造を用いたタンパク質の光誘起結晶化」日本化学会第90春季年会、大阪府東大阪市 (2010-03).
 - 45) 青陽大輔*, 村澤尚樹、上野貢生、横田幸恵、三澤弘明:「積層型ナノギャップ金構造の作製とプラズモン分光特性」日本化学会第90春季年会、大阪府東大阪市 (2010-03).
 - 46) 横田幸恵*, 上野貢生、三澤弘明:「制御されたナノギャップ金属構造を用いた表面増強ラマン散乱計測」日本化学会第90春季年会、大阪府東大阪市 (2010-03).
 - 47) 蝦名渉*, 西島喜明、MIZEIKIS Vyantas、上野貢生、西井準治、三澤弘明:「位相マスクを用いた多光子多光束干渉による3次元周期構造体の形成」日本化学会第90春季年会、大阪府東大阪市 (2010-03).
 - 48) 西島喜明*, 上野貢生、村越敬、三澤弘明:「金ナノ構造体を用いた可視・赤外光電変換システムの構築」日本化学会第90春季年会、大阪府東大阪市 (2010-03).
 - 49) H. Misawa*, Y. Nishijima, K. Ueno, Y. Yokota and K. Murakoshi: “Gold Nano-structure Enhanced Photocurrent Generation System from Ultraviolet to Near-infrared Wavelength”, International Symposium on Chemical Conversion of Light Energy, Kinki University, Higashi-Osaka (2010-03).
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) 三澤弘明*:「金属ナノ構造を用いた光局在場の創製と光化学反応への応用」、光-分子強結合反応場の創成第5回シンポジウム、京都 (2009-04).
 - 2) 三澤弘明*:「フォトンのハンドリングと光化学への展開」、先端光機能材料の創発に関する光化学シンポジウム-徳丸克己先生退官15周年を記念して-、東京 (2009-05).
 - 3) 三澤弘明*:「金属ナノ構造による光の捕集・局在とその光化学反応場への展開」、国際高等研究所 研究プロジェクト「ナノ物質量子相の科学」2009年度第1回研究会、木津川 (2009-06).
 - 4) 三澤弘明*:「電気泳動チップを用いた核酸・タンパク質の新規分取装置の開発」、第3回次世代医療システム産業化フォーラム2009、大阪 (2009-06).
 - 5) H. Misawa*: “Nanoparticle plasmon-assisted photochemical reactions”, International Symposium on Advances in Nanostructure-Enhanced Photochemical Reactions and Photoenergy Conversion, Leuven, Belgium (2009-07).
 - 6) K. Ueno*, “Plasmonics in Nanostructures” International Workshop on Photons and Spins in Nanostructures, Sapporo (2009-07).
 - 7) Q. Sun*, S. Juodkazis and H. Misawa: “Free-standing photonic microstructures fabricated by two-photon polymerization with femtosecond laser pulses”, The 9th international conference on fundamental ultrafast processes in chemistry, biology, and physics, Beijing, China (2009-08).
 - 8) N. Murazawa*, K. Ueno, V. Mizeikis and H. Misawa: “Nonlinear photopolymerization induced by the near field of surface plasmons localized on gold nanostructures”, Seoul National University - Hokkaido University Joint Symposium 2009, Seoul, Korea (2009-11).
 - 9) Y. Nishijima, K. Ueno and H. Misawa “Lasing and energy transfer between two rhodamine dyes in silica opal”, Seoul National University - Hokkaido University Joint Symposium 2009, Seoul, Korea (2009-11).
 - 10) Q. Sun*, S. Juodkazis, N. Murazawa, V. Mizeikis and H. Misawa: “Freestanding and movable photonic microstructures fabricated by photopolymerization with femtosecond laser pulses”, SPIE Photonics West 2010: MOEMS-MEMS, San Francisco, USA (2010-01).
 - 11) 上野貢生:「プラズモンリソグラフィによるナノ加工」第59回超精密加工専門委員会研究会、大阪 (2010-01).
 - 12) 三澤弘明*:「光ナノアンテナによる広波長帯域太陽光エネルギー変換システムの開発」、京都・先端ナノテク総合支援ネットワーク 第8回ナノテクシンポジウム「フォトニクス研究の推進とナノテクノロジー支援の可能性」、奈良 (2010-03).
 - 13) H. Misawa*: “Gold Nano-Structure Enhanced Photocurrent Generation System from Ultraviolet to Infrared Wavelength”, 3rd Taiwan-Japan Joint Symposium on Organized Nanomaterials and Nanostructures Related to Photoscience, Hualien, Taiwan (2010-03).
 - 14) K. Ueno*: “Nanogap-assisted surface plasmon nanolithography”, 3rd Taiwan-Japan Joint Symposium on Organized Nanomaterials and Nanostructures Related to Photoscience, Hualien, Taiwan (2010-03).
 - 15) N. Murazawa*, K. Ueno, D. Aoyo, S. Ikegaya and H. Misawa: “Fabrication of metallic nanostructures for the enhancement of optical near fields and their applications for the control of photochemical reactions”, International symposium of joint research network on advanced

materials and devices "chou", Hotel-Nidom, Hokkaido (2010-03).

- 16) Y. Nishijima*, K. Ueno, Y. Yokota, K. Murakoshi, H. Misawa: "Gold nanorod assisted photocurrent generation system from ultraviolet to near-infrared wavelength", International symposium of joint research network on advanced materials and devices "chou", Hotel-Nidom, Hokkaido (2010-03).

iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 三澤弘明*:「金属ナノ構造形成とプラズモン共鳴」、日本分光学会第45回夏期セミナー、千葉 (2009-09).
- 2) 三澤弘明*:「光ナノアンテナによるナノ空間における反応と計測」、MNC 2009技術セミナー、札幌 (2009-11).
- 3) 三澤弘明*:「イントロダクトリートーク: 光-分子強結合反応場の創成に向けて」、第57回応用物理学関係連合講演会、平塚 (2010-03).
- 4) 三澤弘明*:「光ナノアンテナによるナノ空間における反応と計測」、MNC 2009技術セミナー、札幌 (2009-11).
- 5) H. Misawa*: "Nanoparticle Plasmon-assisted Photochemical Reactions", Invited seminar, CNRS et Universite de Strasbourg, Strasbourg, France (2009-12)

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

- 1) 三澤弘明:「文部科学省科学研究費補助金「特定領域研究」光-分子強結合反応場の創成 第5回公開シンポジウム」、京都大学 百周年時計台記念館 (京都) (2009年5月8日~2009年5月9日).
- 2) H. Misawa: "International Symposium on Advances in Nanostructure-Enhanced Photochemical Reactions and Photoenergy Conversion", Faculty Club (ルーバン ベルギー) (2009年7月16日~2009年7月17日).
- 3) 三澤弘明:「科学者のためのプラズモン講座-光と物質の究極的な相互作用実現に向けて」、日本科学未来館 (東京) (2009年9月12日).
- 4) 三澤弘明:「特定領域研究「光-分子強結合反応場の創成」第6回公開シンポジウム」、九州大学 西新プラザ (福岡) (2010年1月29日).
- 5) 上野貢生:「第一回「光-分子強結合場」若手シンポジウム」、九州大学 工学部 (2010年1月31日).
- 6) 三澤弘明、益田秀樹、山田淳、村越敬:「2010年春季第57回 応用物理学関係連合講演 企画シンポジウム「プラズモニクスと分子制御」、東海大学 (平塚) (2010年3月17日).

4.9 共同研究

c. 民間等との共同研究

- 1) 三澤弘明、ヨードカジス・サウリウス、上野貢生 (エア・ウォーター):「レーザー技術を活用した、結晶改質技術の検討」、2008~2009年度、レーザー技術を用

し化学物半導体 (SiC) の表面結晶構造の改質効果の有無を確認すると共に、シリコンを出発原料としたモノシラン生成の可能性を確認する。

- 2) 三澤弘明、ヨードカジス・サウリウス、上野貢生、村澤尚樹 (株式会社フジクラ):「フェムト秒レーザー加工およびエッチングによる微細孔作製技術の開発」、2009年度、基板内斜め配線インターポーザーに適用できる微細で狭ピッチな微細孔を生成でき、かつ量産への展開も可能な微細孔作製技術の開発を目的とする。
- 3) 三澤弘明 (ローム株式会社):「局在プラズモンを用いた受光素子」、2009年度、テラヘルツと呼ばれる帯域の電磁波を検出する簡便なデバイスを構築するために、局在プラズモン技術を用いて新規の検出素子を研究開発する。
- 4) 三澤弘明 (北海道立工業試験場):「ナノインプリント法による高機能微細構造の創製と応用に関する研究」、2009年度、ナノインプリント法による微細加工技術を確立し、応用製品を開発する。
- 5) 三澤弘明、上野貢生 (株式会社オプトメイト):「高精度マイクロレンズ金型作製技術研究開発」、2009年度~2010年度、3次元的なマイクロ・ナノ構造を設計どおりに作製する技術を開発し、光学フィルム等を作製するための微細金型を創製する技術を確立する。

d. 受託研究

- 1) 三澤弘明、上野貢生、孫 凱、李哲煜: 先端計測分析技術・機器開発事業 (科学技術振興機構)、「単一細胞内遺伝子発現プロファイル解析」、2008年度~2009年度: DNAなどの生体分子に関して1分子レベルでの分取を可能にするマイクロチップを開発する。
- 2) 三澤弘明、上野貢生、村澤尚樹、横田幸恵、池谷伸太郎、Geldhauser Tobias Rupert: 戦略的国際科学技術協力推進事業 (研究交流型)、「原子スケールで制御された金属ナノ接合における電子伝導の光制御」、2009年度~2012年度: 原子スケールで制御された金属ナノ接合を創出し、光照射に基づく電子伝導制御のメカニズムを明らかにすることを目的とする。具体的には、日本側の金属ナノ構造の加工技術と、ドイツ側の原子スケールで制御されたナノ接合創出に関する知見を組み合わせ、プラズモンによって誘起される光電場増強が金属ナノ接合における電子伝導に及ぼす効果について解明する。
- 3) 上野貢生、戦略的創造研究推進事業 さきがけ (科学技術振興機構)、「ナノ光リソグラフィーによる金属ナノパターン作製技術の開発」、2007年度~2010年度: シングルナノメートルの加工分解能を有する光リソグラフィー技術を開発し、プラズモニクデバイスやナノ電気回路として動作する金属ナノパターンを作製する技術を確立する。

4.10 予算獲得状況

a. 科学研究費補助金

- 1) 三澤弘明、特定領域研究、光-分子強結合反応場の創成、2007～2010年度
- 2) 三澤弘明、特定領域研究、金属ナノ構造を用いた光局在場の創製と光化学反応への応用、2007～2010年度
- 3) 上野貢生、若手研究B一般、金属ナノ構造によるアップコンバージョンシステムの構築、2008～2010年度
- 4) ヨードカジス・サウリウス、基盤研究 B 一般、衝撃波によるナノ構造物質の形成、2007～2009年度
- 5) 村澤尚樹、若手研究 スタートアップ、積層型金属ナノ構造体の作製とその光学特性評価、2008～2009年度
- 6) 西島喜明、特別研究員奨励費、フォトニック結晶を用いた新規光化学デバイスの作製およびその評価、2008～2009年度
- 7) 横田幸恵、特別研究員奨励費、高精度な金属ナノ構造作製手法を用いた表面増強ラマン散乱機構の解明、2009～2010年度

e. COE関係（研究担当者、機関名、研究題目、研究期間、研究内容）

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

4.12 社会教育活動

a. 公的機関の委員

- 1) 三澤弘明：文部科学省 科学技術政策研究所 科学技術動向研究センター 専門調査委員（2006年4月4日～2010年3月31日）
- 2) 三澤弘明：文部科学省 科学技術・学術審議会専門委員（2007年12月14日～2010年1月31日）
- 3) 三澤弘明：電気通信大学共同研究員（2008年4月1日～2010年3月31日）
- 4) 三澤弘明：科学技術振興機構 戦略的創造研究推進事業 研究領域「光の利用と物質材料・生命機能」領域アドバイザー（2008年5月9日～2011年3月31日）
- 5) 日本学術振興会 先端科学(FoS)シンポジウム事業委員会 専門委員（2008年8月1日～2010年3月31日）
- 6) 三澤弘明：日本学術振興会 科研費委員会専門委員（1段ナノ構造科学A）（2008年12月1日～2010年11月30日）
- 7) 三澤弘明：NEDO ピアレビュー（2009年3月1日～2011年3月31日）
- 8) 三澤弘明：光化学協会理事（2010年1月1日～2011年12月31日）

