

研究活動
北海道大学電子科学研究所
平成二十二年

研究活動

北海道大学電子科学研究所

平成22年度

点検評価報告書

Research Activities

Research Institute for Electronic Science
Hokkaido University

2010-2011

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10月発行

平成23年発行

表紙の説明

「結晶成長過程のシミュレーション」

はじめに

本年3月11日に発生した東北地方太平洋沖地震と、それに伴って発生した大津波は、多くの尊い人命を奪うとともに、大量の放射性物質の放出を伴う極めて深刻な原子力事故を引き起こしました。この重大な事故は、我が国のみならず、各国のエネルギー政策にも大きな影響を与え、ドイツ、イタリアは、いち早く脱原子力の方向へと大きく舵を切りました。我が国においても同様の選択をするのか、またそうではない道を選ぶのか、いずれにしてもエネルギー政策に関する長期ビジョンを持ち、深い議論を進めなければならないことは間違いありません。エネルギーはまさに国力であり、強い産業力を維持し、経済的に安定した豊かな社会を持続させるためには、国家として再生可能エネルギーも含めた幅広いエネルギーの選択肢を持つことが重要であり、それを可能にするグリーンイノベーションに繋がる科学技術の発展を強力に推し進める必要があるでしょう。



電子科学研究所においては、2002年より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」の研究を推進してきました。当研究所において培われたこれらの先端的ナノサイエンス・テクノロジー研究に関する「知」や、「先端設備・技術」は、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ことにより、広く社会に還元されております。このような学問分野の枠組みを超えた様々な融合研究は、人類共通の「知」の深化をもたらし、また文明をより高めるために貢献できるものと確信しています。

当研究所は、これまで推進してきたこれら世界トップレベルのナノテクノロジー研究をグリーンイノベーションに繋がるグリーンナノテクノロジー研究として展開しつつあります。その研究の一部は、2010年度の文部科学省「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」の拠点として採択され、これまでにない全く新しい概念の太陽電池の創出を目指した研究を推進しております。また、本年7月に発足した本学グリーンイノベーション研究推進センターにも当研究所は積極的に参画し、触媒化学研究センターと連携しつつ、オリジナリティの高い研究を進めています。さらに、2010年4月に発足した、当研究所と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、九州大学先導物質化学研究所の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」においても、グリーンイノベーションに繋がる研究を含む様々な学際的連携研究を推進しており、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。

エネルギー供給の不安定さや、欧米の経済不安を原因とする円高により、我が国の産業の空洞化が懸念されていますが、当研究所は、将来に向けた成長のシナリオを描く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、何卒、宜しくお願いいたします。

平成23年8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.....	10
有機電子材料研究分野.....	16
コヒーレントX線光学研究分野.....	21
電子機能素子研究部門	
量子機能素子研究分野.....	28
光波制御材料研究分野.....	34
細胞機能素子研究分野.....	39
電子計測制御研究部門	
光システム計測研究分野.....	44
生体物理研究分野.....	49
分子生命数理研究分野.....	55
ナノシステム生理学研究分野.....	64
電子情報処理研究部門	
情報数理研究分野.....	70
神経情報研究分野.....	76
スマート分子研究分野.....	81
計算論的生命科学研究分野.....	85
並列分散処理研究分野（客員研究分野）.....	90
連携研究部門	
理研連携研究分野.....	92
寄附研究部門	
ニコンバイオイメージングセンター.....	96
連携研究室.....	101
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.....	106
バイオ分子ナノデバイス研究分野.....	115
ナノ光高機能材料研究分野.....	123
ナノテク支援室.....	131

II. 予算

II-1. 研究成果公表に関する各種の統計表.....	135
II-2. 予算.....	137
II-3. 外国人研究者の受入状況.....	138
II-4. 修士学位及び博士学位の取得状況.....	139

III. 研究支援体制

III-1. 技術部 143

III-2. 学術情報 144

IV. 資料

IV-1. 沿革 147

IV-2. 建物 150

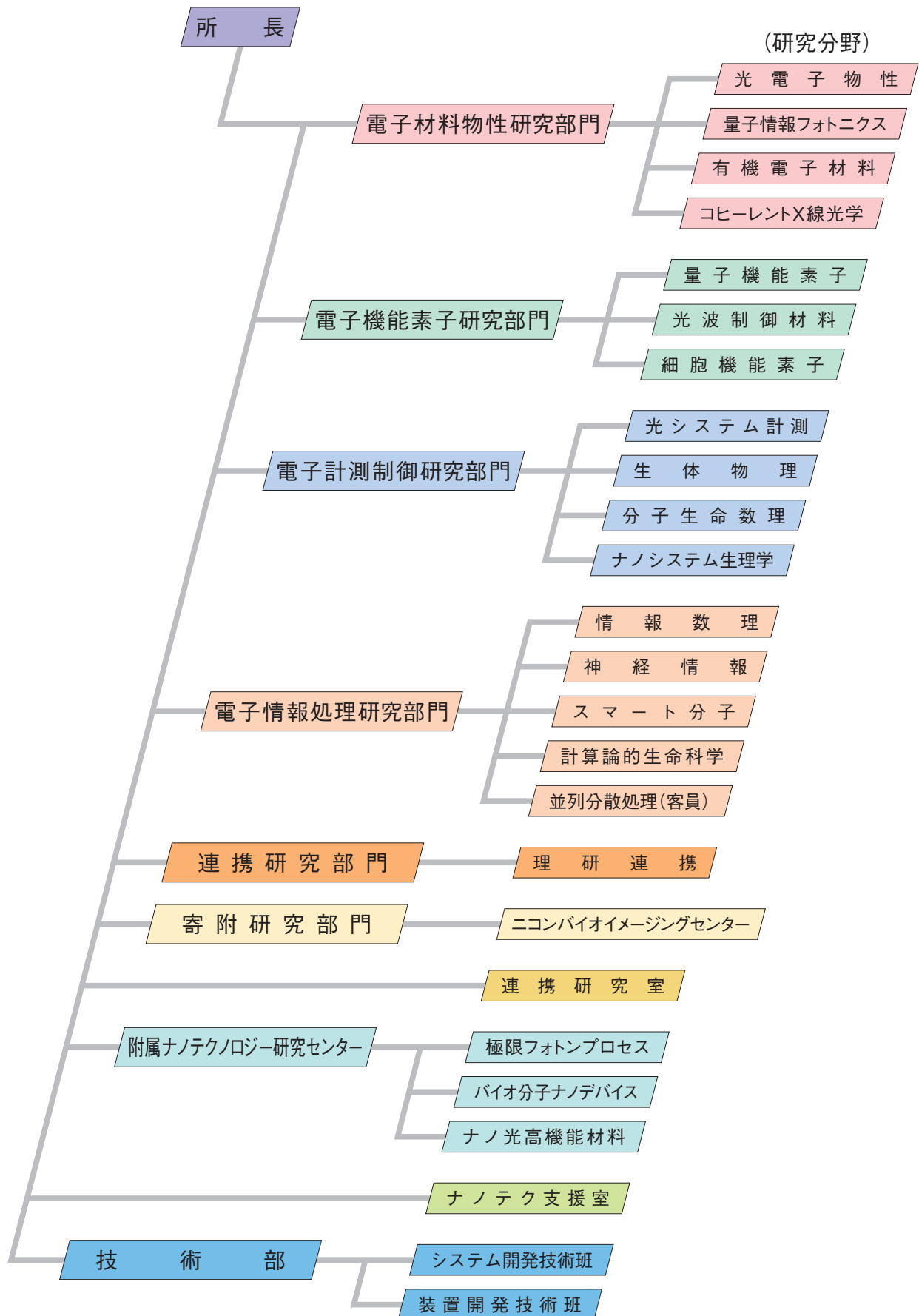
IV-3. 現員 150

IV-4. 教員の異動状況 151

IV-5. 構成員 152

表紙の説明「結晶成長過程のシミュレーション」

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（東北大院、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 Xiaoming Liu (2008.11～)

院 生

博士課程

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

修士課程

大下周吾、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) 高温電気物性分光測定装置の開発とイオン伝導体の光照射効果研究への応用

固体内において、電解質溶液と同様に、イオンが動いて拡散し電流を運ぶイオン伝導は、古くから知られた現象である。このようなイオン伝導性を示す代表的な物質のひとつにヨウ化銀 (AgI) がある。ヨウ化銀は147℃において超イオン伝導を示す α 相への相転移を示すことが知られているが、一般的に、固体の相転移温度の近くでは、光や静電場などに対する応答が非線形になるなど、外場応答の著しい変化がみられる。したがって、物性の光制御の研究において、温度を制御した実験を行うことは大変重要である。そのためには外部から光の導入が可能な、温度制御できる物性測定装置が必要になる。さらに、ヨウ化銀の α 相への相転移温度に近い温度領域で研究を行うためには、高温で温度制御することが要求される。そこで本年度は、高温で電気物性分光測定を簡便に行うための装置を開発した。装置の作製は、電子科学研究所の機械工作室において行った。

装置の概略を図1に示す。装置は光学窓を設けた2本の金属管を用いて構成されている。使用時は、外側と内側のチェンバーのあいだの空隙を、真空ポンプを用いて排気している。本装置を用いて、インピーダンスの温度依存性を

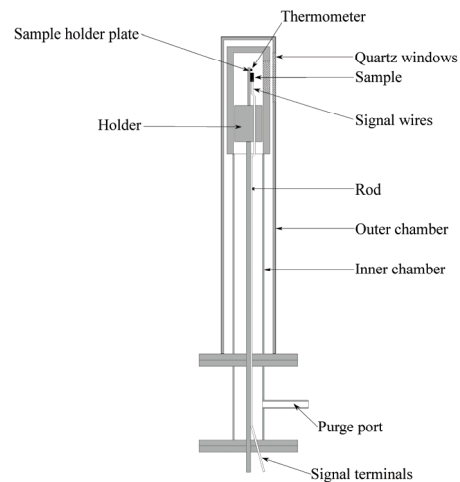


図1. 装置の概略図。

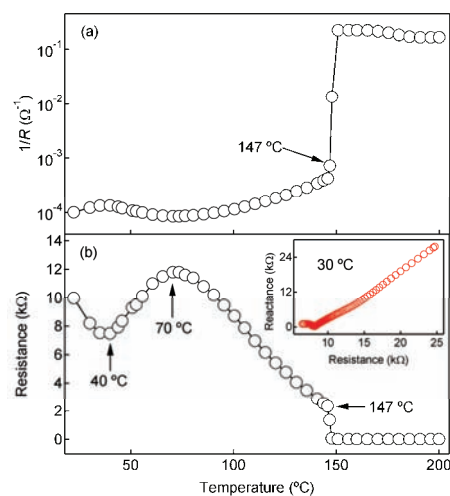


図2. γ -AgIの (a)コンダクタンス、(b)抵抗値、の温度依存性。(挿入図) コール・コールプロット。

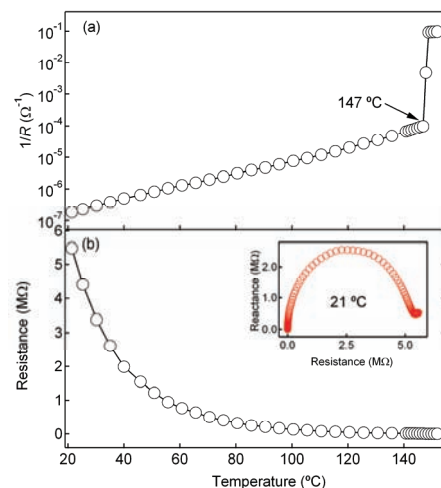


図3. β -AgIの (a)コンダクタンス、(b)抵抗値、の温度依存性。(挿入図) コール・コールプロット。

調べた。ヨウ化銀の粉末を直径13mm、厚さ0.7mmの円盤状にプレス成型して用い、その表面にカーボンペーストを用いて電極を作成して信号線と接続した。試料を空気中にお

き、電気化学インピーダンス法を用いて、200℃までインピーダンスの測定を行った。図2は、 γ -AgI を主に含む試料について、コンダクタンスと抵抗値の温度依存性を測定した結果であり、 α 相への相転移に対応したコンダクタンスの鋭い増大を観測した。また β -AgI を主に含む試料を用いて測定を行った結果を、図3に示す。 γ -AgI と同様に、 α 相への相転移が観測されているが、相転移よりも低い温度では、 γ -AgI と β -AgI の試料において異なる振る舞いが明らかになった。 γ -AgI において見られた複雑な温度依存性は、 β 相への相変化に由来するものと考えられる。

(b) 有機超伝導体の電気伝導度の光照射効果

光や電場・磁場などの外場を用いて物質の電子状態と物性を制御する研究は、現代の科学技術における重要なテーマの一つである。我々は、光と電場を作用させることにより、金属、絶縁体、超伝導体を自在に変換させること、さらには『光誘起超伝導』の存在を明らかにすべく、有機導電体を対象に研究をすすめている（図4）。よく知られた有機導電体の一つである κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Br (κ -Br)

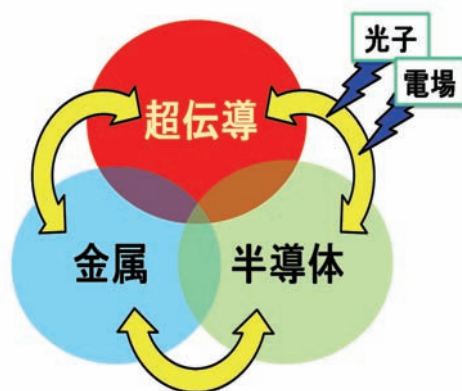


図4. 光と電場を用いる物性の変換。

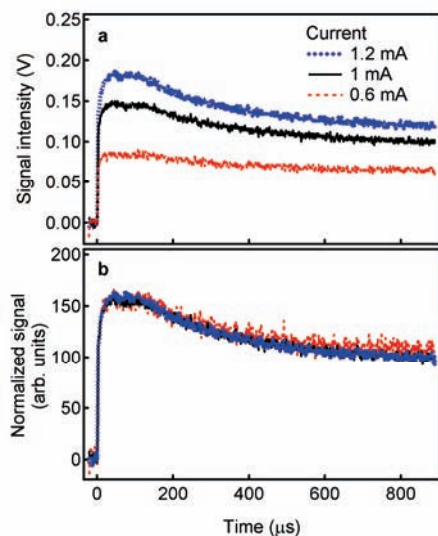


図5. (a)異なる電流値を用いて測定した電圧信号の時間プロファイル。(b)抵抗値変化の時間プロファイル。

は、12 Kに金属-超伝導相転移を示す有機超伝導体であり、高温超伝導のメカニズムを探るモデル系化合物としても重要な物質である。最近我々は、 κ -Br の超伝導相転移温度近傍において、ナノ秒パルスレーザー光を用い、電気伝導度の時間変化を測定することにより、電気伝導度における光照射効果の研究をすすめている。抵抗値の測定においては4端子法を用い、試料結晶に一定の電流パルスを加え、電圧の過渡的な変化をオシロスコープにより測定している。レーザー光照射により誘起される電圧信号の時間プロファイルを、図5aに示す（温度は10.4 K、光強度は4 μ J/パルス）。縦軸の電圧値は、抵抗値の変化量に比例しており、横軸はレーザーパルス照射後の時間を表す。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していることがわかる。また本研究では、光応答の電流値依存性についても検討を行った。0.6 mA から1.2 mA の異なる電流値を用いて観測される電圧信号の時間プロファイル（図5a）から、電流値が増大するとともに、観測される電圧信号の大きさも増大することがわかる。観測された電圧信号を、測定に用いた各電流値で割ることにより、抵抗値変化の時間プロファイルを計算した結果を、図5bに示す。いずれの電流値においても同様の結果が得られることから、測定に用いる電流値の大きさは、電気伝導度の光照射効果に本質的な影響を与えないことが明らかになった。

(c) 蛍光タンパク質の発色団の光励起ダイナミクスの外部電場効果

緑色蛍光タンパク質(GFP)を細胞内に発現させ、GFPの蛍光寿命イメージングを用いた細胞内の環境変化の計測を行っている。吸収および蛍光波長などが異なる様々な蛍光タンパク質が遺伝子工学によって現在作られており、この光学特性の違いは、蛍光タンパク質内にある発色団の分子構造及び発色団と周囲を取り囲むアミノ酸残基との静電的な相互作用によって支配される。本研究では、蛍光タンパク質の発色団のモデル化合物である *p*-HBDI（図6）について、吸収および蛍光スペクトルの外部電場効果（電場吸収・電場蛍光スペクトル）の測定を行い、発色団の電子励起状態の構造および発色団と外部電場との相互作用に伴う光励起ダイナミクスの変化について検討した。*p*-HBDI は最も基本的な発色団構造であり、野生型 GFP、EGFP、EYFP などの発色団のモデルとなる。図6にPMMA膜中におけるHBDIの電場吸収および電場蛍光スペクトルを示す。電場吸収スペクトルは、吸収スペクトルの一次微分の形を示し、光励起に伴う分子分極率の変化が支配的であることがわかる。二次微分の寄与は小さく、光励起に伴う双極子モーメントの変化量は約2 Dであった。中性状態の *p*-HBDI の双極子モーメントは、基底状態と励起状態において差が小さいことが理論的に示唆されており、本実験結果と一致する。電場蛍光スペクトルは、440 nm 付近に極大を示す *p*-HBDI からの蛍光バンドの強度が、外部電場との相互作用によって増加することがわかった。変化量の大きさは、0.9 MV cm⁻¹

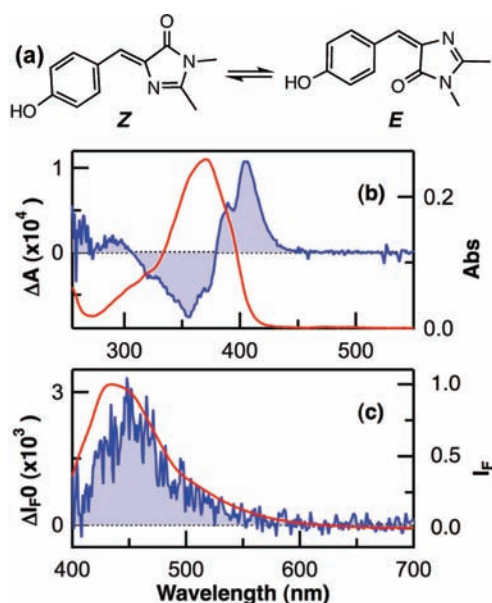


図6. (a) *p*-HBDIの分子構造。(b) PMMA中における *p*-HBDIの吸収(赤)および電場吸収(青)スペクトル。印加電圧0.7 MV cm⁻¹。(c) PMMA中における *p*-HBDIの蛍光(赤)および電場蛍光(青)スペクトル。印加電圧0.9 MV cm⁻¹。励起波長379 nm。

の外部電場の印加に対して約0.2%である。中性状態の蛍光状態からの無輻射緩和速度が、外部電場によって減少することを示唆している。

(d) FADのフェムト秒-ピコ秒光励起ダイナミクスの媒質依存性

生細胞の蛍光寿命イメージングの研究において、生体内に元から存在する蛍光物質(自家蛍光成分)の蛍光を用いた無染色での細胞診断を進めている。自家蛍光を用いることによって、染色による試料への負荷がなくなり、また染色時間がないために、迅速な判断が可能となる。しかし、自家蛍光寿命を用いて細胞内の生理現象を解明するためには、自家蛍光成分の蛍光寿命がどのような要因によって変化するのかを系統的に知る必要がある。本年度は、代表的な自家蛍光成分であるFAD (flavin adenine dinucleotide) のフェムト秒からナノ秒領域の光励起ダイナミクスの媒質依存性の測定を行い、FADの蛍光寿命を用いた細胞計測の可能性について検討した。

FADはアデニンとイソアロキサジンの2つの芳香環を持ち、基底状態においては、2つの芳香環が離れたOpen formと、これらが近接したStacked formの2つの状態の平衡状態として存在する。Open formはナノ秒の蛍光寿命を持つのに対し、Stacked formの蛍光寿命は、励起されたイソアロキサジンとアデニンとの分子内電子移動による消光のために、約10 psと短くなる。図7にフェムト秒時間分解和周波発生法を用いて測定したFADの蛍光減衰曲線のグリセロール濃度依存性を示す。混合比にかかわらず、ピコ秒領域の短い蛍光寿命を持つ成分とナノ秒領域の長い蛍光寿命を持つ成分の2成分に分けることができ、それぞれStacked formとOpen formの減衰(蛍光寿命)に対応する。グリセロ

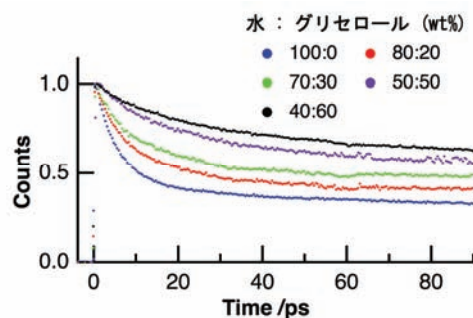


図7. 水-グリセロール混合溶媒中におけるFADの蛍光減衰曲線。グリセロール濃度(wt%): 0 (青)、20 (赤)、30 (緑)、50 (紫)、60 (黒)。励起波長、410 nm; 蛍光波長、580 nm。

ールの濃度増加に伴い、Stacked formに由来するピコ秒の減衰成分の蛍光寿命が長くなることがわかる。水のみでは約10 psの蛍光寿命であるのに対し、グリセロールの濃度が60 wt%のときには、蛍光寿命は約30 psと増加する。この結果は、光励起されたStacked formの分子内電子移動速度が、グリセロールの濃度増加に伴い減少することを示している。エタノール-水混合溶液中においても同様のStacked formの蛍光寿命の増加が観測され、Stacked formのピコ秒の蛍光寿命の変化は、媒質の誘電率と相関があることがわかった。実際にStacked formの蛍光寿命と媒質の誘電率との間に比例関係が観測され、FADのピコ秒領域の蛍光ダイナミクスを用いて、細胞内の誘電環境に関する情報が得られることを示唆している。ナノ秒領域の蛍光ダイナミクスにおいても、Open formに由来するナノ秒の蛍光寿命が、グリセロールの濃度増加に従って増加した。しかし、Open formの蛍光寿命は、媒質の粘性にも依存し、細胞内の誘電環境を調べるためには、周囲の粘性も考慮する必要があることがわかった。

3. 今後の研究の展望

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、機能物性への光および電場効果を明らかにする。特に、単なる光導伝性ということではなく、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ダイナミクスの制御、さらには蛍光寿命イメージング測定や時間分解発光測定により生体系におけるダイナミクス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) T. Nakabayashi, Md. S. Islam and N. Ohta: “Fluorescence decay dynamics of flavin adenine dinucleotide in a mixture of alcohol and water in the femtosecond and nanosecond time range”, *J. Phys. Chem. B*, B114(46): 15254–15260 (2010)
- 2) M. S. Mehata, M. Majumder, B. Mallik and N. Ohta: “Electric Field Effects on Optical Property and Excitation Dynamics of Capped CdS Quantum Dots Embedded in a Polymer Film”, *J. Phys. Chem. C*, 114(37): 15594–15601 (2010)
- 3) T. Iimori, T. Naito and N. Ohta: “Time-Resolved Measurement of the Photoinduced Change in the Electrical Conductivity of the Organic Superconductor κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Br”, *J. Phys. Chem. C*, 114(19): 9070–9075 (2010)
- 4) M. S. Mehata, C.-S. Hsu, Y.-P. Lee and N. Ohta: “Electric-Field-Induced Enhancement/Quenching of Photoluminescence of π -Conjugated Polymer S3-PPV: Excitation Energy Dependence”, *J. Phys. Chem. B*, 114(19): 6258–6265 (2010)
- 5) T. Iimori, T. Naito and N. Ohta: “Photoresponse of electrical conductivity in an organic superconductor investigated by time-resolved resistance measurements”, *Physica B: Condens. Matter*, 405(11S): S347–S349 (2010)
- 6) T. Iimori, T. Naito and N. Ohta: “Photoresponse of electrical conductivity in an organic superconductor investigated by time-resolved resistance measurements”, *Physica B: Condens. Matter*, 405(11S): S347–S349 (2010)
- 7) T. Iimori, R. Khaton, M. Takei, T. Meike and N. Ohta: “A compact high-temperature furnace for the measurements of optoelectronic property of solid materials”, *Anal. Chem., An Indian Journal*, 9(1) (2010)

4.2 総説・解説・評論等

- 1) 太田信廣: 「電場吸収・電場発光測定」、JASCO Report (総説)、52(1): 1–8 (2010)
- 2) 飯森俊文、R. Khaton、太田信廣: 「高温電気物性分光測定装置の製作」、分光研究、59(6) 285–286 (2010)

4.4 著書

- 1) T. Iimori, T. Naito and N. Ohta: “Synergy Effects of Photoirradiation and Applied Voltage in Electrical Conductivity of α -(BEDT-TTF)₂I₃”, *Molecular Electronic and Related Materials- Control and Probe with Light*, TRANSWORLD RESEARCH NETWORK: 167–184 (2010)

4.7 講演

a. 招請講演

i) 学会

- 1) N. Ohta: “Photoinduced Electron Transfer in Solid Films in the Presence of External Electric Fields”, 1st International Conference Reaction Kinetics in Condensed Matter, Moscow Region State University, Russia (2010–09)
- 2) N. Ohta: “Fluorescence Lifetime Imaging Microscopy (FLIM) and its Application to Biological System”, The 2nd International Conference on Chemical Sciences, University Gadjah Mada, Indonesia (2010–10)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 太田信廣: 「蛍光寿命イメージング測定と細胞内環境の評価」、視る生物学5～植物を視る光の新技術～、奈良 (2010–11)
 - 2) N. Ohta and D. W. Eric: “Understanding Optoelectronic Nano-Devices Composed of Organic Molecules and Polymer Materials”, Workshop Taiwan-Japan “Nano Devices”, 横浜 (2011–03)
 - 3) 太田信廣 「構造、ダイナミクス、機能物性への電場効果および光励起効果」第9回化学・材料研究セミナー、九州大学大学院理学研究院化学部門、博多 (2010–01)
 - 4) 太田信廣 「光と電場によるダイナミクス・機能・物性の制御」北大-理研超短パルスレーザー研究会、北海道大学工学研究科 (2010–12)
 - 5) 太田信廣 「半導体ナノ粒子の吸収、発光への外部電場効果」分子研研究会 (分光学が係るクラスター化学および機能性ナノ構造体科学の将来展望)、岡崎コンファレンスセンター (2011–01)
 - 6) N. Ohta, “Effects of Photoirradiation and Electrical Conductivity of Materials”, One Day Seminar on “Recent Trends in Research on Atomic, Molecular and Optical (AMO) Physics”, Indian Association for the Cultivation of Science (IACS), Kolkata (2010–03)
 - 7) N. Ohta, Electric Field Effects on Structure and Dynamics at the Electronically Excited States of Molecules and Clusters”, Professor S C Sircar Memorial Lecture, Indian Association for the Cultivation of Science (IACS), Kolkata (2010–03)
 - 8) T. Nakabayashi: “Measurements of Intracellular Environments by Fluorescence Lifetime Imaging Microscopy”, Symposium on Advanced Spectroscopy, Sapporo, (2010–10)
 - 9) 中林孝和: 「蛍光寿命イメージングを用いた単一細胞計測の展開」分子研研究会 (分光学が係るクラスター化学および機能性ナノ構造体科学の将来展望)、岡崎コンファレンスセンター (2011–01)
- #### 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に用いるメリット」、第16回細胞生物学ワークショップ、札幌

(2010-11)

b. 一般講演

i) 学会

- 1) 中林孝和*、日野和之、太田有香、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モデル化合物における光励起ダイナミクスの電場誘起変化」、日本化学会第91春季年会、横浜 (2011-03)
- 2) Hung-Chu Chiang、岡田孟矩、飯森俊文、太田信廣：「Electrophotoluminescence spectra of pyrene dissolved in benzene」、化学系学協会北海道支部2011年冬季研究発表会、北海道大学学術交流会館 (2011-02)
- 3) Farzana Sabeth、飯森俊文、中畑喬之、内藤俊雄、太田信廣：「Time-resolved measurement of the photoresponse near the superconducting transition temperatures of the quasi-two-dimensional organic superconductor β -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$ 」、化学系学協会北海道支部2011年冬季研究発表会、北海道大学学術交流会館 (2011-02)
- 4) 秦昊、ラヒマ カトン、飯森俊文、太田信廣：「ヨウ化銀の電気伝導度に対する電場効果と光照射効果」、化学系学協会北海道支部2011年冬季研究発表会、北海道大学学術交流会館 (2011-02)
- 5) 中林孝和*、大下周吾、澄川亮哉、孫 凡、金城政孝、太田信廣：「蛍光タンパク質の蛍光寿命を用いた細胞内 pH のその場検出」、第4回分子科学討論会、大阪 (2010-09)
- 6) 飯森俊文*、サベト ファルザナ、中畑喬之、内藤俊雄、太田信廣：「有機超伝導体 BEDT-TTF 塩における光誘起電気伝導度変化の時間分解測定」、第4回分子科学討論会、大阪 (2010-09)
- 7) 岡田孟矩*、飯森俊文、太田信廣：「溶液中およびポリマー中におけるアズレンの電場吸収・電場発光測定」、第4回分子科学討論会、大阪 (2010-09)
- 8) F. Sabeth*, T. Iimori and N. Ohta: “Time-resolved measurements of the photoradiation effect in the ionic conductivity of the polycrystalline AgI”, 第4回分子科学討論会、大阪 (2010-09)
- 9) 太田信廣*, M. S. Mehata, C.-S. Hsu, Y.-P. Lee: 「光電変換物質 π -ポリマーの電場吸収・電場発光測定」、第4回分子科学討論会、大阪 (2010-09)
- 10) 大島瑠利子*、中林孝和、小林洋一、玉井尚登、太田信廣：「水溶性 CdTe ナノ粒子の光励起ダイナミクスへの外部電場効果」、2010年光化学討論会、千葉 (2010-09)
- 11) 澄川亮哉*、大下周吾、中林孝和、孫 凡、金城政孝、太田信廣：「EYFPの蛍光寿命の pH 依存性-細胞内と緩衝溶液中の比較-」、2010年光化学討論会、千葉 (2010-09)
- 12) T. Nakabayashi*, Md. S. Islam and N. Ohta: “Time-Resolved Fluorescence Decays of FAD in a Mixture of Alcohol and Water in the Femtosecond and Nanosecond Time Range”, 2010年光化学討論会、千葉 (2010-09)

- 13) T. Iimori*, F. Sabeth, T. Nakahata, T. Naito and N. Ohta: “Time-resolved measurement of the photoresponse in the organic superconductor κ -(BEDT-TTF) $_2$ Cu[N(CN) $_2$]Br”, 光化学討論会2010、千葉 (2010-09)
 - 14) F. Sabeth*, T. Iimori, T. Nakahata, T. Naito and N. Ohta: “Remarkable photoresponse near the superconducting transition temperatures in the quasi-two-dimensional organic superconductor β -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$ ”, 光化学討論会2010、千葉 (2010-09)
 - 15) T. Nakabayashi*, S. Oshita, R. Sumikawa, F. Sun, M. Kinjo and N. Ohta: “Intracellular pH Sensing in Cells Using Fluorescence Lifetime Imaging of Fluorescent Proteins”, International Conference on Nanophotonics 2010, Tsukuba (2010-05~2010-06)
 - 16) M. S. Mehata, C.-S. Hsu, Y.-P. Lee and N. Ohta*: “Electrophotoluminescence (E-PL) of π -conjugated polymers of poly (phenylene vinylene) derivatives”, 2010年光化学討論会、千葉 (2010-09)
 - 17) X. Liu*, R. Ohshima, T. Iimori, T. Nakabayashi and N. Ohta: “Electroabsorption Spectra of PbSe and PbS Nanoparticles in a Polymer Film”, 2010年光化学討論会、千葉 (2010-09)
 - 18) Md. S. Islam*, T. Nakabayashi, M. Kinjo, J. Matsumoto, M. Yasuda and N. Ohta: “Fluorescence Lifetime Images of Yeast Cells Loaded with Water-Soluble Antimonyporphyrin”, 2010年光化学討論会、千葉 (2010-09)
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ**
- 1) 太田信廣*、飯森俊文、ラヒマ カートン、秦 昊：「ヨウ化銀イオン伝導度への光照射効果と電場効果」、「大学の特性を生かした多様な学術研究機能の充実」附置研究所間アライアンスによるナノとマクロをつなぐ物質・デバイス・システム創製戦略プロジェクト、仙台 (2011-03)
 - 2) 太田信廣：「分子フォトンクスに向けた新奇光機能物性の探索」、2010年度「次世代エレクトロニクス」プロジェクト (G1) グループ分科会プログラム、北広島 (2010-10)

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、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)
 - 3) 中林孝和、基盤研究 (B)、フェムト秒時間分解蛍光イメージングを用いた細胞内状態の三次元計測 (2010~2012年度)
 - 4) 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～

20) 環境科学院、環境物質科学実習Ⅱ、飯森俊文

21) 環境科学院、環境物質科学論文購読Ⅰ、飯森俊文

22) 環境科学院、環境物質科学論文購読Ⅱ、飯森俊文

23) 環境科学院、環境物質科学特別研究Ⅰ、飯森俊文

24) 環境科学院、環境物質科学特別研究Ⅱ、飯森俊文

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
- 3) 太田信廣：分子科学研究所客員教授

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：日本分光学会生細胞分光部会幹事
- 4) 太田信廣：日本分光学会代議員
- 5) 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）
- 6) 中林孝和：日本レーザー医学会編集委員会査読委員（2010年4月1日～現在）

e. 北大での講義担当

1) 全学共通、光・バイオ・分子で拓くナノテクノロジー

- 2) 環境科学院、環境物質科学実習Ⅰ、太田信廣
- 3) 環境科学院、環境物質科学実習Ⅱ、太田信廣
- 4) 環境科学院、環境物質科学論文購読Ⅰ、太田信廣
- 5) 環境科学院、環境物質科学論文購読Ⅱ、太田信廣
- 6) 環境科学院、環境物質科学特別研究Ⅰ、太田信廣
- 7) 環境科学院、環境物質科学特別研究Ⅱ、太田信廣
- 8) 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
- 9) 環境科学院、光分子化学特論、太田信廣
- 10) 環境科学院、環境物質科学実習Ⅰ、中林孝和
- 11) 環境科学院、環境物質科学実習Ⅱ、中林孝和
- 12) 環境科学院、環境物質科学論文購読Ⅰ、中林孝和
- 13) 環境科学院、環境物質科学論文購読Ⅱ、中林孝和
- 14) 環境科学院、環境物質科学特別研究Ⅰ、中林孝和
- 15) 環境科学院、環境物質科学特別研究Ⅱ、中林孝和
- 16) 環境科学院、環境物質科学基礎論Ⅰ、中林孝和
- 17) 環境科学院、光分子科学特論、中林孝和
- 18) 環境科学院、分子環境学特論Ⅱ、中林孝和
- 19) 環境科学院、環境物質科学実習Ⅰ、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 Hoonsoo Kang（Univ. Hanyang, Korea, Ph.D.,
2011.2～2011.3）
博士研究員 趙 洪泉（中国科学院、工博、2009.4～）
博士研究員 岡野真之（京大院、理博、2010.4～）
博士研究員 Shanthi Subashchandran（Anna Univ., India,
Ph.D., 2010.4～）
博士研究員 小野貴史（広大院、理博、2010.8～）
院 生
博士課程
谷田真人
修士課程
田中 陽、桃原清太、柳澤朋李、家藤美奈子、
楠木一平、野田哲矢、横井宇慧

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) 高効率光非線形性を組み込んだ

Knill-Laflamme-Milbern 制御ノット光量子回路の実現

量子情報科学は重ね合わせやもつれ合いといった量子力学の興味深い現象を巧みに利用することで通信や情報処理や、精密測定を古典的な限界を超えて行うことを可能にする。光子は、ノイズが小さく、光速で伝搬する、また既存の光学素子で高精度の操作が可能である。しかし、単一光子レベルでの、高効率な光カー非線形性がないことは大

きな障害であった。Knill-Laflamme-Milbern (KLM) らはそのような高効率な非線形性が、線形光学素子、補助光子、そして光子測定で実現できることを示した [(2001) Nature 409: 46-52]。さらに彼らは、そのような非線形素子を二つ組み合わせることで、成功シグナル付の制御ノットゲートが実現できることを示した。

我々は、KLM 制御ノットゲートを実験的に実証した。実験的な実現に向けた、大きな障害が、複数の干渉計が組み合わせられた4光子ネットワークであった。そこで我々は、変型サニアック干渉計と部分偏光ビームスプリッタを組み合わせることで、干渉計の安定化及びコンパクト化に成功した(図1)。構築した、制御ノットゲートの評価を行った結果、正しい動作を確認できた。今回実現した制御ノットゲートは、オンデマンドもつれ合い光源や、もつれ合いの純化に使うことができる。また、巨大光非線形性を組み合わせた光量子回路は制御ノットゲート以外にも、量子情報処理、通信、センシングに幅広い応用が期待できる。

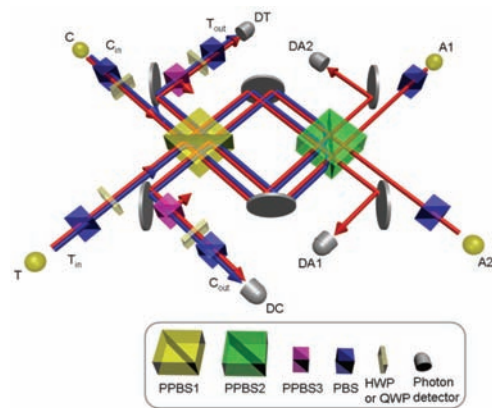


図 1. 実験系概念図

(b) 高解像度量子光断層撮影に向けた、複数のバルク結晶による広帯域パラメトリック蛍光対光源の実現

光断層撮影(OCT)は低コヒーレンス光干渉を基礎とした、非侵襲断層イメージング法として医学・生物学に広く応用されているが、通常の光源では数ミクロン程度の空間分解能が限界である。一方、量子力学的なもつれ合いを持つ光子対による量子2光子干渉を基礎とする量子光断層撮影(QOCT)では、光子対の持つ量子相関(周波数相関)により、分解能の向上と群速度分散効果の補償が可能となる。そこで我々は今年度より高分解能 QOCT の実現に向けて研究を開始した。

高い分解能を得るためには広帯域な量子もつれ合い光子対光源が必要なため、我々は複数のバルク非線形結晶を組み合わせる新規手法を提案し、実証した。量子もつれ合い光子対としては、バルク非線形結晶(BBO)により非線形光学過程を介して発生するパラメトリック蛍光対を用いた。1個の結晶を用いた場合には周波数帯域が約80nm(37 THz)であるのに対し、2個の結晶を組み合わせ発生するパラメトリック蛍光対を足し合わせることで、周波数帯域

を約170 nm (78 THz) と2倍以上にまで広帯域化することに成功した(図1)。この広帯域光源によりサブミクロン(～0.9 μ m)分解能を持つQOCTの実現が期待される。

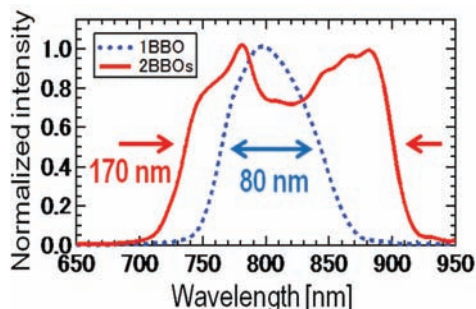


図2. 1個(青点線)と2個(赤実線)の非線形光学結晶(BBO)から発生したパラメトリック蛍光対のスペクトル。

(c) テーパ光ファイバの透過率減衰現象の解明

テーパ光ファイバは市販のシングルモード光ファイバを溶融・延伸する事によって、直径を波長以下にまで細くした光ファイバであり、テーパ部にエバネッセント場が生じている。このエバネッセント場を介する事で、例えば、ガラス微小球共振器と光学的に結合させた導波路結合微小光共振器系が実現可能である。また、テーパ上に配置された分子やナノ粒子と導波する光が強く相互作用する事が、最近、明らかとなりつつある。これらの用途では、波長500–700 nmの可視光領域の光を扱う事になり、300–400 nmのテーパ部直径が必要とされる。このような極細テーパ光ファイバの透過率は時間的に減衰していく事が知られており、大きな問題であった。この理由としては、空気中のホコリの影響や水分子の吸着によるガラスの化学的変性などの様々な可能性が指摘されていたが、実験的検証が行われていなかった。

今回、我々はテーパ光ファイバの透過率と空気中のホコリ量及び湿度との関係を定量的に評価した。図は、テーパ光ファイバをクリーンルーム(クラス10)・準クリーンルーム(クラス10,000)・通常実験室に配置し、その透過率変化をモニターしたものである。明らかに、透過率減衰が空気中のホコリ量に依存している事が分る。さらに、クラス10のクリーンルームでは全く透過率の減衰が見られなかった。

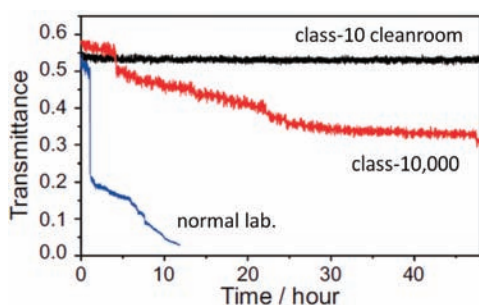


図3. テーパ光ファイバの透過率の経時変化と空気中のホコリ量の関係

(d) SrTiO₃の量子常誘電状態におけるフォノン・モード

SrTiO₃の[010]c方向に一軸性圧力を印可して行くと、量子常誘電状態から量子強誘電状態に変化することが報告されている。図4は27.6 Kにおける光散乱スペクトルである。40 GHzのところにある光散乱ピークが横波音響フォノンであるが、臨界圧力($\sigma \sim 33$ [dyn/cm²])以上で急に、その強度を増す。これは、光散乱の選択則により、量子強誘電状態での自発分極 P_s の方向が[001]cではないことを意味している。これまで、もしSrTiO₃が強誘電性相転移を行う場合、それはSlaterモードの凍結であり、その結果として発生する P_s の方向が[001]cとなると信じられてきたが、これを完全に覆す結果となった。また、紙面の関係で図には示せないが、Slaterモードの圧力依存性を測定した結果、臨界圧力点でも、ソフト化が不完全であることを明かにした。このことは、「量子常誘電状態から量子強誘電状態への状態変化の動的原因が、Slaterモードの凍結ではないこと」のクロスチェックになっている。

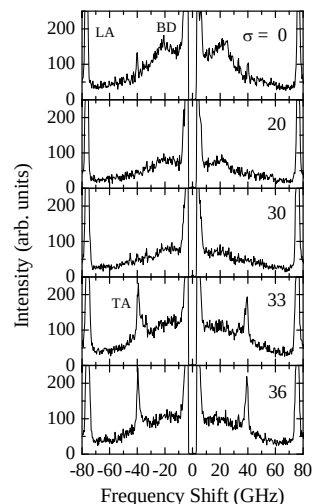


図4. 音響フォノンの一軸性圧力依存性

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、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」を実施している。これらのプロジェクトの展開として、(a) テーパファイバ結合微小球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. Nagata, R. Okamoto, H.F. Hofmann and S. Takeuchi: “Analysis of experimental error sources in a linear-optics quantum gate”, *New Journal of Physics*, 12: 43053/1-43053/17 (2010).
- 2) P. Kalasuwan, G. Mendoza, A. Laing, T. Nagata, J. Cogging, M. Callaway, S. Takeuchi, A. Stefanov and J.L. O’Brien: “Simple scheme for expanding photonic cluster states for quantum information”, *J.Opt.Soc.Am.B*, 27(6): A181-A184 (2010).
- 3) H. Takashima, T. Asai, K. Toubaru, M. Fujiwara, K. Sasaki and S. Takeuchi: “Fiber-microsphere system at cryogenic temperatures toward cavity QED using diamond NV centers”, *OPTICS EXPRESS(OSA)*, 18(14): 15169-15173 (2010).
- 4) A. Tanaka, T. Asai, K. Toubaru, H. Takashima, M. Fujiwara, R. Okamoto and S. Takeuchi: “Phase shift spectra of a fiber-microsphere system at the single photon level”, *OPTICS EXPRESS*, 19(3): 2278-2285 (2011).
- 5) H. Fujiwara, Y. Kawabe, R. Okamoto, S. Takeuchi and K. Sasaki: “Quantum lithography under imperfect conditions: effects of loss and dephasing on two-photon interference fringes”, *J.Opt.Soc.Am. B*, 28(3): 422-431 (2011).