b. 国内外の学会の役職

- 1) 三澤弘明：Associate Editor, TNANO (IEEE Transactions on Nanotechnology) (2007年3月23日～2009年11月30日)
- 2) 三澤弘明：日本化学会北海道支部 幹事（2008年3月1日～2010年2月28日）
- 3) 三澤弘明：日本化学会北海道支部 平成21年度学会賞推薦委員・学術賞等推薦委員（2009年6月16日～2010年2月28日）
- 4) 三澤弘明：電子情報通信学会 超高速光エレクトロニクス研究会 専門委員（2009年3月2日～2010年3月31日）
- 5) 三澤弘明：ACS Applied Materials & Interfaces, Editorial Advisory Board (2009年1月1日～)
- 6) 三澤弘明：Journal of Physical Chemistry, Advisory Board Member（2010年1月1日～2012年12月31日）
- 7) 三澤弘明：Journal of Photochemistry and Photobiology C: Photochemistry Reviews, Deputy Editor（2010年1月1日～）

c. 併任・兼業

- 1) 三澤弘明：株式会社レーザーシステム 取締役（2004年6月1日～現在）
- 2) 三澤弘明：徳島大学産学連携関連分野客員教授（2006年11月1日～2010年3月31日）
- 3) 三澤弘明：西安交通大学客員教授（2009年1月3日～現在）

f. 外国人研究者の招聘（氏名、国名、期間）

- 1) Gamaly Eugene、オーストラリア（2009年4月5日～2009年4月11日）
- 2) Brasselet Etienne、フランス（2009年6月2日～2009年6月19日）
- 3) 李明朱、中国（2009年7月8日～2009年9月30日）
- 4) Prashant Kamat、アメリカ合衆国（2009年10月29日）
- 5) Johan Hofkens、ベルギー（2009年11月6日～2009年11月8日）
- 6) Chih-Wei Hsieh、台湾（2009年11月17日）
- 7) Lei Jiang、中国（2010年1月13日～2010年1月15日）

g. 北大での担当授業科目（対象、講義名、担当者、期間）

- 1) 工学部、電気回路、三澤弘明、2009年4月1日～2009年9月30日
- 2) 情報科学研究科、バイオオブティクス特論、三澤弘明、2009年10月1日～2010年3月31日
- 3) 情報科学研究科、バイオオブティクス特論、上野貢生、2009年10月1日～2010年3月31日
- 4) 工学部、科学技術英語演習、ヨードカジス・サウリウス、2009年4月1日～2009年9月30日
- 5) 工学部、ナノ工学基礎、上野貢生、2009年10月1日～2010年3月31日
- 6) 工学部、情報エレクトロニクス演習、村澤尚樹、2009年4月1日～2010年3月31日
- 7) 全学教育、環境と人間 光・バイオ・分子で拓くナノテ

クノロジー、2009年6月26日

- 8) 工学部、生体工学概論「バイオセンシング」、三澤弘明、
2009年11月25日

i. ポスドク・客員研究員など

- 1) 呉伯涛（文部科学省 科学研究費補助金特定領域研究
「金属ナノ構造を用いた光局在場の創製と光化学反応
への応用」・博士研究員、2008.10.16～2010.09.30）
- 2) 周時鳳（新生資源協会財団助成金「集光フェムト秒レ
ーザーパルスによるサファイアの3次元微細加工」・博
士研究員、2008.12.15～2009.5.31）
- 3) 西島喜明（日本学術振興会特別研究員(DC2)、2009.4.1
～2010.3.31）
- 4) 高書燕（文部科学省 科学研究費補助金特定領域「金属
ナノ構造を用いた光局在場の創成と光科学反応への応
用」・博士研究員、2009.12.3～2010.7.31）
- 5) 孫 泉（文部科学省 科学研究費補助金特定領域研究「金
属ナノ構造を用いた光局在場の創製と光化学反応への
応用」・博士研究員、2009.1.1～）
- 6) Geldhauser Tobias Rupert（科学技術振興機構「原子ス
ケールで制御された金属ナノ接合における電子伝導の
光制御」・博士研究員、2010.2.1～）

j. 修士学位及び博士学位の取得状況

・博士課程（2名）

- 1) 横田幸恵：制御された金属ナノ構造空間を用いた表面
増強ラマン散乱に関する研究（Surface-enhanced Ra-
man scattering on nano-engineered gold particles）（2009
年12月）
- 2) Md. Monirul Islam : Development of Nanostructured
Intergrated Array Electrodes as Spectroanalytical Tool（金
属ナノ構造を配置した櫛型マイクロ電極による分光電
気化学分析システムの開発）（2010年3月）

・修士課程（2名）

- 1) 高畠聡章：Development of fabrication procedure of gold
nanostructures using nanolithography/lift-off techniques
（ナノ光リソグラフィー／リフトオフによる金属ナノ
構造作製技術の開発に関する研究）（2010年3月）
- 2) 西泰史：Femtosecond laser modification of hard dielectric
materials（集光フェムト秒レーザー照射による高硬度
誘電体材料の改質に関する研究）（2010年3月）

バイオ分子ナノデバイス研究分野

教 授 居城邦治（東工大院、工博、2004.3～）

准教授 新倉謙一（東工大院、工博、2005.1～）

助 教 松尾保孝（北大院、工博、2004.8～2010.1）

博士研究員 田中啓之（2009.4～2010.3）

院 生

博士課程

大竹範子、西尾 崇、永川桂大

修士課程

栃木 隆、関口翔太、石川綾子、南原克行、渡辺雪江

学部生

武蔵裕介、江口明日美

1. 研究の目的

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

2. 研究成果

(a) ナノギャップ電極作製を目指したDNAブロックコポリマー合成および塩基配列選択的な金属化

近年、自己組織化や自己集合を利用したボトムアップ型ナノテクノロジーに注目が集まっている。DNAはその高い分子認識性や構造の多様性から、ナノ構造体作製のためのビルディングブロックとして注目されている。これまで当研究室ではDNAのプリン塩基(G, A)に選択的に結合するPt錯体シスプラチンとpoly(dG)・poly(dC)を用いてPtナノワイヤーを作製してきた。DNAの塩基配列を制御し、特定の塩基配列を選択的に金属化することができれば、ナノギャップ電極やナノPN接合などの電子デバイスを自己組織

化的に作製することが可能になると期待される。そこで、新たにシスプラチンと結合しない非天然塩基7-deaza-Gを用いてDNAトリブロックコポリマーpoly(dG)・poly(dC)/poly(7-deaza-dG)・poly(dC)/poly(dG)・poly(dC)を酵素合成し、そのグアニンブロック選択的にPtを析出させることに成功した(図1)。

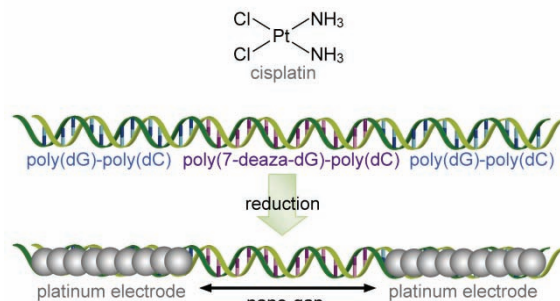


図1. DNAブロックコポリマーを利用したナノギャップ構造の作製

(b) フッ素界面が誘起するナノ粒子の高速自己集合

ナノ微粒子を構成要素とする分子集合体はナノ微粒子結晶などと呼ばれ、バルク体はもちろんのこと、個々のナノ微粒子にはない性質を示す。我々はその化学的性質のために非常に特異な界面特性を示す「フッ素界面」が誘起する現象である。我々はフッ化テトラエチレングリコール(FTEG)を提示した金ナノ粒子が高次集合構造形成を容易に形成することを見いだした。これまでにも、フッ素化表面を持ったナノ微粒子は既に報告例があるが、フッ素化合物の特徴である疎水性および疎油性のためフッ素系溶媒にしか溶解せず、一般に親媒性・水溶性が悪く、使用は困難である。そこで、親媒性の高いフッ素化合物であるFTEGに注目し、これを粒子に提示することで本来相反するはずの親媒性の向上とフッ素界面特性の発現を狙った。新規に合成したFTEGチオール化合物(FTEG-C11-SH)により得られたFTEG化金ナノ微粒子(FTEG-AuNPs)はフッ素系の溶媒以外の一般的な極性溶媒に良く分散した。また、FTEG-AuNPsを基板上に滴下しキャストフィルムを作製したところ、フッ素化されていない通常のテトラエチレングリコール(TEG)金ナノ粒子に比べ、粒子が形成する3次元配列構造が生じやすかった。またこの現象がフッ素化によるフッ素界面同士の潤滑性からもたらされているということを明らかにした(図2)。

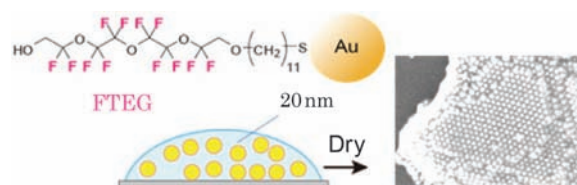


図2. フッ素化エチレングリコール修飾による金ナノ粒子の高速組織化

(c) ウイルスの自己集合を利用したサイズの異なるウイルスカプセルの作製

我々はインフルエンザをはじめウイルスを高感度に検出するためにウイルスに特異的に結合する金ナノ粒子の合成を行ってきた。ウイルスのもつシアル酸認識能に着目し、金ナノ粒子にシアル酸を提示すると、ウイルス表層に複数のナノ粒子を結合・配列化できることを見いだしてきた。これにより金ナノ粒子由来の大きなプラズモン吸収波長のシフトを誘起できる。またこの結果は、ウイルスカプセルはナノ粒子の空間配置を制御して固定化するための材料(鋳型)として機能しうることを示している。

鋳型として機能させる場合にまず重要な点はそのサイズに多様性をもたせることができるかどうかである。そこでウイルスのサイズの制御を目的とした、ウイルスカプセルの自己集合の制御を試みた。我々が用いているウイルスはタンパク質ユニットが72個集まっているT7型と言われているが、理論的にはT1やT3と言われるサイズの小さなカプセルも形成しうる(図3参照)。

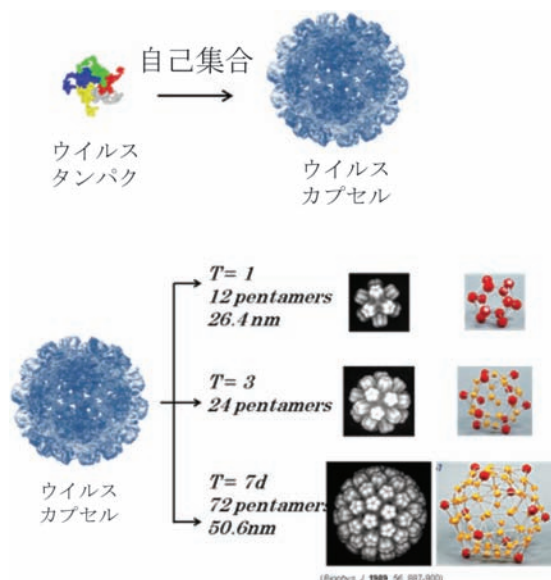


図3. ウイルスタンパク質の自己集合によるサイズの異なるウイルスカプセルの生成

我々はイオン強度を大きくすることでウイルスタンパクの自己集合が促進されることを見いだした。またそのサイズはT1とよばれる最も小さいカプセルであることも明らかにした。興味深いことにタンパクの自己集合の際に、5ナノメートルの金ナノ粒子を添加するとその金ナノ粒子を囲むようにウイルスカプセルが形成されることがわかった。これは金ナノ粒子を鋳型にしてウイルスカプセルの形成がさらに促進されていることを示しており、サイズの異なるウイルスカプセルの大量調整に利用できることがわかった。

(d) 癌細胞選択的な薬剤輸送を可能にする高分子の合成

細胞膜は細胞外環境との相互作用を担い、細胞接着やシグナル伝達を調節する重要な器官である。一方、細胞膜は薬剤の細胞内送達の最初のバリアーとして機能する。我々は2級アミノ基を有する高分子がアニオン性である細胞膜に結合し、ゆっくりと数時間をかけて内包されることを見いだしてきた。カチオン性高分子は通常細胞内に迅速に取り込まれるが、数時間かけて取り込まれる点が2級アミンを有する高分子の持つ特徴である。特に癌細胞と正常細胞を比較すると、癌細胞ではその取り込み速度が正常細胞と比較して早いことがわかった。この結果をふまえ、2級アミン高分子を癌細胞に添加し、一時的に細胞表層になんらかのリガンド分子を提示させた後に、それらの認識を用いて細胞内に目的の分子を送り込むことができると考えた(図4)。薬剤モデルとして量子ドットを用いて、量子ドット(QD)が2級アミン高分子と結合するように高分子側鎖にリガンドを提示させ、レセプターを固定化した量子ドットを細胞内に送達できるかどうかを調べた。リガンド及びレセプター分子として糖鎖とレクチンタンパク質を用いた場合に癌細胞特異的な量子ドットの内包が観察された。我々の手法は、通常細胞が取り込まないような分子やナノ粒子を効率よく取り込ませるための新しい方法論になりうる。