4.4 著書

- 1) 竹内繁樹: 「量子情報通信・処理の実現に向けた高効率固体量子位相ゲート」、量子ドットエレクトロニクスの最前線、エヌ・ティー・エス出版: 331-339 (2011).

4.7 講演

i) 学会

- 1) S.Takeuchi*: “Photonic quantum circuits and its application”, Quantum2010 5th Workshop and memoriam of Carlo Novero Advances in Foundations of Quantum Mechanics and Quantum Information with atoms and photons / 3rd Italian Quantum information Science Conference IQIS 2010, Torino, Italy (2010-05).
- 2) T. Nagata, R. Okamoto, M. Tanida, H.F. Hofmann and S. Takeuchi*: “How can we minimize errors in a linear-optics quantum gate?”, SPIE Optics+Photonics 2010, San Diego, USA (2010-08).
- 3) R. Okamoto*, J.L. O'Brien, H.F. Hofmann, T. Nagata and S. Takeuchi: “Linear optics quantum circuits”, International Conference on Coherent and Nonlinear Optics/Lasers, Applications, and Technologies 2010, Kazan, Russia (2010-08).
- 4) Kohsuke Satoh and Yuhji Tsujimi*: “Anisotropic Nature of Broad Doublet Spectra in SrTiO_3 ”, The 8th Japan-Korea

Conference on Ferroelectrics, Himeji, Japan (2010-08).

- 5) T. Mori*, Y. Tsujimi, and R. Nozaki: “Comparison of Dielectric Permittivity and Optical Susceptibility of Supercooled Liquids in GHz Frequency Region”, 5th Pacific Rim Conference on Rheology, Sapporo, Japan (2010-08).
- 6) 竹内繁樹*: 「光子を操る-光量子回路の実現とその未来」、第71回応用物理学会学術講演会、長崎大学 (2010-09).
- 7) 藤原正澄*、桃原清太、田中陽、趙洪泉、高島秀聡、竹内繁樹: 「極低温下におけるテーパファイバ・微小球結合系の実現と制御」、日本物理学会2010年秋季大会、大阪府立大学 (2010-09).
- 8) H.Q. Zhao*, M. Fujiwara and S. Takeuchi: “Investigation of NV centers in diamond nano-crystals by laser Scanning Confocal microscopy”, 日本物理学会2010年秋季大会、大阪府立大学 (2010-09).
- 9) 柳澤朋李*、辻見裕史、岩田真: 「 $\text{Bi}_{1-x}\text{La}_x\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ (BLT) 混晶における光誘起現象」、日本物理学会2010年秋季大会、大阪府立大学 (2010-09).
- 10) 辻見裕史*、南英俊、植寛素: 「一軸性圧力下における SrTiO_3 の光散乱」、日本物理学会2010年秋季大会、大阪府立大学 (2010-09).
- 11) A. Tanaka*, K. Toubaru, H. Takashima, M. Fujiwara, R. Okamoto and S. Takeuchi: “Coherent Phase Shift Spectra of Fiber-Microsphere System at the Single Photon Level”, Updating Quantum Cryptography and Communications 2010, 東京 (2010-10).
- 12) M. Fujiwara*, K. Toubaru, A. Tanaka, H.Q. Zhao, H. Takashima, K. Sasaki and S. Takeuchi: “Fiber-coupled Microsphere at Cryogenic Temperatures for Cavity QED Experiments Using Single Diamond NV Centers”, Updating Quantum Cryptography and Communications 2010, 東京 (2010-10).
- 13) H.Q. Zhao*, M. Fujiwara and S. Takeuchi: “Investigation of NV centers in diamond nano-crystals by laser Scanning Confocal microscopy”, Updating Quantum Cryptography and Communications 2010, 東京 (2010-10).
- 14) 竹内繁樹*: 「光量子回路の実現とその応用」、レーザー学会学術講演会第31回年次大会、電気通信大学 (2011-01).
- 15) M. Fujiwara*, A. Tanaka, K. Toubaru, H.Q. Zhao, H. Takashima and S. Takeuchi: “Polarization-purity spectra of a tapered-fiber-coupled microsphere cavity system at cryogenic temperatures”, SPIE Photonics west 2011, San Francisco, USA (2011-01).
- 16) S. Takeuchi*, R. Okamoto, M. Fujiwara, H.Q. Zhao, H. Takashima, A. Tanaka, H.F. Hofmann and J.L. O’Brien: “Optical quantum circuit combining tailored optical nonlinearities”, SPIE Photonics west 2011, San Francisco, USA (2011-01).

- 17) 古橋匡幸*, 大城敬人, 筒井真楠, 松原一喜, 谷口正輝, 川合知二, 藤原正澄, 竹内繁樹:「単生体粒子認識を目前とした TiO_2 導波路の作製」、2011年春季第58回応用物理学関係連合講演会、神奈川工科大学 (2011-03)。
 - 18) 竹内繁樹*:「量子情報光学とその応用」、2011年春季第58回応用物理学関係連合講演会、神奈川工科大学 (2011-03)。
 - 19) 田中陽*, 岡本亮, 岡野真之, Subashchandran Shanthi, Hwan Hong LIM, 栗村直, 竹内繁樹:「チャープPPSLT素子から発生する広帯域パラメトリック蛍光対の特性評価」、日本物理学会第66回年次大会、新潟大学 (2011-03)。
 - 20) 岡野真之*, 岡本亮, 田中陽, Shanthi Subashchandran, 石田周太郎, 西澤典彦, 竹内繁樹:「広帯域パラメトリック蛍光対の量子光断層撮影への応用」、日本物理学会第66回年次大会、新潟大学 (2011-03)。
 - 21) 藤原正澄*, 野田哲矢, 桃原清太, 趙洪泉, 竹内繁樹:「テーパー光ファイバによる単一発行体の蛍光検出とそのテーパー部直径依存性」、日本物理学会第66回年次大会、新潟大学 (2011-03)。
 - 22) 岡本亮*, 岡野真之, 田中陽, Subashchandran Shanthi, 竹内繁樹:「BBO結晶からのパラメトリック蛍光対の広帯域化」、日本物理学会第66回年次大会、新潟大学 (2011-03)。
 - 23) 竹内繁樹*, 岡本亮, 岡野真之, Subashchandran Shanthi, 田中陽, 栗村直, Holger F. Hofmann, 西澤典彦:「モノサイクル量子もつれ光源の実現にむけて」、日本物理学会第66回年次大会、新潟大学 (2011-03)。
 - 24) 楠木一平*, 辻見裕史, 岩田真:「 $\text{Bi}_{1-x}\text{Sm}_x\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ の構造相転移と光散乱」、日本物理学会第66回年次大会、新潟大学 (2011-03)。
 - 25) 辻見裕史*, 南英俊, 植寛素:「一軸性圧力下における SrTiO_3 の光散乱II」、日本物理学会第66回年次大会、新潟大学 (2011-03)。
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) A. Tanaka*, K. Toubaru, M. Fujiwara, R. Okamoto and S. Takeuchi: “Quantum Process Tomography of Microsphere Cavity-Coupled Tapered Fiber System”, CREST 2010 International Symposium on Physics of Quantum Technology, National Institute of Informatics, Tokyo (2010-04)。
 - 2) 藤原正澄*:「量子情報フォトニクスの展開」、日本学術会議主催公開シンポジウム先端フォトニクスの展望、東京 (2010-04)。
 - 3) 桃原清太*, 藤原正澄, 竹内繁樹:「光ナノファイバの透過率減少に関する研究」、第22回量子情報技術研究会 (QIT22)、大阪大学 (2010-05)。
 - 4) 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におけるコヒーレントな位相シフトスペクトル測定」、第22回量子情報技術研究会 (QIT22)、大阪大学 (2010-05)。
 - 5) 藤原正澄*, 桃原清太, 趙洪泉, 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2」、第22回量子情報技術研究会 (QIT22)、大阪大学 (2010-05)。
 - 6) 岡本亮*:「Knill-Laflamme-Milburn 制御ノットゲートの実現ー高効率な光非線形性に基づく光量子回路」、G-COE「物質の量子機能解明と未来型機能材料創出」平成22年度 G-COE 若手秋の学校「量子物性の解明と新機能」、岡山 (2010-10)。
 - 7) 谷田真人*:「光量子回路を用いた量子制御スワップ操作の実現に向けて」、G-COE「物質の量子機能解明と未来型機能材料創出」平成22年度 G-COE 若手秋の学校「量子物性の解明と新機能」、岡山 (2010-10)。
 - 8) 竹内繁樹*:「光量子回路の実現とその応用」、文部科学省「物質・デバイス領域共同研究拠点」複雑系数理とその応用に関するシンポジウム、北海道大学 (2010-11)。
 - 9) 岡本亮*, Jeremy L. O'Brien, Holger F. Hofmann, 竹内繁樹:「高効率な人工非線形性に基づく量子制御ノットゲートの実現」、大阪大学産業科学研究所第66回学術講演会、大阪大学 (2010-11)。
 - 10) 竹内繁樹*, 栗村直, H.F. Hofmann:「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」、CREST「先端光源を駆使した光科学・光技術の融合展開」領域研究状況報告会、JST東京本部 (2010-12)。
 - 11) 岡本亮, Jeremy L. O'Brien, Holger F. Hofmann, 竹内繁樹*:「Knill-Laflamme-Milburn 制御ノットゲートの実現ー高効率な光非線形性に基づく光量子回路」、公開シンポジウム「ナノ量子情報エレクトロニクスの進展」、東京大学 (2010-12)。
 - 12) 藤原正澄*, 趙洪泉, 桃原清太, 野田哲矢, 田中陽, 竹内繁樹:「テーパーファイバ・微小球結合系を用いた量子位相ゲートの実現に向けて」、公開シンポジウム「ナノ量子情報エレクトロニクスの進展」、東京大学 (2010-12)。
 - 13) 藤原正澄*:「分子の輻射場制御を利用した新しい単一分子分光法とそのカロテノイドへの応用可能性」、2010年カロテノイド若手の会、神奈川 (2010-12)。
 - 14) 岡本亮*, 竹内繁樹:「複数光路真の非局所的な2光子干渉の実証実験」、北海道大学電子科学研究所平成22年度研究交流会、北海道大学 (2011-01)。
 - 15) 小野貴史*, 岡本亮, 竹内繁樹:「標準量子限界を破る光学的位相差測定ー微分干渉顕微鏡への応用ー」、北海道大学電子科学研究所平成22年度研究交流会、北海道大学 (2011-01)。
 - 16) 岡野真之*, 小野貴史*, 竹内繁樹:「量子もつれ光子対の量子計測・量子光断層撮影への応用」、北海道大学電子科学研究所平成22年度研究交流会、北海道大学 (2011-01)。
 - 17) S. Subashchandran*, R. Okamoto, L. Zhang, A. Tanaka, M. Okano, L. Kang, J. Chen, P. Wu and S. Takeuchi: “Su-

- perconducting Nanowire Single Photon Detector System: Quantum Efficiency Measurement using Correlated Photons”, The 14th SANKEN international Symposium 2011, The 9th SANKEN Nanotechnology Symposium, Ootsu, Shiga (2011-01).
- 18) H.Q. Zhao*, M. Fujiwara and S. Takeuchi: “Cryogenic Spectrum Investigation on NV-Centers in Nano-Diamond Crystals”, The 14th SANKEN international Symposium 2011, The 9th SANKEN Nanotechnology Symposium, Ootsu, Shiga (2011-01).
 - 19) M. Okano*, R. Okamoto, A. Tanaka, S. Subashchandra, N. Nishizawa and S. Takeuchi: “Generation of broadband spontaneous parametric fluorescence and its application to quantum optical coherence tomography”, The 14th SANKEN international Symposium 2011, The 9th SANKEN Nanotechnology Symposium, Ootsu, Shiga (2011-01).
 - 20) S. Subashchandra*, R. Okamoto, A. Tanaka, M. Okano, L. Zhang, L. Kang, J. Chen, P.H. Wu and S. Takeuchi: “Superconducting Nanowire Single Photon Detector System: Evaluation and Applications with Entangled Photon Pairs”, International Workshop on Advanced Functional Nanomaterials, Anna University, India (2011-02).
 - 21) 藤原正澄*、趙洪泉、野田哲矢、桃原清太、田中陽、竹内繁樹:「テーパーファイバ結合微小球共振器を用いた量子位相ゲートの実現に向けて」、「附置研究所間アライアンスによるナノとマクロをつなぐ物質・システム創製戦略プロジェクト」平成22年度成果報告会、宮城 (2011-03)。
 - 22) 竹内繁樹*、藤原正澄:「光子とダイヤモンドNVの高効率結合実験」、領域融合ワークショップ「多様な物理系の量子光学:「原子」-光子強結合系」、京都 (2011-03)。
- 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) 竹内繁樹*:「光量子回路による量子サイバネティクスの実現と光量子計測」、量子情報処理プロジェクト全体会議2010、静岡 (2010-12)。
 - 5) 岡本亮*、谷田真人、家藤美奈子、Jeremy L.O’ Brien、Holger F. Hofmann、竹内繁樹:「光子を用いた量子回路とその量子制御に関する研究」、量子情報処理プロジェクト全体会議2010、静岡 (2010-12)。

- 6) 藤原正澄*、趙洪泉、桃原清太、野田哲矢、田中陽、竹内繁樹:「テーパーファイバ・微小球結合系を用いた量子位相ゲートの実現に向けて」、量子情報処理プロジェクト全体会議2010、静岡 (2010-12)。
- 7) 小野貴史*、岡本亮、竹内繁樹: “Beating the standard quantum limit with advanced photon manipulation in optical phase measurement”, 量子情報処理プロジェクト全体会議2010、静岡 (2010-12)

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
- 4) 辻見裕史、基盤研究C、一軸性圧力誘起量子常誘電相

における時空間スケージング、2010年度～2012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：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）

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：京都新聞 2011年2月26日「光の不思議にビックリ 園部小で出前授業」

f. 外国人研究者の招聘

- 1) Ping Koy Lam, The Australian National Univ. (2010年4月12日)
- 2) Jonathan Dowling, Louisiana State Univ. (2010年9月1日～6日)
- 3) Zang Labao, 南京大学 (2010年12月14日～21日)
- 4) Hoonsoo Kang, Gwangju Institute of Science and Technology (2011年2月15日～3月14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

- 5) 理学部物理学科、外国語文献講読、辻見裕史、2010年4月1日～2010年9月31日

j. 修士学位及び博士学位の取得状況

・修士課程（2名）

- 1) 柳澤朋李（大学院理学院）
- 2) 田中陽（大阪大学基礎工学研究科）

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 野呂真一郎 (京大院、工博、2004.7～)
 助 教 久保和也 (阪大院、工博、2010.10～)
 博士研究員 Ye Hen-Gyun (2010.4～)
 院 生 遠藤大五郎 (DC3)、野田祐樹 (DC3)、
 遠藤 格 (DC3)、福原克郎 (DC1)、
 劉 尊奇 (DC1)、巖 寅男 (MC2)

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行っている。

これまでに、 $\text{Cs}_2\text{([18crown-6])}_3\text{[Ni(dmit)}_2\text{)]}_2$ や (anilinium) $\text{([18crown-6])[Ni(dmit)}_2\text{)]}$ 結晶における、[18crown-6] 分子の回転運動や、anilinium (ani^+) カチオンあるいは *m*-fluoroanilinium (*m*-Fani $^+$) カチオンの180°フリップフロップ運動に関する報告を行った。例えば既に報告した (*m*-Fani $^+$) $\text{([18crown-6])[Ni(dmit)}_2\text{)]}$ 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。本研究では、フリップフロップ運動のほかに、双極子モーメントを導入したカチオン分子の振り子運動が、固体中で分極反転場を構築できることに着目し、固体中での分子の振り子運動をもとにした、新規な強誘電体の開発を目的に研究を行った。結晶中の分子振り子運動の実現は、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。これまでに、(HOPD^+)(DB[18crown-6])[Ni(dmit) $_2$](DB[18crown-6] =

dibenzo[18crown-6]が、カチオン分子の振り子運動により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を示すことを見いだした。そこで新たに、振り子運動による双極子モーメントの反転が可能な(1*R*,2*R*)-cyclohexanediammonium (CHDA^+)ジカチオンを含む塩を合成した。このジカチオンは、キラルな有機ジカチオンであり、*m*-Fani $^+$ に比べ構造的に柔らかい。従って磁性を司るアニオン部位にこれまで見られなかった分子配列を実現できる可能性が高い。そこで(CHDA^{2+})([18crown-6])[Ni(dmit) $_2$] $_2$ (CH_3CN) $_0.5$ (**1**)、(CHDA^{2+})(B[18crown-6])[Ni(dmit) $_2$] $_2$ (CH_3CN) (**2**, B[18crown-6] = benzo[18crown-6])、(CHDA^{2+})(DB[18crown-6])[Ni(dmit) $_2$] $_2$ (**3**)、(CHDA^{2+})(DCH[18crown-6])[Ni(dmit) $_2$] $_2$ (**4**, DCH[18crown-6] = dicyclohexano [18crown-6]) を作製し、これらの結晶の誘電物性を比較する事で強誘電性を検証した。

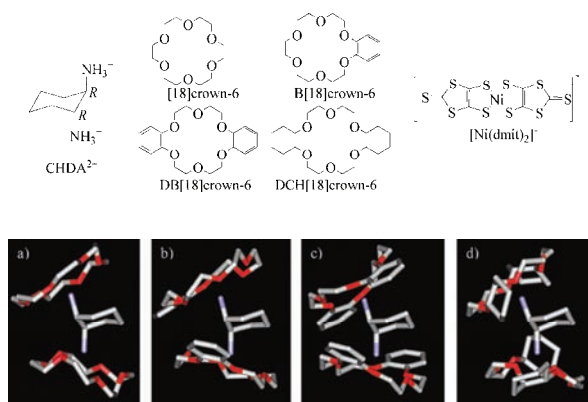


図1. 結晶(a) **1**, (b) **2**, (c) **3**, (d) **4**の超分子カチオンの構造

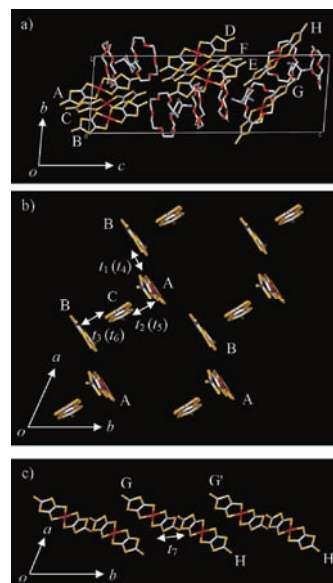


図2. (a) 結晶**1**のパッキング構造、および(b), (c) アニオン分子の結晶内における配列

結晶**1**から**4**中の二つのアンモニウム基は、N-H...O 水素結合により、オープンマウスタイプのサンドイッチ型構造をもつ超分子カチオンを形成した。また結晶**1**から**4**はP1

(#1)のキラルな空間群を持つ。図2に結晶1の $[\text{Ni}(\text{dmit})_2]^+$ アニオン配列と超分子カチオンの構造を示す。結晶1と2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3と4では、キラルな空間群に起因する強磁性層と反強磁性層が組み合わさった、やや複雑な磁気挙動が観察された。結晶2では、200 K以上の温度領域でカチオン分子の振子運動に起因した顕著な誘電率の温度および周波数依存性が観測された。これは、結晶2中の CHDA^{2+} ジ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も示唆された。一方、他の結晶における CHDA^{2+} ジカチオンの振子運動に対するポテンシャルエネルギーが高く、実際の熱揺らぎも小さく、顕著な誘電応答を示さなかった。

結晶2は、超分子化学の手法から設計され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、分子振子運動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) 金ナノ粒子集積体による単一電子トンネリングに関する研究

金ナノ粒子からなる集積体は新規伝導体として注目されており、金ナノ粒子を有機分子で連結させてできる金属-有機分子のネットワーク構造の電子挙動に関する研究は、酸化還元やフォトクロミズムを導入した伝導度のスイッチング機構など、新たな伝導材料として注目され、数多くの研究が行われている。本研究では、量子伝導材料の開発を目指し、金ナノ粒子間の単一電子トンネリングの発現を目的とした。これらの金属ナノ粒子を安定化するBinding Groupとしては、Sulfur, phosphine, amine, carboxylate, isocyanide などがある。これらの中で電子輸送の研究には、主にSulfurが用いられることが多い。金と強く共有結合を形成することができ、安定化された粒子が容易に合成可能である上、機能性分子の導入も容易だからである。しかし、一般的に金-硫黄結合のような化学結合を用いると、電子と電極間のカップリングが強くなり粒子内の電子の波動関数が非局在化するため、単一トンネル伝導が現れにくくなる。また、分子-金属間に強い分極が現れ、且つ分子のエネルギー準位が変化し、分子固有の電子構造が曖昧になると考えられる。そこで、金ナノ粒子間に分子固有の電子構造を反映させることができる、非共有結合的な保護剤の検討を行った。分子-金ナノ粒子界面での分極および分子の電子構造の不明瞭さを排除できる保護分子の条件としては、(1)共有結合基や静電相互作用として機能するBinding Groupを含まない、(2)電子活性な分子が考えられる。さらに、イオンを含まない電気的に中性な分子を用いることで、伝導電子と界面に存在する局在電子との不要な相互作用を避けることもできる。このような条件を満たす保護分子として、

電子的に活性で安定な平面構造を持つポルフィリン誘導体5,10,15,20-tetrakis(2-thienyl)porphyrine (2T) を用いて、金ナノ粒子の合成を行ったところ、非共有結合的に保護された新規ナノ粒子2T-AuNP (5)の合成に成功した。図3に5のTEM像と小角X線散乱による粒径分布解析の結果を示す。図3(d)より、目的とする金ナノ粒子の粒径が約4 nmで生成していることがわかった。非共有結合的に保護された金ナノ粒子の安定化は、これが初めての例である。

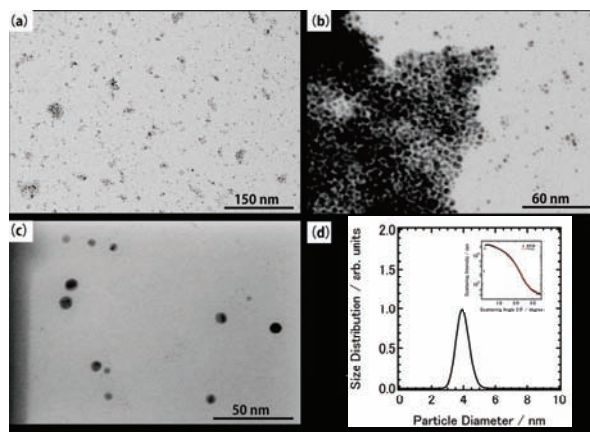


図3. (a)-(c)5のTEM像および、(d)SAXSによる、5の粒径分布解析結果

2T-AuNP集積体の電子輸送特性は温度に依存する、主に二つの挙動が現れた(図4)。室温から50 Kまでは隣接粒子間を熱励起した電子がホッピングするアレニウス型の挙動を示した(図4(a))。50 K以下の温度領域では、アレニウス型の伝導挙動からの逸脱が観察された。この挙動はホッピング伝導電子とホッピングサイト(金ナノ粒子)間にクーロン相互作用の存在を考慮したES-VRH型伝導で説明できる。この挙動が現れたことで、金ナノ粒子帯電効果が示唆された。これを裏付けるように10 K以下の温度でES-VRH型から逸脱が観測された。図5に示したように、4.2 KのI-V特性より単一電子トンネリングの存在が確認できた。

量子伝導が発現した領域は10 K以下と低く、かつES-VRH型伝導と共存しているものの、粒子間の量子伝導電子と分子の電子構造との相関を初めて明らかにし、新たな量子伝導材料開発に関する基礎的な知見を得ることができた。

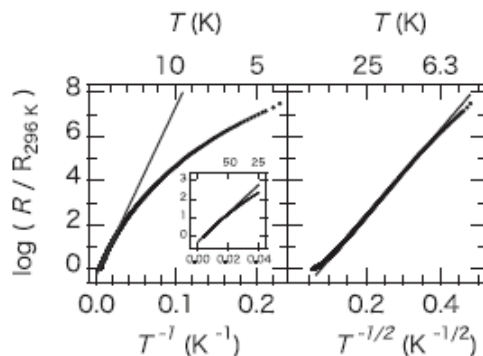


図4. 5の電気伝導度の温度変化に対する(a)アレニウスプロットおよび(b)ES-VRH型プロット

(c) 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、図5(a)及び(b)) 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。錯体**6**は、合成時にアセトン付加体 [[Cu(bpetha)₂(acetone)₂]·2PF₆]_n (**6** ⇌ 2acetone) として単離される。**6** ⇌ 2acetone において、アセトン分子はCu(II)イオンのアキシカル位に弱く配位しており、図5(c)のような構造転移を伴いながら可逆的な吸脱着が可能であった。そこで、アセトン分子以外の他の分子に対する吸着特性を調べたところ、(1)ルイス塩基性分子を選択的に取り込み、また(2)ルイス塩基性分子の中でもシアノ基やカルボニル基を有するルイス塩基性分子を優先的に取り込むことが明らかとなった。(1)の結果から、錯体**6**はPF₆⁻アニオンによって塞がれたCu(II)のアキシカル位を潜在的ルイス酸点として利用し、ルイス塩基性分子を高選択的に取り込むことが明らかとなった。

次に(2)の原因を調べるために、ルイス塩基性ゲスト分子としてシアノ基を有するアセトニトリル(MeCN)、カルボニル基を有するアセトン(acetone)及び2-ブタノン(2-butanone)、エーテル基を有するテトラヒドロフラン(THF)を選別し、その付加体の各Cu(II)-ゲスト分子距離に対する相対エネルギー値を計算した(図6)。その結果、MeCN、acetone、2-butanoneの場合、一般的なアキシカル結合距離(～2.5Å)においても相対エネルギー値はほぼ0、すなわち付加体構造が安定であったのに対し、THFの場合はアキシカル結合距離が2.7Å以下になると付加体構造が不安定化した。THF分子の配位原子(酸素:O)周りは、MeCN、acetone、2-butanoneの配位原子周りと比較して立体的に混み合っており、この立体的混み合いが錯体**6**のアキシカル位への配位を妨げていることが示唆された。

そこで、錯体**6**の(2)の性質を利用して2-butanoneとアルコール(メタノール(MeOH)、エタノール(EtOH))の混合物から2-butanoneを選択的に分離する実験を行った。2-butanone(分子サイズ: 5.0×5.9×7.6 Å³)は、MeOH(分子サイズ: 4.1×4.3×4.8 Å³)やEtOH(分子サイズ: 4.3×4.6×6.2 Å³)よりも大きな分子であるが、錯体**6**の配位原子周りの立体的かさ高さを認識できる特性を利用することによ

って2-butanoneのみを高選択的に分離できることが明らかとなった。このような“大きな分子を選択的に分離できる”特性は、従来のゼオライトのような固い細孔を有する多孔体が示す分子ふるい効果では実現不可能であり、柔軟性構造を利用した画期的な機能であるといえる。

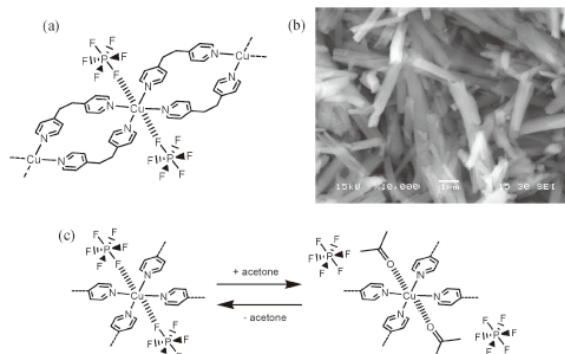


図5. 錯体**6**の(a)1次元構造、(b)SEM写真、及び(c)acetone分子の可逆的吸脱着

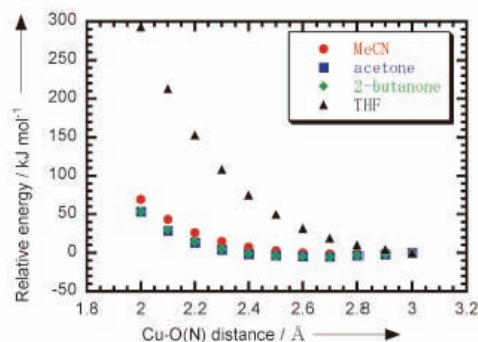


図6. 錯体**6**の各種ルイス塩基性ゲスト分子付加体のCu(II)-ゲスト分子距離に対する相対エネルギー値

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からの設計から、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. Hosokai, N. Mitsuo, S. Noro, T. Nakamura, S. Kera, K. Sakamoto and N. Ueno: "Thickness-dependent electronic properties and molecular orientation of diradical metal complex thin films grown on SiO₂", *Chemical Physics Letters*, 487: 67-70 (2010)
- 2) Y. Tatewaki, S. Okada, R. Itagaki, T. Nakamura and A. Fujimori: "Study of molecular arrangement of organized molecular films of charge-transfer complexes containing 1,3-dithiole-2-thione-4,5-dithiolate by in-plane and out-of-plane X-ray diffractions", *Journal of colloid and interface science*, 343: 281-290 (2010)
- 3) S. Noro, T. Akutagawa and T. Nakamura: "Selective separation of larger molecules from a Lewis-base mixture by flexible one-dimensional Cu(II) coordination polymer with shape-recognizing space", *Chemical communications*, 46: 3134-3136 (2010)
- 4) Q. Ye, T. Akutagawa, S. Noro, T. Nakamura and R. Xiong, Ren-Gen: "Polymorphism and Magnetism of (*cis*-Cyclohexane-1,4-diammonium)(Dicyclohexano[18]crown-6)₂[Ni(dmit)₂]₂ Salts", *Crystal Growth & Design*, 10: 4856-4860 (2010)
- 5) S. Noro, T. Akutagawa and T. Nakamura: "Orthogonality of Jahn-Teller axes in a dinuclear Cu(II) complex bridged by one F⁻ anion", *Chemical Communications*, 46(25): 4619-4621 (2010)
- 6) S. Jayanty, T. Akutagawa and T. Nakamura: "Highly polar 7,7-bis(N,N-dimethylpiperazinium)-8,8-dicyanoquinodimethane in [Ni(dmit)₂]⁻ salt: crystal structure and magnetic properties", *CrystEngComm*, 12(12): 4087-4090 (2010)
- 7) T. Akutagawa, D. Sato, Q. Ye, S. Noro and T. Nakamura: "Ferromagnetic coupling of [Ni(dmit)₂]⁻ anions in (m-fluoroanilinium)(dicyclohexano[18]crown-6)[Ni(dmit)₂]", *Dalton transactions*, 39: 2191-2193 (2010)
- 8) K. Sakai, S. Takahashi, A. Kobayashi, T. Akutagawa, T. Nakamura, M. Dosen, M. Kato and U. Nagashima: "Excited state intramolecular proton transfer (ESIPT) in six-coordinated zinc(ii)-quinoxaline complexes with ligand hydrogen bonds: their fluorescent properties sensitive to axial positions", *Dalton transactions*, 39: 1989-1995 (2010)
- 9) Y. Noda, S. Noro, T. Akutagawa and T. Nakamura: "Electron transport in a gold nanoparticle assembly structure stabilized by a physisorbed porphyrin derivative", *Physical Review B: Condensed Matter and Materials Physics*, 82: 205420/1-205420/6 (2010)
- 10) T. Akutagawa, H. Koshinaka, Q. Ye, S. Noro, J. Kawamata, H. Yamaki and T. Nakamura: "Conformational polymorphism of *o*-aminoanilinium(dibenzo[18]crown-6) supramolecules in [Ni(dmit)₂]⁻ salt", *Chemistry, an Asian journal*, 5: 520-529 (2010)
- 11) Q. Ye, T. Akutagawa, T. Endo, S. Noro, T. Nakamura and Ren-Gen Xiong: "Asymmetrical [Ni(dmit)₂]⁻ arrangements induced by (1*R*,2*R*)-cyclohexanedi ammonium-crown ether supramolecules", *Inorganic chemistry*, 49: 8591-8600 (2010)
- 12) T. Akutagawa, D. Sato, Q. Ye, T. Endo, S. Noro, S. Takeda and T. Nakamura: "[18]Crown-6 rotator in spin-ladder compound of m-aminoanilinium ([18]crown-6)[Ni(dmit)₂]", *Dalton Transactions*, 39: 8219-8227 (2010)
- 13) G. Saito, T. Ikegami, Y. Yoshida, O. O. Drozdova, K. Nishimura, S. Horiuchi, H. Yamochi, A. Otsuka, T. Hiramatsu, M. Maesato, T. Nakamura, T. Akutagawa and T. Yumoto: "Ionicity Phase Diagram of Trifluoromethyl-TCNQ (CF₃TCNQ) Charge-Transfer Solids", *Bulletin of Chemical Society of Japan*, 83: 1462-1480 (2010).
- 14) H. Miyasaka, Y. Asai, N. Motokawa, K. Kubo, M. Yamashita: "Magnetic/Conducting Bifunctionality due to π/σ -Conjugated Functional Moieties in a Stacked Ferromagnetic Chain", *Inorganic Chemistry*, 49: 9116-9118 (2010).
- 15) K. Kubo, H. Miyasaka, M. Yamashita: "Hybridized Molecular Materials Based on [Mn^{III}]₂ Single Molecule Magnets with Molecular Conductors [Ni(dmit)₂]ⁿ⁻", *Physica B*, 405, S313-S316 (2010).
- 16) K. Kubo, H. Miyasaka, M. Yamashita: "Crystal Structure and Electrical Conductivity of α' ''-[BEDT-TTF]₁₂[Cu₂Br₄]₃ (BEDT-TTF = Bis(ethylenedithio) tetrathiafulvalene)", *Physica B*, 405, S308-S312 (2010).
- 17) A. Kobayashi, M. Dosen, M. Chang, K. Nakajima, S. Noro, and M. Kato: "Synthesis of Metal-Hydrazone Complexes and Vapochromic Behavior of Their Hydrogen-Bonded Proton-Transfer Assemblies", *Journal of the American Chemical Society*, 132: 15286-15298 (2010).
- 18) A. Kobayashi, H. Hara, S. Noro, and M. Kato: "Multi-functional sensing ability of a new Pt/Zn-based luminescent coordination polymer", *Dalton Transactions*, 39: 3400-3406 (2010).