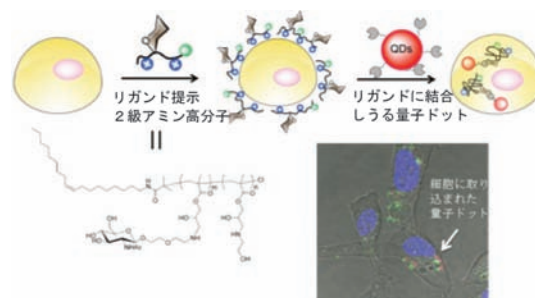


図4. 細胞膜に結合する高分子を介した量子ドットの癌細胞(HT2010)特異的送達

3. 今後の研究の展望・将来計画

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

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) N. Ohtake(Ishizuka), K. Niikura, T. Suzuki, K. Nagakawa, S. Mikuni, Y. Matsuo, M. Kinjo, H. Sawa and K. Ijro : “Low pH-Triggered Model Drug Molecule Release from Virus-Like Particles”, *ChemBioChem*, 11 : 959-962 (2010)
- 2) Y. Hirai, H. Yabu, Y. Matsuo, K. Ijro and M. Shimomura : “Arrays of Triangular Shaped Pincushions for SERS Substrates Prepared by Using Self-Organization and Vapor Deposition”, *Chem. Commun*, 46 : 2298-2300 (2010)
- 3) H. Yabu, Y. Matsuo, K. Ijro, F. Nishino, T. Takaki, M. Kuwahara and M. Shimomura : “Spontaneous Formation of Microwrinkles on Metal Microdot Arrays by Shrinkage of Thermal Shrinkable Substrate”, *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2(1) : 23-27 (2009)
- 4) K. Niikura, K. Ijro and S. Sekiguchi : “Multivalent display of oligosaccharides on nanoparticles accelerates thier nuclear import”, *Trends in Glycoscience and Glycotechnology*, 21(122) : 335-344 (2009)
- 5) K. Niikura, K. Nagakawa, N. Ohtake, T. Suzuki, Y. Matsuo, H. Sawa and K. Ijro : “Gold Nanoparticle Arrangement on Viral Particles through Carbohydrate Recognition: A Non-cross-linking Approach to Optical Virus Detection”, *Bioconjugate Chemistry*, , 20 : 1848-1852 (2009)
- 6) T. Masuda, H. Akita, K. Niikura, T. Nishio, M. Ukawa, K. Enoto, K. Danev, K. Nagayama, K. Ijro and H. Harashima : “Envelope-type Lipid Nanoparticles Incorporating a Short PEG-lipid Conjugate for Improved Control of Intracellular Trafficking and Transgene Transcription”, *Biomaterials*, 30 : 4806-4814 (2009)
- 7) Y. Fukuhira, H. Yabu, K. Ijro and M. Shimomura : “Interfacial tension governs the formation of self-organized honeycomb-patterned polymer films”, *Soft Matter*, 5(10) : 2037-2041 (2009)

4.2 総説・解説・評論等

- 1) 新倉謙一:「糖鎖で被覆した金属および半導体ナノ粒子の合成と応用」、複合糖質の化学と最新応用技術、シーエムシー出版 : 228-234 (2009)
- 2) Niikura and K. Ijro : “Design of a novel cell surface-retained polymer for cell surface engineering ”, *高分子*, 高分子学会, 58(5) : 300 (2009)

4.4 著書

- 1) 居城邦治:「自己組織化とはーバイオマテリアル」、自己組織化ハンドブック、エヌ・ティー・エス、第1章 第9節 : 30-32 (2009)
- 2) 居城邦治:「DNAの組織化による機能材料」、超分子サ

イエンス&テクノロジー基礎からイノベーションまで、エヌ・ティー・エス、第4章、第2節 : 957-965 (2009)

- 3) 松尾保孝、新倉謙一、居城邦治:「高分子と金属ナノ粒子の複合化による機能性材料の創製」、金属ナノ・マイクロ粒子の形状・構造制御技術、シーエムシー出版、第7章 : 188-198 (2009)

4.7 講演

i) 学会

- 1) 西尾崇*、新倉謙一、松尾保孝、居城邦治:「フッ素化エチレングリコール提示ナノ粒子の作製と細胞内動態」、日本化学会第90春季年会、近畿大学本部キャンパス (2010-03)
- 2) 南原克行*、新倉謙一、岡嶋孝治、櫛田勇樹、松尾保孝、居城邦治:「細胞膜におけるフッ素型脂質の高速拡散挙動の解析」、日本化学会第90春季年会、近畿大学本部キャンパス (2010-03)
- 3) 大竹(石塚)範子*、新倉謙一、鈴木忠樹、三國新太郎、松尾保孝、永川桂大、金城政孝、澤洋文、居城邦治:「pHに応答した分子放出のためのウイルスナノカプセルの機能化」、日本化学会第90春季年会、近畿大学本部キャンパス (2010-03)
- 4) 武蔵裕介*、新倉謙一、大竹(石塚)範子、澤洋文、居城邦治:「細胞内還元環境において分子放出可能なウイルスカプセルの作製」、日本化学会第90春季年会、近畿大学本部キャンパス (2010-03)
- 5) 江口明日美*、松尾保孝、新倉謙一、居城邦治:「固体基板上に固定化したDNAの伸長反応によるナノデバイスの鋳型作製」、日本化学会第90春季年会、近畿大学本部キャンパス (2010-03)
- 6) 渡辺雪江*、田中あや、松尾保孝、新倉謙一、居城邦治:「非天然塩基を導入したDNAポリマーの酵素合成および塩基配列選択的な金属化」、日本化学会第90春季年会、近畿大学本部キャンパス (2010-03)
- 7) 石川綾子、松尾保孝、鈴木健二、新倉謙一、居城邦治*:「金ナノ粒子結合オリゴヌクレオチドの伸長反応による単電子デバイスの鋳型作製」、日本化学会第90春季年会、近畿大学本部キャンパス (2010-03)
- 8) Y. Hirai*, H. Yabu, Y. Matsuo, K. Ijro and M. Shimomura : “Silicon Nano-Structures Prepared by using Self-Organized Polymer Structures for Dry Etching Masks and Their Surface Properties”, MRS fall meetings, Boston, USA (2009-11 ~ 2009-12)
- 9) Y. Hirai*, H. Yabu, Y. Matsuo, K. Ijro and M. Shimomura : “Preparation of Self-Organized Porous Polymer Masks for Si Dry Etching”, FRONTIER-2009, Tohoku Univ. (2009-11)
- 10) 森田有香*、山本貞明、藪浩、伊藤絵美子、本望修、居城邦治、下村政嗣:「自己組織化多孔性ハニカムフィル

- ム上の表面での間葉系幹細胞-細胞の接着形態、増殖、分化に及ぼすフィルムの材質と細孔径の影響」、第29回表面科学学術講演会、タワーホール船堀(東京)(2009-10)
- 11) Y. Morita*, S. Yamamoto, H. Yabu, E. Ito, K. Ijiro, O. Honmou and M. Shimomura : “Honeycomb-Patterned Polymer Films Enhance the Proliferation of Mesenchymal Stem Cell from Rat Adult Bone Marrow”, The 1st FAPS Polymer Congress, Nagoya Congress Center (2009-10)
 - 12) 南原克行*, 新倉謙一、神谷亮介、松尾保孝、居城邦治 : 「細胞周期選択的に取り込まれる脂質様化合物の探索と細胞膜との相互作用」、第58回高分子討論会、熊本大学工学部 (2009-09)
 - 13) 永川桂大*, 新倉謙一、大竹(石塚)範子、鈴木忠樹、松尾保孝、澤洋文、居城邦治 : 「ウイルスを中心とした金ナノ粒子の三次元配列構造体とその光学応答」、第58回高分子討論会、熊本大学工学部 (2009-09)
 - 14) 大竹(石塚)範子*, 新倉謙一、鈴木忠樹、永川桂大、澤洋文、居城邦治 : 「ペプチドタグを用いたウイルスナノカプセルへの目的分子内包」、第58回高分子討論会、熊本大学工学部 (2009-09)
 - 15) 石川綾子*, 松尾保孝、鈴木健二、新倉謙一、居城邦治 : 「単電子デバイス作製を目指した金ナノ粒子結合単一DNAの酵素合成」、第58回高分子討論会、熊本大学工学部 (2009-09)
 - 16) 関口翔太*, 新倉謙一、松尾保孝、吉村成弘、居城邦治 : 「オリゴ糖の高密度提示によって促進されるナノ微粒子の核内輸送」、第58回高分子討論会、熊本大学工学部 (2009-09)
 - 17) 渡辺雪江*, 田中あや、松尾保孝、新倉謙一、居城邦治 : 「天然・非天然塩基を用いたDNAポリマーの合成と塩基配列選択的な金属化」、第58回高分子討論会、熊本大学工学部 (2009-09)
 - 18) 森田有香*, 山本貞明、藪浩、伊藤絵美子、本望修、居城邦治、下村政嗣 : 「ハニカムフィルムによる骨髄間葉系幹細胞の増殖促進」、第58回高分子討論会、熊本大学工学部 (2009-09)
 - 19) 西尾崇*, 新倉謙一、松尾保孝、居城邦治 : 「フルオロアルキル界面を利用した半導体量子ドットの機能化検討」、第58回高分子討論会、熊本大学工学部 (2009-09)
 - 20) 松尾保孝*, 田中あや、石川綾子、渡辺雪江、新倉謙一、阿部益宏、上村崇史、松本和彦、居城邦治 : 「電子デバイス応用に向けたDNAの塩基配列選択的な金属ナノ細線作製」、2009秋季 第70回 応用物理学会 学術講演会、富山大学 (2009-09)
 - 21) K. Ijiro*, A. Tanaka, K. Niikura and Y. Matsuo : “Base Sequence-Specific Metallization of Double-Stranded DNA for Bottom-Up Fabrication Process of Nanostructure”, International Symposium of Post-Silicon Materials and Devices Research Alliance Project, Ichō kaikan, Osaka University (2009-09)
 - 22) K. Ijiro, A. Tanaka*, A. Ishikawa, K. Niikura and Y. Matsuo : “DNA-assisted fabrication of functional metal nanostructures”, SPIE Optics + Photonics 2009, San Diego, USA (2009-08)
 - 23) 平井悠司*, 藪浩、松尾保孝、居城邦治、下村政嗣 : 「銀-高分子ハイブリッドピラー構造を用いた表面増強ラマン散乱測定」、2009年春季第56回応用物理学関係連合講演会、筑波大学 (2009-03~2009-04)
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) N. Ohtake(Ishizuka)*, K. Niikura, T. Suzuki, Shintaro Mikuni, Y. Matsuo, K. Nagakawa, M. Kinjo, H. Sawa and K. Ijiro : “Preparation of functionalized virus-like particles enabling pH-mediated release of target molecules”, International Symposium of Joint Research Network on Advanced Materials and Devices “彫” [Chou], Hotel-Nidom, Hokkaido (2010-03)
 - 2) H. Tanaka*, D. Shiomi, Y. Matsuo, K. Niikura, K. Sato, T. Takui and K. Ijiro : “Construction of Organic Molecular Spin Assembly Organized by Molecular Recognition between Nucleobases”, International Symposium of Joint Research Network on Advanced Materials and Devices “彫” [Chou], Hotel-Nidom, Hokkaido (2010-03)
 - 3) 居城邦治* : 「生体の分子認識を利用した有機-金属バイオナノシステムの構築」、ナノICTシンポジウム2010~ナノとバイオの融合が切り開く未来型ICT~, 東京ビッグサイト (2010-02)
 - 4) 江口明日美*, 松尾保孝、新倉謙一、居城邦治 : 「ナノデバイスの作製を目指した固体基板上での固定化DNAの伸長反応」、第44回 (2009年度) 高分子学会北海道支部研究発表会、北海道大学 百年記念会館 (2010-01)
 - 5) 武蔵裕介*, 新倉謙一、大竹(石塚)範子、澤洋文、金城政孝、居城邦治 : 「細胞質において特異的に分子放出できるウイルスカプセルの作製」、第44回 (2009年度) 高分子学会北海道支部研究発表会、北海道大学 百年記念会館 (2010-01)
 - 6) Y. Hirai*, H. Yabu, Y. Matsuo and K. Ijiro : “Novel silver pincushion arrays prepared by using self-organization process and SERS measurements”, 中国大連工科大学との合同シンポジウム, 川内ホール(Japan, Sendai) (2009-12)
 - 7) K. Ijiro* : “Fabrication of Molecular-Metal Hybrid Nanosystems based on Biomolecular Recognition”, International Symposium on Engineering Neo-Biomimetics - Toward Paradigm Shift for Innovation -, AIST Tokyo Waterfront (2009-10)
 - 8) Y. Hirai*, H. Yabu, Y. Matsuo, K. Ijiro and M. Shimomura : “Preparation of the Biomimetic Functional Surfaces by Using Self-Organization Process”, International Sympo-