4.7 講演

招待講演

i) 国際学会

- 1) T. Nakamura, T. Endo, S. Noro and T. Akutagawa "Supramolecular Functional Systems in Electrically Active Molecular Assemblies" Pacificchem 2010, Honolulu, Hawaii, (2010-12).

一般講演

i) 国内学会

- 1) 福原克郎*、野呂真一郎、久保和也、中村貴義: 「1次元銅金属錯体の固溶体合成とガス・蒸気吸着特性」、日

本化学会第91回春季年会、横浜（2011-03）

- 2) 厳寅男*、久保和也、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義：「3-フルオロアダマンチルアンモニウム-クラウンエーテル誘導体超分子カチオン/[Ni(dmit)₂]塩の構造と物性」、日本化学会第91春季年会（2011）、横浜（2011-03）
- 3) 劉尊奇*、李 玲、久保和也、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義：「Pyridazine/クラウンエーテル超分子カチオンを導入した[Ni(dmit)₂]塩の結晶構造と物性」、日本化学会第91春季年会、横浜（2011-03）
- 4) 福原克郎*、野呂真一郎、中村貴義：「異種アニオンを含む一次元銅金属錯体の固溶体の合成とガス吸着特性」、日本化学会北海道支部2011年冬季研究発表会、札幌（2011-02）
- 5) 厳寅男*、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義：「Fluoroadamantylammonium/Dibenzo[18]crown-6超分子を導入した[Ni(dmit)₂]塩の構造と物性」、日本化学会北海道支部2011年冬季研究発表会、札幌（2011-02）
- 6) 劉尊奇*、李 玲、久保和也、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義：「ピリダジン/[18]クラウン-6誘導体超分子カチオンを含む[Ni(dmit)₂]塩の結晶構造」、日本化学会北海道支部2011年冬季研究発表会、札幌（2011-01）
- 7) H. Ye*, S. Noro, T. Akutagawa and T. Nakamura: “Design of supramolecular rotators in solid state toward novel functional systems”, 日中合同シンポジウム、京都（2010-10）
- 8) 劉尊奇*、李 玲、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義：「Crystal Structures and Dielectric Response of (Pyridazine)/[18]crown-6 derivatives/[Ni(dmit)₂] Salts」、日中合同シンポジウム、京都（2010-10）
- 9) 福原克郎*、野呂真一郎、中村貴義：「1,3-ビス（4-ピリジル）プロパン配位子から形成される高分子型銅金属錯体の合成とガス吸着特性」、第60回錯体化学討論会、大阪（2010-09）
- 10) 厳寅男*、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義：「[Ni(dmit)₂]単結晶中に構築したフルオロアダマンチルアンモニウム超分子ローターの回転と誘電性・磁性」、錯体化学討論会2010、大阪（2010-09）
- 11) 劉尊奇*、李 玲、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義：「Pyridazine/[18]crown-6誘導体超分子カチオンを含む[Ni(dmit)₂]塩の結晶構造と誘電性」、第60回錯体化学討論会、大阪（2010-09）
- 12) 福原克郎*、野呂真一郎、中村貴義：「1,3-ビス（4-ピリジル）プロパン配位子から構築される高分子型銅金属錯体の結晶構造と吸着特性」、日本化学会北海道支部2010年夏季研究発表会、函館（2010-07）
- 13) 厳寅男*、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義：「フルオロアダマンチルアンモニウム誘導体を利用した超分子ローター型強誘電体の作製」、日本化学会北海道支部2010年夏季研究発表会、函館（2010-07）
- 14) 厳寅男*、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義：「Crystal

Structure and Physical Property of [Ni(dmit)₂] Salts Containing Fluoroadamantylammonium - Crown Ethers Supramolecules」、International Conference on Science and Technology of Synthetic Metals 2010 (ICSM)、京都（2010-07）

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) 中村貴義、基盤研究A、固相人工分子モーターの構築（2007～2010年度）
- 2) 野呂真一郎、若手研究B、柔軟性金属錯体を吸着剤として用いた二酸化炭素の完全分離への挑戦（2010～2011年度）
- 3) 久保和也、若手研究B、非平面型金属錯体を用いた分子性導体の開発（2010～2011年度）

f. その他

- 1) 野呂真一郎（NEDO グリーンサステイナブルケミカルプロセス基盤技術開発）：「気体原料の高効率利用技術の開発」、2010年度

4.11 受賞

- 1) 野呂真一郎：北海道支部奨励賞、「構造制御された有機-無機複合体の合成と機能化」2011年2月

4.12 社会教育活動

g. 北大での担当授業（対象、講義名、担当者、期間）

- 1) 環境科学院、環境物質科学基礎論Ⅲ、中村貴義、2010年4月1日～2010年9月30日
- 2) 環境科学院、電子材料科学特論、中村貴義、2010年4月1日～2010年9月30日

i. ポスドク・客員研究員など

・ポスドク（1名）

- 1) Ye Hen Gyun（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）

- 1) 厳 寅男

・修士論文

- 1) 厳 寅男：フルオロアダマンチルアンモニウムを導入した[Ni(dmit)₂]塩の構造と物性

・博士後期課程（2名）

- 1) 遠藤 格

- 2) 野田祐樹

・博士論文

- 1) 遠藤 格：マルチフェロイクス実現へ向けたクラウン包接型イオン／強磁性シュウ酸架橋金属錯体塩の合成と物性評価

- 2) 野田祐樹：π共役分子で物理吸着保護した金ナノ粒子集積体の構築と量子伝導

コヒーレントX線光学研究分野

教 授 西野吉則（阪大院、理博、2010.4～）

助 教 Marcus Newton (University College London,
Ph.D., 2011.1～)

1. 研究目標

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

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

2. 研究成果

(a) フェムト秒シングルショット極紫外線ホログラフィー
自由電子レーザー（FEL: Free-Electron Laser）のパルス幅はサブピコ秒と極めて短く、シングルショットデータから試料像が再構成できれば、サブピコ秒の露光時間をもつコヒーレントイメージングが実現する。これにより、超高速で起こる材料科学現象も、ぶれることなく撮影できる。構造ダイナミクス測定に向けた第一歩として、SCSS試験加速器から発生する極紫外線自由電子レーザー（EUV-FEL）を用いた、シングルショットでのコヒーレントイメージング実験を行った。

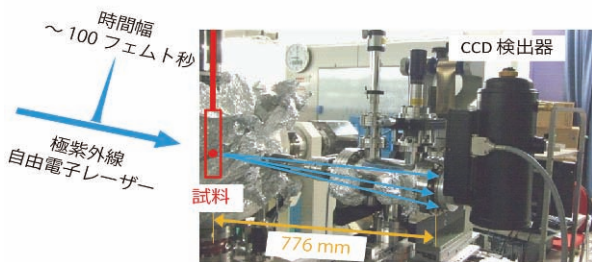


図1. SCSS試験加速器からの極紫外線自由電子レーザーを用いたフェムト秒シングルショットホログラフィー実験

実験では、HERALDO (holography with extended reference by autocorrelation linear differential operation) と呼ばれる近年開発された新しいホログラフィーの手法を用いた。HERALDOは、古くから知られるフーリエ変換ホログラフィーを改良した手法である。フーリエ変換ホログラフィーでは、試料の隣に参照光源となるピンホールを置くが、このピンホールの大きさが再構成像の空間分解能を決める。高い空間分解能を得るためにピンホール径を小さくすると、参照光の強度が弱くなり、結果としてホログラムデータの統計精度が悪化するという問題があった。HERALDOではこの問題を克服し、広がった参照光源を用いても、測定データの統計精度を高く保ったまま、高い空間分解能の実現が可能である。この特徴は、FELのパルスエネルギーに最適化したシングルショット計測を行う上でも重要となる。

図1にSCSS試験加速器を用いたHERALDO測定の様子を示す。波長61 nm、パルス幅～100 fs、パルスエネルギー> 10 μ JのFELを試料に照射し、試料の下流776 mmに置かれたCCD検出器でホログラムを計測した。

CDD検出器の全画素の読み出しには数秒を要する。これは、極紫外線自由電子レーザーの最大繰り返し周波数である60 Hzに比べ格段に遅い。読み出しの遅いCCD検出器でシングルショット計測を実現するため、我々はビームラインのパルスセクターを利用した。パルスセクターは、FELの繰り返し周期と同期して、任意数のパルスを切り出せる。本計測では、パルスセクターの切り出しパルス数を1に設定し、外部トリガー端子にCCDの露光開始信号を入力した。

試料として用いたテストパターンの大きさや形状は、シングルショット計測に適したホログラムデータが得られるよう設計した。試料は100 nm厚のSi₃N₄に金を800 nm蒸着したのち、集束イオンビーム（FIB）を用いて貫通パターンを加工した。パターンは、試料となるSPRING-8のロゴマークと、縦および横の参照スリットで構成されている。

図2左にシングルショット計測したフェムト秒HERALDOデータを示す。ホログラフィーでは位相情報が実験データに含まれているため、位相回復の必要がなく、単純な数学的操作で試料像を再構成できる。図2右に、ホログラムから再構成した試料のフェムト秒スナップショット

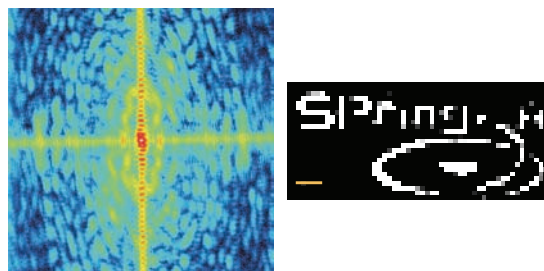


図2. シングルショットホログラム（左）と、ホログラムから再構成した試料のフェムト秒スナップショット（右）

トを示す。再構成像では、試料である SPring-8 のロゴマークが明瞭に観察できる。この実験により、自由電子レーザーを用いたサブピコ秒露光でのコヒーレントイメージングが実現した。この研究は、SCSS試験加速器を用いた初めてのコヒーレントイメージングの成功例である

(b) ポンプ・プローブ極紫外線ホログラフィーによるフェムト秒動画撮影

シングルショット計測した極紫外線ホログラフィーの再構成の成功を受けて、フェムト秒レーザーによって引き起こされる超高速ダイナミクスのイメージングを試みた。EUV-FEL に同期した波長 800 nm のフェムト秒チタンサファイアレーザー (FEL 同期フェムト秒レーザー) をシリコン試料上に集光させた際に起こるアブレーション現象を、時間分解測定した。実験では、ポンプ・プローブ技術を用いた反射型のインライン・ホログラフィーを採用した。

ポンプ光である FEL 同期フェムト秒レーザー (パルスエネルギー: 0.40 mJ/pulse) は、試料の真上から鉛直下向きに、試料位置が焦点になるようレンズで集光して照射した。集光径は半値全幅で 100 μm 程であった。なお、シリコンがシングルショットでアブレーションを起こす条件は、SPring-8 BL19LXU の第二実験ハッチにあるフェムト秒チタンサファイアレーザーを用いて事前に確かめた。

ホログラムデータは、FEL 同期フェムト秒レーザー照射後の異なる遅延時間に、極紫外線自由電子レーザーをシングルパルス試料に照射して測定した。FEL 同期フェムト秒レーザー照射により試料は損傷を受けるため、ホログラム測定後に試料を並進させ、損傷のないシリコン表面に対して順次測定を行った。この結果、アブレーションに起因する同心円状の構造を持ったホログラムパターンを、サブピコ秒の時間分解能で観測することに成功した。

(c) X線回折顕微法による生体試料の観察

X線回折顕微法は、コヒーレントX線回折データから、計算機上で回折波の位相を取り戻し、試料像を再構成する斬新な構造解析手法である。我々はこれまで、生物学や材料科学など多岐の分野に亘る試料に関してX線回折顕微法測定を行い、二次元および三次元での構造解析を行ってきた。生物学応用研究では、特に、ヒト染色体、細胞核、精子などにおけるヒトゲノムDNAの折り畳み構造の理解に貢献することを目指した研究を進めている。

我々は、ヒト精子に対してX線回折顕微法測定をおこなった。精子は、細胞核からなる頭部、運動のためのATPを合成するミトコンドリアを含む中片部、べん毛の尾部から構成される。頭部の大きさは数 μm で、べん毛の長さは数十 μm である。頭部の精子核にはヒトゲノムDNAが非常にコンパクトに収納されている。その構造を調べることは、生物学的に非常に有意義である。

ヒト精子を単離し、 Si_3N_4 薄膜に固定し、大型放射光施設 SPring-8 の BL29XUL でコヒーレントX線を照射した。測定

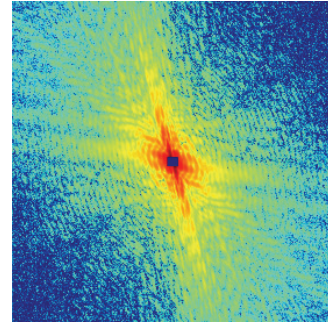


図3. BL29XUにおいて測定した、ヒト精子の頭部からの高精度コヒーレントX線回折パターン

は、まず、電子密度が最も高い頭部に対して行った。試料の240 mm 上流に、直径20 μm のピンホールを設置して、精子の頭部に5 keVのコヒーレントX線を照射した。7つの試料に対して測定を行い、いずれも精度の高いコヒーレントX線回折パターンを測定することに成功した。図3に測定した高精度コヒーレントX線回折パターンの例を示す。また、1つの試料に対しては、長く伸びる尾部のイメージングを行うために、試料を10 μm 刻みで動かし、異なる5つの照射領域でのコヒーレントX線回折パターンを取得した。照射領域がオーバーラップしているため、試料像の再構成にタイコグラフィーが適用可能である。

(d) コヒーレントX線を用いた走査透過X線顕微鏡システムの構築

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

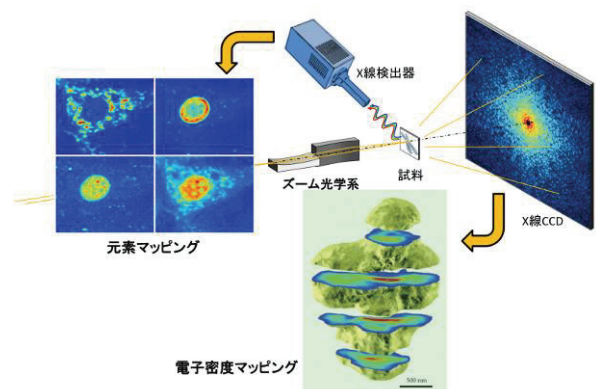


図4. コヒーレントX線を用いた走査透過X線顕微鏡システムの概念図

本年度は、開発する集光光学系を最大限活用できる、コヒーレントX線イメージングシステムの新しい像再生アルゴリズムの開発を行った。具体的には、焦点位置にある、空間的に広がった試料の一つのコヒーレント回折データから試料像を再構成する、これまで世界的に検討されていない新たな試みについての検討を進めた。従来のX線回折顕微法では、コヒーレント回折データからの試料像再構成において、試料が有限の大きさをもつ必要があった。このため、試料は照射ビームサイズよりも小さな孤立した粒子であることが求められるが、応用上の観点から興味ある試料は、必ずしも孤立した粒子ばかりではない。細胞などに対しては、空間的に広がった試料の興味ある部位を、物理的に切り取ることなく、そのまま観察できることが望ましい。理想的な集光ビームで試料を照明した場合に対して像回復アルゴリズムのデモンストレーションを行い、一つのコヒーレント回折データから試料像を再構成することに成功した。これにより、空間的に広がった試料であっても、試料位置を走査することなくイメージングできる、新しいX線イメージング手法に道筋を付けた。

3. 今後の研究の展望

自由電子レーザーを用いた研究では、これまで、X線自由電子レーザーの試験器として作られたSCSS試験加速器から発生する極紫外線自由電子レーザーを用いてきた。本年度末には、本機であるX線自由電子レーザーが完成する。来年度以降、X線自由電子レーザーの本格利用に向けた研究を推進する予定である。オングストロームの波長を持つX線を用いることにより、空間・時間ともに原子分解能を持つ未踏のイメージングが行えると期待している。

放射光を用いた研究では、生物学や医療を主なターゲットに研究を推し進める。アダプティブ光学系を用いた透過X線顕微鏡システムの構築と平行して、既存の測定装置を用いた生体試料の測定を行う予定である。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) R. Xu, S. Salha, K. S. Raines, H. Jiang, C. Chen, Y. Takahashi, Y. Kohmura, Y. Nishino, C. Song, T. Ishikawa and J. Miao: “Coherent diffraction microscopy at SPring-8: instrumentation, data acquisition and data analysis”, J. Synchrotron Rad. 18(2): 293-298 (2011)
- 2) T. Ohtsuki, A. Chainani, R. Eguchi, M. Matsunami, Y. Takata, M. Taguchi, Y. Nishino, K. Tamasaku, M. Yabashi, T. Ishikawa, M. Oura, Y. Senba, H. Ohashi and S. Shin: “Role of Ti 3d Carriers in Mediating the Ferromagnetism of Co:TiO₂ Anatase Thin Films”, Phys. Rev. Lett. 106(4): 047602 (2011)
- 3) T. Kimura, H. Mimura, S. Handa, H. Yumoto, H. Yokoyama, S. Imai, S. Matsuyama, Y. Sano, K. Tamasaku, Y. Kohmura, Y. Nishino, M. Yabashi, T. Ishikawa and K. Yamauchi: “Wavefield characterization of nearly diffraction-limited focused hard x-ray beam with size less than 10 nm”, Rev. Sci. Instrum. 81(12): 123704 (2010)
- 4) Y. Takahashi, Y. Nishino, R. Tsutsumi, N. Zettsu, E. Matsubara, K. Yamauchi and T. Ishikawa: “High-resolution projection image reconstruction of thick objects by hard x-ray diffraction microscopy”, Phys. Rev. B 82(21): 214102 (2010)
- 5) S. Matsuyama, T. Wakioka, N. Kidani, T. Kimura, H. Mimura, Y. Sano, Y. Nishino, M. Yabashi, K. Tamasaku, T. Ishikawa and K. Yamauchi: “One-dimensional Wolter optics with a sub-50 nm spatial resolution”, Opt. Lett. 35(21): 3583-3585 (2010)
- 6) Y. Nishino, Y. Tanaka, M. Okada, M. Okaya, Y. Uozaki, K. Nozaki, M. Yabashi, M. Nagasono, K. Tono, H. Kimura, H. Ohashi, S. Matsui, T. Ishikawa and E. Matsubara: “Femtosecond Snapshot Holography with Extended Reference Using Extreme Ultraviolet Free-Electron Laser”, Appl. Phys. Express 3(10): 102701 (2010)
- 7) S. Matsuyama, M. Shimura, M. Fujii, K. Maeshima, H. Yumoto, H. Mimura, Y. Sano, M. Yabashi, Y. Nishino, K. Tamasaku, Y. Ishizaka, T. Ishikawa and K. Yamauchi: “Elemental mapping of frozen-hydrated cells with cryo-scanning X-ray fluorescence microscopy”, X-ray Spectrom. 39(4): 260-266 (2010)
- 8) M. Okawa, M. Matsunami, K. Ishizaka, R. Eguchi, M. Taguchi, A. Chainani, Y. Takata, M. Yabashi, K. Tamasaku, Y. Nishino, T. Ishikawa, K. Kuga, N. Horie, S. Nakatsuji and S. Shin: “Strong Valence Fluctuation in the Quantum Critical Heavy Fermion Superconductor β -YbAlB₄: A Hard X-Ray Photoemission Study”, Phys. Rev. Lett. 104(24): 247201 (2010)
- 9) B. A. Preeti, A. Chainani, M. Taguchi, T. Takeuchi, R.

- Eguchi, M. Matsunami, K. Ishizaka, Y. Takata, M. Oura, Y. Senba, H. Ohashi, Y. Nishino, M. Yabashi, K. Tamasaku, T. Ishikawa, K. Takenaka, H. Takagi and S. Shin: “Evidence for a Correlated Insulator to Antiferromagnetic Metal Transition in CrN”, *Phys. Rev. Lett.* 104(23): 236404 (2010)
- 10) Y. Takahashi, N. Zettsu, Y. Nishino, R. Tsutsumi, E. Matsubara, T. Ishikawa and K. Yamauchi: “Three-Dimensional Electron Density Mapping of Shape-Controlled Nanoparticle by Focused Hard X-ray Diffraction Microscopy”, *Nano Lett.* 10(5): 1922-1926 (2010)
- 11) Y. Takahashi, H. Kubo, R. Tsutsumi, S. Sakaki, N. Zettsu, Y. Nishino, T. Ishikawa and K. Yamauchi: “Two-dimensional measurement of focused hard X-ray beam profile using coherent X-ray diffraction of isolated nanoparticle”, *Nucl. Instrum. Methods. A* 616(2-3): 266-269 (2010)
- 12) S. Handa, T. Kimura, H. Mimura, H. Yumoto, S. Matsuyama, Y. Sano, K. Tamasaku, Y. Nishino, M. Yabashi, T. Ishikawa and K. Yamauchi: “Extended knife-edge method for characterizing sub-10-nm X-ray beams”, *Nucl. Instrum. Methods. A* 616(2-3): 246-250 (2010)

4.2 総説・解説・評論等

- 1) 西野吉則、田中義人、松原英一郎: 「FELを用いた材料科学現象の超高速イメージングに向けて」、*放射光* 23(5): 322-324 (2010)

4.3 国際会議議事録等に掲載された論文

- 1) S. Matsuyama, T. Wakioka, H. Mimura, T. Kimura, N. Kidani, Y. Sano, K. Yamauchi, Y. Nishino, K. Tamasaku, M. Yabashi and T. Ishikawa: “Development of a one-dimensional Wolter mirror for an advanced Kirkpatrick-Baez mirror”, *Proc. SPIE* 7802: 780202 (2010)
- 2) S. Matsuyama, M. Fujii, T. Wakioka, H. Mimura, S. Handa, T. Kimura, Y. Nishino, K. Tamasaku, M. Yabashi, T. Ishikawa and K. Yamauchi: “Development of Hard X-ray Imaging Optics with Two Pairs of Elliptical and Hyperbolic Mirrors”, *AIP Conf. Proc.* 1234: 267-270 (2010)

4.4 講演

a. 招待講演

i) 学会

- 1) 西野吉則: 「コヒーレントイメージングの現状と展望」、第24回日本放射光学会年会 放射光科学合同シンポジウム、つくば国際会議場 (2011-01)
- 2) Y. Nishino: “Phase-Contrast Coherent Imaging”, The 17th International Microscopy Congress (IMC17), Rio de Janeiro, Brazil (2010-09)

- 3) 西野吉則: 「放射光や自由電子レーザーを用いたコヒーレント光イメージング」、日本顕微鏡学会第66回学術講演会、名古屋国際会議場 (2010-05)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 西野吉則: 「コヒーレントX線が拓く構造可視化の新技术」、第3回超高速時間分解光計測研究会、ホテルクラウンパレス浜松 (2011-03)
- 2) Y. Nishino: “Coherent Imaging using Synchrotron Radiation and FEL”, *Biology with FELs: Toward the Molecular Movie*, Lawrence Berkeley National Laboratory, California, USA (2011-01)
- 3) 西野吉則: 「XFELを用いた生体分子の溶液散乱」、「XFELを用いた生体分子の溶液散乱」ミニワークショップ、SPRING-8 (2011-01)
- 4) 西野吉則: 「コヒーレントX線が拓く構造可視化の新技术」、北海道大学電子科学研究所 平成22年度 研究交流会、北海道大学 電子科学研究所 (2011-01)
- 5) Y. Nishino: “Coherent Imaging using Synchrotron Radiation and FEL”, *The 9th International Symposium on Ultrafast Intense Laser Science*, Hyatt Regency Maui Resort & Spa, Hawaii, USA (2010-12)
- 6) 西野吉則: 「放射光や自由電子レーザーを用いたコヒーレントイメージング」、原子分解能ホログラフィー研究会ワークショップ 原子分解能ホログラフィーによる中距離局所構造のサイエンス、東北大学金属材料研究所 (2010-11)
- 7) Y. Nishino: “Coherent Imaging with X-rays & EUV-FEL”, *The 3rd Workshop on FEL Science: “Emerging X-ray Applications in Biological Systems-II”*, Daini Meisutei, Kitayuzawa, Hokkaido, Japan (2010-10)
- 8) 西野吉則: 「細胞の中の構造を観る」、KEK 物構研サマーチャレンジ、高エネルギー加速器研究機構 (2010-08)
- 9) Y. Nishino: “Development of Coherent Imaging Methods Using Synchrotron Radiation and FEL”, *9th Annual Meeting of Structural - Biological Whole Cell Project of Thermus thermophilus HB8*, SPRING-8, Japan (2010-08)
- 10) 西野吉則: 「コヒーレントイメージングの現状と展望」、日本放射光学会第二回若手研究会「顕微分光のフロンティア」、東京大学本郷キャンパス (2010-08)
- 11) Y. Nishino: “Nanostructure Analysis utilizing Coherent X-rays”, *RIES-CIS Symposium*, RIES, Hokkaido University, Japan (2010-07)
- 12) 西野吉則: 「コヒーレントX線を用いたイメージング」、5研究所アライアンス「医療材料・デバイス」グループキックオフミーティング、北海道大学 電子科学研究所 (2010-07)
- 13) Y. Nishino: “X-ray Diffraction Microscopy for Cellular Organelles”, *Coherent Diffractive Imaging (CDI) for Biological Applications at NSLS-II*, Brookhaven National Laboratory, Upton, New York, USA (2010-05)

iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 西野吉則:「コヒーレントX線が拓く構造可視化の手法」、東京大学物性研究所セミナー、東京大学物性研究所 (2010-12)
- 2) 西野吉則:「コヒーレントX線が拓く新たなナノイメージング」、東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター セミナー、東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター (2010-11)

- 2) 工学部、ナノ工学基礎、西野吉則、2010年10月1日～2011年3月31日
- 3) 工学部、科学技術英語演習、西野吉則、2010年10月1日～2011年3月31日
- 4) 工学部、生体工学概論、西野吉則、2011年1月26日

4.5 共同研究

a. 受託研究

- 1) 西野吉則(文部科学省、科学技術試験研究委託事業 X線自由電子レーザー利用推進研究課題):「物質のフェムト秒物理・化学現象解析のためのX線散乱計測技術」(代表:松原英一郎)、2009～2010年度
- 2) 西野吉則(科学技術振興機構、戦略的創造研究推進事業 CREST):「コヒーレントX線による走査透過X線顕微鏡システムの構築と分析科学への応用」(代表:山内和人)、2010～2016年度

4.6 予算獲得状況

a. 科学研究費補助金

- 1) 西野吉則、基盤研究 B、コヒーレントX線回折を用いたクライオバイオイメーキング、2010～2012年度

4.7 社会教育活動

a. 国内外の学会の役職

- 1) 西野吉則:原子分解能ホログラフィー研究会ワークショップ「原子分解能ホログラフィーによる中距離局所構造のサイエンス」委員 (2010年11月12日～2010年11月13日)
- 2) 西野吉則:Program Committee of International Workshop on Phase Retrieval and Coherent Scattering (2010年6月8日～2010年6月11日)

b. 新聞・テレビ等の報道

・新聞

- 1) 西野吉則:科学新聞 2010年10月22日「試料像をフェムト秒で捕捉ーホログラフィー手法確立ー」
- 2) 西野吉則:日刊工業新聞 2010年10月11日「ホログラムで試料撮影ー北大など 極紫外線レーザーでー」
- 3) 西野吉則:日経産業新聞 2010年4月21日「物質の電子密度分布をナノメートル分解能で可視化できるX線顕微鏡を開発ー世界最高分解能のX線CTで金属ナノ中空粒子の内部を覗くー」

・雑誌

- 1) 西野吉則:RikaTan(理科の探検)文一総合出版 2010年12月25日「ジェットコースターで瞬間を切り取る!？」

c. 北大での担当授業科目

- 1) 情報科学研究科、バイオナノ工学特論、西野吉則、2010年10月1日～2011年3月31日

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

山形整功、川口敦吉

修士課程

吉田 徹

1. 研究目標

ナノテク・ナノサイエンス分野で得られる新しい効果や機能を既存のSiベースのITインフラ構造と接続し相乗効果を引出しつつナノとマクロを結合することは重要である。従来の「ボトムアップとトップダウンの統合」が両者の“いいとこ取り”で、長所を各々活かしてナノ構造を作るというもの（積集合）であったのとは異なり、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）観点から取り組んでいる。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、その意義は極めて大きい。

ムーアの法則に代表されるロードマップに沿った展開を示しつつも遂に限界が指摘され始めたSiベースのLSIは、その構造が外在的ルールで決まるトップダウン型のシステムの代表格であるが、素子サイズ上、動作パワー上、及び製造設備投資上の限界がいわれて久しい。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SEMBル系を含め、広くボトムアップ系に期待が集まっている。しかしながら、両系は未だに専ら独立で、トップダウン、ボトムアップ両系の間に橋渡しすることは極めて重要にも係らず、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

トップダウン系とボトムアップ系を繋ぐための環境として、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)の研究開発を進めている。その新展開として、人が内部に入れるタイプを進化させ、従来型のクリーンルームでは対応の難しい、内部で多量の塵や粉塵の発生する工程にも適用可能なシステムを開発した。特に、歯科技工作業に伴う粉塵の発生があっても、作業環境の塵埃数が通常のオフィス環境の数分の一に抑えることのできる（従って清浄度の高い）デンタルセーフティシステム(DSS)の開発に成功した。歯科技工師の潜在的塵肺罹患リスクを解消できると期待される。

また、CUSPを作製プラットフォームとして、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中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している。この新型の素子では高効率の光電変換が期待できる。

有機半導体の塗布によるものに加え、レーザビーム照射によりバンドギャップを制御するタイプの素子作製の原理確認に成功した。

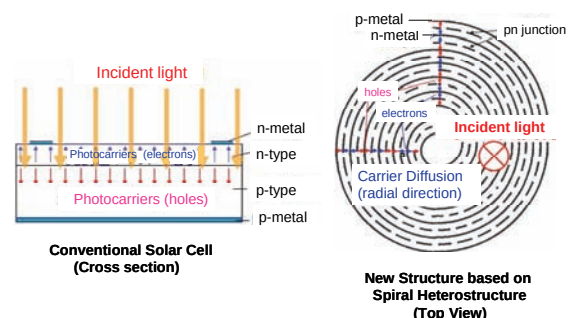


図1. 従来型(左)と渦巻き型光電変換素子構造(右)

(a2) Ni/NiO/Niナノスケールトンネル接合の作製とその評価

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/絶縁体(=酸化物、分子等)/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とは強磁性薄膜のエッジとエッジの間に絶縁体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 $1 \sim 20 \text{ nm}$ 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ー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/NiO/Ni ナノスケールトンネル接合の作製、並びに、その電気的評価を行った。

図2に Ni/NiO/Ni ナノスケールトンネル接合の作製方法を示す。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 (帝人デュボン社製 TEONEX Q65、幅 2 mm 、膜厚 $25 \mu\text{m}$) 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 $\sim 10^{-3} \text{ Pa}$ 、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 $0.1, 0.3, 1.0 \mu\text{m}$ 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、プラズマ酸化法により、Ni 薄膜のエッジを酸化させ、Ni/NiO/Ni ナノスケールトンネル接合を作製した。

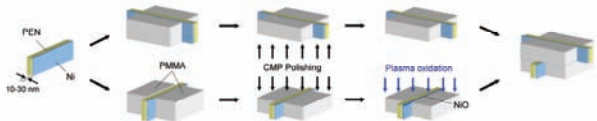


図2. Ni/NiO/Ni ナノスケールトンネル接合の作製方法

図3に Ni/NiO/Ni ナノスケールトンネル接合の電流電圧特性を示す。Ni 薄膜の膜厚は 24 nm としたので、接合面積は $24 \times 24 \text{ nm}^2$ となる。実丸が実験結果で、破線、実線、点線が計算結果である。図3(a)の計算では、トンネルバリア膜厚を 0.63 nm に固定して、トンネルバリア高さを $0.6, 0.8, 1.0 \text{ eV}$ に変化させた。図3(b)の計算では、トンネルバリアを 0.8 eV に固定して、トンネルバリア膜厚を $0.42, 0.63, 0.84 \text{ nm}$ に変化させた。図3より、トンネルバリア膜厚が 0.63 nm 、及び、トンネルバリア高さが 0.8 eV のとき、実験結果と計算結果が良い一致を示すことがわかる。トンネルバリア膜厚に関しては、NiO の結晶構造は NaCl 型で、格子定数が 0.42 nm であるため、図3(a)の挿入図に示すように2原子層の NiO が形成されていることがいえる。また、トンネルバリア高さに関しては、良く知られているように、NiO (bulk) のバンドギャップは $4.0 \sim 4.3 \text{ eV}$ で、フェルミレベルは Valence バンドの上端から 1 eV 高い位置にあるため、バリア高さは $3.0 \sim 3.3 \text{ eV}$ と見積もられる。しかしながら、他グループの報告によれば、Ni/NiO/Ni トンネル接合では、バリア高さが $0.18 \sim 0.4 \text{ eV}$ となり、見積もられた値 $3.0 \sim 3.3 \text{ eV}$ より小さい。我々の実験結果でもバリア高さは 0.8 eV となり、見積もられた値より小さくなることがわかった。今後

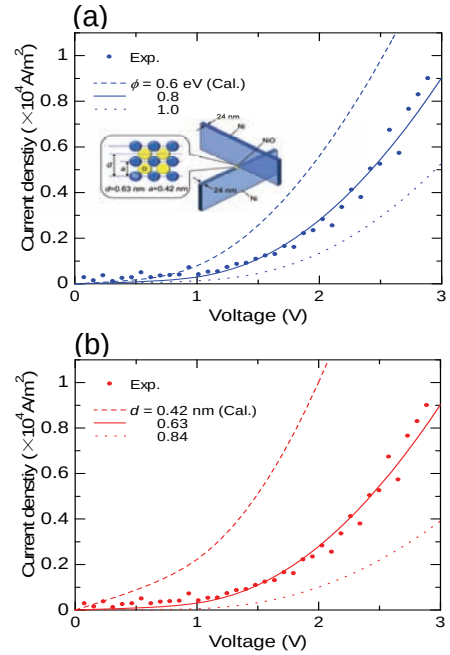


図3. Ni/NiO/Ni ナノスケールトンネル接合 (接合面積 $S = 24 \times 24 \text{ nm}^2$) における電流電圧特性

は、このナノスケール接合作製方法を用いて、新規なスイッチングデバイスや磁気抵抗効果素子の創製を目指す。

(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前年度得た。図4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。

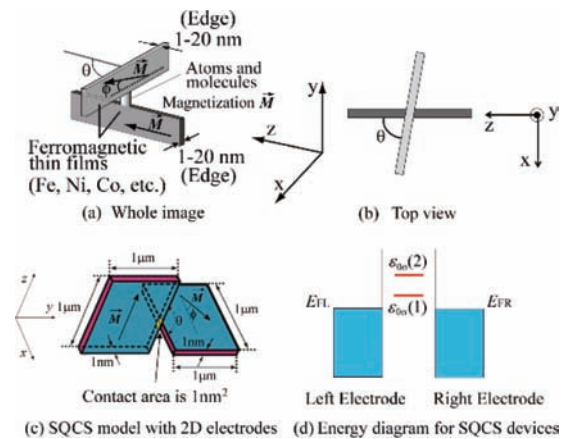


図4. 計算に用いたスピン量子十字構造素子のモデルとエネルギー図

今年度は、スピン流と熱流の結合を考慮する交差相関の観点から、このデバイスが、接合部でポイントコンタクトを有する場合に、電極が平行磁化を持つ場合と反平行磁化を持つ場合において、発生する熱起電力を計算した。図5に、

電極が平行磁化を持つ場合と反平行磁化を持つ場合での熱電輸送特性を示す。

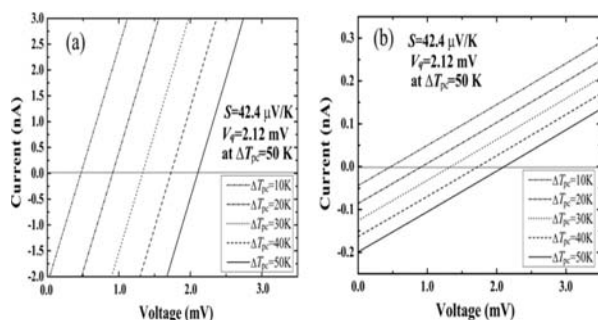


図5. (a) 電極が並行磁化を持つ場合
(b) 反平行磁化を持つ場合

その結果、電極の磁化が平行か反平行かによらず、発生する熱起電力のゼーバック係数は $42.4 \mu\text{V/K}$ であり、取り出せる電流、すなわち電力が電極の磁化が平行のときに大きくなり、反平行のときに少なくなることが判明した。このデバイスの幾何学的構造の要因と相互作用して、ポイントコンタクト部位で、熱が溜まり、その結果、大きな電圧(8.13mV)が発生することがわかった。Ni電極を用いたスピン量子十字構造デバイスを実際に作成して、測定を行った結果を図6に示す。図6からわかるように、巨大な熱起電力(7.7mV)が発生している。理論結果と実験結果の一致は極めて良く、これは、ナノデバイスの回路において、このスピン量子十字構造デバイスが、スピン依存バッテリーとして働くことを示しており、熱の発生に手を焼いている現行のCPUの発熱を電力に利用する有望なデバイスになることを示した。

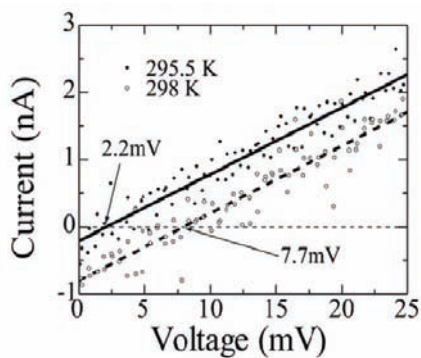


図6. スピン量子十字素子の熱電輸送特性の実験結果

3. 今後の研究の展望

トップダウン系とボトムアップ系の接続・統合を Generating function として、デバイススペース並びにプラットフォームベースのアプローチを進めていく。デバイススペースのアプローチで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 40 nm 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。