- sium on Engineering Neo-Biomimetics -Toward Paradigm Shift for Innovation-, AIST Tokyo Waterfront (2009-10)
- 9) S. Sekiguchi*, K. Niikura, S. Yoshimura, T. Nishio, Y. Matsuo and K. Ijro : “Binding Behavior of Sugar-Displaying Nanoparticles to Nuclear Pore Complex”, International Symposium on Engineering Neo-Biomimetics - Toward Paradigm Shift for Innovation -, AIST Tokyo Waterfront (2009-10)
 - 10) K. Nagakawa*, K. Niikura, N. Ohtake(Ishizuka), T. Suzuki, Y. Matsuo, H. Sawa and K. Ijro : “Gold nanoparticle array based on the surface structure of virus”, International Symposium on Engineering Neo-Biomimetics - Toward Paradigm Shift for Innovation -, AIST Tokyo Waterfront (2009-10)
 - 11) 南原克行*, 新倉謙一, 松尾保孝, 居城邦治 : 「細胞周期選択的に取り込まれる化合物の探索および細胞周期と細胞膜組成の変化」, 2009年度北海道高分子若手研究会、洞爺サンパレス (2009-08)
 - 12) 渡辺雪江*, 田中あや, 松尾保孝, 新倉謙一, 居城邦治 : 「天然・非天然塩基を用いた DNA ポリマーにおける塩基配列選択的な金属化」, 2009年度北海道高分子若手研究会、洞爺サンパレス (2009-08)
 - 13) K. Ijro* : “Base Sequence-Specific Metallization of DNA for Bottom-Up Process of Nanostructure Fabrication”, HYU-RIKEN Joint Workshop & FTC One Year Anniversary Celebration, Fusion Tech Center, Hanyang University, Seoul, Korea (2009-08)
 - 14) 山本貞明*, 前田悠, 栃木隆, 居城邦治, 田中賢, 下村政嗣 : 「ハニカム構造フィルム上での癌細胞培養」, 第19回バイオ・高分子シンポジウム、東京大学先端科学技術研究センター (2009-07)
 - 15) 大竹(石塚)範子*, 新倉謙一, 鈴木忠樹, 永川桂大, 澤洋文, 居城邦治 : 「ウイルス微粒子への蛍光タンパク質内包技術の開発」, 第19回バイオ・高分子シンポジウム、東京大学先端科学技術研究センター (2009-07)
 - 16) 新倉謙一, 南原克行*, 神谷亮介, 岡嶋孝治, 居城邦治 : 「細胞膜特異的な高分子を用いた細胞表層修飾法の開発」, 第19回バイオ・高分子シンポジウム、東京大学先端科学技術研究センター (2009-07)
 - 17) 居城邦治* : 「DNA, タンパク質の自己組織化を利用した機能性金属ナノ構造の構築」, 理研セミナー、理化学研究所(和光市) (2009-07)
 - 18) 新倉謙一* : 「ウイルスの糖鎖認識を利用したナノバイオテクノロジー」, 生体分子機能工学専攻特別講義講演会、東京工業大学 (2009-07)
 - 19) 居城邦治* : 「単一 DNA 分子を基盤としたナノポジショニング法の開発」, ナノテクノロジー研究センター講演会、北海道大学 (2009-05)
- iii) コロキウム・セミナー等・その他
- 1) Y. Hirai*, H. Yabu, Y. Matsuo, K. Ijro and M. Shimomura :

“Preparation of the silver pincushion arrays for surface enhanced Raman scattering by using self organization process”, JSPS アジア研究教育拠点形成事業 第1回合同セミナー, 延世大学, 中国 (2009-12)

- 2) 新倉謙一* : 「分子内包ウイルスカプセルの作製とナノバイオロジーへの応用」, 岐阜大学生命工学科公開セミナー、岐阜大学 (2009-09)

4.9 共同研究

b. 民間等との共同研究

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

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

- 1) 居城邦治、松尾保孝、NEDO 産業技術研究助成事業 : 「非対称ナノハニカム構造を持つ高機能癒着防止膜とその自己組織化プロセスの開発」 (2007~2009年度)
- 2) 居城邦治、新倉謙一、松尾保孝、科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業 : 「金属・半導体の表面加工とバイオミメティック・エンジニアリング」 (2008~2013年度)
- 3) 居城邦治、科学技術振興機構 : 「安定同位元素イメージング技術による産業イノベーション」 (2007~2011年度)

4.10 予算獲得状況

a. 科学研究費補助金 (研究代表者、分類名、研究課題、期間)

- 1) 新倉謙一、基盤研究 B、シャペロンの糖鎖認識を原理とした新規細胞ストレスセンシング法の開発 (2007~2009年度)
- 2) 田中啓之、特別研究員奨励費、スピン導入型核酸塩基の自己集合を利用した有機フェリ磁性体の構築 (2008~2009年度)
- 3) 大竹(石塚)範子、特別研究員奨励費、ウイルス様カーゴカプセル固定化基板によるセルトランスフェクションアレイの開発 (2007~2009年度)
- 4) 西尾崇、特別研究員奨励費、糖鎖とシャペロンの相互作用を利用した新規細胞ストレス検出法の確立 (2008~2010年度)
- 5) 永川桂大、特別研究員奨励費、ウイルスを鋳型とする金属ナノ粒子の三次元配列化と光集積への応用 (2009~2011年度)

f. その他

- 1) 岡嶋孝治、田中賢、新倉謙一、石井勝弘 (NEDO 産業技術研究助成事業) : 「単一細胞表層の全方向ナノダイナミクス計測技術の開発」, 2006~2009年度、本研究では、生細胞表層のマイクロドメイン構造および表面ダイナミクスを測定する手法を確立する。研究開発期間

の前半は、細胞の表層を選択的に計測することができる、原子間力顕微鏡 (AFM) 法とエバネッセント波動的散乱法 (EW-DLS) とを組み合わせた細胞表層の全方向計測装置を試作する。そして、糖鎖ナノプロンプ合成技術と細胞培養制御技術を利用して細胞表層の定量測定が可能なナノ計測技術を確立する。研究期間の後半は、本研究で開発したナノ計測技術を用いて、多数個の正常細胞と異常細胞の解析結果から、生細胞表層の時空間構造と疾患との相関を解明する。

- 2) 新倉謙一、田中貴金属「貴金属に関わる研究助成金」：「ウイルスの分子認識を利用した金属ナノシェルの構築と高感度ウイルス検出法の開発」、(2009年度)

4.11 受賞

- 1) 西尾崇：「フッ素化エチレングリコール提示ナノ粒子の作製と細胞内動態」、第90日本化学会春季年会「学生講演賞」(2010.3.26-29)
- 2) 大竹範子：「Studies of functionalized virus-like particles and stimuli-responsive drug release」、北海道大学大塚賞(2010.3.15)
- 3) 渡辺雪江：「天然・非天然塩基を用いた DNA ポリマーにおける塩基配列選択的な金属化」、2009年度北海道高分子若手研究会「ポスター賞（優秀発表賞）」(2009.8.28-29)
- 4) 森田有香、山本貞明、藪浩、本望修、居城邦治、下村政嗣：「細胞培養治療用幹細胞の安全迅速な培養基材の開発」、シオノギイノベーションフェア2009「最優秀ポスター賞」(2009.8.26)

4.12 社会教育活動

- 1) 居城邦治、新倉謙一、松尾保孝：北海道立教育研究所平成21年度理数系教育指導力向上研修講師(2009年5月14日～8月7日)
- 2) 新倉謙一：経済産業省 地域技術開発支援事業に係わる事前評価委員(2007年5月14日～2010年9月30日)

b. 国内外の学会の役職

- 1) 居城邦治：(社)日本化学会北海道支部幹事(2010年3月1日～現在)
- 2) 新倉謙一：(社)高分子学会男女共同参画委員(2007年4月1日～2011年3月31日)
- 3) 松尾保孝：日本化学会・生体機能関連化学部会若手の会幹事(2005年～現在)
- 4) 居城邦治：(社)高分子学会北海道支部幹事(2004年4月1日～現在)
- 5) Kuniharu Ijro: Asian Conference on Nanoscience & Nanotechnology (AsiaNANO), Steering Committee (2004年度～現在)
- 6) 居城邦治：社団法人高分子学会バイオ・高分子研究会運営委員(2002年4月1日～現在)

c. 併任・兼業

- 1) 居城邦治：独立行政法人 科学技術振興機構「戦略的創造研究推進事業(ナノシステムと機能創発)」領域アドバイザー(2010年2月26日～2012年2月25日)
- 2) 新倉謙一：(独)日本学術振興会 科学研究費委員会専門委員(2009年12月1日～2010年11月30日)
- 3) 居城邦治：(独)日本学術振興会 特別研究員等審査会専門委員、国際事業委員会書面審査委員(2009年8月1日～2010年7月31日)
- 4) 居城邦治：(財)北海道科学技術総合振興センター 研究開発助成事業審査委員会専門委員(2009年7月13日～2010年3月31日)
- 5) 居城邦治：(独)科学技術振興機構 外部評価者(2009年5月27日～2009年6月15日)
- 6) 居城邦治：独立行政法人 理化学研究所 基幹研究所 分子情報生命科学特別研究ユニット 客員主管研究員(2007年12月1日～現在)
- 7) 居城邦治：独立行政法人 科学技術振興機構「戦略的創造研究推進事業(ナノ構造技術の探索と展開)」領域アドバイザー(2006年6月19日～2010年6月18日)
- 8) 居城邦治：(社)日本化学会「欧文誌」編集委員会 編集委員(2006年3月1日～2010年3月31日)

g. 北大での担当授業科目(対象、講義名、担当者、期間)

- 1) 全学共通、環境と人間(光・バイオ・分子で拓くナノテクノロジー)、居城邦治、2009年4月1日～2009年9月30日
- 2) 全学共通、環境と人間(先端の化学)、居城邦治、2009年4月1日～2009年9月30日
- 3) 全学共通、基礎化学I、新倉謙一、2009年4月1日～2009年9月30日
- 4) 理学院、特別研究Ⅰ、居城邦治、2009年4月1日～2010年3月31日
- 5) 理学院、特別研究Ⅱ、居城邦治、2009年4月1日～2010年3月31日
- 6) 理学院、特別研究Ⅲ、居城邦治、2009年4月1日～2010年3月31日
- 7) 理学院、特別研究Ⅳ、居城邦治、2009年4月1日～2010年3月31日
- 8) 理学院、特別研究Ⅴ、居城邦治、2009年4月1日～2010年3月31日
- 9) 理学院、論文購読Ⅰ、居城邦治、2009年4月1日～2010年3月31日
- 10) 理学院、論文購読Ⅱ、居城邦治、2009年4月1日～2010年3月31日
- 11) 理学院、論文購読Ⅲ、居城邦治、2009年4月1日～2010年3月31日
- 12) 理学院、論文購読Ⅳ、居城邦治、2009年4月1日～2010年3月31日
- 13) 理学院、論文購読Ⅴ、居城邦治、2009年4月1日～2010年3月31日

h. 北大以外での非常勤講師（担当者、教育機関、講義名、期間）

- 1) 新倉謙一、岐阜大学工学部、生命工学特論第一、2009年8月1日～2009年9月30日
- 2) 新倉謙一、東京工業大学大学院生命理工学研究科生体分子機能工学専攻、生体分子機能工学特別講義第一、2009年7月10日～2009年9月30日

i. ポスドク・客員研究員など

- ・ポスドク（1名）
田中啓之（日本学術振興会）

j. 修士学位及び博士学位の取得状況

- ・修士課程（5名）
栃木隆、関口翔太、石川綾子、南原克行、渡辺雪江
- ・博士課程（3名）
大竹範子、西尾 崇、永川桂大
- ・修士論文
 - 1) 栃木隆：微細表面構造への癌細胞の接着挙動と増殖性に関する研究
 - 2) 関口翔太：オリゴ糖の高密度提示によって促進されるナノ微粒子の核内輸送
 - 3) 石川綾子：核酸の分子認識を利用した塩基選択的的金属析出制御とナノ構造体の作製
- ・博士論文
 - 1) 大竹範子：Studies of functionalized virus-like particles and stimuli-responsive drug release (機能性ウイルス様微粒子と刺激に応答した薬剤放出に関する研究)

ナノ理論研究分野

助 教 畔原宏明（東工大院、博士(工学)、2004.2～2009.5）

1. 研究目標

ナノ理論研究分野では、ナノテクノロジー分野の基幹技術である走査プローブ顕微鏡（SPM）技術に注目し、ナノテクノロジー新領域（複合領域ナノサイエンス）創製に向け分野横断的・融合的な研究課題の探索を行ってきた。特に本研究プロジェクトの全期間を通して、カーボンナノチューブを探針とする化学力顕微鏡法の開発を行ってきた。

2. 研究成果

カーボンナノチューブ探針を用いる化学力顕微鏡法における未解決課題のひとつは、探針先端の官能基の同定および定量であったが、本研究プロジェクトの総括として、本課題に関する一定の科学的知見を論文誌上（Appl. Surf. Sci.）にて報告した。また、分野横断的・融合的な研究の一環として東北大学多元物質科学研究所・進藤教授のグループとの連携により実施された、TEM用コンタクトプローブの開発に関する研究成果をMater. Trans. 誌にて報告した。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) H. Azebara and H. Tokumoto: “Analysis of the Number of Hydrogen Bond Groups of a Multiwalled Carbon Nanotube Probe Tip for Chemical Force Microscopy”, Appl. Surf. Sci., 256(4) : 987-990 (2009).
- 2) N. Kawamoto, Y. Murakami, D. Shindo, H. Azebara and H. Tokumoto: “Precise Resistivity Measurement of Submicrometer-Sized Materials by Using TEM with Microprobes”, Mater. Trans., 50(6) : 1572-1575 (2009).

4.10 予算獲得状況

- f. その他（研究担当者、機関名、研究題目、研究期間、総経費、研究内容）
- 1) 荻野千秋、畔原宏明、梅津光央、折笠広典（産業技術研究助成事業、NEDO）：高分解能生体分子プローブカンチレバーの創製による生体認識イメージング技術の開発、2006～2010年度、6,000千円、核酸、タンパク質等の分子間相互作用解析による固定化分子の高精度分析のため、原子間力顕微鏡の触診デバイスであるカンチレバー先端へのカーボンナノチューブ（CNT）修飾、更に、CNT先端への生体分子修飾を行い、新規な“分子認識能とイメージング機能”を備えたバイオセンシングシステム開発を行う。これにより、原子レベルでの分解能を有し、無機材料の表面微細構造解析ツールとして定評ある走査型プローブ顕微鏡技術をバイオ分野へ展開し、バイオチップ等の評価技術確立を目指す。

寄附研究部門

研究目的

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



ニコンバイオイメージングセンター

教授 永井健治（東大院、博士(医学)、2005.10～）

教授 上田哲男（北大院、博士(薬学)、2005.10～）

特任准教授 堀川一樹

（京大院、博士(理学)、2006.12～）

特任助教 齊藤健太

（北大院、博士(理学)、2005.10～）

技術職員 小林健太郎

（北大院、博士(理学)、2005.10～）

1. 研究目標

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

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

以上の目的を達成するため、以下に掲げる項目に沿った活動を行っている。

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

2. 研究成果

(a) 利用実績（平成21年4月～平成22年3月）

平成21年度の延べ利用人数・利用時間は、312人・2245時間にのぼる。研究者の所属の内訳は、北海道大学学内では所内はもちろんのこと、低温科学研究所・医学部・歯学部・工学部・生命科学院などが挙げられる（図1）。学外では、東京農工大学・横浜市立大学・九州工業大学の研究者

の利用があった。

開設当初の一ヶ月の総利用人数・時間は20人・100時間程度にとどまっていたものの、研究者間での広がりやポスターによって学内外へ活動をアピールすることにより、年間利用人数・利用時間も増えている（図2）。また、当センターでの観察による研究成果として、平成21年度では利用者による4報の論文が学術雑誌に掲載された。

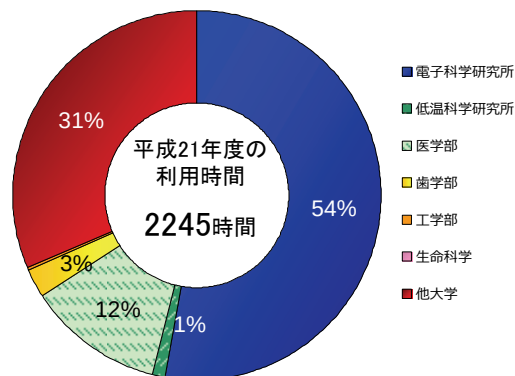


図1. 平成21年度イメージングセンター利用者の主な所属内訳

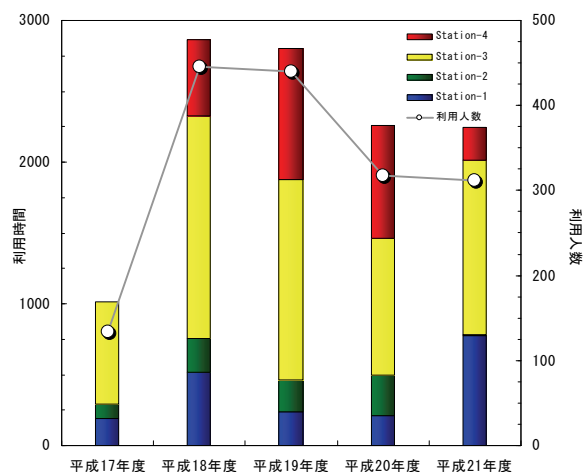


図2. 年度別イメージングセンター利用状況

(b) バイオイメージング技術と知識の普及

利用を希望する研究者には機器の利用方法の指導を行っており、初心者にはイメージングや蛍光色素に関する相談も受け付けている。これらを通じて顕微鏡やその関連技術、細胞生物学に関する知識や技術の普及に貢献している。毎冬開催している細胞生物学ワークショップでは、本年度も全国から20名程度の参加者が集まり、一週間にわたって人員、機材、観察試料提供や実習指導など全面的に協力を行った。更に平成21年5月には、協賛企業の協力もあって顕微鏡観察・解析用ソフトウェアの講習会を開催した。3日間で延べ40名程度の研究者が参加した。

(c) 顕微鏡技術の開発

マイクロレンズ付きニポウディスク走査方式の共焦点ス

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

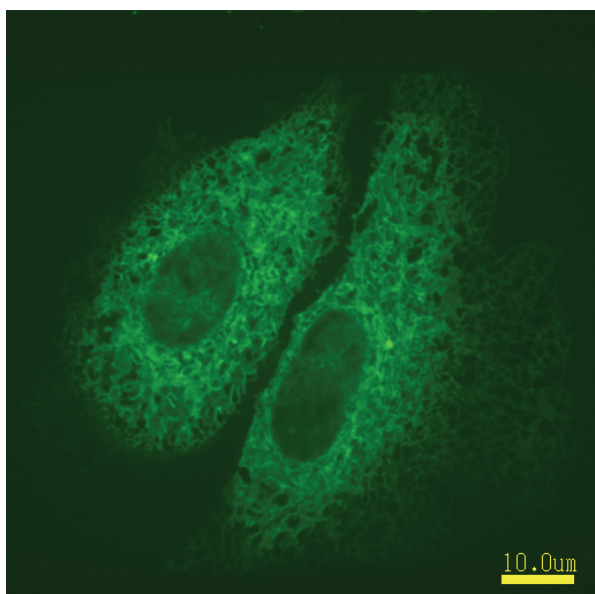


図3. 水銀アークランプを利用したCSU共焦点システムで観察したHeLa細胞小胞体のイメージング。

3. 今後の研究の展望

引き続き、学内外へ当センターを広くアピールするとともに、蛍光バイオイメージング機材の提供およびイメージングの指導・トレーニングを行う。また、協賛企業と協力して新型顕微鏡の開発を行う。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) H. Imamura, K. Nhat, H. Togawa, K. Saito, R. Iino, Y. Kato-Yamada, T. Nagai and H. Noji : “Visualization of ATP levels inside single living cells with fluorescence resonance energy transfer-based genetically encoded indicators.”, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, 106 : 15651-15656 (2009)

4.2 総説・解説・評論等

- 1) 堀川一樹、永井健治 : 「細胞結合振動子システムを対象にした超高感度大規模イメージング」、蛋白質 核酸 酵素、54 : 1945-1951 (2009)

4.7 講演

b. 一般講演

i) 学会

- 1) S. J. Lee, S. V. Alworth, C. Huang, S. Oh, H. Watanabe, K. Saito, K. Horikawa, M. Nomura, T. Tani and T. Nagai: “Automated Kinetic Characterization of Intracellular Single Molecule Trafficking”, 49th Annual Meeting of American Society for Cell Biology, San Diego (2009-12)
- 2) 松田知己、堀川一樹、永井健治 : 「生体組織内の1細胞レベルでの機能イメージングを可能にする光活性化型生理機能プローブ」、第9回日本蛋白質科学会年会、熊本 (2009-05)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 齊藤健太、堀川一樹 : 「FRET 概論 2 - trivial FRET とスペクトルアンミキシング法」、第14回細胞生物学ワークショップ、北海道大学 (2009-11)
- 2) K. Horikawa and T. Nagai: “Constructive role of noise in self-organized pattern formation in social amoeba”, The Third q-bio Conference on Cellular Information Processing, Santa Fe, USA (2009-08)
- 3) K. Horikawa and T. Nagai: “Ca²⁺ dynamics in large-scale cellular networks visualized by ultra-sensitive Ca²⁺ probe, “cameleon Nano”, 2009 Gordon Research Conferences calcium signaling, Lucca, Italy (2009-07)
- 4) K. Saito, K. Kobayashi, T. Tani and T. Nagai : “A mercury arc lamp-based multi-color confocal real time imaging system for cellular structure and function”, The 9th NIBB-EMBL Symposium, 愛知県岡崎市 岡崎カンファレンスセンター (2009-04)

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

・一般のシンポジウム

- 1) 永井健治、金城政孝、堀川一樹、齊藤健太 : 「第14回細胞生物学ワークショップ」、20名、2009年11月22～2009

年11月27日、北海道大学 電子科学研究所（札幌市）

4.9 共同研究

d. 受託研究

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

4.10 予算獲得状況

a. 科学研究費補助金（研究代表者、分類名、研究課題、期間）

- 1) 齊藤健太、若手研究(B)、生物発光ー蛍光2重エネルギー移動によるカスパーゼ3活性指示薬の開発、2008～2010年度

ナノテク支援室

ナノテク支援室

准教授 上野貢生（北大院、博士(理学)、2008.4～2010.1）
 准教授 松尾保孝（北大院、博士(工学)、2010.1～）
 特任助教 孫 凱（博士(工学)、2007.10～）
 学術研究員 小山正孝（2007.11～）
 学術研究員 笠沼由香（2008.1～）
 学術研究員 高橋平七郎（2007.6～）
 学術研究員 鷲見将太（2009.5～）
 技術補佐員 福本 愛（2007.6～）

1. 研究目標

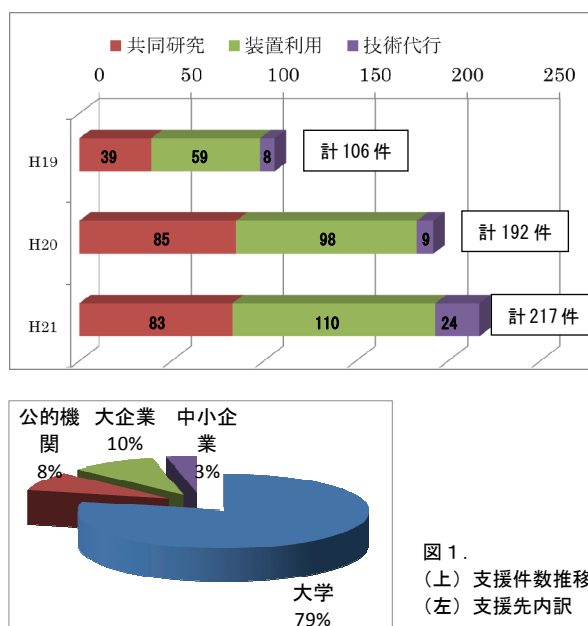
近年、幅広い研究分野においてナノテクノロジーとよばれる超微細加工やナノ計測・分析が非常に重要な役割を果たすようになってきている。しかしながら、ナノテクノロジーを利用・活用するためにはクリーンルームのような特殊環境や最新鋭の大型設備、それらを運用するための知識と経験が無くてはならない。

そこで本支援室は平成19年度採択の文部科学省先端研究施設共用イノベーション創出事業「北海道イノベーション創出ナノ加工・計測支援ネットワーク（HINTS）」の事業運用を通じてナノテクノロジー研究の支援を行っている。電子科学研究所、触媒化学研究センター、エネルギー変換マテリアル研究センター、量子集積エレクトロニクス研究センターの事業実施グループや電子科学研究所技術部、千歳科学技術大学と連携し、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、超微細加工とナノ計測・分析の2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いる。超微細加工に関係するMOCVD、MBE、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、フェムト秒レーザー加工装置などのナノ加工・デバイス化装置による超微細加工に関する支援を行うとともに、高性能STEM、超高压透過型電子顕微鏡、各種プローブ顕微鏡、顕微分光装置、光子相関測定装置、X線回折装置、XPS装置などによる種々のナノ計測・分析支援を有機的に連携させ、フォトニック結晶デバイス、プラズモニクデバイス、単一光子源、単電子デバイス、メタマテリアル、などの種々の先端的ナノデバイス・マテリアルの研究開発に関する支援を実施している。さらに、自己組織化膜作製法の開発や、卓越した触媒能を有する触媒の設計・合成などのボトムアップナノテクノロジーに関する優れた研究開発や、ボトムアップによるナノ構造の設計を数理的視点から行う数理ナノテクに関する研究開発も推進し、産業界が強く求める安価なボトムアップナノテクノロジーの開発に関しても支援を進めている。