プラットフォームベースのアプローチでは、CUSP 技術を展開し、社会へのフィードバックへとつなげていく予定である。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性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, N. Basheer, T. Abe, K. Kondo, A. Hirata, M. Ishimaru, Y. Hirotsu and A. Ishibashi: 「Surface and Interface Structures and Magnetic Properties of Ni and $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ Thin Films on Polyethylene Naphthalate Organic Substrates」, *J. Vac. Soc. Jpn.*, 54(3): 203-206(2011)
- 2) H. Kaiju, K. Kondo and A. Ishibashi: “Current-Voltage Characteristics in Nanoscale Tunnel Junctions Utilizing Thin-Film Edges”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 49:105203-1-105203-5(2010)
- 3) H. Kaiju, N. Basheer, K. Kondo and A. Ishibashi: “Surface Roughness and Magnetic Properties of Ni and $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ Thin Films on Polyethylene Naphthalate Organic Substrates”, *IEEE Transactions on Magnetics*, 46: 1356-1359(2010)
- 4) H. Kaiju, K. Kondo, N. Basheer, N. Kawaguchi, S. White, A. Hirata, M. Ishimaru, Y. Hirotsu and A. Ishibashi: “Fabrication and Current-Voltage Characteristics of Ni Spin Quantum Cross Devices with P3HT: PCBM Organic Materials”, *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.*, 1252: J02081-J02086(2010)
- 5) 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)
- 6) K. Kondo: “Theoretical Modeling of Spin Quantum Cross Structure Devices with Noncollinear Ferromagnetic Electrodes”, *J. Appl. Phys.*, 107: 09C709-1-09C709-3(2010)
- 7) K. Kondo, H. Kaiju and A. Ishibashi: “Large Thermoelectric Voltage in Point Contacts of Ni Ferromagnetic Metals”, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, 1314: LL08-36-1-LL08-36-6 (2011)

4.6 特許

・国内特許

- 1) 石橋晃、海住英生、ユーリ ラコビッチ、ジョン ドネガン: 「量子装置の製造方法」 特願2011-052327
- 2) 石橋晃: 「Highly Clean Environmental Device」 PCT/JP2010/066483
- 3) 石橋晃: 「高清浄環境システム」 特願2010-165309
- 4) 石橋晃: 「磁気記録装置」 特願2010-140109
- 5) 石橋晃: 「太陽電池及び光電変換素子」 PCT/JP2010/057846
- 6) 石橋晃、海住英生: 「プローブ及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」 PCT/JP2010/061290
- 7) 石橋晃: 「クリーンユニット、クリーンユニットの運転方法および連結クリーンユニット」 特許第4451492号

・国際特許

- 1) A. Ishibashi 「Clean unit, method of operating clean unit, and connected clean unit」 US2010/0105309A1
- 2) H. Kaiju, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, A. Ono and A. Ishibashi: “Nickel Thin Film, Method for Formation of the Nickel Thin Film, Ferromagnetic Nano-Junction Device, Method for Producing the Ferromagnetic Nano-Junction Device, Thin Metallic Wire, and Method for Formation of the Thin Metallic Wire”, US-2010-0266868
- 3) 石橋晃: 「クリーンユニット並びにシステム」 200580030115.4 (登録済み:中国)
- 4) 石橋晃: 「Solar Cell and Photoelectric Conversion Element」 201110056845.9 (中国)

4.7 講演

b. 一般講演

i) 学会

- 1) 川口敦吉*、近藤憲治、海住英生、石橋晃: 「有機バルクヘテロ接合太陽電池の開放端電圧の起源に関する研究」、第58回応用物理学関係連合講演会、神奈川工科大学、神奈川県厚木市 (2011-03)
- 2) K. Kondo*, H. Kaiju and A. Ishibashi: “Large Thermoelectric Voltage in Point Contacts of Ni Ferromagnetic Metals”, 2010 MRS Fall Meeting, Boston, MA, USA (2010-11~2010-12)
- 3) 海住英生*、バシール スブラ、阿部太郎、近藤憲治、平田秋彦、石丸学、弘津禎彦、石橋晃: 「ポリエチレンナフタレート (PEN) 有機膜上の Ni 及び $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ 薄膜における表面・界面構造と磁気特性」、真空・表面科学合同講演会 (第30回表面科学学術講演会 第51回真空に関する連合講演会)、大阪大学 (2010-11)
- 4) 近藤憲治*: 「ノンコリニアな電極を有するスピン量子十字構造素子の輸送特性の理論」、日本物理学会2010年秋季大会、大阪府立大学中百舌鳥キャンパス (2010-09)
- 5) 近藤憲治*、海住英生、石橋晃: 「有機分子を挟んだナノスケール接合素子の理論とそのデバイスの作製」、日本物理学会2010年秋季大会、大阪府立大学中百舌鳥キャンパス (2010-09)
- 6) 海住英生*、近藤憲治、バシール スブラ、川口敦吉、ホワイト スザン、平田秋彦、石丸学、弘津禎彦、石橋晃: 「Ni/P3HT:PCBM/Ni ナノスケール接合の作製とその評価」、日本物理学会秋季大会、大阪府立大学 (2010-09)
- 7) 海住英生*、バシール スブラ、近藤憲治、石橋晃: 「ポリエチレンナフタレート有機膜上の Ni 及び $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ 薄膜の表面状態と電気磁気特性」、日本物理学会秋季大会、大阪府立大学 (2010-09)
- 8) H. Kaiju*, K. Kondo and A. Ishibashi: “Large Thermoelectric Voltage in Ni Nanoscale Junctions”, The 29th In-

ternational Conference on Thermoelectrics, Shanghai, China (2010-05~2010-06)

- 9) H. Kaiju*, K. Kondo, N. Basheer, N. Kawaguchi, S. White, A. Hirata, M. Ishimaru, Y. Hirotsu and A. Ishibashi: "Fabrication and current-voltage characteristics of Ni spin quantum cross devices with P3HT/PCBM organic materials", 2010 Material Research Society Spring Meeting, San Francisco, USA(2010-04)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 石橋晃*:「青色半導体レーザの劣化過程から新型フルスペクトル光電変換素子へ」、文部科学省「物質・デバイス共同研究拠点」複雑系数理とその応用に関するシンポジウム、札幌 (2010-11)
- 2) 石橋晃*:「量子十字素子及び高効率光電変換素子の創製と極限高純環境応用」、「次世代エレクトロニクス」プロジェクト(G1)グループ分科会、北海道北広島市 (2010-10)
- 3) A. Ishibashi*: "Spiral heterostructure-based new devices and a clean unit system platform (CUSP) for future applications", RIES-CIS Symposium, Sapporo (2010-07)
- 4) 石橋晃*:「高純環境 CUSP の展開」、2010 バイオテクノロジー国際会議・国際バイオ EXPO、東京ビッグサイト (2010-07)
- 5) 吉田徹*、大橋美久、石橋晃:「高純環境 CUSP の展開」、2010 バイオテクノロジー国際会議・国際バイオ EXPO、東京ビッグサイト (2010-06~2010-07))

4.9 共同研究

a. 海外機関との共同研究

- 1) Prof. John Donegan (Trinity Collage Dublin) and Prof. A. Ishibashi: "Research of Quantum Dots in Quantum Cross Structure", 2010年度、量子ドットをサンドイッチした量子十字素子の研究を行う。

c. 民間との共同研究

- 1) 石橋晃 (太陽誘電株式会社):「平成22年度 物質・デバイス領域共同研究 新型光電変換素子の研究」、2010年度、新型太陽電池の研究を行う。

f. その他

- 1) 石橋晃 (北海道):「平成22年度 道産研究シーズ活用型地域産業活性化事業」、2010年度、クリーンシステムプラットフォームの高性能化を行う。

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) 石橋晃 (日本学術振興会 科学研究補助金基盤研究(B)):「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研究」、2010-2012年度
- 2) 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

- 3) 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

c. 大型プロジェクト・受託研究

- 1) 石橋晃 (道産研究シーズ活用型地域産業活性化事業):「歯科技工分野、歯科治療、化学、バイオ分野等におけるクリーンシステムの開発」、2010年度
- 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
- 3) 海住英生 (財団法人 村田学術振興財団):「スピン量子ナノ接合における巨大熱電効果に関する研究」、2009~2010年度

4.12 社会教育活動

a. 公的機関の委員

- 1) 石橋晃:産業技術総合研究所客員研究員 (2010年4月1日~2011年3月31日)

b. 国内外の学会の役職

- 1) 近藤憲治:応用物理学会北海道支部リフレッシュ理科教室委員 (2010年10月30日)

c. 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)

d. その他

- 1) 石橋晃:2010北大電子研公開 (2010年6月5日~現在)
- 2) 近藤憲治:Journal of Physics D のレフェリー (2010年7月1日~2010年7月31日)
- 3) 石橋晃:2010リフレッシュ理科教室~サイエンスオリエンテーリング2010 in 札幌 (2010年10月30日~現在)
- 4) 近藤憲治:Nanotechnology のレフェリー (2010年12月1日~2010年12月31日)
- 5) 近藤憲治:Nanotechnology のレフェリー (2011年2月10日~2011年2月28日)

e. 新聞・テレビ等の報道

・新聞

- 1) シーズテック株式会社、石橋晃:日刊工業新聞2011年3月4日「環境保全・ケミカル対応 L-CUSP 実現のための要素技術の同定と原理確認」
- 2) シーズテック株式会社、石橋晃:北海道新聞2011年3月4日「維持管理が容易なクリーンルームの開発」

・雑誌

- 1) 石橋晃:2010 Neeth Network Internship, 2010年4月13日「クリーン環境を新たな世界文化に~Clean space for the rest of us」

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、現代物理学 (分担)、石橋晃、2010年4月1日~2010年9月30日
- 2) 全学共通、現代物理学入門 (分担)、石橋晃、2010年4

月1日～2010年9月30日

- 3) 全学共通、ナノテクノロジー概論（分担）、石橋晃、
2010年4月1日～2010年9月30日
- 4) 薬学部、基礎物理学Ⅰ、石橋晃、2010年4月1日～2010
年9月30日
- 5) 理学院、半導体物理学Ⅰ、石橋晃、2010年10月1日～
2011年3月31日
- 6) 理学部、物理外国語文献講読Ⅰ、石橋晃、2010年10
月1日～2011年3月31日
- 7) 全学共通、基礎物理学Ⅱ（電磁気学と熱力学）、近藤
憲治、2010年10月1日～2011年3月31日
- 8) 理学部、外国語文献講読、近藤憲治、2010年10月1日
～2011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（1名）

- 1) 川口敦吉

・博士論文

- 1) 川口敦吉：A Study of the Origin of the Open Circuit
Voltage in Organic Bulk Heterojunction Solar Cells（有
機バルクヘテロ接合太陽電池における開放端電圧の
起源に関する研究）

光波制御材料研究分野

教 授 西井準治（都立院、工博、2009.7～）
准教授 西山宏昭（阪大院、工博、2010.4～）
助 教 眞山博幸（北大院、工博、2009.7～）
博士研究員 熊 良明（中国科学院、工博、2010.5～）
学部生 岡本晋太郎（理学部化学科）
柴田千尋（理学部化学科）

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を駆使することで、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、表面プラズモン増強場を利用した細胞や生体分子の高感度蛍光イメージングや、集光機能を有する回折素子を用いた高感度化学センシングに取り組むとともに、作製プロセスの高度化のため、非線形リソグラフィによる立体的表面加工技術の開発を行う。さらに、日常的にも有用である様々な濡れ広がり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) 表面プラズモン増強蛍光イメージングの研究

サブ波長金属回折格子を用いた表面プラズモン共鳴(GC-SPR)による増強蛍光法の高感度化に取り組んだ。同法は、微弱な蛍光を検出に効果的であり、二光束干渉露光法とプラズマエッチング法を用いてシリカガラス基板上に作製した周期構造を用いる。この表面にRFスパッタ法でAgやSiO₂層を成膜することで、SiO₂-Ag界面に表面プラズモンを効率良く励起することが出来る。これまでに平板基板を用いた場合に比べ数十倍も明るい蛍光像の取得に成功しており、また、格子パターンを1次元から2次元周期に変更することで、結合効率が改善され、増強度をさらに数倍高めることも出来る。図1に、成膜後の1次元回折格子基板（周期400 nm、溝深さ35 nm、溝幅160 nm）を示す。

CPSモデルによれば、蛍光エネルギーは、金属表面近傍では、金属へと移動（消光）する。一方、SPRは一般に、金属表面からの距離が小さいほど、その増強度は高い。そこで、我々はAg層上に配置したSiO₂薄膜の厚みを制御することで、両者が蛍光増強に与える影響を検討した。図2は、SiO₂膜厚とCy5からの蛍光強度の関係を示している。励起光としてHe-Neレーザ光を用い、回折格子表面をアミノ化した後にPEG鎖をリンカーとしたビオチンで修飾し、その表面に蛍光色素Cy5で標識化されたストレプトアビジンを固定した。SiO₂膜厚が20 nm付近のとき、蛍光強度は最大となり、より膜厚が大きな場合では、強度は減少した。こ

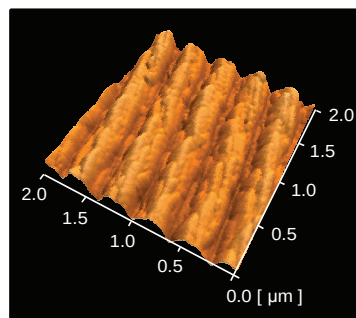


図1. 表面プラズモン増強蛍光検出のためのAgコート回折格子の原子間力顕微鏡像。

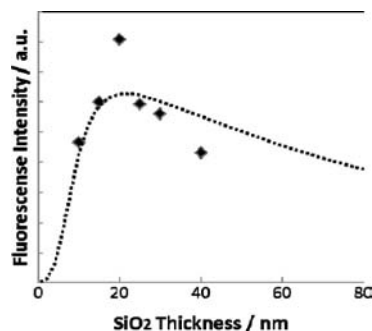


図2. Agコート回折格子表面のSiO₂膜厚と蛍光強度の関係。

のような傾向は、時間領域差分法で求めたプラズモン増強電場分布とCPSモデルに基づいた蛍光消光の距離依存性から説明できることを明らかにした。また、測定は生理食塩水で行ったが、Ag表面の劣化は観察されず、SiO₂膜厚は蛍光消光の抑制だけでなく、Ag膜の酸化防止にも有用であった。

(b) マイクロ流体素子での光センシングに関する研究

マイクロ流体デバイス内への光集積センサー導入は、新規のバイオ計測や材料合成手法の開発において重要である。微小流体試料の密度や濃度の変動は、光学的に屈折率の変化として反映されるため、屈折率センシングは反応過程での対象分子の挙動を検出する有力な手法である。表面プラズモン共鳴は、高感度な屈折率センシングに有用であるが、AuやAgなどの貴重な金属が必要であり、プラズモン励起波長にも大きな制限がある。そこで、我々は、回折素子による屈折率センシングを検討し、オフ軸集光型回折格子(DFRs)を内装したマイクロ流体デバイスの設計と作製に取り組んだ。流路底部にプローブ光と集光軸を20度傾けた回折レンズを配置し、その直上の液体試料の屈折率変化を集光部に配置したフォトディテクターで検出する。回折光のパワー変化の検出により計測を行う本手法では、検出部への集光は重要であり、入射軸と集光軸をずらすことで高いS/N比の獲得が期待できる。希釈水溶液での屈折率センシングを想定すると、回折光パワー変化率が最大となる格子溝深さ1 μm程度のとき、10⁻⁷オーダの屈折率変化を検出し得ることを理論的に示した。設計条件にもよるが、

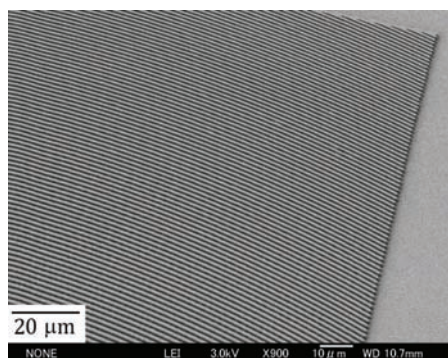


図3. SiO₂ オフアキシス集光型回折格子の電子顕微鏡像。

DFRは格子周期が1.4~4.7μmと徐々に変化する曲線群で構成された。図3に、SiO₂基板に作製したDFRの一例を示す。レーザリソグラフィおよびNLDプラズマエッチングにより作製した。He-Neレーザ光（波長633nm）をDFRsに結合したところ、設計焦点位置にプローブ光が集光することを確認した。

(c) 非線形リソグラフィに関する研究

半導体加工プロセスは、様々なマイクロ/ナノデバイスの開発における基盤技術として多用されている。しかしながら、その適用は平板ウェハーに限定されており、デバイス構造もまた平面的である。一方で、MEMSを始めとするマイクロシステムへの微細構造導入はその高機能化に重要である。そこで、我々は、半導体加工プロセスへの非線形光学効果の導入により、適用範囲を立体基板上への拡大することに取り組み、これまでに、SiやSiO₂基ガラスにおいて立体的表面を有するフォトニック素子の作製に成功してきた。リソグラフィ光源として高繰り返しフェムト秒ファイバーレーザ（波長780nm、パルス幅127fs、繰返し周波数100MHz）を用いている。プロセスの汎用性を高めるためには、作動距離の大きな低開口数レンズによるレーザ集光が必要であるが、このとき、レジスト露光部では特異的なチャネル伝搬が生じることを明らかにした。図4は、低速でレー

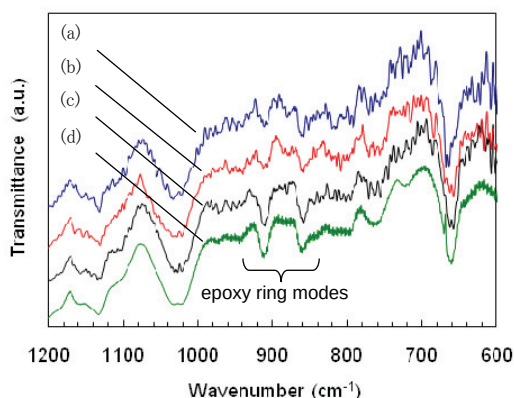


図4. フェムト秒レーザ露光によるレジストのFT-IRスペクトル変化。(a)レーザ露光およびベイク処理後、(b)レーザ露光のみ、(c)露光前、(d)紫外露光サンプル。

ザ露光を行う前後のレジストのFT-IRスペクトルである。露光後の加熱処理を施していないにもかかわらず、フェムト秒レーザ露光部では、epoxy ring modesの減衰が観察され、架橋反応が進行していることが確認された。また、ラマン回折実験から、露光部ではこの架橋反応に伴い 10^{-2} 近い屈折率増加が生じていた。この架橋反応は、二光子過程での触媒酸の生成だけでなく、高繰り返し周波数による熱蓄積効果が加わり、レジストに加熱処理と類似の作用を露光のみで与えたために生じたと考えられる。後続レーザ光は、露光部で生じた導波モードにおよそ87%の効率で結合し、シングルモード伝搬光のピーク強度はレジストの重合閾値を超えることが分かった。実際、レジスト中の焦点位置から下流部においては、横方向での光閉じ込めとチャネル状のパターン形成が観察され、理論との整合が見られた。また、高開口数レンズで集光時には、チャネル状パターンは形成されず、理論から予測された導波モードへの低い結合効率によって説明することが出来た。

(d) 濡れのダイナミクスに関する研究

濡れの現象では平衡状態における接触角がよく議論されるが、平衡状態に至るまでの濡れ広がり挙動（濡れのキネティクス）に関してはまだよく研究されていない部分が数多く残されている。以下に紹介する凸凹した表面での濡れ広がり問題がこれにあたる。この問題は小腸などの消化器官での消化液の濡れ広がりや栄養吸収を理解する上で本質的な問題であり、濡れ広がり制御は今後の健康食品（ダイエットや栄養吸収促進のための補助食品）の開発にも密接に関係している。

このような問題意識の下で寒天ゲルの濡れ広がり研究を行なった。具体的には、平滑な表面をもつ試料と2.2次元の表面ラフネスをもつ試料を作製し、水滴を滴下したときの接触角の時間変化を調べた。図5に実験結果を示す。

これまでの濡れ広がり研究から平滑な表面における濡れ広がり挙動はTannerの法則（接触角の時間変化 $\theta(t)$

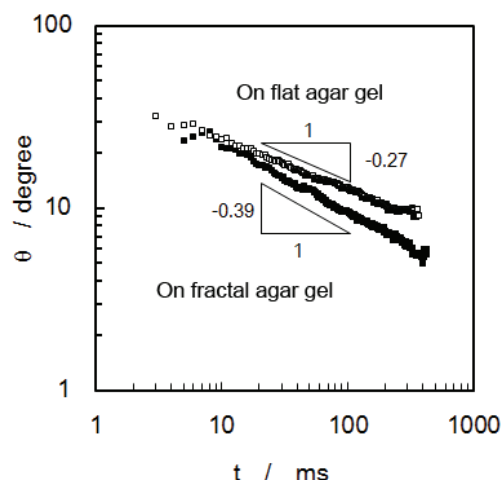


図5. 寒天ゲルにおける水滴の接触角の時間変化（濡れ広がり挙動）。平滑な表面（上）と2.2次元の凹凸がある表面（下）。

$\propto t^{-0.3}$) でユニヴァーサルに記述されることが実験的にも確認されており、図5中の平滑な表面における挙動もこれとよく一致することが分かった。しかし、凸凹のある表面では $\theta(t) \sim t^{-0.4}$ という極めて速い接触角の減衰が観測され、表面凹凸が濡れを促進することが分かった。この実験結果を理解するために、濡れ広がり際の液滴内の粘性抵抗によるエネルギー散逸を考察した結果、次のような関係式を得た。

$$\theta(t) \propto t^{-3(1+\varepsilon)/(10+\varepsilon)}$$

ここで ε は表面凹凸に依存する変数である。

3. 今後の研究の展望

回折格子型表面プラズモン共鳴場の応用に関する研究では、蛍光イメージングだけでなく、高感度センシング応用へと展開する。オフアクシス集光型回折素子では、検出感度の測定を行い、理論との比較検証を行う。また、より高機能な素子やプロセス開発のため、各種真空プロセスやインプリント法などの微細加工プロセスの高度化に取り組む。

濡れのダイナミクスの研究においては、アルコール、アミノ酸、糖類などを含む水溶液の濡れ広がりを実験的に調べるとともに、表面凹凸による濡れのダイナミクスを制御する手法を見出す。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) K. Kintaka, K. Shimizu, K. Yuki, S. Kawanami, J. Inoue, S. Ura and J. Nishii: "Potential characterization of free-space-wave drop demultiplexer using cavity-resonator-integrated grating input/output coupler", *Opt. Express*, 24 (18): 25108-25115 (2010).
- 2) T. Tamura, M. Umetani, K. Yamada, Y. Tanaka, K. Kintaka, H. Kasa and J. Nishii: "Fabrication of Antireflective Subwavelength Structure on Spherical Glass Surface Using Imprinting Process", *Appl. Phys. Express*, 3: 112501-1-112501-3 (2010).
- 3) N. Kitamura, K. Fukumi, J. Nakamura, T. Hidaka, T. Ikeda, H. Hashima and J. Nishii: "Low- T_g bismuth phosphate glasses for glass-imprinting and fabrication of 2D sub-wavelength structures", *J. Nonlinear Opt. Phys. Mat.* 19 (4): 753-759 (2010).
- 4) I. Yamada, K. Fukumi, J. Nishii and M. Saito: "Infrared wire-grid polarizer with Y_2O_3 ceramic substrate", *Opt. Lett.*, 35 (18): 3111-3113 (2010).
- 5) N. Kitamura, K. Ohno, K. Fukumi, J. Nakamura, T. Hidaka, T. Ikeda, H. Hashima, H. Kozuka and J. Nishii: "Effect of Additives on Absorption Edge Energy in Bismuth Phosphate Glass", *Jpn. J. Appl. Phys.*, 49: 082601-1-082601-4 (2010).
- 6) K. Kadono, Y. Hattori, T. Wakasugi, H. Shimoi and J. Nishii: "Ion-exchange-induced Phase Separation and Preparation of Porous Glass", *Chem. Lett.*, 39 (8): 824-825 (2010).
- 7) K. Kintaka, Y. Kita, K. Shimizu, H. Matsuoka, S. Ura and J. Nishii: "Cavity-resonator-integrated grating input/output coupler for high-efficiency vertical coupling with a small aperture", *Opt. Lett.*, 35 (12): 1989-1991 (2010).
- 8) H. Hori, K. Tawa, K. Kintaka, J. Nishii and Y. Tatsu: "Surface profile dependence of the photon coupling efficiency and enhanced fluorescence in the grating-coupled surface plasmon resonance", *J. Appl. Phys.*, 107: 114702-1-114702-6 (2010).
- 9) M. Saito, T. Yamamoto, I. Yamada, J. Nishii, S. Mihara and M. Urano: "Nickel Plating on Silicon for Fabricating an Infrared Wire-Grid Polarizer", *Jpn. J. Appl. Phys.*, 49: 052503-1-052503-5 (2010).
- 10) K. Kintaka, J. Nishii, S. Murata, and S. Ura: "Eight-Channel WDM Intraboard Optical Interconnect Device by Integration of Add/Drop Multiplexers in Thin-Film Waveguide", *J. Lightwave Technol.*, 28 (9): 1398-1403 (2010).
- 11) M. Mizoshiri, Y. Hirata, J. Nishii and H. Nishiyama: "Large refractive index changes of a chemically amplified photoresists in femtosecond laser nonlinear lithography", *Opt. Express*, 19: 7673-7679 (2011).
- 12) H. Nishiyama, Y. Sagawa, N. Furukawa, S. Okamoto, Y. Hirata and J. Nishii: "Off-axis diffractive focusing reflectors for refractive index sensing in microfluidic devices", 50: 06GL02-1-4 (2011).
- 13) K. Uchida, N. Nishikawa, N. Izumi, S. Yamazoe, H. Mayama, Y. Kojima, S. Yokojima, S. Nakamura, K. Tsujii and M. Irie: "Photo-tunable Diarylethene Microcrystalline Surfaces to Show Lotus and Petal Effects upon Wetting", *Angew. Chem. Int. Ed.*, 49: 5942-5944 (2010).
- 14) Y. Nonomura, Y. Morita, T. Hikima, E. Seino, S. Chida and H. Mayama: "Spreading Behavior of Water Droplets on Fractal Agar Gel Surfaces", *Langmuir*, 26(20): 16150-16154 (2010).

4.2 総説・解説・評論等

- 1) 西山宏昭、平田好則: 「非線形リソグラフィによるガラスの立体的表面加工」、*NEW GLASS*, 25 (1): 11-15 (2010).

4.3 著書

- 1) H. Nishiyama and J. Nishii: "Photo-induced structural changes of doped SiO_2 glasses using ultraviolet laser pulses", *Laser Pulse Phenomena and Applications*, ed. by F. J. Duarte, In-Tech. Co. Ltd. (2010).

4.4 講演

a. 招請講演

- 1) N. Kitamura, K. Fukumi and J. Nishii: “Glass imprint process for optical device fabrication”, Photonics West, San Francisco, USA (2011-01).
- 2) T. Tamura, Y. Tanaka and J. Nishii: “Molded glass lens with anti-reflective structure”, International Conference on Optical Design and Fabrication, Yokohama, Japan (2010-04).
- 3) J. Nishii: “Glass-imprinting for Optical Device Fabrication”, 17th International Symposium on Non-Oxide and New Optical Glasses (XVII ISNOG), Ningbo, China (2010-06)
- 4) J. Nishii: “Glass-imprinting for Optical Device Fabrication”, The 3rd Asian Symposium on Nano Imprint Lithography, Tsukuba, Japan (2010-07).
- 5) 西井準治: インプリント法による光学素子形成技術、第71回応用物理学会学術講演会シンポジウム (サブ波長表面構造をもつ光学素の最前線)、長崎 (2010-09).
- 6) 眞山博幸: フラクタルの工学的応用への可能性、日本数学会2010年度秋季総合分科会、名古屋大学 (2010.9).

b. 一般講演

i) 学会

- 1) J. Nishii, K. Kintaka and K. Tawa: “Fabrication and integration of nano-structured optical devices for strong photons-molecules coupling fields”, Pacificchem Congress, Honolulu, Hawaii, USA (2010-12).
- 2) J. Nishii, K. Kintaka and K. Tawa: “Fluorescence Imaging by Two-Dimensional-Grating-Coupled Surface Plasmon Resonance”, The 27th Korea-Japan International Seminar on Ceramics, Incheon, Korea (2010-12).
- 3) J. Nishii, K. Kintaka and K. Tawa: “Plasmon Enhanced Fluorescence Microscopy using Silver Coated Grating”, The 3rd International Congress on Ceramics, Osaka, Japan (2010-11).
- 4) J. Nishii, H. Hashima and Y. Tanaka: “Glass Imprinting for Highly-functional Optical Devices”, The 3rd International Congress on Ceramics, Osaka, Japan (2010-11).
- 5) 柴田千尋、田和圭子、金高 健二、西井準治: 「回折格子結合型表面プラズモン共鳴場を利用した高感度蛍光検出」、平成22年度日本セラミックス協会東北北海道支部研究発表会、東北大 (2010-10)
- 6) 森田晋平、三ツ石 方也、宮下徳治、田和圭子、西井準治: 「高分子ナノ集積体を用いた微小共振器におけるCdSe ナノ 粒子の発光増強」、平成22年度科学系学会東北大会、岩手県 盛岡 (2010-09)
- 7) 森田晋平、三ツ石 方也、宮下徳治、田和圭子、西井準治: 「格子基板上に作製した高分子ナノ集積体によるCdSe ナノ粒子の発光制御」、第71回応用物理学会学術講演会、長崎 (2010-09)

- 8) J. Nishii: “Glass-imprinting for Optical Device Fabrication”, The 1st Japan-China-Korea joint seminar on MEMS/NEMS, Sapporo (2010-08)
- 9) S. Morita, M. Mitsuishi, K. Tawa and J. Nishii: “Emission Control of CdSe Nanoparticles Organized with Polymer Nanosheets Assembly”, Korea-Japan Joint Forum 2010, Kitakyushu (2010-08)
- 10) S. Morita, M. Mitsuishi, K. Tawa and J. Nishii: “Emission Control of CdSe Nanoparticles Organized with Polymer Nanosheets Assembly”, Korea-Japan Joint Forum 2010, Kitakyushu (2010-08)
- 11) S. Morita, M. Mitsuishi, T. Miyashita, K. Tawa and J. Nishii: “Enhanced emission from CdSe nanoparticle array organized in structurally well-defined polymer-nanosheet microcavity”, JSPS/NRF 3rd Joint Seminar for nanomaterials, Pusan, Korea (2010-06)
- 12) 森田晋平、三ツ石方也、宮下徳治、田和圭子、西井準治: 「高分子ナノシートを用いた微小共振器の発光特性」、第71回高分子学会年次大会、横浜 (2010-05)
- 13) 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).
- 14) 西山宏昭、佐川雄一、平田好則、西井準治: 「フェムト秒レーザーリソグラフィによる微小流路内へのオフアクシス・グレーティング集光器の形成」、2010年度精密工学会秋季大会学術講演会、名古屋大学 (2010-09).
- 15) 岡本晋太郎、西山宏昭、平田好則、西井準治: 「非線形レーザーリソグラフィによるSiO₂立体的表面構造形成」、平成22年度日本セラミックス協会東北北海道支部研究発表会、東北大学 (2010-10).
- 16) 西山宏昭、佐川雄一、平田好則、西井準治: 「SiO₂オフアクシス・グレーティング集光器による微小流体の屈折率測定」、第51回ガラスおよびフォトニクス材料討論会、東京大学 (2010-12).
- 17) 西山宏昭、溝尻瑞枝、平田好則、西井準治: 「フェムト秒レーザー直接重合による光閉じ込め効果の検討」、春季第58回応用物理学関係連合講演会、神奈川工科大学 (2011-03).
- 18) H. Nishiyama, Y. Sagawa, Y. Hirata and J. Nishii: “Off-axis diffractive focusing reflectors inside microchannels fabricated using femtosecond laser nonlinear lithography”, The 1st Japan-China-Korea joint seminar on MEMS/NEMS for Green & Life Innovation, Sapporo Convention Center (2010-08).
- 19) H. Nishiyama, Y. Sagawa, Y. Hirata, and J. Nishii: “Off-axis diffractive focusing reflectors inside microchannels fabricated using femtosecond laser nonlinear lithography”, 23rd International Microprocesses and Nanotechnology Conference, Rihga Royal Hotel Kokura (2010-11).

- 20) H. Nishiyama, Y. Hirata, and J. Nishii: “Three-dimensional SiO₂ surfaces fabricated using nonlinear lithography”, 3rd International Congress on Ceramics, Grand Cube Osaka (2010-11).
- 21) H. Nishiyama, M. Mizoshiri, Y. Hirata, and J. Nishii: “Three-dimensional SiO₂ surface structures fabricated using femtosecond laser lithography”, The 27th International Korea-Japan Seminar on Ceramics, Songdo Convensia, Incheon, Korea (2010-11).
- 22) 眞山博幸*, 野々村美宗: 「円柱状欠陥の濡れ」、日本物理学会第66回年次大会、新潟大学五十嵐キャンパス (2011-03).
- 23) 眞山博幸*, 情野恵莉、千田茂希、野々村美宗: 「フラクタル寒天ゲルにおける濡れのダイナミクス」、日本物理学会2010年秋季大会、大阪府立大学中百舌鳥キャンパス (2010-09).