2. 研究成果

(a) 利用実績（平成21年4月～平成22年3月）

平成21年度の支援状況として超微細加工に関する利用申請件数は83件、うち利用件数は72件、利用延べ日数は3709日に及ぶ。またナノ計測・分析に関しては超高压電子顕微鏡室の利用を含めて申請件数172件、うち利用件数は157件、利用延べ日数は1037日となっている。全支援課題数217件となり、そのうち委託事業（成果報告書有り）は131件、自主事業（報告書義務無し）は86件であった。また、支援課題の利用区分（装置利用、共同研究、技術代行）と支援先の内訳は以下の通りである。



支援課題数は年々増加しており、支援の裾野が広がっている。支援先としては8割が大学（北大外を含む）となっている。一方、道外企業からの利用者も約1割を占め、国内のナノテクノロジー研究支援への一助となっている。

論文・口頭発表数		論文	誌上	口頭	小計
H19	国内	0	2	70	72
	国際	23	0	36	59
	年度計	23	2	106	131
H20	国内	4	3	114	121
	国際	40	0	26	66
	年度計	44	3	140	187
H21	国内	13	1	138	152
	国際	59	0	30	89
	年度計	72	1	168	241
合計		139	6	414	559

表1. 支援を行った研究についての業績

支援を行った研究は表1のように国内外への論文投稿、学会発表につながり、支援件数の増加同様に年々増加している。また、特許については3年間で39件の申請が行われている。

(b) ナノテクノロジー・ネットワーク事業活動

6 HINTSは全国に13拠点26機関が参画するナノテクノロジー・ネットワーク事業の1機関であり、ネットワーク事業として支援機能別会議などにおいて支援成果報告や広報活動、支援従事者交流を行っている。これにより拠点間の結びつきを強めて支援の幅を広げ、より良いナノテクノロジー支援の実現を目指している。特に、平成21年度は13拠点メンバーによる平成21年度ナノネット成果報告会を本学学術交流会館で実施した。また、平成21年度ナノネット事業5大成果として本学支援成果「テラヘルツ帯にプラズモン共鳴周波数を有する金ナノスリットリング構造の光学特性」が採択され、東京ビッグサイトで開催された国際ナノテクノロジー総合展(Nanotech2010)において成果報告を行った。

(c) 新装置の導入と支援事業

新規の支援装置として、FE-SEM (JEOL,JSM-6700FT)に2端子マイクロプローブを装備した。これにより視野内での電気特性評価や微小物体マニピュレーションが可能となった。また、STEM、FIB サンプル作製に利用可能なカーボン蒸着装置を導入し、測定時の試料ダメージを軽減することが可能になり、様々な試料加工・測定への応用範囲が広がった。

これら新規装置を含めて各種装置に対する講習会を随時開催し、ユーザーへの支援活動を行った。

3. 今後の研究の展望

本支援室では引き続き、HINTS 事業を中心としてナノテクノロジー関係の研究支援を行うと共に、学内外の研究者との共同研究を推進する。

4. 資料

4.5 その他

- 1) 平成20年度 成果報告書

4.7 講演

iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 高橋平七郎、上野貢生、第2回核融合/原子力国際ビジネスフォーラム(IBF-FE09)、札幌コンベンションセンター (2009-09)
- 2) 上野貢生、第2回工作技術フォーラム、北海道大学電子科学研究所 (2009-12)
- 3) 松尾保孝、上野貢生、「テラヘルツ帯にプラズモン共鳴周波数を有する金ナノスリットリング構造の光学特性」、国際ナノテクノロジー総合展 (Nanotech2010)、東京ビッグサイト (2010-2)

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

b. 一般のシンポジウム

- 1) 文部科学省先端研究施設イノベーション創出事業「ナノテクノロジー・ネットワーク」、ナノテクノロジー・ネットワーク成果報告会、80名、2009年11月17日

4.10 予算獲得状況

f. その他(研究担当者、機関名、研究題目、研究期間)

- 1) 三澤弘明、北海道大学、北海道イノベーション創出ナノ加工・計測支援ネットワーク、2007年度～2011年度

4.12 社会教育活動

d. その他

- 1) 松尾保孝：ナノテクノロジー総合シンポジウム実行委員 (2010年1月1日～現在)

連携研究室

連携研究室

教授 居城邦治（東工大院、工博、2007.11～）

教授 上田哲男（北大院、薬博、2007.11～）

特任准教授 島本直伸（東大院、工博、2009.5～）

博士研究員 三友秀之（東工大院、工博、2009.6～）

1. 研究目標

連携研究室では、理化学研究所の基幹研究所分子情報生命科学特別研究ユニット(埼玉県和光市)において共同研究を展開している。

生体のもつしなやかな運動や柔らかさと強さを兼ね備えた不思議な力学強度特性等の機能は、ナノスケールの生体分子から始まる階層的な集積により実現していると考えられる。しかし、これらの機能は現在考えられる一般的な工業材料などでは実現が不可能である。我々はこれを人工的に実現する系として、生体のように水を多量に含むことができる物質である合成高分子ハイドロゲルを中心に科学と工学の両面から研究展開を行っている。

この研究のために、北海道大学電子科学研究所と理化学研究所の高分子科学、化学、細胞生物学、半導体工学等のバックグラウンドの研究者の連携による異分野融合型の共同研究を推進しており、材料科学への新たなコンセプトの創出と提案を目標としている。

2. 研究成果

(a) 高強度機能性ハイドロゲルの創製

ハイドロゲルは、生体のように多量の水を含み、しなやかで特徴的な性質を有しているため、医療や工業的な利用において有望な材料として注目されている。しかしながら、従来の合成高分子ハイドロゲルは機械強度が低いことから、その用途は大きく制限されている。そのため、我々はこのハイドロゲルの脆弱な機械強度の問題を克服し、幅広い分野で応用可能な高強度機能性ハイドロゲルを創製する研究を推進している。特に本研究では、合成高分子ハイドロゲルを“他の物質”と“ナノレベルで複合化”することによって、高強度機能性ハイドロゲルの創製を行っている。

(a-I) 微粒子状高分子ゲルとの複合化

イオン性的高分子ゲルのネットワークにノニオン性的高分子ネットワークを相互侵入網目構造で形成すると高強度なハイドロゲルが得られるが、ゲルはその特徴である伸縮性や変形性を損なう。そこで、イオン性的高分子ゲルを乳化重合によって微粒子状に重合し、ノニオン性的高分子ゲル（ポリアクリルアミド）と複合化した。その結果、伸び性を損なうことなく破断強度で約6倍高強度化することに成功した。また、温度応答性的高分子ゲル（PNIPAM: ポリイソプロピルアクリルアミド）と複合化した結果、刺激に対する応答（収縮）性を維持したまま高強度化することに

も成功した（図1）。また、一般的なPNIPAMゲルは収縮時に表面収縮層を形成し内部溶液の吐出しが抑制されるため収縮が阻害されるが、微粒子状高分子ゲルを導入したハイドロゲルでは微粒子状のゲルがその影響を抑えることでスムーズに刺激応答できることも明らかとなった。

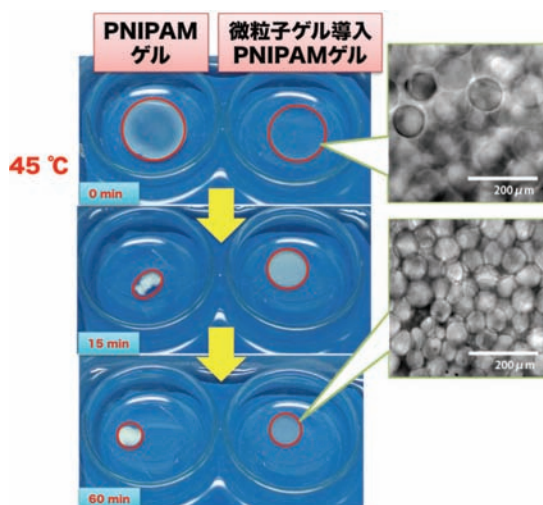


図1. PNIPAMゲルと微粒子状高分子ゲルを導入したPNIPAMゲルの温度応答性

(a-II) 多孔性無機微粒子との複合化

より高い機械強度を持ったゲルの創製を目標に、有機と無機との複合化を行った。具体的には、前述の微粒子状高分子ゲルの代わりに多孔性無機微粒子を複合化の対象とし、高分子鎖が多孔性無機微粒子を縫い込んだような構造をもつ新規な高強度ハイドロゲルを創製した。その結果、ある種の多孔性無機微粒子を導入した場合には、破断歪み（伸び）を高めながらも、弾性率および破断強度を大きく向上させた。わずか6 wt%の無機粒子の導入で破壊エネルギーを約20倍向上させることにも成功した（図2）。この有機無機複合ゲルは、高分子鎖と無機粒子の選択においては無機粒子が多孔性であること以外に制限はなく、ゲルの物性も幅広くコントロールすることが可能であると考えられる。そのため、この手法によってハイドロゲルの利用分野が大きく広がることが期待される。

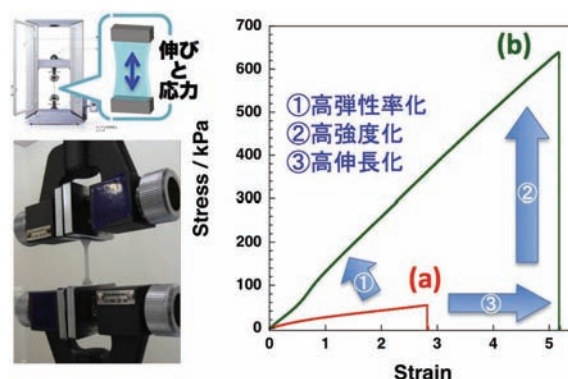


図2. 機械試験の図(左)と応力-歪み曲線(右) ポリアクリルアミドゲル(a)とメソポーラスシリカを導入したポリアクリルアミドゲル(b)

(b) 機能性ゲルの集積デバイス作製

現在のマイクロデバイスの研究の流れの一つとして、フレキシブルなものであったり、生体と親和性のあるものであったり、既存の固体デバイスの継続的な展開では実現できないものを目指した取り組みが行われている。これらの研究の課題は、柔軟性を持つ機能性材料である高分子材料に精密なナノ・マイクロの構造を作り込むことであり、ポリイミド等のシート上に集積回路パターンを作製しフレキシブルデバイスを実現するための技術はすでに実用に近い段階まで成熟しつつある。一方で、生体では水を含んだ有機物の集合体をナノ・マイクロスケールで組織化することにより運動や情報処理などの様々な機能を発現することを可能にしている。ハイドロゲルは、多量に水分を含んだ高分子材料であり生体に近い機能性材料として注目されており、様々なデバイスが提案されている。

本研究では、ゲルを利用した集積デバイス作製を目指し、ハイドロゲルにナノ・マイクロの人工的な構造を作製すること、そしてその構造によるハイドロゲルの膨潤・収縮の運動を制御すること目標にした。

ハイドロゲルは柔軟な材料であるため、形状を長時間にわたって安定化させたり、何かに固定したりすることが難しく、一般的なフォトリソグラフィの手法によるナノ・マイクロの形状加工は困難である。また含水材料であるため、真空蒸着法などのドライプロセスによる表面加工や改質は困難である。よって、一般的な半導体微細加工で実績のあるトップダウンの加工法はそのままでは適用できない。一方、生物や高分子科学では、低分子から分子間の相互作用や重合反応などを利用し、目的とする材料である高分子を作り出すボトムアップの方法が採用されている。ハイドロゲルも高分子鎖を構成するモノマーを重合反応によりポリマー化して作製する。そこで本研究では、あらかじめ微細加工技術によりマイクロパターンを固体基板上に作製しておき、その上でハイドロゲルの重合を行うと同時に、ハイドロゲル上にマイクロパターンを写し取る、トップダウン法とボトムアップ法の融合による作製法を考案した。その作製プロセスの概略を、図3に示す。エポキシ系のレジストで作製したマイクロパターンや金属薄膜をハイドロゲルへ転写すること成功した。

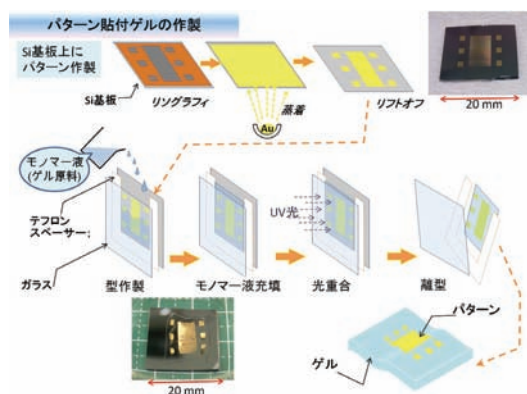


図3. マイクロパターン転写貼付プロセスの概略

ハイドロゲルは、吸水・脱水による膨潤・収縮で大きな体積変化があり、これが駆動力となるが、通常膨潤・収縮は等方的かつランダムに起こるため、運動の方向性を持たせることができない。ハイドロゲルに比べると硬いエポキシ樹脂のマイクロスケパターンをハイドロゲル上に転写することにより、運動の方向付けを行った。アセトンと水による溶液交換により、ハイドロゲルを膨潤または収縮させ、その運動の方向を確認した結果マイクロパターンで制御可能であることを示すことができた。金属薄膜を転写したハイドロゲルでは、ハイドロゲルの凹凸に追従するように金属薄膜が極めてよく接合していることが分かった。このハイドロゲルを塩濃度の異なる溶液に浸漬すると、それぞれ膨潤の度合いにより、特異な変形形態をとることが分かった。(図4) 塩濃度や電気化学反応等によるデバイス化の可能性を示すことができた。

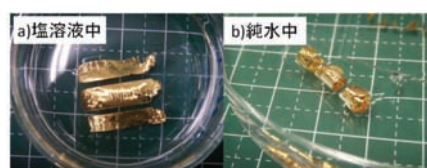


図4. 金属薄膜付ハイドロゲルの変形

3. 今後の研究の展望

連携研究室では、2009年度の研究を通してハイドロゲルを利用した新規材料の創製やデバイス化のための方法などの可能性を示すことができた。よってこれらの研究をさらに発展させてゆくことを考えている。(a) “高強度機能性ハイドロゲルの創製”では、多孔性無機微粒子との複合化によるハイドロゲルの高強度化のメカニズムを解明し、さらに効率よく高強度化する手法を研究していく予定である。また、高分子鎖の構造形成や集合体形成など、生体分子が筋肉のような高機能な組織を成形する上で利用している要素を高分子ハイドロゲルへ導入することによって、新たな機能性の賦与にも挑戦していきたいと考えている。(b) “機能性ゲルの集積デバイス作製”では、マイクロパターンの転写貼付法を利用して、金属薄膜パターンを使用したハイドロゲルの膨潤・収縮過程の高感度センシングや、アクチュエーション素子の作製などへの実験研究の展開を考えている。

4. 資料

4.7 講演

b. 一般講演

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 三友秀之:「高速応答・高強度ゲルマシンおよび新規機能性ゲルの創製に向けて」、第一回 理研・分子情報生命科学特別研究ユニット-北大電子研 居城研究室・上田研究室 合同ワークショップ、北大電子研(2009-08)
- 2) 島本直伸:「機能性ゲル集積デバイスの創製に向けて～トップダウン-ボトムアップ融合プロセスの検討」、第一回 理研・分子情報生命科学特別研究ユニット-北大電子研 居城研究室・上田研究室 合同ワークショップ、北大電子研(2009-08)

Ⅱ. 予 算

Ⅱ－１．研究成果公表に関する各種の統計表

１．学術論文

部門等 \ 年		平成18年	平成19年	平成20年	平成21年
電子材料 物性部門	欧 文	42 (27)	30 (25)	29 (29)	38 (38)
	邦 文	1	0	2 (2)	2 (2)
電子機能 素子部門	欧 文	28 (28)	20 (20)	19 (19)	19 (12)
	邦 文	0	1 (1)	3 (3)	1 (1)
電子計測 制御部門	欧 文	12 (12)	23 (21)	15 (15)	21 (19)
	邦 文	4 (4)	1 (1)	3 (2)	0
電子情報 処理部門 ※	欧 文	45 (43)	42 (40)	56 (54)	26 (25)
	邦 文	1 (1)	2 (2)	4 (1)	1
ナノテクノロジー 研究センター	欧 文	30 (28)	16 (15)	39 (38)	35 (31)
	邦 文	6	3 (1)	2 (2)	1 (1)
計	欧 文	155 (136)	117 (108)	124 (122)	129 (116)
	邦 文	12 (5)	7 (5)	12 (8)	5 (4)

()内の数はレフェリー付き。

※客員研究分野は除外した。

２．総覧、解説、評論等及び著書数

部門等 \ 年		平成18年	平成19年	平成20年	平成21年
電子材料 物性部門	総説等	7	4	4	5
	著 書	1	1	1	2 (1)
電子機能 素子部門	総説等	8	3	4 (1)	7 (1)
	著 書	2	6	1	2 (1)
電子計測 制御部門	総説等	4	14 (1)	6	9
	著 書	2 (1)	4	0	3 (2)
電子情報 処理部門 ※	総説等	12	15	16 (1)	10
	著 書	7	3	6 (2)	7 (3)
ナノテクノロジー 研究センター	総説等	20	5 (1)	8 (3)	6 (1)
	著 書	5 (2)	8	3 (1)	9
計	総説等	49	38 (2)	32 (4)	37 (2)
	著 書	17 (3)	19	9 (2)	22 (7)

()内の数は欧文

※客員研究分野は除外した。

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

※年（年度）をまたがっている場合、それぞれの年（年度）でカウントしている。

3. 国際学会・国内学会発表件数

部門等 \ 年		平成18年	平成19年	平成20年	平成21年
電子材料 物性部門	国際学会	24 (8)	32 (9)	47 (14)	28 (8)
	国内学会	50 (1)	60 (5)	44 (1)	45 (5)
電子機能 素子部門	国際学会	28 (5)	18 (3)	25 (6)	6 (1)
	国内学会	34 (3)	40 (4)	24 (1)	17 (4)
電子計測 制御部門	国際学会	19 (6)	26 (7)	19 (9)	33 (16)
	国内学会	38 (6)	55 (10)	35 (5)	39 (14)
電子情報 処理部門 ※	国際学会	21 (6)	17 (7)	16 (3)	5 (1)
	国内学会	30 (4)	38 (9)	57 (10)	40 (1)
ナノテクノロジー 研究センター	国際学会	35 (2)	13 (3)	34 (5)	8 (4)
	国内学会	83 (5)	30 (1)	58 (5)	28 (1)
計	国際学会	123 (27)	94 (25)	109 (30)	77 (29)
	国内学会	226 (19)	197 (26)	169 (20)	162 (25)

国際学会・国内学会の（ ）内の数は招待講演数

※客員研究分野は除外した（研究所全体の統計の場合）。

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

※年（年度）をまたがっている場合、それぞれの年（年度）でカウントしている。

Ⅱ－２． 予算

Ⅱ－２－１）全体の予算

(単位：千円)

年 度	平成18年度	平成19年度	平成20年度	平成21年度
業 務 費	173,648	169,473	169,867	160,255
科学研究費補助金	292,610 (62)	279,947 (59)	329,741 (72)	319,314 (68)
その他の補助金	15,400 (2)	4,357 (4)	20,460 (7)	6,638 (5)
寄 附 金	38,346 (27)	42,856 (16)	32,012 (12)	37,679 (11)
受託事業等経費	248,840 (44)	226,609 (32)	427,412 (34)	495,891 (38)
(受託研究費)	145,018 (24)	184,803 (20)	393,081 (20)	462,226 (26)
(共同研究費)	103,822 (20)	41,806 (12)	34,331 (14)	33,665 (12)
合 計	768,844(135)	723,242(111)	979,492(125)	1,019,777(122)

() 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20年度	平成21年度
電 子 材 料 物 性 部 門	科学研究費補助金	121,890(19)	93,567(16)
	その他の補助金	3,200 (2)	1,960 (3)
	寄 附 金 I	2,200 (2)	0
	寄 附 金 II	0	0
	受託事業等経費	111,577 (7)	119,689 (6)
	(受託研究費)	106,913 (5)	117,359 (4)
	(共同研究費)	4,664 (2)	2,330 (2)
	小 計	238,867(30)	215,216(25)
電 子 機 能 素 子 部 門	科学研究費補助金	7,880 (4)	12,854 (6)
	その他の補助金	1,800 (1)	0
	寄 附 金 I	10,000 (2)	0
	寄 附 金 II	0	10,237 (3)
	受託事業等経費	18,839 (4)	66,045 (7)
	(受託研究費)	12,269 (2)	59,425 (5)
	(共同研究費)	6,570 (2)	6,620 (2)
	小 計	38,519(11)	89,136(16)
電 子 計 測 制 御 部 門	科学研究費補助金	77,177(21)	67,631(17)
	その他の補助金	12,880 (2)	4,290 (1)
	寄 附 金 I	500 (1)	0
	寄 附 金 II	430 (1)	9,943 (5)
	受託事業等経費	108,313 (7)	126,906 (9)
	(受託研究費)	99,817 (5)	123,056 (8)
	(共同研究費)	8,496 (2)	3,850 (1)
	小 計	199,300(32)	208,770(32)

電子情報処理部門	科学研究費補助金	35,005(14)	75,017(19)
	その他の補助金	0	0
	寄附金Ⅰ	0	0
	寄附金Ⅱ	1,582(1)	0
	受託事業等経費	7,634(4)	20,061(4)
	(受託研究費)	6,254(2)	18,456(2)
	(共同研究費)	1,380(2)	1,605(2)
	小計	44,221(19)	95,078(23)
寄附研究部門 (ニコンバイオイメージングセンター)	科学研究費補助金	3,250(1)	910(1)
	その他の補助金	0	0
	寄附金Ⅰ	0	0
	寄附金Ⅱ	14,500(1)	14,500(1)
	受託事業等経費	31,850(1)	13,858(1)
	(受託研究費)	31,850(1)	13,858(1)
	(共同研究費)	0	0
	小計	49,600(3)	29,268(3)
附属ナノテクノロジー 研究センター	科学研究費補助金	84,538(13)	69,335(9)
	その他の補助金	2,580(2)	388(1)
	寄附金Ⅰ	0	0
	寄附金Ⅱ	2,800(4)	2,999(2)
	受託事業等経費	149,199(11)	149,332(11)
	(受託研究費)	135,978(5)	130,072(6)
	(共同研究費)	13,221(6)	19,260(5)
	小計	239,117(30)	222,054(23)

()内の数は受入件数

寄附金Ⅰ 申請による財団等からの研究助成金 寄附金Ⅱ Ⅰ以外のもの

Ⅱ－３．外国人研究者の受入状況

ａ．年度別統計表

部門等 \ 年	平成18年度	平成19年度	平成20年度	平成21年度
電子材料物性部門	1	8	6	11
電子機能素子部門	4	2	14	0
電子計測制御部門	24	12	13	4
電子情報処理部門	4	8	1	4
ナノテクノロジー研究センター	1	1	0	9
計	34	25	34	28

Ⅱ－4. 修士学位及び博士学位の取得状況

Ⅱ－4－1) 修士学位

平成21年度

● 理学院

- 石川 綾子：核酸の分子認識を利用した塩基選択的金属析出制御とナノ構造体の作製
- 関口 翔太：オリゴ糖の高密度提示によって促進されるナノ微粒子の核内輸送
- 大賀 淳史：植物における花成の数理モデル～ネットワーク上の化学物質輸送は花や葉の分布をどう決めるか？
- 栃木 隆：微細表面構造への癌細胞の接着挙動と増殖性に関する研究
- 及川 智絵：粘性の大きい流体中を泳ぐ球状微生物のシミュレーション
- 鈴木 悠介：浅水方程式を用いた津波の数値解析
- Susanne White: Spiral Heterostructure Based Organic Solar Photovoltaics
- 山口 将大：「拮抗する適応要素による骨梁リモデリングの数理モデル」

● 情報科学研究科

- 高畠 聡章：Development of fabrication procedure of gold nanostructures using nanolithography/lift-off techniques
- 西 泰史：Femtosecond laser modification of hard dielectric materials

Ⅱ－4－2) 博士学位

平成21年度

● 理学院

- 大竹(石塚)範子：Studies of functionalized virus-like particles and stimuli-responsive drug release (機能性ウイルス様微粒子と刺激に応答した薬剤放出に関する研究)

● 情報科学研究科

- ISLAM Monirul：Development of Nanostructured Interdigitated Array Electrodes as Spectroelectroanalytical Tool
- 横田 幸恵：Surface-enhanced Raman scattering on nano-engineered gold particles
- 永田 智久：多光子量子干渉を用いた光量子回路の実現とその計測への応用に関する研究

● 生命科学院

- Sultana Tahmina：Numerical Integration By Monte Carlo Method

Ⅱ－4－3) 大学院生在籍数

研究科名 年	修 士		博 士	
	20年	21年	20年	21年
理 学 院	28	25	26	22
工 学 研 究 科	5	5	4	4
医 学 研 究 科	2	0	0	0
環 境 科 学 院	8	7	6	7
情 報 科 学 研 究 科	27	28	5	5
生 命 科 学 院	2	0	1	2
計	72	65	42	41