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 西山宏昭、佐川雄一、平田好則、西井準治: 「非線形リソグラフィによる流路内へのSiO₂オフアクシス・グレーティング集光器の作製」、第27回センサ・マイクロマシンと応用システムシンポジウム、くにびきメッセ (2010-10).
- 2) H. Mayama: “Autonomous motion of an Al foil induced by a direct irradiation of a laser beam”, JST ICORP New Horizon on “Spatio-Temporal Order”: Current Development and Future Prospect, Kyoto University, Kyoto (2010-11).
- 3) H. Mayama and Y. Nonomura: “Wetting dynamics on fractal agar gels”, International Symposium on Engineering Neo-Biomimetics II -Soft Manomaterials and Soft Robotics-, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST), Tsukuba (2011-02)
- 4) H. Mayama: “Blooming theory of triacylglycerols”, International Symposium on Engineering Neo-Biomimetics II -Soft Manomaterials and Soft Robotics-, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST), Tsukuba (2011-02)
- 5) H. Mayama and Y. Nonomura: “Wetting on a cylindrical pillar defect”, International Symposium on Engineering Neo-Biomimetics II -Soft Manomaterials and Soft Robotics-, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST), Tsukuba (2011-02)

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
 - 2) 西山宏昭、若手研究(B)、フェムト秒レーザパルスの特異的なチャネル伝搬とそのリソグラフィへの応用、

2010～2011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
- 2) 西山宏昭、JST 研究成果最適展開支援プログラム A-step、非線形リソグラフィによる無反射ナノ構造を有するレンズモールドの開発、2010年度
- 3) 西山宏昭、財団法人 村田学術振興財団 第25回研究助成、フェムト秒レーザリソグラフィによる高屈折率材料での立体的表面ナノ構造の形成、2009～2010年度

c. 民間との共同研究

- 1) 西井準治、旭硝子(株)、インプリント法とコロナ帯電法を用いたナノ構造形成技術に関する研究、2010年度

細胞機能素子研究分野

教 授 上田哲男（北大院、薬博、1998.2～）
助 教 高木清二（名大院、学博、2003.9～）
博士研究員 黒田 茂（北大院、理博、2010.4～）
院 生 加渡大貴（M2）、永井秀和（M2）

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。

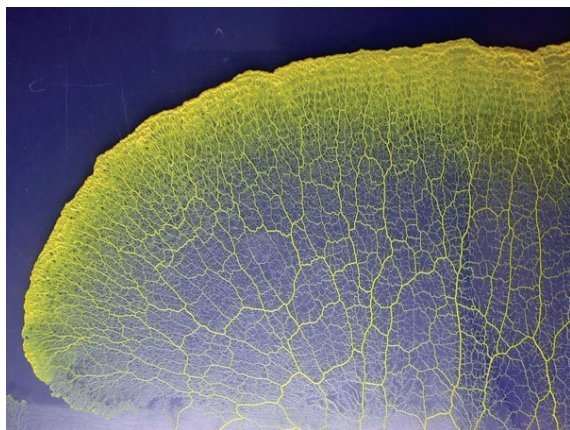


図1. 寒天上で這う粘菌変形体。

2. 研究成果

(a) 細胞運動におけるアロメトリー: サイズ、形 および移動速度

個体のサイズをシステムパラメータとして、他の特徴の定量的／定性的変化を明らかにする方法論(アロメトリー)は、ダイナミカルな体系としての生物を研究する際に有力かつ系統的なアプローチを提供する。一方、その細胞研究への適用は一般に実験的困難を伴う。粘菌変形体のサイズは数十 μm から数mのオーダーまで変化し、また、そのサイズの実験的操作が非常に容易であるといった他の細胞や生物ではみられない特徴をもつ(図2)。このような特徴を利用して、 10^{-4} – 10^{-1}m の細胞サイズに対する形や運動との関係を研究した。

寒天ゲル上を一方方向運動する様々なサイズの変形体について、その位置と厚みを長時間(6–8hr)計測し、解析した。変形体は60–120秒周期の厚み振動を伴う変形を絶えず繰り返

返しながら移動する(アメーバ運動)。本研究ではこの周期より長い時間での平均的な形状、速度が調べられた。まず、全計測時間での平均形状、平均伸展速度について以下が明らかになった: 変形体の進行方向に対する形状は、伸展端から少し後方(X_{max})で最大厚み(H_{max})に達し、その後方では指数的に厚みが減少する(時定数 A)。これら3つの指標は互いに正の相関関係にあり、サイズが小さくなるに従いずんぐりとした形状をとる。最大厚みと伸展速度が比例関係にある。厚み振動周期での平均形状と平均伸展速度についても以下のことが明らかになった。形状と速度はともに、サイズによらず15–20分周期を最短として複数の長時間周期成分をもつ。最大厚みの増加と速度増加が数分遅れて強く相関している。

粘菌変形体はサイズが増加するに従い、伸展端の増加に伴う伸展方向の多様化、管ネットワーク形成による2次的形状の複雑化等、その運動や形は複雑な様相を呈してくる。またそのような多様な形状を生かした環境に対する柔軟な適応行動がこれまで明らかにされてきた。それに対して以上の結果は、非常に広いサイズの範囲で、少なくとも伸展方向に沿った変形体の伸展運動は比較的単純な同一の巨視的法則に支配されていることを示唆している。我々は現在これ結果を反応拡散現象の枠組みで説明するモデルを研究中である。

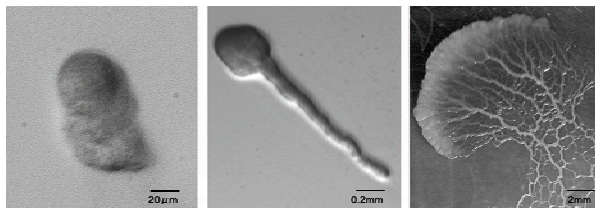


図2. 様々なサイズの粘菌変形体。

(b) 突然変異株の示す新しい細胞運動様式

粘菌変形体は細胞の形状を自由に変えながら移動する。移動している細胞の先端では偽足を伸展させ、後部に原形質の流路となる管ネットワークを形成する。細胞全体はおよそ2分の周期で協同的な収縮弛緩運動を示し、それにより原形質を輸送するという特徴を粘菌の変形体はもっている。我々は、新しい細胞運動様式を発見するために、変形体の突然変異株の細胞運動を調べた。

用いた真正粘菌は培養温度を 24°C から 30°C にすると染色体が単相のまま多核の変形体となる接合に関する変異株である。そのため、この粘菌に突然変異を起こさせた場合、接合を介さないため、細胞内にはある遺伝子に変異の起きた染色体のみが存在する。突然変異はこの粘菌の胞子を発芽させたのち粘菌アメーバの段階で化学的に誘導する。その後、胞子形成についてスクリーニングを行うことで選出した6つの変異株の中から、さらに細胞形態の異なる2種を選び出し、もとの野生型と細胞運動の比較を行った。

これらの株の変形体を一定量、寒天ゲル上に置くとやが

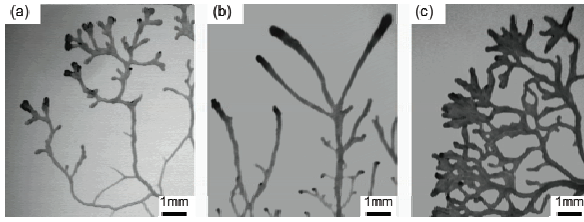


図3. 伸展する変形体の細胞形態。(a)野生株(A株)、(b, c)突然変異株(B, C株)

て周囲に伸展し始め、先端は枝分かれを繰り返しながら移動する(図3)。外見上の違いは、B株は枝分かれを起こす頻度が低く、先端は直線的に進行し、C株は頻繁に同時に多数の枝分かれを起こす突然変異体である。伸展の様子を比較するため、60秒間に伸展した先端の数の時間変化を調べた。いずれも収縮弛緩運動に同調して、伸展端の数が増減し、その数は30分から1時間におよぶ長い周期でゆっくりと変動した。しかし、B株は収縮弛緩振動のリズム性は非常に弱く、常に先端は伸展を続け、その数はゆっくりと変動する。一見B株が他と比べて、特異な運動を示す株に見られる。しかし、伸展端の時間変化のパワースペクトルと調べると、A、B株は周波数 f に対して $1/f$ 分布を示すが、C株は $1/f^{0.5}$ に近かった。そこで、埋め込みによりアトラクター再構成を行った結果、A、B株とC株では定性的に大きく異なる軌道を描いた(図4)。C株では特に周期性の強い軌道を描いていることがわかる。結果としてB株は先端の伸展に特徴的なリズム性を示さない変異体であり、C株は伸展のリズム性が野生株と大きく異なる変異株であることがわかった。

我々が用いている真正粘菌 *Physarum polycephalum* の全ゲノム配列はNIHのヒューマンゲノムプロジェクトにより解読が終了したところである。今後、変形体の細胞運動にどの遺伝子が関わっているか、そしてその遺伝子産物の分子ネットワークの機構が明らかになると期待される。

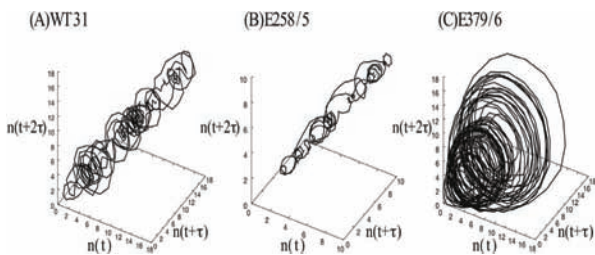


図4. 埋め込みにより再構成された各株のアトラクター。

(c) 粘菌における管ネットワークのグラフ解析

粘菌の管の中では激しい往復原形質流動が見られる。管は分枝し、特徴的なネットワークを形成する(図5左)。10cmX10cmの寒天ゲルの端に変形体を置き、自由に伸展させた際に変形体が形成する管ネットワークを画像解析により調べた。得られた画像は2値化し、細線化処理を行うことで、管をエッジ(その数をMとする)、分枝点をノード(そ

の数をNとする)として抽出し、グラフ解析を行った。ノードの結合数、 k 、を調べたところ(これが一定のとき、正則グラフと呼ばれる)その結果は、 $M = 1/2kN$ であることをしめしており、 $k=3$ と求められる。すなわち、粘菌の管ネットワークは正則グラフであることがわかった。またエッジの長さ、 x 、は一定でなく、統計分布を示す。粘菌が広がるにつれて、ネットワークが形成される領域も拡大するが、その統計分布 P は一定で、指数関数的に管の長さとともに減少する。管の幅や管の面積の分布も、同様に指数関数分布であった。時間経過とともにパラメータの値が変わっても、分布自体はロバストで、同じ関数形であった。以上より、粘菌ネットワークは重み付き正則グラフであることが明らかになった。

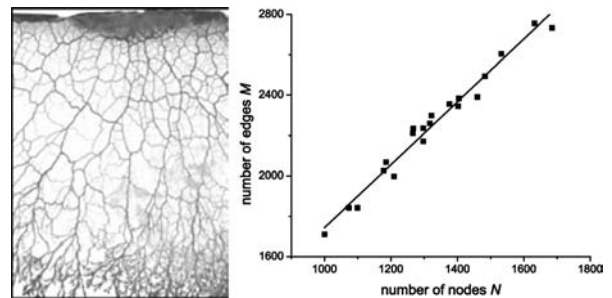


図5. 粘菌管ネットワークにおけるエッジ数(M)とノード数(N)の関係。傾き1.56の直線を与える。

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) W. Baumgarten, T. Ueda, M. Hauser: “Plasmodial vein networks of the slime mold *Physarum polycephalum* form regular graphs”, *Physical Review E*, 82, 046113 (2010)
- 2) M. Hörning, S. Takagi, K. Yoshikawa: “Wave emission on interacting heterogeneities in cardiac tissue”, *Physical Review E*, 82, 021926 (2010)
- 3) K.-I Ueda, S. Takagi, Y. Nishiura, T. Nakagaki: “Mathematical model for contemplative amoeboid locomotion”, *Physical Review E*, 83, 021916 (2010)
- 4) Y. Yamaguchi, S. Kuroda, Y. Fukushima, M. Tsukada and I. Tsuda: “A Mathematical Model for Cantor Coding in the Hippocampus”, *Neural Networks*, Elsevier, 24(1): 43-53 (2011)

4.2 総説、解説、評論等

- 1) 高木清二、中垣俊之: 「粘菌がつくる自己組織的な鉄道網」、現代化学、No. 477: 48-51 (2010)

4.7 講演

b. 一般講演

i) 学会

- 1) 高木清二*: 「振動ダイナミクスによる真正粘菌の行動決定」第20回 日本数理生物学会年会、北海道大学 (2010-09)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) S. Takagi*: “Dynamic patterns in rhythmic contraction of protoplasm of true slime mould” 9th iCeMS International Symposium, Kyoto University, Kyoto (2010-12)

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) 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

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)

f. 外国人研究者の招聘 (氏名、国名、期間)

- 1) Prof. Marcus Hauser, Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, Germany (2010年9月11日～9月16日、2011年2月14日～18日)

g. 北大での担当授業科目 (対象、講義名、担当者、期間)

- 1) 理学院、生命融合科学概論、高木清二、2010年5月27日
- 2) 理学部、生物高分子科学、高木清二、2010年7月7日

- 3) 全学共通、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論 I、高木清二、2010年7月9日

- 4) 理学部、生体高分子物性論I、高木清二、2010年10月1日～2011年3月31日

- 5) 理学院、生命数理学、高木清二、2010年11月8日～2010年11月29日

i. ポスドク・客員研究員など

- ・ポスドク (1名)
黒田 茂

j. 修士学位及び博士学位の取得状況

- ・修士課程 (1名)

- 1) 加渡大貴: 粘菌変形体の移動に伴う厚み振動及び細胞形状の時空間ダイナミクス

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～）
 助 教 酒井恭輔（京大院、工博、2010.12～）
 研究員 高島秀聡（北大院、情科博、2007.4～）
 ポスドク 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、北嶋千誉、真田彬央、斉君
 研究生
 任 芳

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・単一ナノ微粒の分光計測システムの開発、光と電子の軌道角運動量に関する物理の深化を行っている。

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

ナノギャップを有する金属ナノ粒子ペアに光を照射すると、2粒子間の強いプラズモン相互作用によりギャップ内において高強度の光局在場が生じる。このナノギャップ局在プラズモンにより表面増強ラマン散乱や高効率な非線形光学現象等の観察が多く報告されており、超高感度センサーやナノリソグラフィへの応用が期待されている。我々は、開発してきた散乱型近接場顕微鏡を用いて、ギャップ距離を変えて作製した金ナノブロックペアの光局在場マッピングを行った。その結果、図1で示すようにギャップ距離が小さくなるにつれ、プラズモン相互作用が強くなりギャップ部分における光局在特性が著しく高くなる様子が観察された。また、ギャップ距離100 nmにおいては、ギャップ部分における光局在場が完全に2つのブロックに分離して観察されており、ブロック間のプラズモン相互作用が小さい

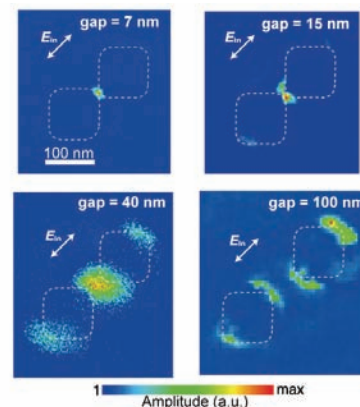


図1. 金ナノブロックペアにおける近接場像のギャップ距離依存性

ことがわかる。これらの結果は、数値解析的な予測とも良く一致しており、粒子間のプラズモン相互作用により生じる光局在場のギャップ距離依存性を実験的に証明した初めてのものである。

(b) 高Q値微小トロイド共振器へのテーパファイバを介した高効率光結合

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。これまでにファイバ結合微小球共振器を介した金属ナノ構造体への高効率光結合の検証実験を行い、90%を越える高い光結合の実証を行った。本研究では、微小球共振器よりもモード選択性の高い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研究を行った。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行い、テーパファイバとトロイド共振器間の光結合状態についての基礎的な知見を得る為、ファイバ結合微小トロイド共振器の透過スペクトルのテーパファイバ・トロイド間距離依存性を測定した。トロイド共振器は、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、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。クリーニング手法やアニール条件の最適化により、10⁸オーダーのQ値を持つトロイドの作製に成功した（図2挿入図）。このトロイド共振器にテーパファイバを接

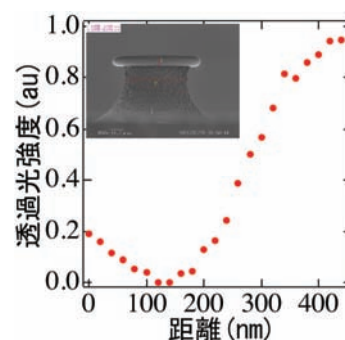


図2. テーパファイバ結合微小トロイド共振器の透過率スペクトルのテーパファイバ・トロイド間距離依存性（挿入図：微小トロイド共振器の電子顕微鏡画像）。

近させながら透過率スペクトルを測定した所、テーパファイバがトロイドに近づくに連れて共鳴ディップが現れ、ディップ深さや幅が大きくなっていく様子を確認した。図2に共鳴ディップにおける透過率と線幅を距離に対してプロットした所、約130 nmの距離において透過率が0、線幅が倍となる Critical-coupling を確認できた。また、さらにテーパファイバ・トロイド間距離を近づけていくと、透過率が上昇し、線幅がさらに広がる Over-coupling 条件となる様子が確認でき、テーパファイバ結合トロイド共振器構造を用いた高効率光結合の実現を確認した。

(c) 金ナノ構造を用いたナノ粒子トラッピング

金属ナノ構造、特にナノギャップを有する金属ナノ粒子ペアの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、ナノギャップを有する金ナノブロックペアを密に配列したナノアレイを使った光トラッピング特性が、単一のブロックペアの場合に比べどのように異なるか実験的に調べた。単一の金ブロックペアおよび2個×2個、4個×4個のブロックペアアレイを使って、粒径1 μm ポリスチレン粒子のプラズモン光トラッピングを行ったところ、いずれの構造も集光レーザーを使った光トラッピングに比べ3桁程度低い入射光強度 (75 W/cm^2) で粒子の捕捉が観察された。ナノ構造それぞれに捕捉される粒子の中心座標を、30 ms 毎に取得しプロットしたところ、ブロックペアの数が増えるにつれ、捕捉粒子の位置揺らぎが明らかに減少していくのがわかる(図3)。4個×4個のブロックペアアレイにおいては、標準偏差15 nmの極めて小さい位置揺らぎで、安定に粒子を捕捉することができた。ナノギャップを有する金ナノブロックペアアレイのトラッピング安定性は、単一ブロックペアに比べ著しく改善できることを本研究より初めて明らかにした。

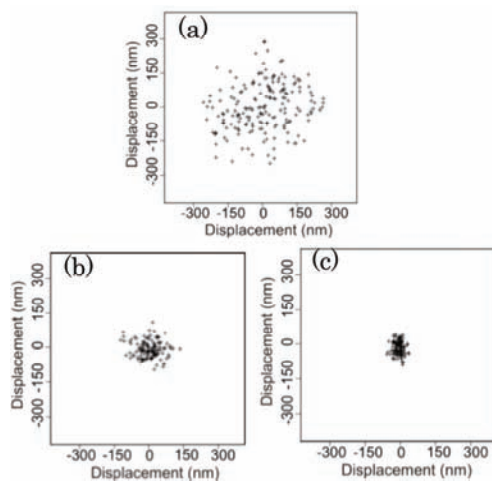


図3. 金ナノ構造で光捕捉した1 μm 粒子の位置揺らぎ。

(d) ITO 基板上的の単一 CdSe/ZnS 量子ドットの発光特性解析

量子ドット (QDs) は蛍光標識や単一光子源、太陽電池等の光・電子デバイスを構成する新規ナノ材料として広く注目されているが、単一量子系特有の発光明滅現象による発光効率の減少が問題となっている。この発光明滅は、光励起キャリアの基板表面等のトラップ準位への捕捉によって起きるため、QDs の置かれた基板状態に強く依存する。これまでに金基板上の単一 QDs において、金への高速なエネルギー移動のみならず、トラップ状態の変化が QDs の蛍光ダイナミクスに大きく影響している可能性を示唆して来た。本研究では、産業応用上有用な導電性基板の一つであるITO 透明電極上における単一量子ドットの発光ダイナミクスやトラップ準位寿命の解析を試みた。図4は、(a) ガラス、(b) 金薄膜(50 nm)、(c) ITO 薄膜(200 nm) 基板上における単一 CdSe/ZnS QDs からの発光の光子相関測定結果(左図)と光子検出時間差ヒストグラム (PIT, 右図) を示している。PIT 測定の結果から、ガラス基板上では現れているトラップ準位に対応する遅い減衰成分が金薄膜上およびITO 基板上では観えなくなっていることから、トラップ状態が変化している事を確認した。また、光子相関測定結果から金基板上では、金へのエネルギー移動に由来した励起状態寿命の短寿命化が確認できるのに対して、ITO 基板上ではガラス基板上とほぼ変わらない励起状態寿命が観測された。これらの結果から、ITO 基板上では金基板上とは異なり、励起状態からのエネルギー移動がブリンキング抑制の原因ではなく、トラップ状態からの電子移動によるトラップ状態の短寿命化がブリンキング抑制の主な原因である事を示唆している。

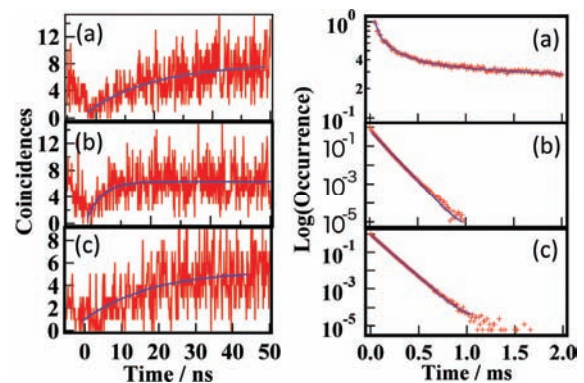


図4. (a) ガラス、(b) 金薄膜(50 nm)、(c) ITO 薄膜(200 nm) 基板上における単一 CdSe/ZnS QDs の光子相関測定結果(左図)と光子検出時間差ヒストグラム(右図)。

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、(h)光の偏光・位相による電子状態制御、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. Fujiwara, Y. Kawabe, R. Okamoto, S. Takeuchi and K. Sasaki: “Quantum lithography under imperfect conditions: effects of loss and dephasing on two-photon interference fringes”, J. Opt. Soc. Am. B, 28(3): 422-431 (2011).
- 2) K. Shahrul, H. Fujiwara and K. Sasaki: “Fano-like resonance in an optically driven atomic force microscope cantilever”, Opt. Exp., 19(3): 2317-2324 (2011).
- 3) H. Fujiwara, T. Ikeda and K. Sasaki: “Numerical Analysis of Random Lasing Properties of a Waveguide Defect within a Random Structure”, Jpn. J. Appl. Phys., 49: 112002/1-112002/6 (2010).
- 4) H. Takashima, T. Asai, K. Toubaru, M. Fujiwara, K. Sasaki and S. Takeuchi: “Fiber-microsphere system at cryogenic temperatures toward cavity QED using diamond NV centers”, Opt. Exp., 18(14): 15169-15173 (2010).

b. 解説・総説

- 1) 藤原英樹、池田匠、笹木敬司:「欠陥領域を用いたランダム構造内の局在モード特性制御」、光学、39巻9号(特集:局在現象に見る光の物理)、p.431-436 (2010).

4.3 国際会議議事録等に掲載された論文

- 1) S. Kadri, H. Fujiwara, and K. Sasaki: “Analysis of photothermally induced vibration in metal coated AFM cantilever”, Proc. SPIE-Int. 774307-1 774307-6 (2010).

4.7 講演

a. 招待講演

- 1) 藤原英樹*:「微小共振器構造を用いた光増強反応場の構築」、分子研研究会「プラズモン増強光電場の分子科学研究への展開」、分子研 岡崎コンファレンスセンター (2010-06)
- 1) 藤原英樹*:「ランダム構造利用した光増強反応場の構

築」、第2回環境・生体に関わる物理・化学の研究会、琉球大学 (2010-06)

b. 一般講演

- 1) 太田宏紀*、藤原英樹、笹木敬司:「ITO 基板上の単一 CdSe/ZnS 量子ドットのトラップ準位寿命解析」、2011 春季第58回応用物理学関係連合講演会、神奈川工科大学 (2011-03)
- 2) 藤原英樹*、池田匠、笹木敬司:「金属ランダム構造中に誘起される局在モード制御条件の検討」、2011 春季第58回応用物理学関係連合講演会、神奈川工科大学 (2011-03)
- 3) 真田彬央*、田中嘉人、笹木敬司:「ナノギャップモードプラズモン光局在場におけるナノ粒子の光解析」、2011 春季第58回応用物理学関係連合講演会、神奈川工科大学 (2011-03)
- 4) 藤原英樹*、高島秀聡、田中嘉人、笹木敬司:「金属ナノ構造と微小共振器を結合した高効率光反応システムの構築」、平成22年度アライアンス成果報告会、ホテルメトロポリタン仙台 (2011-03)
- 5) 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8回公開シンポジウム、日本科学未来館みらい CAN ホール (2011-01)
- 6) H. Fujiwara*, T. Ikeda and K. Sasaki: “Experimental demonstration of light transmission property through a tapered fiber embedded in scattering nanoparticles”, SPIE Photonics West 2011, The Moscone Center, San Francisco, California, USA (2011-01)
- 7) 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」、科学技術振興機構 さきがけ「界面の構造と制御」・「ナノ製造技術の探索と展開」・「物質と光作用」3研究領域合同研究報告会「もう一つの先の世界を求めて」-先端化と融合化の調和-ナノ・界面・光作用-、東京大学本郷キャンパス (2011-01)
- 8) K. Sasaki*, Y. Tanaka, H. Takashima and H. Fujiwara: “Photon localization within plasmonic microcavity structures”, 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2010), Kahuku (Sheraton Waikiki), USA (2010-12)
- 9) Y. Tanaka*, H. Ishiguro, H. Fujiwara, Y. Yokota, K. Ueno, H. Misawa and K. Sasaki: “Direct Observation of localized fields in nanogap of gold dimer structure using a scattering-type”, 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2010), Kamehameha Halls II and III (Convention Center), USA (2010-12)
- 10) H. Fujiwara*, T. Ikeda, K. Sasaki: “Light transmission characteristics of a waveguide surrounded by scattering nanoparticles”, 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2010), Kamehameha

Halls II and III (Convention Center), USA (2010-12)

- 11) 笹木敬司、田中嘉人*、藤原英樹：「ナノギャップ局在プラズモンの直接観察」、日本分光学会「高感度表面・界面分光部会」第3回シンポジウム、産業技術総合研究所つくばセンター (2010-12)
- 12) 藤原英樹*、池田匠、笹木敬司：「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9回領域会議、北九州国際会議場 (2010-11)
- 13) H. Fujiwara*, T. Ikeda and K. Sasaki: "Photon manipulation using randomly distributed metal scatterers", Sixteenth International Conference on Microoptics, The Ambassador Hotel, Hsinchu, Taiwan, Taiwan (2010-10~2010-11)
- 14) S. Takeuchi, M. Fujiwara*, K. Toubaru, A. Tanaka, H. Zhao, H. Takashima and K. Sasaki: "Fiber-coupled Microsphere at Cryogenic Temperatures for Cavity QED Experiments Using Single Diamond NV Centers", Updating Quantum Cryptography and Communication 2010, ANAインターコンチネンタルホテル東京 (2010-10)
- 15) 石黒裕康*、田中嘉人、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場解析(3)」、2010年秋季 第71回 応用物理学学会学術講演会、長崎大学文教キャンパス (2010-09)
- 16) 藤原英樹*、池田匠、笹木敬司：「金属ランダム構造における共鳴特性解析」、2010年秋季 第71回 応用物理学学会学術講演会、長崎大学文教キャンパス (2010-09)
- 17) 田中嘉人*、笹木敬司：「プラズモニクナノ構造を使った微粒子の光捕捉制御」、2010年秋季 第71回 応用物理学学会学術講演会、長崎大学文教キャンパス (2010-09)
- 18) 藤原英樹*、高島秀聡、田中嘉人、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：テーパーファイバ結合微小球を利用した高効率局在プラズモン励起」、第7回特定領域シンポジウム、東北大学さくらホール (2010-05)
- 19) 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8回領域会議、神戸ポートピアホテル (2010-05)
- 20) H. Fujiwara*, T. Ikeda and K. Sasaki: "Control of Resonant Modes Using a Defect Region in a Random Structure", 7th International Conference on Optics-photonics Design & Fabrication (ODF10), Pacifico Yokohama (Conference center) (2010-04)

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 microbioreactors" The

funding are from the Australian Research Council (ARC). ARC Linkage International Award, (2008-2010)

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：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)
- 2) 藤原英樹、若手研究A「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」(2010~2012)
- 3) 田中嘉人、若手研究B「1分子光捕捉を目指したプラズモニクナノ構造の作製」(2010~2011)

d. 奨学寄付金

- 1) 笹木敬司(財団法人 光科学技術振興財団)：「局在プラズモン結合微小光共振器を用いた超高効率光プロセスシステムの構築」(2009~2011)

4.12 社会教育活動

a. 公的機関の委員

- 1) 笹木敬司：OPJ2010推進委員 (2010年7月23日~2011年3月31日)
- 2) 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~2011年11月30日)
- 3) 笹木敬司：科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業(CREST)領域アドバイザー (2008年5月26日~2012年3月31日)
- 4) 笹木敬司：日本学術振興会産学協力研究委員会「フォトニクス情報システム第179委員会」委員 (2006年4月1日~2011年3月31日)
- 5) 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)

b. 国内外の学会の役職

- 1) 笹木敬司：日本分光学会 推薦委員会委員 (2010年5月31日~2011年11月30日)
- 2) 笹木敬司：応用物理学会 北海道支部理事 (2010年3月23日~2012年3月31日)
- 3) 笹木敬司：応用物理学会 理事 (2010年3月12日~2012年3月31日)

c. 併任・兼業

- 1) 笹木敬司：電気通信大学 レーザー一次世代研究センター

共同研究員（2008年4月1日～2012年3月31日）

- 2) 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）

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、
藤原英樹、2011年2月8日～2011年2月10日
- 2) 情報科学研究科、電子情報工学演習Ⅱ、笹木敬司、2010
年10月1日～2011年3月31日
- 3) 工学部、電磁気学、藤原英樹、2010年10月1日～2011
年3月31日
- 4) 情報科学研究科、光情報システム学特論、笹木敬司、
2010年10月1日～2011年3月31日
- 5) 全学共通、光・バイオ・分子で拓くナノテクノロジー、
藤原英樹、2010年7月2日
- 6) 工学部、光エレクトロニクス、笹木敬司、2010年4月1
日～2010年9月30日
- 7) 情報科学研究科、情報エレクトロニクス特別研究第二、
笹木敬司、2010年4月1日～2011年3月31日
- 8) 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、2010年4月1日～2011年3月31日
- 9) 情報科学研究科、情報エレクトロニクス特別演習、笹
木敬司、2010年4月1日～2011年3月31日
- 10) 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、2010年4月1日～2011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（電子科学研究所学術研究員）
- 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

・修士課程（2名）

- 1) 石黒裕康：「散乱型近接場顕微鏡を用いた金ナノ構造光
局在場の直接観測に関する研究」
- 2) 太田宏紀：「単一 CdSe/ZnS 量子ドット発光ダイナミク
スの基板依存性に関する研究」

生体物理研究分野

教授 根本知己（東工大院、理博、2009.9～）
助教 日比輝正（名古屋市大院、薬博、2010.4～）
助教 川上良介（九大院、理博、2010.6～）
外国人客員研究員 Subbulakshmi Chidambaram
（2010.12～2011.2）
学部4年 武田和樹、洞内 響
学部3年 青柳祐佳、澤田和明
技術補佐員 今 純子（～2010.5）
技術補佐員 菊池 東（2010.6～）
技術補佐員 小泉絢香（2010.10～）
事務補佐員 灰方千恵（～2010.9）
事務補佐員 高藤志帆（2010.9～）

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

2. 研究成果

(a) 2光子顕微鏡は、近赤外域のフェムト秒光パルスにより生じる非線形光学過程である2光子励起過程を利用する顕微鏡法であり、他の顕微鏡法では観察が困難な、生体組織深部の観察が可能である。現在、生物個体中で細胞や生体分子機能の非侵襲的な可視化解析が可能な方法論として、期待されている。我々は、この顕微鏡法の黎明期より、その確立と生命科学への応用を先導し、世界で最も深い深部到達性とサブマイクロメー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きた（図1）。この方法論を用いて、神経回路網の発達や再構成に関する知見を得たが、他の臓器、観察対象では、同様の観察に成功したという報告は少なく、脳神経系ほどには盛んに使用されているとは言い難い。我々は一連の“*in vivo*”2光子顕微鏡システムを用いた研究によって、その原因は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

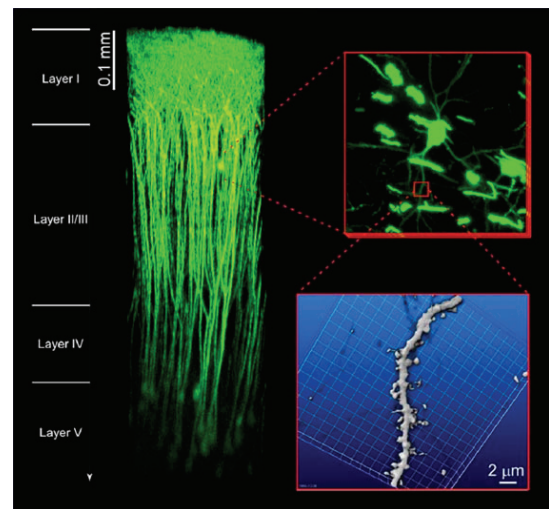


図1. “*in vivo*”2光子顕微鏡は生体内の組織の深部を高分解能で長期間観察が可能である。麻酔下のマウス大脳新皮質の神経細胞。我々は世界で最深部の可視化に成功した。

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。

特に、本年度は新たに科学技術振興機構（JST）戦略的創造研究推進事業（CREST）「最先端レーザー等の新しい光を用いた物質材料科学、生命科学など先端科学のイノベーションへの展開」（「光展開」）領域の「新規超短パルスレーザーを駆使した *in vivo* 光イメージング・光操作のがん研究・がん医療への応用」（代表：愛媛大学医学部・今村健志教授）の主たる共同研究者として、受託研究「生物個体用 *in vivo* 2光子顕微鏡の高度化」を新たに開始した。大脳新皮質の“*in vivo*”イメージングにおける今までの研究成果に基づき、さらなる高度化とがん細胞の潜む骨組織への応用を開始した。その結果、現在、世界深度記録というべき脳表面から約1.1 mmの蛍光断層観察に成功した。即ち、マウス大脳新皮質の全層（I～IV層）を越え、白質における軸索繊維の走向までも蛍光 *in vivo* 観察することを可能とした。また別の非線形光学過程である第2次高調波発生（SHG）のシグナルを同時に利用することで、無染色の組織の *in vivo* 観察にも成功した（図2）。このSHGイメージングは皮膚上皮組織

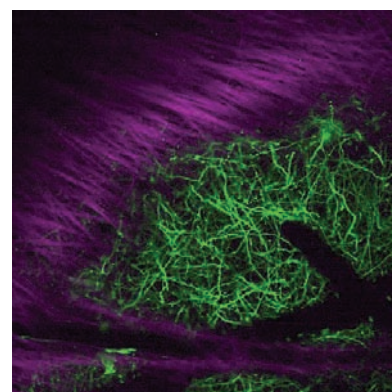


図2. 第2次高調波発生（SHG）イメージングによるマウス脳硬膜の *in vivo* 可視化（紫色）。神経細胞をEYFPの2光子励起蛍光（緑色）により同時観察が可能である。

など様々な繊維質の生体組織の断層イメージングに有効であり、蛍光との同時可視化がこれらの成果は新たに別な国内光学顕微鏡メーカーのカatalogにも採用された。

さらに、本年度は、根本は計画班員として企画立案時から参画してきた、新学術新学術領域研究「細胞機能と分子活性の多次元蛍光生体イメージング」(代表:京都大学医学部・松田道行教授)が新たに立ち上がった。本研究領域では、研究課題「生体深部の可視化と操作が同時に可能な個体用 *in vivo* 2光子顕微鏡の開発と応用」を推進している。ここでは、2光子顕微鏡のもう一つの強力な特徴である「超局所的な生体光刺激、操作」を、上述の *in vivo* イメージングと同時に“*in vivo*”で実行することを可能とするための基礎的な研究を開始した。

(b) 昨年度に引き続き JST・CREST「光展開」領域の「ベクトルビームの光科学とナノイメージング」(代表:東北大学・佐藤俊一教授)の主たる共同研究者として、受託研究「生命科学のナノイメージング」を、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、300 nm 程度である。従って、シナプス小胞を始め、生理機能を担っている細胞内器官や構造を捉えることは原理的に極めて困難である。そこで、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、高次径偏光レーザービームを高 NA の対物レンズを通すことで直径200 nm 以下まで絞り込み、こ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3)。本年度は外国特許としての出願を行った。また本成果は、日本光学会等を通じ成果発表を行い、本年度、第13回光設計賞光設計奨励賞を受賞した。尚、これは、洞内響氏の卒業研究(工学部情報エレクトロニクス学科)の一部となった。

その他、アライアンスの共同研究として、東北大・多元研、佐藤(俊)研究室、及び佐藤(次)研究室と、アップコンバージョン現象を用いた生物顕微鏡の開発に着手した。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。このナノ粒子は、東北大・多元研において製作された後、本件分野において、光学特性、特に近赤外超短光パルスレーザーを照射した場合の蛍光スペクトラムや発光効率を計測し、新たな材料開発の方向性を探索している。

(c) 2光子顕微鏡や新規蛍光タンパク質技術を用いて、分泌、開口放出の分子機構に関する研究を推進している(基盤研究B)。特に、骨代謝の生理機能とその破綻による骨粗相症など発症の基礎過程における分子機構を解明するために、破骨細胞の株化細胞系を確立し、遺伝子導入を行うための条件検討を行った。特に、酸性域でも蛍光強度が減弱しない新規蛍光タンパク質シリウス(ナノシステム生理学研究分野・永井健治教授提供)を用いて、破骨機能を担う酸性小胞の輸送と開口放出過程を可視化するための準備を進めた(図4)。また、骨代謝バランス破綻の *in vivo* 光イメージングのための光学顕微鏡的な条件検索も同時に実施した。(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」、持田記念医学薬学振興財団:「第27回研究助成金」尚、この研究成果は、武田和樹氏の卒業研究(工学部情報エレクトロニクス学科)の一部となった。

また、共同研究者である自然科学研究機構基礎生物学研究所・野中茂紀准教授が、新規蛍光タンパク質型 Ca^{2+} プロ

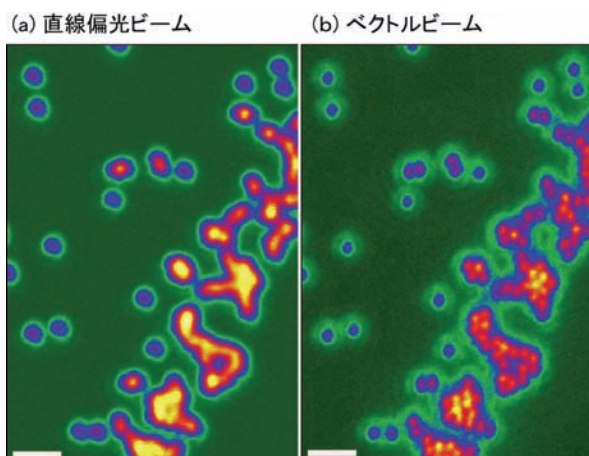


図3. 直径173 nmの蛍光ビーズの共焦点顕微鏡像。ベクトルビームを用いることで個々のビーズが識別可能となった

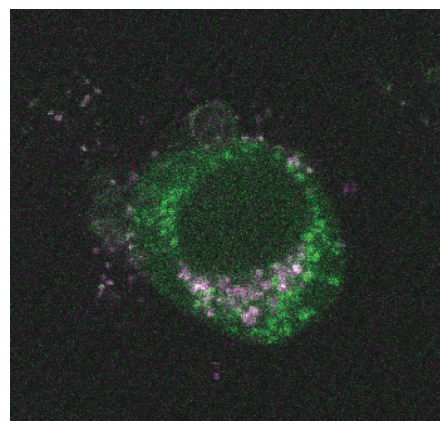


図4. 2光子励起蛍光観察したシリウス融合vSNARE分子(紫色)を強制発現する株化細胞。酸性小胞はLyso-ID greenにより染色(緑色)。

ープ“カメレオン・ナノ”を発現するトランスジェニックマウスの系統を確立した。そこで、これを用いて外分泌腺のカルシウム依存性開口放出の定量的な可視化解析を開始した。また、膵臓の内分泌、外分泌機構について世界的な権威であるカナダ・トロント大学医学部のヒルベルト・ガイサノ教授の研究室から Subbulakshmi Chidambaram 博士を、日本学術振興会外国人奥別研究員（欧米短期）として受け入れ、開口放出過程の2光子顕微鏡による可視化解析法に関する技術交流を通じて、開口放出の分子機構とアルコール性急性膵炎発症に関する共同研究を実施した。また、昨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」において開始した、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血糖値の調節機能の分子機構に関する研究を継続して推進している。そのため、京都大学大学院農学研究科との共同研究により、脂肪細胞モデルとして株化細胞ラインの確立を試みた。

また私たちの脳は左右の半球が全く対称な形をしているが、言語や音楽が専ら片方で処理されているなど、それぞれ異なった機能を持っている。多光子顕微鏡によるイメージングに加え、パッチクランプ法などの電気生理学の方法を駆使し、この非対称性の問題を解明すべく研究を開始した。

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。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。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。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

4.2 総説・解説・評論等

- 1) 根本知己、日比輝正、川上良介：「多光子顕微鏡による生体機能の可視化解析技術」、オプトデザイン、(45)：33-39 (2010)
- 2) 根本知己：「光の回折限界を超える細胞機能イメージングの試み」、物性研究 研究会報告「生物物理若手の会 第49回夏の学校」、物性研究刊行会、94(2)：242-244 (2010)
- 3) 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. 35：7-62 (2010)
- 4) 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. 30：435-440 (2010)

4.5 受賞

- 1) 橋本信之、斎藤有香、田辺綾乃、栗原誠、小澤祐市、佐藤俊一、日比輝正、根本知己：第13回光設計賞光設計奨励賞「軸偏光超解像スポット生成用液晶ベクトルビーム素子の設計」(日本光学会・光設計研究グループ) 2010年10月

4.6 特許

i) 国内特許

- 1) 根本知己、河西春郎、特許「多光子励起蛍光寿命画像化システム」第4593739号、平成22年9月24日、特許成立

4.7 講演

a. 招待講演

i) 学会

- 1) 根本知己*、野中茂紀：「光学顕微鏡と光技術の基礎と展開」、第88回日本生理学会大会 第116回日本解剖学会総会・全国学術集会合同大会、パシフィコ横浜、横浜市 (2011-03)
- 2) T. Nemoto*：「Development in laser scanning microscopy using two-photon excitation process and vector beam」, International Symposium on Photonic Bioimaging 2011, Niseko (2011-02)
- 3) 川上良介*、日比輝正、洞内響、武田和樹、根本知己：「新規レーザー光源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 (2011-01)
- 4) 根本知己*：「新しい光技術を用いた2光子顕微鏡の原理と展開」、第33回日本分子生物学会年会・第83回日本生化学会大会合同大会、神戸ポートアイランド (2010-12)
- 5) 根本知己*：「2光子顕微鏡を用いた脳機能解析の新たな展開」、第31回日本レーザー医学会総会、名古屋市 (2010-11)

- 6) 根本知己*:「生体高分子複合体や細胞の機能解明を目指す非線形光学イメージング」、第59回高分子討論会(高分子学会)、サッポロピリカコタン(2010-09)
- 7) 根本知己*、日比輝正:「近赤外超短光パルスレーザーによる細胞や生体分子のイメージング法の展開」、第5回日本分子イメージング学会学術集会、滋賀県大津市(2010-05)
- 8) T. Nemoto*:「多光子顕微鏡による開口放出現象の可視化解析」、第87回日本生理学会シンポジウム“Exocrine protein secretion and signal transduction”, 岩手県盛岡市(2010-05)
- 9) 根本知己*:「超短光パルスレーザーを用いた小胞膜動態、開口放出の可視化」、日本膜学会第32年会、生体膜シンポジウム、産業技術総合研究所臨海副都心センター(2010-05)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 根本知己*:「in vivo two-photon microscopy and super-resolution imaging utilized by vector beam」, 4th International Symposium of Nanomedicine, Okazaki(2010-11)
- 2) 根本知己*、日比輝正、川上良介:「多光子顕微鏡による生体機能の可視化解析技術」、日本光学会(応用物理学会)光設計研究グループ第45回研究会、東京都(2010-11)
- 3) 根本知己*:「2光子顕微鏡法の原理と応用」、第16回細胞生物学ワークショップ、札幌市(2010-11)
- 4) 根本知己*、日比輝正、川上良介:「新規レーザー光を用いた生体in vivo イメージング法・超解像イメージング法の開発」、平成22年度生理学研究所研究会・「電子顕微鏡機能イメージングの医学・生物学への応用ー電顕・光顕による統合イメージング、岡崎カンファレンスセンター、岡崎市(2010-10)
- 5) 根本知己*:「“Potential of “in vivo” two-photon microscopy for physiological and pathological research”」, Hokkaido University, Sapporo Hokkaido University(2010-07)
- 6) 根本知己*:「非線形光学を用いて、生きたままで神経細胞機能を可視化する」、第30回「生命をはかる」研究会、東京都中央区(2010-06)

iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 根本知己*:「2光子顕微鏡を用いた光・細胞生物学について」、広島大学歯学部平成22年度特別講義、広島市(2010-12)
- 2) 根本知己*:「in vivo 多光子顕微鏡による細胞生理機能の可視化と今後の展開」、駒込病院総合カンファレンス、東京都立駒込病院(2010-12)
- 3) 根本知己*:「二光子励起顕微鏡(超短光パルスレーザー)を用いた生体深部観察例と超解像イメージングの技術展望」、第三回炎症・再生セミナー、神戸(2010-11)
- 4) 根本知己*:「多光子顕微鏡による生体in vivo イメージング技術の基礎と可能性」、第2回BioOptoカンファレンス、パシフィコ横浜(2010-09)

- 5) 根本知己*:「最先端の生物用光学顕微鏡の原理と応用」、Neuro 2010連携レクチャー、生理学研究所(2010-08)
- 6) 根本知己*、日比輝正、川上良介:「新規レーザー顕微鏡によるバイオイメージング法の開発」、5研究所アライアンス「医療材料・デバイス領域」グループキックオフミーティング、札幌(2010-07)
- 7) T. Nemoto*:「Fundamentals and application of “in vivo” two-photon microscopy for investigation of nerve and secretory activities”, ニコン マルチフォトンセミナー, 南方医科大学, 中国(2010-06)

b. 一般講演

i) 学会

- 1) 日比輝正*、小澤祐市、佐藤綾、橋本信幸、横山弘之、佐藤俊一、根本知己*:「高次径偏光レーザービームを用いた超解像レーザースキャン顕微鏡の開発」、日本生物物理学会第48回年会、東北大学、仙台市、(2010-09)
- 2) 田辺綾乃、齋藤友香、栗原誠、橋本信幸、小澤祐市、佐藤俊一、日比輝正、根本知己*:「レーザーSHG顕微鏡による高分子分散液晶の観察」2010年日本液晶学会講演会・討論会、九州大学医学部百年講堂、(2010-09)
- 3) 栗原誠、齋藤友香、田辺綾乃、橋本信幸、小澤祐市、佐藤俊一、日比輝正、根本知己*:「液晶偏光モードコンバーターとレーザー顕微鏡への応用」、第35回光学シンポジウム、東京大学生産技術研究所(2010-07)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 日比輝正*:「高次径偏光レーザービームを利用した超解像レーザー走査型顕微鏡の開発」第1回vivid workshop、アートルランドホテル蓼科、長野県茅野市(2011-3)
- 2) 川上良介*:「マウス脳における海馬神経回路シナプスの機能形態学的左右差」第1回vivid workshop、アートルランドホテル蓼科、長野県茅野市(2011-3)
- 3) 澤田雅人*、金子奈穂子、稲田裕之、和氣弘明、加藤康子、柳川右千夫、小林和人、根本知己、鍋倉淳一、澤本和延:「嗅覚入力制御する嗅球ニューロンターミネーションの時空間的パターン」、第1回vivid workshop、アートルランドホテル蓼科、長野県茅野市(2011-03)
- 4) 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, 第16回武田科学振興財団生命科学シンポジウム、シェラトン都ホテル東京、東京都(2010-12)
- 5) R. Kawakami*, R. Shigemoto: Morphological characterization of left and right hippocampal pyramidal cell synapses, 第16回武田科学振興財団生命科学シンポジウム、シェラトン都ホテル東京、東京都(2010-12)
- 6) M. Sawada*, N. Kaneko, H. Inada, H. Wake, Y. Kato, Y. Yanagawa, K. Kobayashi, T. Nemoto, J. Nabekura and K. Sawamoto: “The spatio-temporal context for turnover of

an adult-born interneuron subtype revealed by in vivo two-photon laser ablation”, 第33回日本神経科学大会/第53回日本神経化学学会大会/第20回日本神経回路学会大会合同大会、神戸コンベンションセンター、神戸市 (2010-09)

iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 根本知己*、日比輝正、川上良介:「新規生体用 *in vivo* 多光子顕微鏡の開発と応用」平成22年度アライнс成果報告会、ホテルメトロポリタン仙台、仙台市 (2011-3)
- 2) 日比輝正*:「ベクトルレーザービームを利用した超解像顕微鏡の開発」、北海道大学電子科学研究所平成22年度研究交流会、北海道大学 (2011-1)
- 3) 川上良介、日比輝正、洞内響、武田和樹、根本知己*:「新規レーザー光源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、北海道大学 (2011-1)

4.8 シンポジウムの開催

- 1) 根本知己、野中茂紀:「第88回日本生理学会大会 第116回日本解剖学会総会・全国学術集会合同大会シンポジウム「形態と機能をつなぐイメージング技術」、パシフィコ横浜 (横浜市) (2011年3月28日)
- 2) 杉谷博士、根本知己:「第87回日本生理学会シンポジウム“Exocrine protein secretion and signal transduction”」、いわて県民情報交流センター (岩手県盛岡市) (2010年5月20日)

4.9 共同研究

d. 受託研究

- 1) 根本知己、日比輝正、川上良介 (科学技術振興機構): 戦略的創造推進事業、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」
- 2) 根本知己、日比輝正、川上良介 (科学技術振興機構): 戦略的創造推進事業、2010~2013年度、「新規超短パルスレーザーを駆使した *in vivo* 光イメージング・光操作のがん研究・がん医療への応用」(愛媛大・今村健志教授・代表) における「生物個体用 *in vivo* 2光子顕微鏡の高度化」

e. その他

- 1) 根本知己、梶野喜一、川上良介 (北海道大学人獣共通感染症リサーチセンター):「MHCclass I KO マウスを用いた脳神経回路の左右性の解明」、2010年度、人獣共通感染症リサーチセンター共同研究
- 2) 根本知己、日比輝正、川上良介、野中茂紀 (自然科学研究機構基礎生物研究所):「多光子顕微鏡法の高解像化のための生体試料の光学パラメータの研究」、2010年度、個別共同利用研究
- 3) 今村健志、根本知己、鍋倉淳一 (自然科学研究機構生理学研究所): 2010年度、計画共同研究

- 4) 根本知己 (北大・医・連携セ・先端光イメージング拠点):「2光子顕微鏡による細胞機能の *in vivo* 可視化解析」、2009年度~、北海道大学 先端光イメージング拠点

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、新学術領域研究研究領域提案型、生体深部の可視化と操作が同時に可能な個体用 *in vivo* 2光子顕微鏡の開発と応用、2010~2014年度
- 2) 根本知己、基盤研究B一般、新規的な蛍光タンパク質とレーザー光技術を用いた神経伝達・開口放出機能の可視化解析、2010~2012年度
- 3) 日比輝正、若手スタートアップ、多光子顕微鏡法による破骨細胞の膜ダイナミクスと骨破壊機能の分子基盤の解明、2009-2010年度

- 4) 川上良介、基盤研究C一般、脳が左右非対称であることの生物学的基盤の確立、2008~2010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」、「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、2009~2010年度
- 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」、「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」、2009~2010年度

e. その他

- 1) 日比輝正、平成22年度重点配分経費 (公募型プロジェクト研究等支援経費) による研究支援事業・若手研究者自立支援、超解像顕微鏡を用いた、機能特化細胞の膜輸送分子メカニズムの解明、2010年度
- 2) 川上良介、平成22年度重点配分経費 (公募型プロジェクト研究等支援経費) による研究支援事業・若手研究者自立支援、時空間特異的遺伝子発現制御による脳機能局在の神経基盤解析、2010年度

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: 日本ナノメディシン交流協会・理事、運営委員 (2006年4月1日~現在)

c. 併任・兼業

- 1) 根本知己: 広島大学歯学部 特別講義講師、広島市 (2010年12月17日)
- 2) 根本知己: Neuro2010連携レクチャー講師 (2010年8月30日~2010年8月31日)

- 3) 根本知己：科学技術振興機構 審査（2010年8月1日～2010年8月31日）
- 4) 川上良介：自然科学研究機構 生理学研究所多次元共同脳機能研究センター流動連携研究室客員助教（2010年8月1日～2011年3月31日）

f. 外国人研究者の招聘

- 1) Subbulakshmi Chidambaram、カナダ・トロント大・医学部、2010.12-2011.2

g. 北大での担当授業科目

- 1) 工学部、生体工学概論、根本知己、2010年10月1日～2011年3月31日
- 2) 工学部、生体医工学基礎、根本知己、2010年10月1日～2011年3月31日
- 3) 工学部、応用物性工学、根本知己、2010年10月1日～2011年3月31日
- 4) 工学部、科学技術英語演習、根本知己、2010年10月1日～2011年3月31日
- 5) 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、根本知己、2010年6月25日
- 6) 全学共通、基礎生物学Ⅰ、根本知己、2010年4月1日～2010年9月30日
- 7) 情報科学研究科、脳機能工学特論、根本知己、2010年4月1日～2010年9月30日

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（2007.10～2010.9）
日本学術振興会特別研究員 河合信之輔（2008.4～2011.3）
博士研究員 伊藤正寛（2009.6～）
博士研究員 Mesfin Asfaw Taye（2009.7～2010.10）
学 生
博士課程後期
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）

1. 研究目標

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

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

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

この他、単一分子分光を用いた生体計測を通して、階層

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

2. 研究成果

(1) 一分子酵素反応実験における Dynamic disorder の起源

近年の一分子実験の進展により、酵素触媒反応における酵素-基質相互作用の一分子レベルでの実時間追跡が可能となってきた。ミカエリス・メンテン反応における Dynamic disorder とは一分子レベルにおいて非指数型キネティクスが顕在化することを意味する。非指数型キネティクスは酵素の構造間遷移の時間スケールと $E+S \rightleftharpoons ES \rightarrow E+P$ の反応時間スケールが拮抗する濃度領域で生じる。その濃度領域では、酵素が完全に構造緩和する前に次の反応が生起するため、構造の記憶が反応のキネティクスに影響を及ぼすためである(e.g., *Nat. Chem. Bio.*, **2**, 87 (2006))。この Dynamic disorder の起源を論じるうえで、観測された時系列そのものから背後に存在する状態遷移ネットワーク、キネティクススキーム(KS)、が抽出できれば、極めて有用な情報を与えるものと期待される。しかしながら、一般に、図1(e)に示すような, dwell-time 時系列データが与えられたと

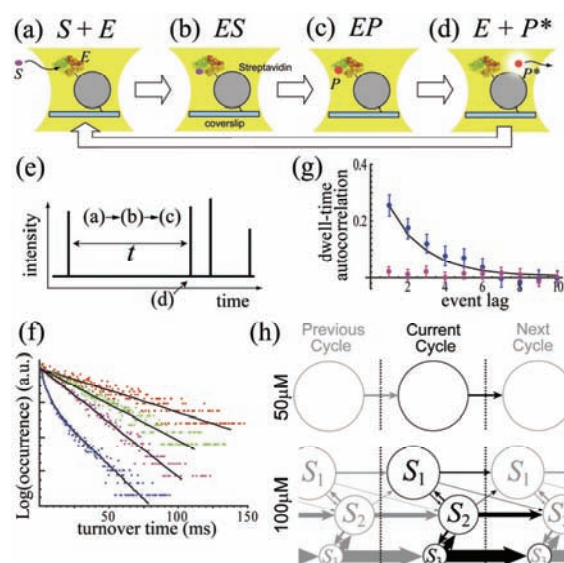


図1. バースト時系列から構成された、一分子酵素反応ターンオーバー実験における最小かつ最大予測性能をもつ unbiased KS。(a)-(d) 一分子酵素反応実験の概略(S: 基質, E: 酵素, ES: 酵素-基質対, EP: 酵素-生成物対, P*: 蛍光を発する生成物)。(e) 蛍光強度のバースト時系列。(f) 異なる基質濃度[S]におけるターンオーバー時間のLog-linearヒストグラム:[S] (red: 10 μ M, green: 20 μ M, purple: 50 μ M, blue: 100 μ M)。ドットが実験値、実線がKSから求められた解析解。(g) [S]=50 μ Mおよび100 μ MにおけるDwell time 自己相関関数。実線がKSから求められた解析解。(h) [S] = 50 μ Mおよび100 μ MにおけるKS。現在のターンオーバーサイクルの状態およびその状態からの遷移を黒の実線で、前回および次のサイクルのものを灰色の実線で示している。

き、自己相関関数などのキネティックスを再現するキネティックスキーム(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情報からKSを一義的に同定することができない。我々はすべての可能なKSのなかで、同等の最大予測性能をもち、最小かつ客観的(unbiased)なKSをデータから抽出する方法論を新規に開発した。

図1に *Escherichia coli* β -galactosidase の一分子酵素ターンオーバー実験により得られた dwell-time 時系列データに対する我々の方法論を適用した結果を示す。(a)-(d)に一分子酵素反応実験の概略を、(e)には蛍光発光する生成物が共焦点領域に存在している間だけ光子が観測されるバースト時系列を示している。バースト間の“dark” dwell time t は触媒反応のターンオーバー時間に対応している。(f)は異なる基質濃度 $[S]$ におけるターンオーバー時間のLog-linear ヒストグラムを示しており、基質濃度 $100 \mu\text{M}$ では非指数型キネティックスに移行することが分かる。(g)は $50 \mu\text{M}$ および $100 \mu\text{M}$ における Dwell time の自己相関関数を示しており、 $100 \mu\text{M}$ では、顕著な分子記憶が存在することが分かる。(h)はデータ駆動的に抽出された $50 \mu\text{M}$ および $100 \mu\text{M}$ におけるKSを示している（構成方法の概要は前年度報告している）。現在のターンオーバーサイクルの「状態」(円)およびその状態からの遷移(矢印)を黒の実線で、前回および次のサイクルのものを灰色の実線で表している。円の面積は相対的な滞在確率の大きさ、矢印の太さは遷移確率の大きさを反映している。また、ここでは、簡単のために、各状態からの遷移のうち、自分自身への状態遷移は省略している。(f)および(g)における実線はこれらのKSから求められた解析解を意味しており、基質濃度依存の実験データを忠実に再現していることが分かる。データ駆動的に再構成されたKSは、様々な基質濃度に対する一分子酵素反応の分子記憶、非指数型キネティックス (dynamic disorder) の起源を論じるうえで、背後に存在する状態と状態間の遷移の繋がりに関する重要な情報を提供するものである。

(2) 反応の成否を分かち力学構造を抽出する手法の、一般化ランジュバン方程式への拡張

凝縮相の化学反応は、周囲の環境の効果である摩擦力と熱ゆらぎをもつランダム力との影響にさらされた中で起こる。このような環境の中で化学反応の成否を決定する要因を理解するために、前年度までの研究においてランジュバン方程式で記述される系の鞍点近傍のダイナミクスを考察した。ポテンシャル面上の反応物領域と生成物領域との間に存在する鞍点の近傍におけるダイナミクスは、反応の成否を決める上で第一義的な役割を演じている。前年度までの研究によって、ランダム力および自由度間の非線形な相互作用が存在する場合でも、ある程度の温度(エネルギー)までは反応を記述する1つの独立な自由度が取り出せること、それを用いて反応するかしないかを分ける相空間内の分割面を取り出せることなどを見出した。ランジュバン方

程式は環境の時間スケールが系のそれに比べて十分に速い場合のみ有効な近似であるため、本年度はより一般的に成立が保証される一般化ランジュバン方程式に以上の理論を拡張した。一般化ランジュバン方程式は、系の動きに対する周囲の環境の応答を表現する記憶項を含んでいるが、少数個の実効的な変数を導入することで系の次元を増やす代わりに記憶項の無い運動方程式に変換する事ができることを見出した。記憶項の無い運動方程式を得ることにより、これまでの理論を同様に適用して、反応の成否を分かち分割面を抽出することが一般化ランジュバン方程式の場合にも可能になった。また、この過程で現れた新たな変数は、ランジュバン的な記述では摩擦核に隠れていた環境の自由度を、実効的に取り出したものと解釈され、本来膨大な数の自由度を含む溶媒の運動を、系と主に相互作用する少数個の実効自由度に落とせた事になり、凝縮相のダイナミクスを理解する上で大きく貢献する概念であると考えられる。

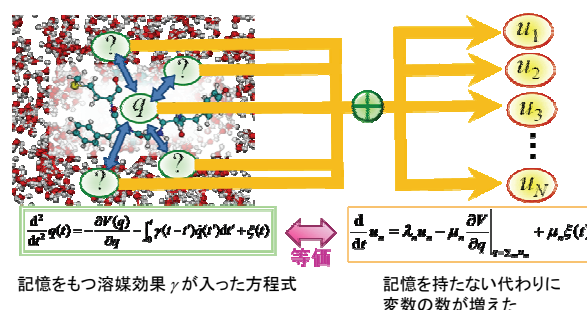


図2. 記憶効果を持つ一般化ランジュバン方程式の“拡張相空間”表現

(3) 非定常ランジュバン方程式の導出

一般化ランジュバン方程式は、形式的には任意の系で正しい事が60年代の研究で証明されているが、環境から及ぼされる外力であるランダム力を方程式の中に入れており、ランダム力の統計的な性質が分かっていると実際には使う事ができない。環境が熱平衡状態であると前提できる場合には、ランダム力の統計的性質は揺動散逸定理などで与えられる。しかし、例えば、光化学反応の場合、環境の初期条件分布は当初の光励起によって作られるので、一般に熱平衡分布ではない。レーザー場によって反応を制御する場合、むしろ積極的に環境中の特定の振動モードを励起することで反応に影響を及ぼす事が多い。このような現象を記述するには通常の熱平衡に基づいたランジュバン方程式とは異なる定式化が必要である。本研究では限られたモデルで行われていたいくつかの先行研究を射影演算子の手法を用いて一般論に拡張し、非定常ランジュバン方程式を定式化した。通常のランジュバン方程式との違いは、平均力が時間の関数となること、摩擦核が過去の時刻と現在の時刻の両方に依存する（熱平衡の場合は時間差のみに依存）ことであった。一方でランダム力の相関関数と摩擦核を結び付ける揺動散逸定理は、ほぼそのままの形で成立することが分かった。

(4) 反応座標のスイッチ機構

伝統的な化学反応理論は、統計力学に依拠し、反応の障壁となるのは、分子が感じるポテンシャルエネルギーにおける反応物と生成物を隔てるサドルであり、その反応における反応座標とはそのサドルから反応物側、および、生成物側にポテンシャルを下っていく方向である、という前提のもとに立っている。その前提のもとでは、反応障壁および反応座標は、単に分子のポテンシャルエネルギーの形状だけによって決まり、分子がどの程度激しく運動しているか、つまり、分子が持っているエネルギーには依存しない。

しかし、近年の研究により、分子が持っているエネルギー、および、その運動状態に依存して、分子がもっとも通過しにくい障壁の位置およびそこから伸びている反応座標は変化する、ということが明らかになってきた。

本研究では、その考えをさらに推し進め、分子のエネルギーをサドルの高さを基準として徐々にあげていったときに、分子の感じる障壁、および、その障壁から伸びている反応座標がどのように変化するのかを、電場、磁場および原子核からのクーロン力をうけて運動する電子のモデルにおいて調べた。その結果、図3に示すような新規な反応機構が明らかになった。

図3に示すように、電子のエネルギーが低いときには、電子の運動を妨げる主要な障壁は、電子が原子核に束縛されている状態と電子解離した状態を隔てるものであるが、あるエネルギーを境に障壁の一部が崩壊し、障壁およびそこから伸びる反応座標が不連続的にまったく別のものにスイッチする。また、その新しい障壁は、二つの異なる位相で電子が核の周りを振動する状態を隔てている。さらに、このスイッチングは、電子のエネルギーだけでなく、電子が障壁付近のどの領域を通過するかによっても異なるということも明らかになった。これらの結果は、従来の化学反応理論の再考を促すとともに、新たな化学反応機構の可能性を提示するものである。

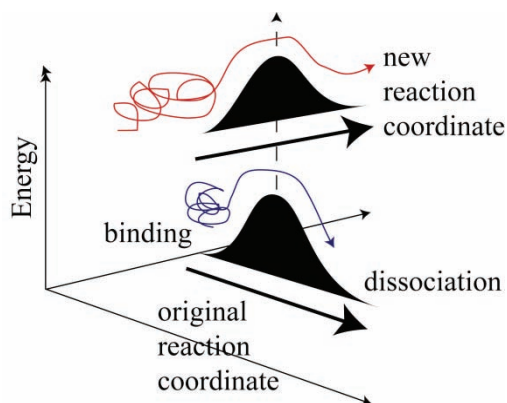


図3. 反応座標のスイッチ機構の概念図。サドル付近のエネルギーでは、反応の障壁は、電子が原子核に束縛されている状態と電子が解離した状態との間にある。一方、エネルギーがあがると、主要な障壁および反応座標が切り替わる。この新しい障壁は、二つの電子が異なる位相で振動する振動状態を分けている(青、赤の曲線:エネルギーが低いとき(青)および、エネルギーがサドルよりも遙かに高いとき(赤)の典型的な軌道の様子)。

(5) 高次ランクサドルを通過する力学構造と化学反応動力学

多自由度ハミルトン力学系では、ポテンシャルエネルギーの谷に軌道が一時的に“捕まっている”状態を一つの状態と考えることができる。2つの谷の間にはランク1サドル(ポテンシャルエネルギー面上の峠)が一般に存在する。これまでの先行研究(例:小松崎&Berry PNAS 2001)により、ランク1サドル近傍で非線形な座標変換を用いることで、強いカオス領域であっても一方の谷(状態)から他方の谷(状態)への状態遷移の成立の可否を比較的広いエネルギー領域にわたって解析的に求めることができることが分かっている。しかしながら、(たんぱく質など)実存する多自由度系は(局所的に)不安定方向を複数もつ高次ランクサドルを普遍的に有している。当該年度は高次ランクサドル領域の力学についての原理を解明することを目的とした。その結果、2次ランクサドルを持つ散乱モデル系を用いて、標準形解析などの数値実験を通じて、遷移の可否を同定できる余次元1の多様体が共鳴の有無に関わらず比較的安定に存在しえることが示唆された。

(6) 多変数確率過程の背後に存在する集団運動の数理

多変量からなる複雑な系に対して、背後に存在する力学方程式などが未知の状況のもと、限られた多変量データから如何にして背後に存在する変数のあいだの(高次相関などの)階層的従属関係を推論することができるかという問いは、生物物理を始め、経済学、社会学など広い範囲において最重要課題のひとつである。当該年度は情報理論に基づく connected information と呼ばれる手法を用いて、ミクロ変数の結合確率が与えられたときに、それらの変数のあいだの階層的従属関係、どのような場合に、全結合確率のエントロピーがべき集合を構成する複数の変数群のエントロピーに分解できるか、換言すると、全体の挙動が構成要素の局所的挙動の単なる“和”で評価できるか否か、に関する基礎理論を新規に構築した。

このほか、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の構成手法の開発、一分子時系列情報から構成される状態遷移ネットワークから求められる自己相関関数や滞在時間分布の厳密解の導出などを行った。

(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

前年度に引き続き、組織透過性が高く「生体の光学窓」と呼ばれる波長領域700~1100nmの近赤外蛍光イメージングのための近赤外蛍光プローブの確立を目指した。組織内部の特定のターゲットを可視化するために、近赤外波長領域に吸収発光域を持つシアニン系色素は有用である。これまで最も多く使われているインドシアニングリーン(ICG)に代表されるシアニン系色素の多くは水溶液中で不

安定であり、また蛍光収率も悪く、新たなプローブ色素の探索が重要である。本研究では、その一環として同様の構造を持つシアニン色素の性質、およびシアニン系色素と（血中に多く含まれる）アルブミンとの相互作用を調べた。

例として、ICG より水溶性の高いシアニン系色素 IR806 と人血清アルブミン (HSA) 混合系の吸収スペクトル変化を図 4 に示す。ICG など多くのシアニン色素は、アルブミンに吸着されることにより吸収ピークは赤色方向にシフトし、その状態で比較的安定な状態を保つことが知られている。驚くべきことに、最初 ICG などと同様な赤色方向のシフトが見られたのち、徐々に新しい青色方向にシフトしたスペクトルへと変化した。蛍光スペクトルも同様な変化が見られ、ピークが青色方向にシフトしたとともに、強度が上昇した。別の実験から、新たなピークを示した複合体の蛍光寿命は、IR806 水溶液中より長く、蛍光量子収率が上がったことが示された。またこの複合体は安定であり、通常の保存条件下で、箇月オーダーにわたって、スペクトルに大きな変化が見られなかった。

形成された青色にシフトしたスペクトルを示す複合体は、吸収スペクトルが等吸収点を持つことから、最初に形成した赤色にスペクトルシフトした複合体が何らかの変化を伴い生成したものである。この複合体にグアニジン変性剤を加えタンパクを変性させたスペクトル変化を調べた。赤色のピークを示した複合体はグアニジン添加により、もとの溶液でのスペクトルに収束する一方、青色にスペクトルシフトした複合体のスペクトルは広がるがピークの変化はほとんど観測されていない。これらのことは、色素がタンパクと単なる物理的な結合をしているのではなく、より強い結合を形成していると示唆される。これらの結果から、反応性の高い官能基を持たないシアニン色素が、これまで触媒活性などを示すことのないと考えられてきたアルブミンにおいて、何らかの今まで考えられていない反応が起きていることを強く示唆している。

今後、この青色にシフトした複合体の実体を明らかにし、メカニズムを知ることにより、一般性のある現象であるのかを検討する必要がある。一方、この複合体が安定であり発光収率が高いと言う性質を持つことから、生体のプローブとしての有効性が期待される。

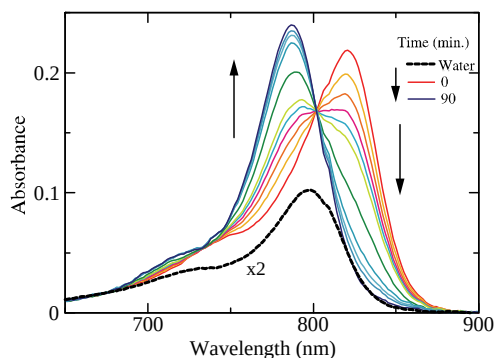


図 4. シアニン色素 IR806 の人血清アルブミン中での吸収スペクトル変化

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、一分子生物学における自由エネルギー地形概念そのものの再考、生体分子系ダイナミクスと熱揺らぎの拮抗関係、時空間スケールの異なる階層間の情報伝達、環境に適応しながら時々刻々変化する階層ネットワーク構造の遍歴現象などを考察していき、一分子基礎学の創出を目指していく予定である。

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

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) S. Kawai and T. Komatsuzaki: "Derivation of the Generalized Langevin Equation in Non-stationary environments", *Journal of Chemical Physics*, 134(11): 114523-12pages (2011) *This paper was selected for the March 2011 Issue of JCP: Biochemical Physics*
- 2) S. Kawai and T. Komatsuzaki: "Phase Space Geometry of Dynamics Passing through Saddle Coupled with Spatial Rotation", *The Journal of Chemical Physics*, 134(8): 084304-11pages (2011)
- 3) H. Teramoto, M. Toda and T. Komatsuzaki: "A Dynamical Switching of a Reaction Coordinate to Carry the System Through to a Different Product State at High Energies", *Physical Review Letters*, 106(5): 54101-4pages (2011)
- 4) S. Kawai and T. Komatsuzaki: "Quantum Reaction Boundary to Mediate Reactions in Laser Fields", *Journal*

of Chemical Physics, 134(2): 024317–13pages (2011)

- 5) K. Awasthi and G. Nishimura: “Modification of near-infrared cyanine dyes by serum albumin protein”, *Photochem. Photobiol. Sci.*, 10: 461–463 (2010)
- 6) A. Baba and T. Komatsuzaki: “Extracting the Underlying Effective Free Energy Landscape From Single-Molecule Time Series --- Local Equilibrium States and their Network”, *Physical Chemistry Chemical Physics*, 13(4): 1395–1406 (2010) *This paper was selected in “Virtual Journal of Biological Physics Research “Single Molecule Dynamics”, 21(2) (2011)”*
- 7) H. Teramoto and T. Komatsuzaki: “How does a choice of Markov partition affect the resultant symbolic dynamics?”, *Chaos <Focus Issue on Intrinsic and Designed Computation: Information processing in dynamical Systems>*, 20: 037113–7pages (2010) (*invited*)
- 8) S. Kawai and T. Komatsuzaki: “Dynamical Reaction Coordinate in Thermally Fluctuating Environment in the Framework of Multidimensional Generalized Langevin Equations”, *Physical Chemistry Chemical Physics*, 12: 15382–15391 (2010)
- 9) S. Kawai and T. Komatsuzaki: “Robust Existence of a Reaction Boundary to Separate the Fate of a Chemical Reaction”, *Physical Review Letters*, 105(4): 048304–4pages (2010)
- 10) Y. Matsunaga, C. Li and T. Komatsuzaki: “Cooperativity at different space and time scales in multiscale protein dynamics”, *Physical Review E*, 82: 016213–12pages (2010) *This paper was selected in “Virtual Journal of Biological Physics Research “Protein Conformational Dynamics/Folding”, 20(3) (2010)”*
- 11) S. Kawai and T. Komatsuzaki: “Hierarchy of Reaction Dynamics in a Thermally Fluctuating Environment”, *Physical Chemistry Chemical Physics*, 12: 7626–7635 (2010)
- 12) S. Kawai and T. Komatsuzaki: “Nonlinear Dynamical Effects on Reaction Rates in Thermally Fluctuating Environments”, *Physical Chemistry Chemical Physics*, 12: 7636–7647 (2010)
- 13) 寺本央、小松崎民樹:「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」、双曲型力学系から大自由度力学系へ (数理解析研究所講究録)、京都大学数理解析研究所、1688:26–38 (2010)

4.2 総説・解説・評論等

- 1) C. Li and T. Komatsuzaki: “Extracting the Underlying Unique Reaction Scheme from a Single-Molecule Time Series”, *Cell Signaling Reactions: Single-Molecular Kinetic Analysis*, Springer (2011) (*invited*)

4.3 国際会議議事録等に掲載された論文

- 1) T. Komatsuzaki, C. Li and S. Kawai: “Robustness and Diversity of Transitions in a Sea of Chaos and Stochastic Fluctuation”, AIP Conference Proceedings; 8th International Conference of Numerical Analysis and Applied Mathematics, 1280(1): 1582–1584 (2010)
- 2) G. Nishimura, K. Awasthi, K. Locharoenrat, S. Okawa and Y. Yamada: “Time-domain fluorescence diffuse optical tomography for living animals by total-light algorithm”, Proc. SPIE, 7896: 78962Q1–78962Q7 (2011)

4.7 講演

a. 招待講演

i) 学会

- 1) 河合信之輔*:「凝縮相化学反応の本質部分を記述する低自由度力学系の抽出」、日本物理学会 第66回年次大会、新潟大学五十嵐キャンパス (2011–03)
- 2) S. Kawai*: “Extracting low-dimensional dynamics to describe the essence of huge molecular systems”, 日本化学会第91春季年会 アジア国際シンポジウム、神奈川大学横浜キャンパス(横浜市) (2011–03)
- 3) C. Li* and T. Komatsuzaki: “When one plus one is more than two: Theoretical challenges in learning from the next generation single- and multiple- molecule experiments”, 生物物理学会第48回年会、東北大学川内キャンパス (仙台市) (2010–09)
- 4) K. Kamagata*, A. Baba, T. Komatsuzaki and S. Takahashi: “蛋白質一分子の長時間蛍光観察法の開発: 蛋白質の折りたたみへの応用 “Flow and stop protocol for the long-time observation of fluorescence from free single molecules: application to protein folding””, 日本生物物理学会第48回年会、東北大学川内キャンパス (仙台市) (2010–09)
- 5) T. Komatsuzaki*, C. Li and S. Kawai: “Robustness and diversity of transitions in a sea of chaos and stochastic fluctuation”, International Conference of Numerical Analysis and Applied Mathematics, Rhodes, Greece (2010–09)
- 6) 小松崎民樹*:「熱的に揺らぐ環境下における状態変化の決定性」、第7回 Atomic and Molecular Optics (AMO) 討論会 セッション「メソスケール生体分子系の機能発現における運動と揺らぎ」、つくば国際会議場 (つくば市) (2010–06)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 河合信之輔*、小松崎民樹*:「熱ゆらぎ環境下で化学反応の成否を決定づける力学構造の抽出」、Dynamics of complex systems 2011 —時間発展の非可逆性と予測可能性の限界に関する諸分野からの提言—、北海道大学 (札幌市) (2011–03)
- 2) C. Li*: “The Hidden Markov Modeling with Exact Information Content of Dwell-Time Time Series”, “Dynamics of

complex systems 2011 ―時間発展の非可逆性と予測可能性の限界に関する諸分野からの提言―”, 北海道大学 (札幌市) (2011-03)

- 3) 小松崎民樹*: 「カオスや熱揺らぎのなかに潜む状態変化の力学的決定性」文部科学省「物質・デバイス領域共同研究拠点」複雑系数理とその応用に関するシンポジウム、北海道大学 (札幌市) (2010-11)
- 4) 小松崎民樹*: 「我々は一分子計測から何を読み解くことができるのか?」、理論と実験 研究会、広島大学大学院理学研究科(広島市) (2010-10)
- 5) 小松崎民樹*: 「熱揺らぎ環境下における反応の自由度、決定性」、第1回バイオ単分子研究会、エクシブ琵琶湖 (長浜市) (2010-10)
- 6) 西村吾朗*: 「1 μ m 波長域での組織光計測」、第14回酸素ダイナミクス研究会、島津製作所東京支社、東京 (2010-09)
- 7) 小松崎民樹*、李振風、寺本央、馬場昭典、河合信之輔: 「階層性、適応性、因果性を内包する生命システムの動態解析基盤」、アライアンス「医療材料・デバイス」G3 グループ キックオフミーティング、北海道大学 (札幌市) (2010-07)
- 8) T. Komatsuzaki*: “Energy Landscapes for Single-Molecules”, Telluride Summer Workshop “Characterizing Landscapes: From Biomolecules to Cellular Networks”, Telluride, CO, USA (2010-06)
- 9) T. Komatsuzaki*: 「The dynamic origin of reactions under thermal fluctuation: true reaction coordinate」、Telluride Summer Workshop “Searching for Reaction Coordinates and Order Parameters” Telluride, CO, USA (2010-06)
- 10) 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)

iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) T. Komatsuzaki*: “Chance and necessity in reactions under thermal fluctuation”, James Franck Institute Seminar, The University of Chicago, USA (2011-02)
- 2) 小松崎民樹*: 「カオスおよび熱揺らぎ存在下における状態変化の「偶然と必然」」、北海道大学理学院数学専攻 Dynamics of Complex Systems セミナー第11回 (2010-11)
- 3) 馬場昭典*: 「生体分子の1 分子時系列解析: 状態遷移ネットワークと自由エネルギー地形」、柴田達夫研究室 セミナー、広島大学理学部 A010 号室 (2010-09)
- 4) C. Li*: “Single Molecule Time Series Analysis of Supermolecular Motor Proteins”, Seminar at Institute for Molecules and Materials, Radboud University, Netherland (2010-08)
- 5) C. Li*: “Time-dependent Perturbation Analysis of Small Nonintegrable Hamiltonian System”, Dynamics of Complex Systems Seminar, 北海道大学理学部 (札幌市) (2010-06)

b. 一般講演

i) 学会

- 1) 河合信之輔*、小松崎民樹: 「多自由度分子系において化学反応の運命を分かつ反応境界面の頑健な存在」、日本化学会第91春季年会プログラム、神奈川大学横浜キャンパス (2011-03)
- 2) 伊藤正寛*、馬場昭典、李振風、小松崎民樹: 「詳細つり合いが成立しない遷移ネットワークから構成される有効エネルギー地形」、日本物理学会 第66回年次大会、新潟大学五十嵐キャンパス (2011-03)
- 3) 寺本央*、戸田幹人、小松崎民樹: 「法双曲不変多様体の崩壊と生成、局所から大域へ」、日本物理学会 第66回年次大会、新潟大学五十嵐キャンパス (2011-03)
- 4) 宮川尚紀*、李振風、小松崎民樹、寺本央: 「多変数確率過程の大域的パターンと高次相関情報量 (Connected Information)」、日本物理学会 第66回年次大会、新潟大学五十嵐キャンパス (2011-03)
- 5) 永幡裕*、河合信之輔、寺本央、李振風、小松崎民樹: 「ランク2 サドルとその近傍に於ける遷移ダイナミクス」、日本物理学会 第66回年次大会、新潟大学五十嵐キャンパス (2011-03)
- 6) 西村吾朗*: 「自家蛍光を利用した肉類の光学的評価法」、第58回 応用物理学関係連合講演会、DVD (2011-03)
- 7) G. Nishimura*, K. Awasthi, K. Locharnrat, S. Okawa and Y. Yamada: “Time-domain fluorescence diffuse optical tomography for living animals by total-light algorithm”, Bios SPIE Photonics West, The Moscone Center San Francisco, CA, USA (2011-01)
- 8) 西村吾朗*、カムレス アワスティ、キッツアコーン ロジャロエンラット、大川晋平、山田幸生: 「時間領域蛍光イメージング - 時間応答関数の性質と定量的イメージング」、日本光学会 (OPJ2010)、中央大学駿河台記念館、東京 (2010-11)
- 9) H. Teramoto* and T. Komatsuzaki: “ペプチドと水の動力学的相互作用の解明 “Understanding of dynamical interactions between a peptide and water””, 日本生物物理学会第48回年会、東北大学川内キャンパス (仙台市) (2010-09)
- 10) カムレス アワスティ、西村吾朗*: 「Binding properties of cyanine dyes to serum albumin」、第48回日本生物物理学会年会、東北大学、仙台市 (2010-09)
- 11) 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量子ダイナミクス」、分子科学討論会2010、大阪大学豊中キャンパス (豊中市) (2010-09)
- 12) 伊藤正寛*、馬場昭典、李振風、小松崎民樹: 「蛋白質 beta3s の自由エネルギー地形-自由エネルギー地形概念の再考-」、第10回日本蛋白質科学会年会、札幌コンベンションセンター (札幌市) (2010-06)
- 13) S. Kawai* and T. Komatsuzaki: “Quantum Dynamics in Laser-controlled Chemical Reaction”, 第26回化学反応討論会、広島大学 (東広島市) (2010-06)