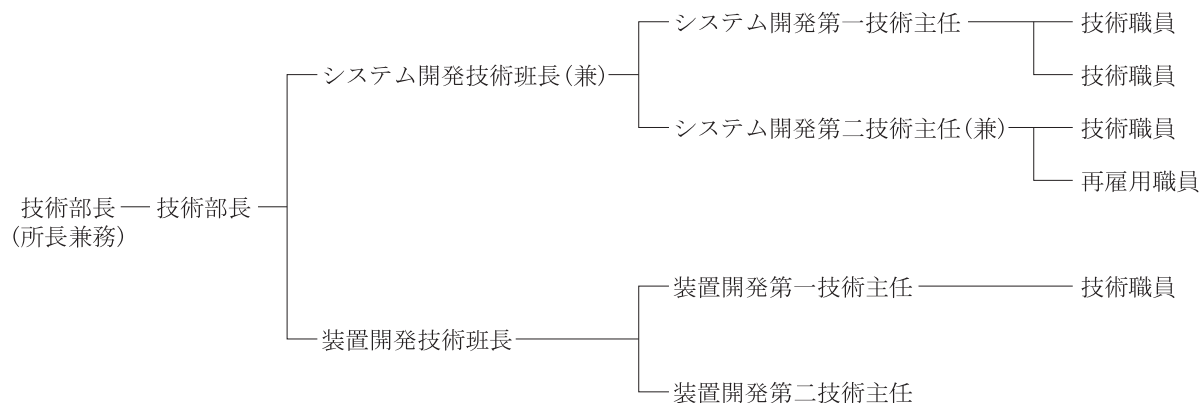
Ⅲ. 研究支援体制

Ⅲ－１．技術部

技術部は、システム開発技術班と装置開発技術班からなる。

システム開発技術班は、各自の専門技術を用いて、クリーンルーム維持・管理、電子回路設計、機器制御、バイオ・イメージング、半導体ナノ微細加工、広報・情報・ネットワーク・研究所のウェブサイト管理運営などといった、技術的な支援を行っている。この他に、電子科学研究所の共通の機器・設備の管理、液化窒素ガス汲み出し作業従事者への安全講習会、学術講演会の支援依頼への対応など、研究所全体に関わる支援も行っている。

装置開発技術班は、研究分野により要請される特殊実験機器の開発・製作にあたっている。機械工作室では、ステンレスの精密切削とアルゴン溶接、大型旋盤・立フライス盤などの工作機械を用いて、多くの実験装置の開発・製作を行っている。近年は、アルミ溶接技術による特殊要請にも対応できる体制を備えている。平成21年5月には加工の高精度化、高能率化を目指してNC立形フライス（静岡AN-SRN）が設置された。ガラス工作室では、光学レンズ・プリズム等の加工と研磨、ステンレス製計測装置へのコパルを介しての硝子の溶着の技術・その他大型デュワー瓶、各種石英セルの製作を行っている。また、同班は所外からの技術相談、装置製作などの技術支援要請にも応えている。



Ⅲ-2. 学術情報

平成20年の北キャンパス移転に伴い電子科学研究所図書室は(旧)北キャンパス図書室と統合し、平成20年8月に電子科学研究所・触媒化学研究センター・創成科学共同研究機構の3部局共通の図書室である「北キャンパス図書室」として運営されることとなった。

a. 図書・学術雑誌

単行本は、各研究分野で購入し管理されている。図書室には参考図書を中心に配架されている。学術雑誌は、共通分野で利用され研究所として必要と認められたものは、図書室で管理されている。この他、各分野の必要性から、各分野で購入・管理されている雑誌もある。

平成14年度より電子ジャーナルが本格的に導入されるにあたり、研究所内の雑誌の重要度調査を行い、購入洋雑誌の見直しをした結果、購入洋雑誌の種類が減少した。

電子ジャーナルの本格的な導入以後、学外への文献複写依頼は年々減少傾向である。

1. 蔵書冊数

年 度	平成18年	平成19年	平成20年*	平成21年*
和 書	5,415	5,806	5,554	5,564
洋 書	20,915	20,983	17,390	17,438
計	26,330	26,789	22,944	23,002

2. 所蔵雑誌種類数

年 度	平成18年	平成19年	平成20年*	平成21年*
和雑誌	369	121	116	135
洋雑誌	454	390	412	413
計	823	511	528	548

3. 購入外国語雑誌受入種類数

年 度	平成18年	平成19年	平成20年*	平成21年*
和雑誌	38	34	41	48
洋雑誌	30	29	29	21
計	68	63	70	69

4. 学外文献複写数

年 度	平成18年	平成19年	平成20年*	平成21年*
依 頼	64	65	78	108
受 付	175	136	252	248

* 北キャンパス図書室全体としての数字

b. 学術情報システム

閲覧室には情報検索用パソコンが利用者用として提供されていて、誰もが自由に必要な情報を得ることができる。プリンターも1台設置されているので、入手した情報のプリントアウトも可能である。

平成14年度からは電子ジャーナルが本格的に導入され、学内の利用に限定されるが、14,900タイトルを超える電子ジャーナルの利用が可能で、フルテキストを購読できる。

また、情報検索端末からはインターネットを通じ、北海道大学で導入している学術文献データベースを利用することができる。利用できるデータベースの種類は豊富で、“Web of Science”や“SciFinder Scholar”といった著名な文献書誌・抄録データベースや、“LexisNexis Academic”等の新聞記事データベース、辞典類や出版情報等79種を超えるサービスが利用可能である。また、インターネットを通じて“Pub Med”等の無料データベースを利用したり、国内外の大学図書館等の情報を得ることもできる。

カードロックシステムを導入しており、研究所内の教職員院生は24時間図書室の利用が可能となっている。

IV. 資 料

IV-1. 沿革

超短波研究所

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

応用電気研究所

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

電子科学研究所

- 平成4. 4 研究所改組により電子科学研究所となる
14. 4 附属電子計測開発施設を附属ナノテクノロジー研究センターに改組転換
15. 5 電子情報処理研究部門感覚情報研究分野を廃止
17. 4 電子計測制御研究部門適応制御研究分野を廃止
電子計測制御研究部門ナノシステム生理学研究分野を新設
17. 10 電子材料物性研究部門光材料研究分野をナノ光高機能材料研究分野に名称変更
電子情報処理研究部門信号処理研究分野を極限フォトンプロセス研究分野に名称変更
電子情報処理研究部門計算論的生命科学研究分野を新設
寄附研究部門「ニコンバイオイメージングセンター研究部門」を新設(開設期間3年)
英国・ニューカッスル大学ナノスケール科学技術研究所との学術交流協定締結
19. 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・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

[歴代所長]

超短波研究室	昭和16年2月20日～昭和18年1月31日	蓑島 高
超短波研究所	昭和18年2月1日～昭和21年3月31日	蓑島 高
応用電気研究所	昭和21年4月1日～昭和21年9月10日	蓑島 高
	昭和21年9月11日～昭和35年7月31日	浅見 義弘
	昭和35年8月1日～昭和38年7月31日	東 健一
	昭和38年8月1日～昭和45年3月31日	松本 秋男
	昭和45年4月1日～昭和48年3月31日	望月 政司
	昭和48年4月1日～昭和51年3月31日	馬場 宏明
	昭和51年4月1日～昭和54年3月31日	吉本 千禎
	昭和54年4月1日～昭和57年3月31日	馬場 宏明
	昭和57年4月1日～昭和60年3月31日	山崎 勇夫
	昭和60年4月1日～昭和63年3月31日	達崎 達
	昭和63年4月1日～平成4年4月9日	安藤 毅
電子科学研究所	平成4年4月10日～平成6年3月31日	安藤 毅
	平成6年4月1日～平成9年3月31日	朝倉 利光
	平成9年4月1日～平成13年3月31日	井上 久遠
	平成13年4月1日～平成15年3月31日	下澤 楯夫
	平成15年4月1日～平成15年9月30日	八木 駿郎
	平成15年10月1日～平成17年9月30日	西浦 廉政
	平成17年10月1日～平成21年9月30日	笹木 敬司
	平成21年10月1日～現在	三澤 弘明

[名誉教授]

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

IV-2. 建物

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

建 物 名 称	構 造	建面積 m ²	延面積 m ²	建築年度
創成科学研究棟 ナノテクノロジー研究センター	鉄筋コンクリート造5階建	—	4,154	平成15年度
北キャンパス総合研究棟5号館	鉄筋コンクリート造5階建	1,104	5,419 (116)	平成20年度 (平成21年度増築)
中央キャンパス総合研究棟2号館	鉄筋コンクリート造5階建	—	1,294	平成21年度 (改修)
計		—	10,867	

延面積欄の（ ）内の数字は増築分で内数

IV-3. 現員（平成21年度）

（7月1日現在）

職 名	人 数
教 授	15 (3)
准 教 授	13
講 師	1
助 教	19
特任准教授	2
特 任 助 教	1
教 員 小 計	51 (3)
技 術 部	9
合 計	60 (3)

（ ）内の数字は客員で外数

IV-4. 教員の異動状況（平成21年度）

○ 転入状況

ナノテク支援室	准教授	上野 貢生	21. 4. 1	北海道大学電子科学研究所特任准教授
電子機能素子研究部門	教 授	西井 準治	21. 7. 1	(独)産業技術総合研究所主幹研究員
連携研究室	特任准教授	島本 直伸	21. 7. 1	北海道大学電子科学研究所博士研究員
電子計測制御研究部門	教 授	根本 知己	21. 9. 1	自然科学研究機構生理学研究所准教授
ナノテク支援室	特任助教	孫 凱	21.12. 1	北海道大学電子科学研究所博士研究員
ナノテク支援室	准教授	松尾 保孝	22. 1.16	昇任（北海道大学電子科学研究所助教）

○ 転出状況

ナノテクノロジー研究センター	助 教	畔原 宏明	21. 5.31	金沢大学産学官連携フェロー
ナノテクノロジー研究センター	准教授	JUODKAZIS SAULIUS	21.10.31	スウィンバーン工科大学教授
電子材料物性研究部門	准教授	芥川 智行	22. 3.31	東北大学教授
電子機能素子研究部門	准教授	中垣 俊之	22. 3.31	公立はこだて未来大学教授
電子計測制御研究部門	准教授	谷 知己	22. 3.31	ウッズホール海洋生物学研究所主任研究員 (22. 4. 1)

技術部

技術部長（兼）	三 澤 弘 明	非常勤研究員	THOMAS REJI
技術長	大 沼 英 雄	〃	李 玲
システム開発技術班		研究支援推進員	高 橋 美 美
班長	大 沼 英 雄	〃	杉 山 瑠 那
第一・第二技術主任	伊勢谷 陽 一	〃	中 山 佐知子
技術職員	今 村 逸 子	〃	佐 藤 うらら
〃	小 林 健太郎	事務補佐員	山 口 由美子
〃	遠 藤 礼 暁	〃	山 田 美 和
嘱託職員	土 田 義 和	技術補佐員	福 本 愛
装置開発技術班		〃	奥 原 亜 季
班長	太 田 隆 夫	〃	平 厚 子
第一技術主任	平 田 康 史	〃	矢 島 由 美
第二技術主任	女 池 竜 二	事務補助員	柴 田 久 恵
技術職員	武 井 将 志	〃	笠 置 水 美
		〃	菊 地 美 耶
契約職員・短時間勤務職員		〃	阿 部 香 代
博士研究員	小 寺 一 平	〃	平 出 ありさ
〃	田 中 良 巳	〃	辻 田 由 香
〃	小田島 聡	〃	高 木 由 紀
〃	趙 洪 泉	〃	宮 崎 美 帆
〃	馬 場 昭 典	〃	佐々木 喜 代
〃	MEETHALE CHELA VEETIL BASHEER	〃	灰 方 千 恵
〃	佐 倉 緑	技術補助員	山 口 将 大
〃	田 中 嘉 人	〃	三 浦 亜希子
〃	呉 伯 涛	〃	野 村 真 未
〃	小笠原 希 実	〃	永 井 秀 和
〃	孫 泉	〃	池 谷 伸太郎
〃	AWASTHI KAMLESH	〃	蝦 名 涉
〃	高 島 秀 聡	〃	濱 田 辰 夫
〃	LOCHAROENRAT KITSAKORN	〃	館 山 絵 美
〃	伊 藤 正 寛	〃	秦 昊
〃	三 友 秀 之	〃	岩 淵 寛 恵
〃	齋 藤 宗 孝	〃	岡 田 孟 矩
〃	TAYE MESFIN ASFAW	〃	今 純 子
〃	日 比 輝 正		(平成22年3月末日現在)
〃	高 書 燕		
〃	GELDHAUSER TOBIAS RUPERT		
学術研究員	星 山 満 雄		
〃	田 所 智		
〃	李 哲 煜		
〃	黒 田 茂		
〃	王 麗		
〃	高 橋 平七郎		
〃	鷺 見 将 太		
〃	小 山 正 孝		
〃	笠 沼 由 香		
〃	清 一 人		