- 14) S. Kawai* and T. Komatsuzaki: “Dimension Reduction Analysis applied to Energy Transfer Processes in Reaction Intermediates”, 第26回化学反応討論会, 広島大学 (広島市) (2010-06)
 - 15) 永幡裕*, 河合信之輔, 寺本央, 李振風, 小松崎民樹: 「ランク2サドルにおける遷移ダイナミックスの集団挙動とカオス」, 第13回理論化学討論会, 北海道大学 (札幌市) (2010-05)
 - 16) 寺本央*, 小松崎民樹: 「法双曲不変多様体の崩壊のシナリオ」, 第13回理論化学討論会, 北海道大学 (札幌市) (2010-05)
 - 17) 河合信之輔*, 寺本央, 小松崎民樹: 「熱揺らぎ環境下における生体分子の構造転移に対する次元縮約と真の反応自由度」, 第13回理論化学討論会, 北海道大学 (札幌市) (2010-05)
 - 18) 伊藤正寛*, 馬場昭典, 李振風, 小松崎民樹: 「自由エネルギー地形概念の再考」, 第13回理論化学討論会, 北海道大学 学術交流会館 (札幌市) (2010-05)
 - 19) G. Nishimura*, K. Awasthi, K. Locharoenrat, S. Okawa and Y. Yamada: “Quantification of Fluorescence Target in Tissue Phantoms by Time-domain Diffuse Optical Tomography - Total-light Approach”, Biomedical Optics (BIOMED) Topical Meeting and Tabletop Exhibit, The Deauville Beach Resort Hotel Miami, FL, USA (2010-04)
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) 伊藤正寛*, 馬場昭典, 李振風, 小松崎民樹: 「詳細つり合いが成立しない遷移ネットワークから構成される有効エネルギー地形」, 2010年度 日本生物物理学会北海道支部例会, 北海道大学理学部 (2011-03)
 - 2) Z. Liu*, H. Teramoto, C. Li and T. Komatsuzaki: “Extracting Protein Dynamics from Single Molecular Time Series”, Fusion Bioscience International Symposium, Hokkaido University (2011-03)
 - 3) T. Sultana*, H. Teramoto, C.B. Li and T. Komatsuzaki: “Extracting the Reaction Network Buried in Single Molecule Time Series of Epidermal Growth Factor Receptor and Grb2”, Fusion Bioscience International Symposium, Hokkaido University (2011-03)
 - 4) 寺本央*, 戸田幹人, 小松崎民樹: 「法双曲不変多様体崩壊と生成のメカニズム」, 2010年度冬の力学系研究集会, 東京工業大学大岡山キャンパス (2011-01)
 - 5) 李振風*, 小松崎民樹: 「一分子時系列情報に基づく革新的モデリング」, 第36回生体エネルギー研究会/特定領域「革新的ナノバイオ」合同シンポジウム, 大阪大学銀杏会館 (吹田市) (2010-11)
 - 6) 寺本央*: 「法双曲不変多様体崩壊のシナリオ」, 力学系研究集会-理論から応用へ、応用から理論へ、京都大学数理解析研究所 (京都市) (2010-09)
 - 7) 馬場昭典*, 小松崎民樹: 「1分子時系列から背後の実効的な自由エネルギー地形を読み取る ---局所平衡状

態(LES)と状態遷移ネットワーク」, ナノマクロ物質・デバイス・システム創製アライアンス キックオフシンポジウム, ライフサイエンスセンター 5F ライフホール (豊中市) (2010-08)

- 8) T. Komatsuzaki*: “Extracting the Underlying Energy Landscape from a Single-Molecule Time Series”, Gordon Conference on Single Molecule Approaches to Biology, Lucca, Italy (2010-06 ~ 2010-07)
- 9) 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量子ダイナミクス」, 第7回AMO 討論会, つくば国際会議場 (つくば市) (2010-06)

4.8 シンポジウムの開催

- 1) 小松崎民樹: 「日本物理学会 第66回年次大会 領域12, 領域11合同シンポジウム 主題: 化学反応や生体高分子の構造変化における状態変化の起源を探る」, 新潟大学五十嵐キャンパス (新潟市) (2011年3月26日) (震災のため順延)
- 2) 小松崎民樹: 「第48回 日本生物物理学会年会」, 東北大学川内キャンパス (仙台市) (2010年9月20日~2010年9月22日)
- 3) 李振風, 鎌形清人: 「第48回 日本生物物理学会年会 シンポジウム「一分子生物物理学とシステムバイオロジーのかけ橋: 実験家と理論家の挑戦」」, 東北大学川内キャンパス (仙台市) (2010年9月20日~2010年9月22日)
- 4) 小松崎民樹: 「第10回日本蛋白質科学会年会」, 札幌コンベンションセンター (札幌市) (2010年6月16日~2010年6月18日)

4.9 共同研究

a. 海外機関との共同研究

- 1) 小松崎民樹, National Institute of Health (NIH) との共同研究: 「生体系の複雑性と多様性の解明を目指した一分子計測解析手法の確立」, 2010年度、物質・デバイス領域共同研究拠点経費、NIH の I.V. Gopich 研究員との、「生」の観測データから背後に存在する多次元自由エネルギー地形などを再構成する汎用な解析基盤開発に関する研究。
- 2) 小松崎民樹, 李振風, 寺本央, 清一人 (北海道大学), 高橋聡, 鎌形清人, 小井川浩之 (東北大学), カリフォルニア大学バークレー校との共同研究: 「生体系の複雑性と多様性の解明を目指した一分子計測技術の創生」, 2009~2010年度、二国間交流事業、米国側メンバーである H. Yang および I.V. Gopich (NIH) らと一分子生物学と機能原理に関する共同研究を実施し、人的交流を図る。
- 3) 小松崎民樹, ミュンスター大, プリンストン大との国際共同研究: 「Dynamical coordination in a multi-domain, peptide antibiotic mega-synthetase」, 2010~2013年度、国際ヒューマン・フロンティア・サイエンス・プログ

ラム、H. Mootz (ミュンスター大)、H. Yang (プリンストン大) とマルチドメインをもつペプチド抗生巨大合成酵素における動的協調現象に関する共同研究を実施し、人的交流を図る。

- 4) 小松崎民樹、李振風 (北海道大学)、Radboud University (オランダ)、Katholieke Universiteit Leuven (ベルギー) との共同研究: 「Dynamic Disorder in Single Enzyme Experiments」、2010年度～、Kerstin Blank (オランダ)、Johan Hofkens (ベルギー) らと一分子実験における Dynamic disorder に関する解析研究を実施し、人的交流を図る。

b. 所内共同研究

- 1) 小松崎民樹 (電子科学研究所): 「プロジェクト研究 A」、2008～2010年度、電子研-リヨン高等師範学校との共同研究。

d. 受託研究

- 1) 西村吾朗 (独立行政法人 科学技術振興機構): 「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 (北海道工業試験所)」、2009～2011年度、肉類からの自家蛍光を用いた、劣化および異物評価のためのデータの取得システムの開発と、基礎データの計測。

4.10 予算獲得状況

a. 科学研究費補助金

- 1) 李振風、特定領域研究、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
- 2) 李振風、基盤研究 C、単一ドットのブリッキング機構の解明・制御に向けた新しい解析理論の開発、2009～2011年度
- 3) 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) 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

d. 奨学寄附金

- 1) T. Komatsuzaki (国際ヒューマン・フロンティア・サイエンス・プログラム推進機構): “Dynamical coordination in a multi-domain, peptide antibiotic mega-synthetase”, 2010～2013年度、日本語題目: マルチドメインをもつペプチド抗生巨大合成酵素における動的協調現象。H. Mootz (ミュンスター大)、H. Yang (プリンストン大) との共同研究。

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～2010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～2012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～2012年3月31日)
- 3) 西村吾朗: 日本生物物理学会分野別専門委員 (2010年1月1日～2010年12月31日)
- 4) 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: 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)
- 3) 李振風: 北海道大学数学連携センター 兼任准教授 (2009年11月1日～現在)

d. 受賞

- 1) 河合信之輔: 第5回PCCP賞受賞「Extracting an Essential Coordinate to Describe the Chemical Reaction of Large Systems」英国王立化学会 (2011年3月)
- 2) 永幡裕: 「さきがけ数学塾 応用数学と物理学の協働～作ってみよう数理モデル・動かしてみよう数理モデル～」優秀賞受賞 (2010年3月)

f. 外国人研究者の招聘 (氏名、国名、期間)

- 1) Prof. Petra Hellwig, Université de Strasbourg, France (2010年7月27日)
- 2) Dr. Irina V. Gopich (Laboratory of Chemical Physics, National Institute of Diabetes and Digestive and Kidney Diseases, National Institutes of Health) (2010年9月19～25日)

g. 北大での担当授業科目

- 1) 全学共通、英語演習 (上級) Introduction to Time Series Analysis with Applications to Real Complex Systems、李振風、2010年10月1日～2011年3月31日
- 2) 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、2010年7月7日～2010年7月9日
- 3) 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、2010年7月7日～2010年7月9日
- 4) 全学共通、一般教育演習 (フレッシュマンセミナー) 情報理論入門、寺本央、2010年4月1日～2010年9月30日
- 5) 全学共通、一般教育実習 (フレッシュマンセミナー) 解析力学入門、寺本央、2010年10月1日～2011年3月31日
- 6) 全学共通、環境と人間、小松崎民樹、2010年4月1日～2010年9月30日

- 7) 全学共通、基礎化学、小松崎民樹（寺本央 3/15担当）
2010年4月1日～2010年9月30日
- 8) 生命科学院、生命情報分子科学特論、小松崎民樹、2010
年4月1日～2010年9月30日
- 9) 生命科学院、生命分子科学概論、小松崎民樹、2010年4
月1日～2010年9月30日
- 10) 生命科学院、分子情報解析学特論、小松崎民樹、2010
年4月1日～2010年9月30日
- 11) 生命科学院、生命科学論文購読、小松崎民樹、2010年4
月1日～2010年9月30日
- 12) 生命科学院、生命科学実習、小松崎民樹、2010年4月1
日～2010年9月30日
- 13) 生命科学院、生命科学研究、小松崎民樹、2010年4月1
日～2010年9月30日
- 14) 生命科学院、生命科学特別研究、小松崎民樹、2010年
10月1日～2010年03月31日
- 15) 数学基礎研究III、李振風、2010年4月1日～2010年9月30
日
- 16) 数学基礎研究IV、李振風、2010年10月1日～2011年3月
31日
- 17) 数学研究、李振風、2010年4月1日～2011年3月31日

i. ポスドク・客員研究員など

- 1) 博士研究員 馬場昭典（2007. 10～2010.9）
- 2) 日本学術振興会特別研究員 河合信之輔（2008.4～
2011.3）
- 3) 博士研究員 伊藤正寛（2009.6～）
- 4) 博士研究員 Mesfin Asfaw Taye（2009.7～2010.10）

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～）

助 教 新井由之（阪大院、理博、2010.4～）

助 教 松田知己（阪大院、理博、2008.4～）

博士研究員 中野雅裕

DC2 張 郁芬

MC2 木村太郎

MC1 張 紀沢

BC4 福田憲隆

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) 世界最高の検出感度をもつカルシウムイオンセンサー「カメレオン-Nano」の開発

緑色蛍光タンパク質 (GFP) に代表される蛍光タンパク質は、細胞や生体分子を蛍光ラベルする用途としてだけではなく、細胞内の酵素の活性化やイオンの濃度変化などを計測するための分子センサーとして、医学・生物学研究に広く用いられている。

カメレオンは遺伝子工学技術を用いて GFP をもとに開発された蛍光タンパク質であり、細胞内の信号伝達を担う Ca^{2+} をリアルタイムに検出するセンサーとして利用されてきた。これまでにカメレオンをはじめとして、幾つかの Ca^{2+} センサーが蛍光タンパク質の改変や化学合成により開発されてきたが、従来の Ca^{2+} センサーは感度が低いため、自発的な生命活動に伴う僅かな Ca^{2+} の濃度変化を計測することは難しく、これを可能にする高感度センサーの開発が求められていた。我々、はカメレオンの Ca^{2+} 結合領域を新奇の方法で改変することにより、 Ca^{2+} に対する結合力を飛躍的に向上させ、超高感度 Ca^{2+} センサー「カメレオン-Nano」の開発に至った。カメレオン-Nano の Ca^{2+} との結合力はこれまでに開発された Ca^{2+} センサーの中で最も強く、世界最高の感度（解離定数 $K_d=15\text{ nM}$ ）を有している。 Ca^{2+} 結合領域を微調節することで Ca^{2+} との結合力を変えたセンサーも5種類開発し、センサーのシリーズ化も実現した。

これらの超高感度 Ca^{2+} センサーを用いることで、大脳皮質の神経活動を高感度に検出することが可能になっただけでなく、生きた動物個体内における神経ネットワークやこれに制御される筋肉組織の活動パターンの両方を同時計測することに成功するなど、従来の Ca^{2+} センサーでは検出できなかった現象を捉えることが可能になった。細胞内 Ca^{2+} 変動の異常はてんかん発作や躁うつ病、循環器疾患など様々な疾患に関連することが明らかになっており、細胞内 Ca^{2+} 変動をきわめて鋭敏に検出できるカメレオン-Nanoを用いることで、より多くの疾病の原因究明やより効果的な創薬スクリーニングが期待される。

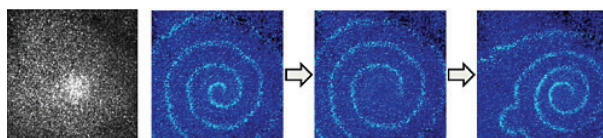


図1. カメレオン-Nano で捉えることに成功した、細胞性粘菌の集合流形成時における細胞間を伝達するシグナル螺旋波画像の一边は2mm。白黒画像は細胞性粘菌の蛍光画像でもっとも輝度の高いところが集合中心。カラー画像は10分毎の Ca^{2+} 動態。水色が Ca^{2+} 濃度の高いところを示す。

- (b) バイオイメージングのための発光タンパク質を用いた機能指示薬の開発

蛍光タンパク質間の蛍光共鳴エネルギー移動 (FRET) を利用した蛍光指示薬開発は細胞の機能可視化に不可欠な技術になっている。その一方で、生物発光イメージングは励起光を必要としないため蛍光イメージングの苦手とする自家蛍光や光に対する反応性の高い生体試料に有効であると考えられているものの発光強度が弱いことを理由にこれまで開発が遅れてきた。生物界では、蛍光蛋白質を持つオワンクラゲやウミシイタケ *Renilla reniformis* などの海洋生物が、励起状態にある発光蛋白質-基質複合体 (ドナー) から蛍光分子 (アクセプター) に無輻射的にエネルギー移動を起こさせてアクセプターから蛍光を発生させる生物発光共鳴エネルギー移動 (BRET) を発光に利用しており、BRET によって生物発光に使われず熱散逸してしまうエネルギーを蛍光エネルギーに換える事で全体の発光量を増強している事が古くから示唆されていた。本研究では、この BRET を利用した指示薬作成技術を用いて、蛍光イメージングの弱点を克服する生物発光性 Ca^{2+} 指示薬の開発を行った。

発光タンパク質 *Renilla Luciferase* (RLuc) と蛍光タンパク質 *Venus* を BRET のドナー・アクセプターとして用いて、両者を Ca^{2+} 結合に伴い構造が変化するタンパク質、カルモジュリン (CaM) とその標的ペプチド M13 ペプチドを繋いで作製したコンストラクトの中から最大の Dynamic Range (60%) を持つものをスクリーニングにより選択し BRAC と名付けた。BRAC は解離定数 (K_d 値) $1.9\text{ }\mu\text{M}$ で生理的 pH 環境下においては安定した応答を示すことがわかった。BRAC を発現させた HeLa 細胞に対してヒスタミン刺激を加えたところ、これまでに開発されてきた発光性の Ca^{2+} 指示薬では追従できなかった数十秒周期での Ca^{2+} 振動を観

察する事ができた。さらに、植物(シロイヌナズナ)においても、病原性細菌の感染後90分後に Ca^{2+} が感染部位において防御的応答のためのシグナルとして作用している事がBRACを使用することで示された(図2)。

BRACは発光性でありながら、数十秒の Ca^{2+} 振動を観察することができ、これまでに無い画期的なセンサーとしての使用が期待される。

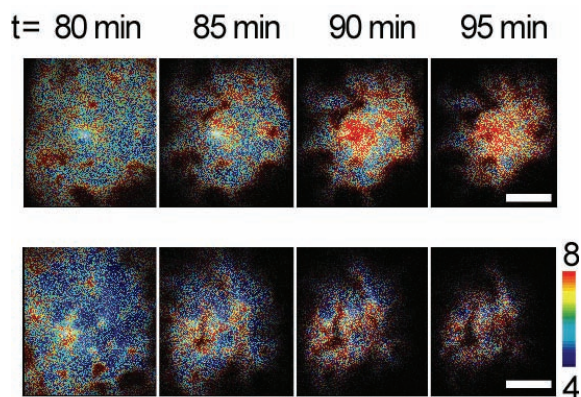


図2. シロイヌナズナ感染部位における Ca^{2+} イメージング。上段は感染抵抗性を示す細菌を感染した葉、下段は感染非抵抗性を示す細菌を感染した葉。青→赤の擬似カラーを Ca^{2+} 濃度に割りあてて表示している。

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。その為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) K Horikawa, Y Yamada, T. Matsuda, K. Kobayashi, M. Hashimoto, T. Matsu-ura, A. Miyawaki, T. Michikawa, K. Mikoshiba and T. Nagai: “Spontaneous network activity visualized by ultrasensitive Ca^{2+} indicators, yellow Cameleon-Nano.”, *Nature Methods*, 7: 729-732. (2010)
- 2) K. Saito, M. Hatsugai, K. Horikawa, K. Kobayashi, T. Matsu-Ura, K. Mikoshiba and T. Nagai: “Auto-luminescent genetically-encoded ratiometric indicator for real-time Ca^{2+} imaging at the single cell level.”, *PLoS ONE*, 5: e9935, (2010)
- 3) 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)
- 4) 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 Ca^{2+} indicator in anesthetized and freely moving mice.”, *Frontiers in Neural Circuit*, 4: 1-12 (2010)
- 5) 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)

4.2 総説、解説、評論等

- 1) 永井健治:「なぜなぜ生物学」、日本分子生物学会: 第十二章: 153-167 (2010)
- 2) 永井健治:「1枚の写真館 幼名と改名」、細胞工学、29: 843 (2010)
- 3) 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、神原秀記、松永是、植田充美 監修(分担執筆)、シーエムシー出版、第一章: 61-69 (2010)
- 4) 永井健治:「蛍光タンパク質エンジニアリングによるバイオイメージング技術の進展」、レーザー研究、38: 416-420 (2010)
- 5) 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)

4.5 講演

a. 招待講演

i) 学会

- 1) Nagai T: “Development of ultrasensitive Ca^{2+} indicators, yellow cameleon nano”, *BiOS SPIE Photonics West*, San

- francisco, USA (2011-01)
- 2) Nagai T: “Imaging and manipulation of biomolecule using engineered fluorescent and chemiluminescent proteins”, 第33回日本分子生物学会年会・第83回日本生化学会大会合同大会(BMB2010), 神戸市 (2010-12)
 - 3) T. Nagai: “Toward invention of high performance genetically-encoded luminescent probes for functional imaging in living organisms.”, Sociedad Mexicana de Bioquímica XXXV Congreso, Tuxtla, Mexico (2010-11)
 - 4) T. Nagai: “Fluorescent and Bioluminescent Proteins Engineered for Visualizing Biological Function in Living Cells”, The 22nd Annual Meeting of Korean Society for Molecular and Cellular Biology, Seoul, Korea (2010-10)
 - 5) 永井健治:「蛍光・化学発光タンパク質によるバイオイメージング技術の動向と展望」、第2回 Bio Opto Japanカンファレンス、横浜 (2010-09)
 - 6) 永井健治:「光遺伝学的手法との併用を可能にする持続的自励発光型 Ca^{2+} 指示薬」、生理学研究所 研究会、岡崎市 (2010-09)
 - 7) T. Nagai: “A Novel Way to Expand the Dynamic Range of Genetically-encoded FRET-based Indicators”, Bio Korea 2010, Seoul, Korea (2010-09)
 - 8) 永井健治:「蛍光・化学発光タンパク質の基礎と応用」、浜松医科大学第19回メディカル・ホトニクスコース、浜松市 (2010-08)
 - 9) 永井健治:「結晶構造情報に基づく蛍光タンパク質の改変とその生物学的応用」、第10回日本蛋白質科学会年会、札幌市 (2010-06)
 - 10) T. Nagai: “A Novel Way to Expand the Dynamic Range of Genetically-encoded FRET-based Indicators”, International Symposium for the Bio Imaging and Cell Dynamics, 光州, Korea (2010-05)
 - 11) 永井健治:「「改変蛍光タンパク質による神経機能の可視化と操作」、重点共同利用研究研究会－ニューロンのネットワーク構築における細胞極性の生物学的意義－、基礎生物学研究所・岡崎 (2010-04)
- ii) 研究会**
- 1) T. Nagai: “Toward invention of high performance genetically-encoded luminescent probes for functional imaging in living organisms”, International Symposium on Photonic Bioimaging 2011, ニセコ (2011-02)
 - 2) Y. Arai: “Conformational fluctuations of Ras revealed by single molecule fluorescence resonance energy transfer.”, ISSMA, Kyoto International Conference Center (2011-01)
 - 3) 新井由之:「手作り全反射照明顕微鏡」、第3回定量生物の会年会、東京大学 (2010-11)
 - 4) 永井健治:「蛍光・化学発光イメージング技術の現状と展望」、第36回生体エネルギー研究会、吹田市 (2010-11)
 - 5) T. Nagai: “1) Wonderful gifts from light-emitting jelly fish-Green Protein and Aequorin 2) How to Engineer fluorescent proteins to develop high performance indicators for biological functions.”, 3rd Advanced Bio-Imaging Workshop, Sydney, Australia (2010-11)
 - 6) T. Nagai: “Toward Elucidation of Biological Enigma by Genetically-encoded Molecular Spies”, 新学術領域「システム分子行動学」イメージングワークショッププログラム、福岡市 (2010-08)
 - 7) 永井健治:「光による分子機能コントロール」、平成22年度レーザー顕微鏡研究会、和光市 (2010-07)
 - 8) 永井健治:「蛍光・化学発光タンパク質技術の展望」、次世代生命科学研究会「次世代の生命科学に必要な技術とは」、淡路市 (2010-06)
 - 9) 永井健治:「先端的バイオセンシング技術-蛍光タンパク質間 FRET 法の新たな展開」、10th symposium of Gene & Drug Delivery、北海道大学 (2010-06)
 - 10) 永井健治:「神経細胞の機能イメージング、何をどこまで可視化できるようになっているのか」、平成21年度基礎生物学研究所神経細胞研究会、岡崎市 (2010-04)
- iii) コロキウム・セミナー・その他**
- 1) T. Nagai: “How to engineer fluorescent proteins to construct high performance FRET-based indicators for biological functions”, Chemistry Seminar, Chemistry Gazebo, Department of Chemistry, Stanford University, USA (2011-01)
 - 2) 永井健治:「新規発行・蛍光タンパク質プローブ開発の現状と生命現象解明における応用例の紹介」、アスビオフォーマ株式会社セミナー、神戸市 (2010-11)
 - 3) 永井健治:「バイオイメージング技術の現状と展望」、癌研セミナー、有明 (2010-09)
 - 4) 永井健治、堀川一樹、新井由之:「蛍光・化学発光性生理機能指示薬の開発」、次世代の生命科学に必要な技術についての打ち合わせ、大崎市 (2010-08)
- b. 一般講演**
- i) 学会**
- 1) T. Nagai and K. Saito: “Auto-luminescent genetically-encoded ratiometric indicator for real-time Ca^{2+} imaging at the single cell level”, ECS 2010 Warsaw, Warsaw, Poland (2010-09)
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ**
- 1) 新井由之:「イノシトールリン脂質代謝系の自己組織化ダイナミクス」、文部科学省「物質・デバイス領域共同研究拠点」複雑系数理とその応用に関するシンポジウム、北海道大学電子科学研究所 (2010-11)
- 4.6 特許**
- ・国内特許
- 1) 永井健治、松田知己、福田憲隆: 特願2011-020234、光駆動カルシウムイオン制御タンパク質、北海道大学、特願2011-020234

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) 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、2009～2012年度
- c. 大型プロジェクト・受託研究
- 1) 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
 - 2) 永井健治、内閣府 最先端研究開発プログラム、超高感度に微量な生体分子を解析するための蛍光蛋白質プローブの開発、2010～2013年度
 - 3) 永井健治、(独)新エネルギー・産業技術総合開発機構、新しい原理に基づく吸収増幅顕微鏡の開発と生物研究応用、2010～2013年度
 - 4) 永井健治、内藤財団研究助成、生物の熱産生メカニズムの解明-レシオメトリック蛍光温度プローブの開発と熱産生の可視化による解析-、2009～2010年度
 - 5) 永井健治、住友財団研究助成、生物の熱産生メカニズムの解明、2009～2010年度
 - 6) 新井由之、川合最先端プロジェクト若手研究、金属増強効果による細胞膜上蛍光タンパク質分子1分子レベルの可視化解析、2010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) 永井健治：社団法人 レーザー学会 専門委員会委員（2009年9月1日～2012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) 生命科学院、生命融合科学概論、永井健治、2010年5月27日
- 2) 理学部、生物高分子科学、永井健治、2010年6月30日
- 3) 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、2010年7月9日
- 4) 理学部、実験生物科学、永井健治・松田知己・新井由之、2010年10月1日～2011年1月28日
- 5) 理学院・生命科学院、細胞機能科学特論（細胞システム生理学）、永井健治・新井由之、2010年10月6日～2010年10月27日
- 6) 全学総合科目、環境と人間、永井健治、2010年11月24日

i. ポスドク・客員研究員など

- ・ポスドク（1名）

- 1) 中野雅裕（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（1名）

- 1) 木村太郎：ルシフェラーゼの可逆的構成と高効率エネルギー移動を原理とする新規 cATP 指示薬 PKAchu の開発と細胞内 cAMP 動態の可視化（2011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～）

博士研究員

齋藤宗孝、岩田友紀子、渡辺毅、矢留雅亮

院 生

・博士課程 関坂歩幹、西 慧

・修士課程 飯島悠宇、川上剛広、新堂巧也、
中筋真生、前田太朗

・研究生 高 志軍

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ことを試みる。平成21年度は不均一媒質における一般化FitzHugh-Nagumo方程式の挙動、回転流体系における流れの大域構造ダイナミクスに関する決定論性の推定、機能的ネットワーク力学系の設計等を主目標においた。

2. 研究成果

(a) 不均一媒質における一般化FitzHugh-Nagumo方程式の挙動

反応拡散系の波は神経伝搬パルス、BZ反応などにおいて良く知られているが、実際の系においては、しばしば媒質の不均一性(Heterogeneities)がそのダイナミクスに大きな影響を与えることが知られている。標的波や螺旋波の生成中心は特異点であるが、それらは不均一性に起因することが多い。心臓の収縮・弛緩を制御するのも同じような波であるが、媒質の不均一性により細動とよばれる乱れた状態になると、それは死に至る原因となることもある。一方でそのような不均一性を波のダイナミクスの制御にうまく利用するという事も考えられる。方向性をもつ波を作ったり、波の生成や消滅を不均一性から編み出したりすることもできる。それらを効果的に行うには、まず最も単純なジャンプやバンプ（凸凹）という不均一性の場合に波がどう振る舞うか調べておく必要がある。本年度は、一般化されたFitzHugh-Nagumo方程式という3種反応拡散系のフロント解及びパルスがジャンプ型のヘテロ媒質を伝搬する際のダイナミクスを調べた。とくにピンニング(pinning)とよばれる現象、すなわち波がそのジャンプ点にひっかかり、停止、

あるいはそこで局在振動する現象を数学的に検証した。同時に数値実験によりより広いパラメータ領域における振る舞いを調べた。同時に次のことが厳密に証明された。ジャンプの飛びの高さが十分小さく、ジャンプ点の前後でのフロント解の速度の向きが共にジャンプ点に向かうようになっていれば、ピンニングが起きる。さらにそのような停止する定常解の存在と安定性についても、数値実験と合致する結果が得られた。一般に空間に不均一性が入ると、平行移動不変性が失われ、結果として不変性から来る零固有値が不均一性の導入によりどのように振る舞うかが安定性の判定に大きく影響する。また様な定数状態は存在しなくなり、代わりに非定数の背景解が左右の無限遠の定数状態をつなぐ解として現れる。図1は3つのフロント解がダッシュ印の位置にあるジャンプ点に遭遇する際の振る舞いを数値的に調べたものである。いずれの場合もピンニングが生じている。

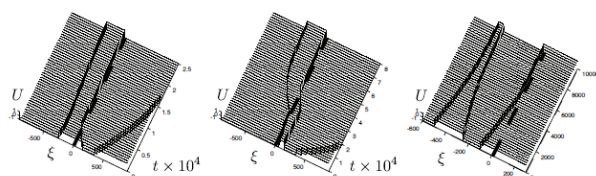


図1. 3つのフロント解のジャンプ点近傍での振る舞い。ダッシュ線はジャンプ点が存在する位置を表す。初期条件、パラメータ値は異なるがいずれの場合もピンニングが生じている。横軸は空間、縦軸は時間である。

(b) 回転流体系における流れの大域構造ダイナミクスに関する決定論性の推定

流体現象における流れの層流-乱流遷移は円管内の流れや平板クエット流れにおいては乱流の空間局在構造がまず観測されることが多いが、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]が報告されている。このスイッチング現象は流れの層流-乱流遷移と密接に関係しており、時間的に局在した遷移と考えることができる。この遷移ダイナミクスを記述する時、決定論的記述と統計的記述のどちらが有効であるかは明らかではなかった。そこでWaylandにより提案された手法を用いて水高時系列データの解析を行い、決定論性の度合いを測った。その結果、遷移ダイナミクスは少数自由度カオスではないが完全に統計的ではないという結果を得た。この結果は遷移ダイナミクスの記述が既存の枠組みから離れていることを示唆する。

(c) 機能的ネットワーク力学系の設計

ニューロンなどの多くのシステムは力学素子が複雑に相互作用し機能的な振る舞いをしている。この相互作用ネ

ネットワークを機能的に設計することは組み合わせ論の観点から困難である。我々は機能的ネットワークをマルコフ連鎖モンテカルロ法により設計する方法を提示して、実際に構成した機能的ネットワークの統計的性質を議論した。ここで用いたモデルは数理解析が進んでいるネットワーク結合した位相振動子である。素子間の相互作用数が十分にある場合には、このシステムは位相同期する事が知られているが、疎結合なランダム・ネットワークでは同期できない。しかしながら、ネットワーク構造を上手に設計する事により、疎結合の位相振動子集団（ニューロン）がより“同期しやすい”ネットワークの設計することができる。また、このような同期最適なネットワークは結合率（振動子間の相互作用数）の増加に伴いその構造が転移する現象を見出した。詳しいネットワークの解析により、この転移は、線形結合から二部グラフ的構造であることを明らかにした。

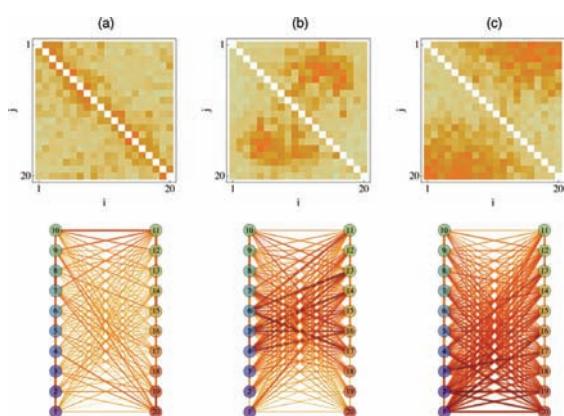


図2. マルコフ連鎖モンテカルロ法により設計された振動子間の結合ネットワーク。(a) 結合密度が少ない場合の同期度を最適化するネットワーク構造。自然振動子数が近い素子が結合する確率が高い（似たもの同士が結合する方が全体として同期度を高める）。(b),(c) 結合度の増加に伴い振動数の異なる素子同士の結合頻度が増加し、十分な結合がある場合にはより異なる振動数を持つ素子の結合が全体としての同期度を高める。

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) 散逸系の波に対して不均一性(Heterogeneities)あるいはパラメータの空間依存性がどのような影響を及ぼすかに

ついては、これまで多くの研究がある。大きく分けて拡散係数が空間依存する場合と反応項が依存する場合とがある。前者は空間領域サイズが変化する場合と実質的に同じであり、領域が広がったり狭まったりすることが波の伝搬にどう影響するのかという議論になる。後者は伝搬する媒質の環境が変化する場合であり、化学反応系や生命系に現れる問題ではこちらが重要となることが多い。2節で述べたようにフロント解、パルス解がジャンプ型より一般の不均一性、すなわち周期型やランダムなヘテロに遭遇した際の振る舞いは当然考慮すべき問題となる。さらにこれらは常微分方程式系に縮約することができるので、数学的に厳密な結果を得ることも可能となる。より興味ある問題として、不均一性が全く新たなダイナミクスを生み出す可能性があるかどうかという疑問である。最近反応項にジャンプ型の飛びがあると、そこから自発的にパルス波が生成されることが発見され、パラメータの値により、時間周期的からカオスの生成まで多彩なダイナミクスを示すことがわかってきた。これはこれまでのパルスが不均一性に衝突してその振る舞いがどう変化するのかと全く異なる問題であり、その数学解析と種々の応用が期待されている。

(b) 自然の特徴は階層的構造である。その分離が可能である場合はより細かいスケールの階層をノイズとして扱い、考えている階層でのダイナミクスで記述することができるであろう。しかし、その分離が困難な場合、考えている階層をどう記述すれば良いのかは明らかではない。本年度の研究成果では、回転流体系の大域構造の記述を題材としてこのような系の例を解析した。完全に統計的な記述でも少数自由度での記述でも不十分であるという結果は、階層構造を持つ系の適切な記述に関する具体例となることが考えられる。

(c) 一般に測度の小さい稀な構造を求める事は困難であるが、マルコフ連鎖モンテカルロ法を応用して、力学系における“稀な軌道”を求める簡便な数値解析手法を開発した。この手法を自由度の大きな動力学に適用して化学反応やタンパク質の折りたたみ過程を力学系の不変集合の観点から理解することを試みる。また、今後の重要なテーマとして、力学系の制御およびデザインの問題がある。これまで力学系研究は所与されたシステムの性質の解析が主流であったが、我々はモンテカルロ法による機能的設計が可能であり、その機能的システムの統計的特徴や普遍的性質を示した。このような機能力学系のデザインは未踏領域であり、様々な応用が考えられる。化学反応やタンパク質の折り畳みを力学過程と見れば、それらを制御し、より反応し易い分子構造を探し出す、言わば「発展方程式の機能的デザイン」が重要なテーマとなろう。マルコフ連鎖モンテカルロ法をパラメータ空間に拡張した数値解法は、最適な機能力学構造を探索し、その数理構造を明らかにできると考える。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) T. Watanabe, K. Toyabe, M. Iima and Y. Nishiura: “Time-periodic traveling solutions of localized convection cells in binary fluid mixture”, *Theoretical and Applied Mechanics Japan*, 59: 211-219 (2011)
- 2) Y. Nishiura and T. Teramoto: “Collision dynamics in Dissipative Systems”, *Theoretical and Applied Mechanics Japan*, 59: 13-25 (2011)
- 3) K. Ueda, S. Takagi, Y. Nishiura and T. Nakagaki: “Mathematical model for contemplative amoeboid locomotion”, *Physical Review E*, 83(2) (2011)
- 4) M. Iima, Y. Iijima, Y. Sato and Y. Tasaka: “A time-series analysis of the free-surface motion of rotational flow”, *Theor. Appl. Mech. Jpn.*, 59: 187-193 (2011)
- 5) P. V. Heijster, A. Doelman, T. J. Kaper, Y. Nishiura and K. Ueda: “Pinned fronts in heterogeneous media of jump type”, *Nonlinearity*, 24(1): 127-157 (2010)
- 6) T. Konishi and T. Yanagita: “Slow relaxation to equipartition in spring-chain systems”, *Journal of Statistical Mechanics*, IOP Publishing Ltd and SISSA, 9(P09001): 1-15 (2010)
- 7) T. Teramoto and Y. Nishiura: “Morphological characterization of the diblock copolymer problem with topological computation”, *Japan Journal of Industrial and Applied Mathematics*, 27(2): 175-190 (2010)
- 8) T. Yanagita and A. S. Mikhailov: “Design of easily synchronizable oscillator networks using the Monte Carlo optimization method”, *Physical Review E*, 81: 056204-056212 (2010)
- 9) 西浦廉政、寺本敬:「砂漠化問題のバスタブモデル」、数理科学、サイエンス社、48(5): 70-77 (2010)

4.2 総説・解説・評論等

- 1) 西浦廉政、荒井迅、坂上貴之、水藤寛、蓮尾一郎:「越境する数学: JST「数学と諸分野の協働によるブレークスルーの探索」領域さがけ1期生と研究総括による座談会」、数学セミナー(2011年2月号): 50-56 (2011)
- 2) 西浦廉政:「インキュベータとしてのJST数学領域」、数学通信、日本数学会、15(4): 47-51 (2011)
- 3) 西浦廉政:「数学がいま期待されていること」、数学セミナー、日本評論社、49(7): 8-13 (2010)
- 4) 渡辺毅、鳥谷部和孝、飯間信、西浦廉政:「二成分混合流体対流に現れる様々な流れとその性質」、第59回理論応用力学講演会講演論文集、創泉堂出版: 167-168 (2010)
- 5) 佐藤譲、飯間信、田坂裕司:「回転流体系実験時系列からのランダム力学系の抽出」、第59回理論応用力学講演会講演論文集、創泉堂出版: 145-146 (2010)
- 6) 飯間信、飯島悠宇、佐藤譲、田坂裕司:「回転流体にお

ける自由表面の遷移動力学の解析」、第59回理論応用力学講演会講演論文集、創泉堂出版: 143-144 (2010)

- 7) 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)

4.3 国際会議議事録等に掲載された論文

- 1) 田坂裕司、飯間信、佐藤譲:「回転流体自由界面の不規則スイッチングにおける底面-側壁ギャップの影響」、日本流体力学会年会2010拡張要旨集 (2010)
- 2) 飯間信:「3次元空間における空中停止飛行の理論解析」、日本流体力学会年会2010拡張要旨集 (2010)
- 3) 渡辺毅、鳥谷部和孝、飯間信、西浦廉政:「二成分混合流体対流における漸近挙動:局在構造の自発的発現と集団運動」、日本流体力学会年会2010拡張要旨集 (2010)

4.4 著書

- 1) 西浦廉政:「生成・伝搬・崩壊のパターンダイナミクス」、現代界面コロイド科学の事典、丸善株式会社、(書籍 ISBN 978-4-621-08256-0): 264-266 (2010)

4.7 講演

i) 学会

- 1) 柳田達雄:「マルコフ連鎖モンテカルロ法による機能力学系の設計〜アクティブ・タッチ・センサーの設計とダイナミクス」、日本物理学会 第66回年次大会、新潟大学 (2011-03)
- 2) 小西哲郎、柳田達雄:「3次元中の強束縛ひも状態と末端の特異な運動」、日本物理学会 第66回年次大会、新潟大学 (2011-03)
- 3) M. Iima* and A. Mikhailov: “Analytical model of a butterfly micro-swimmer”, 63th Annual Meeting of the Division of Fluid Dynamics(APS meeting), Long Beach, USA (2010-11)
- 4) 飯間信*:「はばたき飛翔と遊泳の数理解析」、日本機械学会第88期流体工学部門講演会、米沢 (2010-10)
- 5) 小西哲郎*、柳田達雄:「3次元中の強束縛ひも状態の末端異常」、日本物理学会2010年秋季大会、大阪府立大学中百舌鳥キャンパス (2010-09 ~ 2010-12)
- 6) 西浦廉政*:「遷移ダイナミクスにおける不安定性の思想」、2010 日本数学会 秋季総合分科会、名古屋大学 (2010-09)
- 7) 飯間信*:「3次元空間における空中停止飛行の理論解析」、日本流体力学会年会2010、札幌 (2010-09)
- 8) 渡辺毅*、鳥谷部和孝、飯間信、西浦廉政:「二成分混合流体対流における漸近挙動:局在構造の自発的発現と集団運動」、日本流体力学会年会2010、札幌 (2010-09)
- 9) 田坂裕司*、飯間信、佐藤譲:「回転流体自由界面の不規則スイッチングにおける底面-側壁ギャップの影響」、日本流体力学会年会2010、札幌 (2010-09)

- 10) 渡邊毅*, 鳥谷部和孝, 飯間信, 西浦廉政: 「二成分混合流体対流に現れる様々な流れとその性質」, 第59回理論応用力学講演会, 東京 (2010-06)
- 11) 西浦廉政*: 「散逸系における衝突の世界」, 第59回理論応用力学講演会, 日本学術会議 (東京都港区) (2010-06)
- 12) 飯間信*, 飯島悠宇, 佐藤譲, 田坂裕司: 「回転流体における自由表面の遷移動力学の解析」, 第59回理論応用力学講演会, 東京 (2010-06)
- 13) Y. Nishiura* and T. Teramoto: “Rotational Motion of Traveling Spots in Dissipative Systems”, SIAM DSPDEs’10 –Emerging Topics in Dynamical Systems and Partial Differential Equations–, Barcelona, Spain (2010-05 ~2010-06)
- 14) 柳田達雄*, ミハイロフ アレキサンダー: 「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 (2010-3~2010-11)
- 15) M. Saito*: “Impacts of Team Size on Role Learning in Multiagent Systems”, IASTED International Conference ARTIFICIAL INTELLIGENCE AND APPLICATIONS, Innsbruck, Austria (2008-02)
- 16) M. Saito* and Y. Oyama: “Economy-Like Reward Distribution for Division of Labor”, IASTED International Multi-Conference ARTIFICIAL INTELLIGENCE AND APPLICATIONS, Innsbruck, Austria (2006-02)
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
 - 1) 渡邊毅*, 飯間信, 西浦廉政: 「2 相対流における衝突と漸近挙動」, 附置研究所間アライアンスによる 「ナノとマクロをつなぐ物質・システム創製戦略プロジェクト」 平成22年度成果報告会, 仙台 (2011-03)
 - 2) 西浦廉政*: 「合体・消滅・分裂の数理」, 第9回 HSS ワークショップ, 北海道大学創成科学研究棟 (2011-02)
 - 3) M. Iima*: “Numerical simulation and mathematical analysis of flapping flight problem”, International Symposium on Computational Science, Kanazawa (2011-02)
 - 4) 柳田達雄*: 「モンテカルロ法による機能力学系の設計〜アクティブ・タッチ・センサー設計のこころみ〜」, ニューロコンピューティング研究会, 北海道大学 百年記念会館 (2011-01)
 - 5) Y. Nishiura*: “Dynamics of spatially localized patterns”, Far-From-Equilibrium-Dynamics, 京都大学数理解析研究所 (2011-01)
 - 6) 飯島悠宇*, 田坂裕司, 佐藤譲, 飯間信: 「回転流体系における自由表面の不規則スイッチング現象の決定論性の推定」, 2010年度応用数学合同研究集会, 瀬田 (2010-12)
 - 7) 飯間信*, 平井 規央, 泉田啓: 「アサギマダラ飛翔の2次元モデルにおける不安定飛行状態の役割」, 2010年度応用数学合同研究集会, 瀬田 (2010-12)
 - 8) 渡邊毅*, 中筋真生, 飯間信: 「物体後流に与えられた局在攪乱の成長ダイナミクス」, 2010年度応用数学合同研究集会, 瀬田 (2010-12)
 - 9) 小西哲郎*, 柳田達雄: 「鎖状多体系における末端部の活発な運動とゆっくりした緩和」, 2010年度 高分子計算機科学研究会・高分子ナノテクノロジー研究会合同討論会, 東京大学山上会館 (2010-12)
 - 10) 西浦廉政*: 「越境する数学—計算科学の果たす役割—」, 第24回 分子シミュレーション討論会, 福井県県民ホール (2010-11)
 - 11) 小西哲郎*, 柳田達雄: 「鎖状多体系のダイナミクス: 末端部の活発な運動とゆっくりした緩和」, 第24回分子シミュレーション討論会, 福井県県民ホール (2010-11)
 - 12) 西浦廉政*: 「ヘテロ媒質が生み出す自発的リズムと空間構造」, RIMS 研究集会 第7回 生物数学の理論とその応用, 京都大学数理解析研究所 (2010-11)
 - 13) 西浦廉政*: 「Localized waves in heterogeneous media」, 複雑系数理とその応用に関するシンポジウム, 北海道大学 電子科学研究所 (2010-11)
 - 14) Y. Nishiura*: “Dissipative Waves in heterogeneous media”, 「早稲田大学 非線形偏微分方程式研究所」設立研究集会, 早稲田大学 西早稲田キャンパス (2010-11)
 - 15) Y. Nishiura*: “Spot dynamics in heterogeneous media and its application to adaptive behaviors of the Physarum plasmodium”, Mini-Workshop on Modeling, Simulations and Analysis of Biological Pattern Formation, Heanel Sendai, Sendai, Miyagi (2010-10)
 - 16) Y. Nishiura*: “Oblique collisions and rotational motion of traveling spots”, Reaction-Diffusion Systems: Experiment, Modeling and Analysis, Orsay, France (2010-10 ~ 2010-11)
 - 17) Y. Nishiura*: “Spot dynamics and adaptive behaviors of the Physarum plasmodium”, Non-Linear Dynamics and Self-Organisation in Chemical Systems (NLDS Days), Bordeaux, France (2010-10)
 - 18) 飯間信*: 「円筒容器内の回転流れにおける自由表面の不規則スイッチング現象の動力学解析」, Kagoshima Workshop on Nonlinear & Nonequilibrium Dynamics, 鹿児島 (2010-10)
 - 19) 小西哲郎*, 柳田達雄: 「鎖状多体系の末端における活発な運動と遅い緩和」, 非線形波動現象の多様性と普遍性, 京都大学数理解析研究所 (2010-10)
 - 20) T. Yanagita*: “Design and Statistical Properties of Easily Synchronizable Oscillator Networks”, Emergence and Design of Robustness, IFISC, Palma de Mallorca, Spain (2010-09)
 - 21) Y. Nishiura*: “Transient dynamics revisited”, Long-term workshop: Mathematical Sciences and Their Applications, Hotel Rako Hananoi, Kamisawa, Nagano (2010-09 ~ 2010-10)
 - 22) Y. Nishiura*: “Transient dynamics revisited”, Interna-

- tional Workshop “Emerging Topics in Nonlinear Science”, Schloss Goldrain, Italy (2010-09)
- 23) T. Yanagita*: “Design and statistical properties of easily synchronizable oscillator networks”, International Workshop Emerging Topics in Nonlinear Science, ISchloss Goldrain, Italy (2010-09)
 - 24) T. Yanagita* and A. Mikhailov: “Statistical Characters of Synchronization-Optimized Oscillator Networks”, International Symposium on Nonlinear Theory and its Applications (NOLTA 2010), Krakow, Poland (2010-09)
 - 25) T. Yanagita*: “Design and Statistics of Easily Synchronizable Oscillator Networks”, Unwinding Complexity, Port Douglas, Australia (2010-07)
 - 26) 飯間信*: 「Hydrodynamics of micro-size swimmers」、附置研究所間アライアンス ナノマクロ物質・デバイス・システム創成戦略プロジェクト 平成22年度「環境調和材料・デバイス」PG分科会、札幌 (2010-07)
 - 27) T. Yanagita* and A. Mikhailov: “Design and Thermodynamic Properties of Easily Synchronizable Oscillator Networks”, New Frontiers in Complex Networks, Seoul National University, Seoul National University, Korea (2010-07)
 - 28) A. Oga, M. Iima, T. Teramoto*, A. Satake and Y. Nishiura: “Density gradient of florigen signals mediates diversity of inflorescence architectures: phloem transport model based on source-sink balance”, 21st International Conference on Arabidopsis Research, Yokohama (2010-06)
 - 29) 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)
 - 30) 飯間信*: 「蝶はなぜ飛ぶか ― 渦を用いた飛翔の数理構造 ―」、研究部会数理設計 第10回研究集会、名古屋 (2009-12)
 - 31) 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) T. Yanagita*: “動的素子網の機能的デザイン”, 待兼山コロキウム, 大阪大学サイバーメディアセンター (2010-11)
 - 2) T. Yanagita*: “ネットワーク結合した振動子集団の機能的デザイン”, 鷲尾研究室セミナー, 大阪大学産業技術研究所 (2010-11)
 - 3) M. Iima*: “Transport and mixing of chemicals inside a body of microorganism”, 中垣研究室セミナー, 函館 (2010-06)

- 4) 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)
 - 5) 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)
 - 6) 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)
 - 7) 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)
 - 8) 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)
 - 9) M. Iima*: “Hydrodynamical study of flapping models”, “Complex Nonlinear Processes in Chemistry and Biology”, Berlin, Germany (2009-07)
 - 10) 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)
 - 11) 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)
 - 12) 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」、非線型科学コロキウム、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)
 - 13) 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)
- 4.8 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) 西浦廉政: 「One-day workshop “不均一性と破壊をめぐって”」、北海道大学中央キャンパス電子科学研究所 (札幌) (2011年2月28日)
 - 2) 西浦廉政: 「拡がっていく数学～予兆の解明と数学～」、科学技術政策研究所会議室 (霧ヶ関ビル) (東京) (2011年2月19日)
 - 3) 西浦廉政: 「越境する数学」、東京大学弥生講堂・一条ホール (東京) (2011年2月16日)
 - 4) M. Iima, R. Kobayashi, M. Nagayama, S. Nii, T. Ogawa, H. Okamoto, T. Sakajo, H. Suzuki, T. Teramoto, K. Ueda, D. Ueyama and T. Yanagita: “Far-From-Equilibrium Dynamics 2011”, 100人, Kyoto (Kyoto) (2011年1月4日～2011年1月8日)
 - 5) 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) (2010年11月30日～2010年12月1日)
 - 6) 西浦廉政: 「数学の展開―諸分野との連携を探る」、東北大学理学部キャンパス (仙台市) (2010年11月26日～2010年11月28日)

- 7) Y. Nishiura, A. S. Mikhailov and H. Kori: “International Workshop “Emerging Topics in Nonlinear Science””, 26人, Schloss Goldrain (Goldrain Italy) (2010年9月12日～2010年9月18日)
- 8) 飯間信、高木正平、渡辺毅:「第一回 CREST 柴田チーム研究会」、18人、北海道大学電子科学研究所 (札幌市) (2010年8月30日～2010年8月31日)
- 9) 河原源太、飯間信:「第59回理論応用力学講演会 OS19「乱流, カオス, 非線形力学系の解析・制御」」、日本学術会議 (東京) (2010年6月8日～2010年6月10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) 柳田達雄、新学術領域研究、能動的触覚の数理モデルの設計と神経活動ー触運動間コミュニケーションの解明、2010年度
- 2) 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
- 3) 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
- 4) 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
- 5) 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
- 6) 柳田達雄、基盤研究 C 一般 (I)、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
- 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) 西浦廉政、(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」、2010年度、545千円、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)

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) 西浦廉政:SIADS (SIAM Journal on Applied Dynamical Systems), Editor (2010年1月1日～現在)

- 3) 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)

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

- 5) 西浦廉政:日本応用数学会評議員 (2006年4月1日～現在)

- 6) 西浦廉政:日本数学会評議員 (2006年3月1日～現在)

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

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

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

- 10) 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:次世代計算科学研究開発運営委員会委員 (2010年11月24日～2011年3月31日)

- 2) 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ークスルーの探索」領域 研究総括 (2007年5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) 全学共通、英語演習 中級:～Why Beauty is Truth～ - A history of Symmetry、西浦廉政、2010年10月1日～2011年3月31日

- 2) 理学院、数理解析学統論、西浦廉政、2010年10月1日～2011年3月31日

- 3) 理学院、計算数学4、西浦廉政、2010年10月1日～2011年3月31日

- 4) 理学部、数理科学基礎、飯間信、2010年4月1日～2010年9月30日

- 5) 理学部、数学卒業研究、飯間信、2010年4月1日～2011年3月31日

- 6) 理学院、数学基礎研究I、飯間信、2010年4月1日～2011年3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、西浦廉政、2010年4月1日～2010年9月30日

h. 北大以外での非常勤講師

- 1) 西浦廉政、九州大学先端物質化学研究所、融合材料部門における研究及び研究指導、2011年1月1日～2011年3月31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 (電子科学研究所)、岩田友紀子 (工学部 VBL)、矢留雅亮 (電子科学研究所)

j. 修士学位及び博士学位の取得状況

- ・修士課程 (1名)

前田太朗

- ・修士論文

- 1) 前田太朗:拡散モンテカルロ法による力学系の稀な軌道の探索

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、理博、2000.10～）
博士研究員 佐倉 緑（北大院、工博、2005.10～）
博士研究員 渡邊崇之（東大院、理博、2010.4～）

1. 研究目標

私たちを取り巻く環境は無限定で動的に変化している。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適応的な行動を実時間で実現している。動物は、長い進化の過程で、外界からの情報を実時間で処理し適応的な行動を創り出すひとつの器官として脳神経系を獲得した。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

動物は、外界の環境変化に対して実時間で状況に応じた適応的な行動を決定し発現する。動物が曝される動的な環境には、動物自身が形成する集団や社会も含まれる。他者が存在する複雑で動的な社会環境は、個々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。

競争は生物に普遍的にみられる現象で、動物ではしばしば激しい攻撃を伴う闘争行動として表出する。したがって、闘争行動の理解は他者が存在する社会環境への適応メカニズムや、動物が長い進化の過程で獲得した実時間適応のメカニズムを理解する上で重要な課題である。そこで、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、その小規模な脳で優れた感覚受容、情報処理、運動機能を発揮し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、従来の行動観察や細胞レベルでの生理学的な解析に加え、構成論的なアプローチを取り入れ、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、昆虫クロコオ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学的、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。闘争の開始前後に予め脳内におけるNO/cGMP カスケードを薬理学操作により阻害もしくは賦活し、闘争行動の発現様式の変化を観察した。その結果、闘争行動の発現初期段階でNO/cGMP カスケードが脳で機能しなければ闘争経験に伴う行動決定や行動発現がなされないことが判明し、NO/cGMP カスケードが、闘争行動の経験依存的な決定メカニズムに深くかかわることが示せた。

一方、生体アミンのオクトパミン(OA)やセロトニン(5-HT)も闘争行動の発現に深く関与する。これらの生体アミン類は、脳内では神経伝達物質や神経修飾物質、また神経ホルモンとして働くことが知られている。5-HTは、ヒトを含めた哺乳類でも闘争や攻撃性にかかわる脳内物質と知られ、そううつ症の発現や適応障害などの神経疾患とも深くかかわっていることが知られている。一方、昆虫脳のオクトパミンは、脊椎動物のノルアドレナリンに機能的に相同であることが知られている。そこで、5-HTやOAなどの生体アミン類が、闘争行動の発現にいかにかかわっているのか、また、NO/cGMP カスケードとこれらアミン類の機能的な連関について調べた。

闘争の前後で、コオロギの脳内の生体アミンレベルを比較すると、闘争の終結直後には、敗者ではより顕著にOAレベルが低下し、このOAレベルの低下が闘争開始前の状態に回復するには、敗者ではおよそ1時間程度かかり、この回復時間を勝者と比較すると、敗者の方がゆっくりと回復することが示唆された。一方、OAが攻撃行動の発現や攻撃性の度合いにどのように影響するのかを調べるため、薬理学的に脳内のOAの機能を阻害もしくは賦活して行動の変化を観察した。その結果、OA阻害剤により攻撃性は有意に低下することが分かった。一方、脳内のNOシグナルは、脳内のOAレベルを低下させることから、NO/cGMPカスケードによって、脳内におけるOAの働きが抑制されることで攻撃行動の発現機構が抑えられることが示唆された。したがって、社会経験に応じた行動の実時間決定と発現メカニズムにはNO/cGMPカスケードとその下流にある生体アミン系の働きが重要であることが示唆された。闘争による敗者個体は、他個体に対して攻撃行動を発現せず忌避行動を発現するようになる。この現象を対象に、薬理学的にNO/cGMPカスケードとOA系の同時阻害を行い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。

さらに、コオロギ脳内で攻撃性を調節する神経修飾物質群（生体アミン類・NO/cGMPカスケード）に着目し、脳内におけるこれらの物質群の作動機構を分子生物学的側面から解明することを目的として研究を進めた。生体アミン類の合成系・シグナル伝達系を構成する遺伝子群（合成酵素・受容体など）計22遺伝子を網羅的に同定し、これらの遺伝子群に関して、脳中枢神経系・末梢系における発現分布を調査することにより、コオロギ脳中枢神経系・末梢系において生体アミン類を介した複雑な情報伝達系が存在することを明らかにした。また、これらの研究成果をもとに、現在遺伝子導入コオロギの作製に取り組んでおり、分子遺伝学的方法による脳内神経修飾物質の機能阻害・機能賦活を行う実験系の確立を進めている。

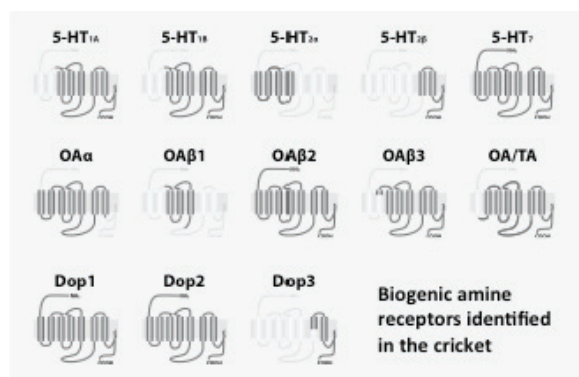


図1. コオロギ脳より同定した生体アミン受容体
昆虫が共通してもつ13種類の受容体遺伝子のcDNA配列を決定した（配列既知領域を模式図に示す）。これらの受容体遺伝子が、脳を含む広範な組織において受容体特異的な分布パターンで発現していることを確認している。

昆虫の行動発現には、化学感覚情報が重要な役割を担う。特に、種内の闘争行動や生殖行動の発現にはフェロモンとして働く化学物質が重要な役割を担っている。そこで、特定の行動発現に重要なフェロモンの情報がどのように処理・統合されるかについて研究を進めた。化学感覚情報処理の神経基盤の解明には、主にゴキブリを使った。ゴキブリは夜行性で、採餌や交尾相手の探索には嗅覚に強く依存している。すなわち、匂い源への正確な定位能力を持つ。まず、ゴキブリ雌雄成虫の一次嗅覚中枢（触角葉）の全嗅覚糸球体の同定に成功した。触角葉中の個々の嗅覚糸球体は特定の匂い物質を処理するための機能モジュールとして働いている。全糸球体数は雌雄同数（205個）であったが、性フェロモン処理に寄与する糸球体を除き、性的二形は認

められなかった。また、全糸球体は求心繊維の支配パターンをもとに10のグループに分けられること、さらに各グループの個々の糸球体が位置や形状をもとに正確に同定できることを発見した。これらの知見は今後匂い情報処理の雌雄差、特定の匂いの情報処理様式を生理学的に明らかにしていく上で役立つことが期待される。

つぎに、性フェロモンの出し手であるゴキブリのメス自身が性フェロモンを特異的に検出する神経を持つことを発見した。未交尾のメスが出す性フェロモンは揮発性の匂い（セスキテルペン）で、同種のおスを遠方から呼び寄せる働きを持つ。昨年度の研究からメスにはオスの性フェロモン処理糸球体との相同位置に小さな糸球体が存在するが、その体積は1/30に過ぎないことがわかっていて、本研究では、相同糸球体から出力する介在ニューロンの軸索に微小ガラス管電極を刺入することで、形態の同定と電気活動の記録に成功した。メスの介在ニューロンは細く、軸索終末の量もオスのそれよりもはるかに少ないが、軸索終末の見られる領域は通常の匂いを処理する領域とは隔てられていた（図1上）。このニューロンは食べ物の匂いなどには応答せず、性フェロモンに対してのみ興奮性の応答を示すが、そのスパイク応答強度はオスよりも弱かった（図1下）。これらの結果はメスも性フェロモンを識別できるが、その行動に与える影響はオスほど顕著ではないことを示唆している。本研究は産卵を担うメスの行動や内分泌系を性フェロモンによって制御できる可能性を示した点で、将来の害虫防除に道を拓くと期待される。

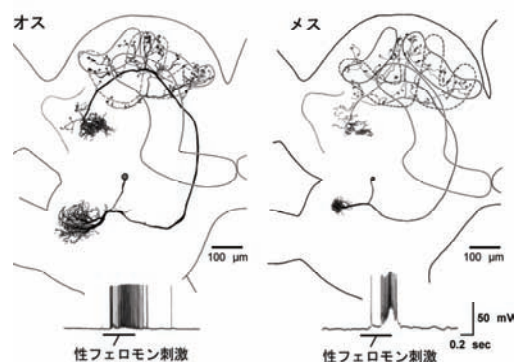


図2. 性的二形を示す介在ニューロンと性フェロモンに対するスパイク応答。

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、マイクロロボットをもちいてコオロギに特定の行動発現を誘導する実験系を開発し、闘争行動を任意に引き起こすことで闘争行動の発現にかかわる神経の生理機構の解明を進めている。マイクロロボットは、コオロギとほぼ同サイズで、赤外線通信を行い、自走することが可能である（図3）。コオロギ集団にマイクロロボットを配置することで任意に社会環境を操作することが可能になってきた。

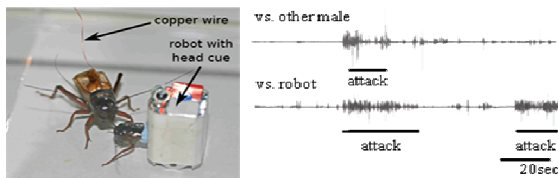


図3. マイクロロボットとコオロギを対戦させ、コオロギが攻撃行動を発現するときの大顎の筋活動を記録した。

これまでに得られた昆虫の行動学的な知見、生理学的な知見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進め、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、個体の内部状態の形成過程について考察した。個体が社会環境の変化に応じて攻撃性を変容させる神経生理機構の動的システムモデルを構築し、シミュレーション実験でその妥当性を検証した結果、社会適応知を創り出すメカニズムとして、個体間相互作用と脳神経系に内在する多重フィードバック構造の重要性が明らかになった。

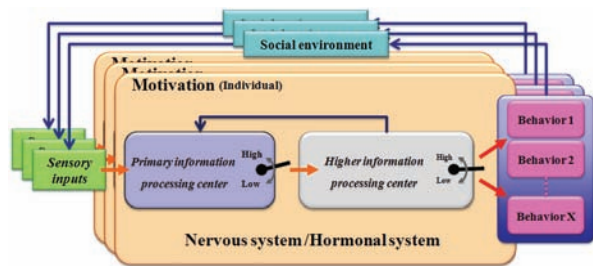


図4. 社会適応を創り出す重フィードバック構造。脳神経系におけるフィードバック構造は、神経系と液性系が関与していると考えられる。社会環境を通したフィードバック構造は、他個体との相互作用や個体群間の相互作用などで形成される。

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を期待できる。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) H. Nishino, M. Iwasaki and M. Mizunami: "Pheromone detection by a pheromone emitter: a small, sex pheromone-specific processing system in the female American cockroach", *Chemical senses*, 36: 261-270 (2011)
- 2) H. Watanabe, C. S. Matsumoto, H. Nishino and M. Mizunami: "Critical roles of mecaminine-sensitive mushroom body neurons in insect olfactory learning", *Neurobiology of learning and memory*, 95: 1-13 (2011)
- 3) H. Watanabe, H. Nishino, M. Nishikawa, M. Mizunami and F. Yokohari: "Complete mapping of glomeruli based on sensory nerve branching pattern in the primary olfactory center of the cockroach *Periplaneta americana*", *J. Comp. Neurol.*, 518(19): 3907-3930 (2010)
- 4) R. D. Guerra, H. Aonuma, K. Hosoda and M. Asada: "Behavior Change of Crickets in a Robot-Mixed Society", *J. Rob. Mech.*, 22(4): 526-531 (2010)
- 5) R. Okada, H. Ikeno, M. Ohashi, T. Kimura, H. Aonuma and E. Ito: "Markov model of honeybee social behavior", *Information*, 13: 1115-1130 (2010)
- 6) R. D. Guerra, H. Aonuma, K. Hosoda and M. Asada: "Semi-automatic behavior analysis using robot/insect mixed society and video tracking", *Journal of Neuroscience Methods*, 191: 138-144 (2010)
- 7) A. Nakanishi, H. Nishino, H. Watanabe, F. Yokohari and M. Nishikawa: "Sex-specific antennal sensory system in the ant *Camponotus japonicus*: glomerular organizations of antennal lobes.", *J. Comp. Neurol.*, 518(12): 2186-2201 (2010)
- 8) M. Mizunami, N. Yamagata and H. Nishino: "Alarm pheromone processing in the ant brain: an evolutionary perspective", *Frontiers in Behavioral Neuroscience*, 4 (Article28): 1-9 (2010)

4.2 総説、解説、評論等

- 1) 矢野史朗、渡邊崇之、佐倉緑、青沼仁志、浅間一: 「セロトニン仮説に基づく行動修飾機構を持つ競争的エージェントの社会相互作用」、第23回自律分散システムシンポジウム資料、計測自動制御学会、11 SY 002: 190-193 (2011)
- 2) ゲーハダシルバロドリゴ、青沼仁志、細田耕、浅田稔: 「Combining EMG Recording and Robust Tracking for Insect/Robot Mixed Society」、第23回自律分散システムシンポジウム資料、計測自動制御学会、11 SY 002: 23-26 (2011)

4.3 国際会議議事録等に掲載された論文

- 1) 高梨琢磨、深谷緑、西野浩史：「カミキリムシにおける振動反応性と感覚受容器 Behavioral responses to vibrations and associated sense organs in a long horn beetle」, Proc. Auditory Res. Meeting, The Acoustical Society of Japan、40(4)：293-296 (2010)

4.7 講演

i) 学会

- 1) 青沼仁志*：「Fighting experience dependent motivation change in cricket」, The 1st International Conference on the Cricket/ RNAi Symposium for Medicine-Agriculture-Engineering Collaboration Project (Joint Meeting), Tokushima Grandvrio Hotel, Tokushima city (2011-03)
- 2) S. Yano*, T. Watanabe, H. Aonuma and H. Asama：「Serotonin hypothesis explains forgetting dynamics of cricket, *Gryllus bimaculatus*」, Workshop on Development of Model-based Assistive Robotics Technologies for Medicine and Rehabilitation, Hyatt Regency San Francisco, California, USA (2011-03)
- 3) 石川由希*、青沼仁志、三浦徹：「The origin of novel “spray” behavior in soldier termites」, Keystone Symposia on Molecular and Cellular Biology, Granlibakken Resort, Tahoe City, California, USA (2011-02 ~ 2011-03)
- 4) 青沼仁志*：「コオロギの闘争行動と順位形成：神経生理学から行動学へ」、第58回日本生態学会、札幌コンベンションセンター、札幌 (2011-03)
- 5) 矢野史朗*、渡邊崇之、佐倉緑、青沼仁志、浅間一：「セロトニン仮説に基づく行動修飾機構を持つ競争的エージェントの社会相互作用」、第23回自律分散システムシンポジウム、北海道大学 (2011-01)
- 6) ゲーハ ダ シルバ ロドリゴ*、青沼仁志、細田耕、浅田稔：「Combining EMG Recording and Robust Tracking for Insect/Robot Mixed Society」、第23回自律分散システムシンポジウム、北海道大学 (2011-01)
- 7) 矢野史朗*、渡邊崇之、佐倉緑、青沼仁志、浅間一：「セロトニン仮説の数学的表現と分岐解析」、計測自動制御学会 システム・情報部門学術講演会 SSI2010、キャンパスプラザ京都 (2010-11)
- 8) 西野浩史*：「昆虫の単一嗅覚介在ニューロンの挙動から脳高次機能を探る：その有用性と限界」、文部科学省「物質・デバイス領域共同研究拠点」複雑系数理とその応用に関するシンポジウム、北海道大学電子科学研究所1階会議室 (2010-11)
- 9) 青沼仁志*：「個体間相互作用に基づく社会適応行動のモデル化」、文部科学省「物質・デバイス領域共同研究拠点」複雑系数理とその応用に関するシンポジウム、北海道大学 電子科学研究所 (2010-11)
- 10) H. Aonuma*, J. Ota, K. Kawabata and H. Asama：「Morbidity: Synthetic approach for understanding social adaptation」, The SICE Annual Conference 2010 (SICE 2010), The Grand Hotel, Taipei, Taiwan (2010-08)
- 11) 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)
- 12) 青沼仁志*：「個体間相互作用に基づく行動選択と社会適応の発現メカニズム」、知能システム研究講演会、福井大学 (2010-10)
- 13) 高梨琢磨*、深谷緑、西野浩史：「振動に対するマツノマダラカミキリの行動反応と受容器としての弦音器官」、日本動物学会第81回大会、東京大学教養部 (駒場キャンパス) (2010-09)
- 14) 佐倉緑*、菊地美香、青沼仁志：「クロコオロギの闘争行動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81回東京大会、東京大学 (2010-09)
- 15) 岡田龍一*、池野英利、木村敏文、大橋瑞江、青沼仁志、伊藤悦朗：「計算機シミュレーションによるミツバチ8の字ダンスの採餌行動における効果」、日本動物学会第81回東京大会、東京大学 (2010-09)
- 16) Y. Ishikawa*, H. Aonuma, K. Sasaki and T. Miura：「Neuronal modifications of the octopaminergic and tyraminergeric systems in termite soldiers」, International Union for the Study of Social Insects XVI congress (IUSISI2010), Copenhagen, Denmark (2010-08)
- 17) H. Aonuma* and M. Sakura：「NO/OA systems mediate aggressive behavior in the crickets」, The 9th International Congress of Neuroethology (ICN2010), Salamanca, Spain (2010-08)
- 18) M. Sakura*, R. Okada and H. Aonuma：「Associative learning for the polarized light in the honey bee」, The 9th International Congress of Neuroethology (ICN2010), Salamanca, Spain (2010-08)
- 19) R. Okada*, H. Ikeno, M. Ohashi, T. Kimura, H. Aonuma and E. Ito：「Biological benefits of the honeybee waggle dance by computer simulation analyses」, The 9th International Congress of Neuroethology (ICN2010), Salamanca, Spain (2010-08)
- 20) Y. Ishikawa*, H. Aonuma, K. Sasaki and T. Miura：「Soldier specificities of aminergic systems - Insights into the molecular mechanisms of the division of labor in termites」, The 9th International Congress of Neuroethology (ICN2010), Salamanca, Spain (2010-08)
- 21) H. Watanabe*, H. Nishino, M. Nishikawa and F. Yokohari：「Dual pathways to process general odors in the cockroach brain」, 9th International Congress of Neuroethology, Salamanca, Spain (2010-08)
- 22) 岡田龍一*、池野英利、木村敏文、大橋瑞江、青沼仁志、伊藤悦朗：「数理モデルによるミツバチの8の字ダンスの生物学的意義の解析」、日本比較生理生化学会第32回大会、九州産業大学 (2010-07)

- 23) 佐倉緑*、菊地美香、青沼仁志：「コオロギの攻撃行動発現における一酸化窒素及びオクトパミンの効果」、日本比較生理生化学会第32回大会、九州産業大学（2010-07）
- 24) 西野浩史*、岩崎正純：「性フェロモンの出し手も性フェロモンを検出できる」、日本比較生理生化学会第32回大会、九州産業大学（2010-07）
- 25) 渡邊英博*、西野浩史、西川道子、横張文男：「ワモンゴキブリにおける触角感覚子依存的な嗅覚系球体構成」、日本比較生理生化学会第32回大会、九州産業大学（2010-07）
- 26) 青沼仁志*：「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—行動選択モデルの掃引作業への応用の検討—」、ロボティクス・メカトロニクス講演会'10 日本機会学会、旭川（2010-06）

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、伊佐正、伊藤宏司、大須賀公一、太田順、土屋和雄、南部篤、松山清治、矢野雅文：「旭川医大脳機能工学研究センター開設記念シンポジウム」、40人、旭川医科大学（旭川）（2011年1月31日）
- 2) 青沼仁志、渡邊崇之：「第23回自律分散システム・シンポジウム・OS（生体行動モデル）」、90人、北海道大学（札幌）（2011年1月29日～2011年1月30日）
- 3) 青沼仁志：「第23回自律分散システム・シンポジウム」、90人、北海道大学（札幌）（2011年1月29日～2011年1月30日）
- 4) 西野浩史、定本久代、木下充代：「日本動物学会第81回大会本部企画シンポジウム、成茂記念動物科学シンポジウム、ニューロエソロジー談話会シンポジウム「動物行動の変化の鍵を探る—学習・記憶のしくみを中心として」、250人、東京大学教養部（駒場キャンパス）（東京）（2010年9月24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) 支朗白井、英利池野、神崎亮平、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

4.12 社会教育活動

b. 国内外の学会の役職

- 1) 青沼仁志：日本比較生理生化学会 吉田奨励賞選考委員長（2011年1月1日～2011年12月31日）
- 2) 青沼仁志：日本比較生理生化学会 評議委員（2011年1月1日～2012年12月31日）
- 3) 青沼仁志：計測自動制御学会・第23回自律分散システム・シンポジウム実行委員長（2010年1月1日～2011年12月31日）
- 4) 青沼仁志：国際比較生理生化学会募金委員（2010年1月1日～2011年6月30日）
- 5) 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）
- 6) 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）
- 7) 青沼仁志：計測自動制御学会自立分散システム部会運営委員（2009年1月1日～2011年12月31日）
- 8) 西野浩史：日本比較生理生化学会 評議委員（2010年4月1日～2011年3月31日）

c. 新聞・テレビ等の報道

・新聞

- 1) 西野浩史、岩崎正純、水波誠：北海道新聞 2010年11月23日「雌同士恋のライバル認知？—ゴキブリの神経応答解析—」

・テレビ

- 1) 西野浩史：札幌テレビ(STV) どさんこワイド特別番組「北海道の底力」2010年12月30日 1時間番組でゴキブリの性フェロモンコミュニケーションについての研究が紹介された。

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、2010年7月7日～2010年7月9日
- 2) 生命科学院、生命システム科学基礎論、青沼仁志、2010年4月1日～2010年9月30日
- 3) 生命科学院、行動システム制御科学特論、青沼仁志、2010年4月1日～2010年9月30日
- 4) 生命科学院、生命科学論文講読、青沼仁志、2010年4月1日～2011年3月31日
- 5) 生命科学院、行動システム制御科学特論、西野浩史、2010年4月1日～2010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 Gutov Oleksii (2010.4～2011.3)

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

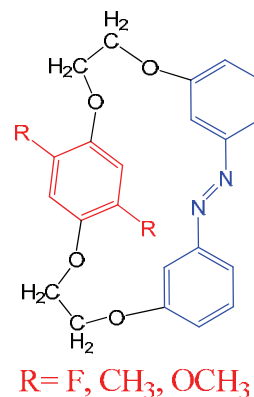
1. 回転部位のかさ高さを調整することによる完全光 ON-OFF スイッチを実現する分子機械の構築

分子機械の最も重要な部品の一つとして分子ブレーキがあげられる。分子サイズの機械の運動では、熱によるランダムな運動を有効な運動として利用することが考えられるが、その運動の選別のための第一歩が、望むタイミングで運動を ON-OFF スイッチすることである。これまで、当研究室では、環状化合物の一部に回転部位を設け、その回転部位の自由回転の可否を環状構造の残りの部位の光異性化反応による構造変化で制御することを試みてきた。その結果、環状構造の利用が回転運動の完全 ON-OFF 光スイッチに有効であること、回転が完全にストップしたことを、分子の面性不斉による鏡像異性体の安定性を示すことで証明できること、回転部位を 1,5-ナフタレンに固定して、環状構造を構成するスパーサー長を調整することで、ちょうど適当な長さのスパーサーを用いたときに、光異性化反応によって回転体の回転の ON-OFF が実現できることを明らかにしてきた。今年度は、スパーサーの長さを固定して回転部位のかさ高さを、ベンゼン置換体の置換基の大きさを変化させることで調節し、回転体の回転を ON-OFF スイッチすることを目指した。

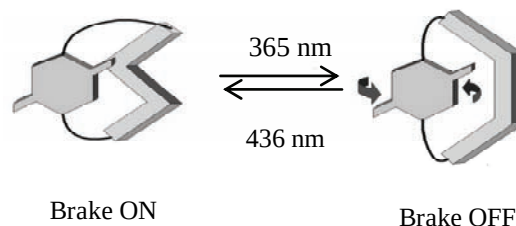
右に合成した一連の化合物の構造を示す。回転部位は置

換ベンゼンで、嵩高さを調整するために置換基としてフッ素、メチル基、メトキシ基を導入した化合物を合成した。

回転部位の回転を止めた構造では面性不斉による一対の鏡像異性体が存在する。キラルカラムを用いた HPLC により、面性不斉による安定した鏡像異性体が存在するかを調べた結果、メチル基置換化合物の



トランス体およびメトキシ置換化合物のトランス、シス両異性体で、鏡像異性体が存在し、HPLC において 2 つのピークを示した。また、メチル基置換体では紫外線照射によるトランス体からシス体への光異性化反応により、鏡像異性体は消失し、シス体では回転部位の十分に早い自由回転が起こることが判明した。すなわち、メチル置換化合物では、光異性化反応によって回転部位の自由回転を完全に光 ON-OFF スイッチすることができ、従来からのスパーサー長の調整ではなく、回転部位の嵩高さの調整によっても分子内回転運動の完全光 ON-OFF スイッチを実現できることを示した。

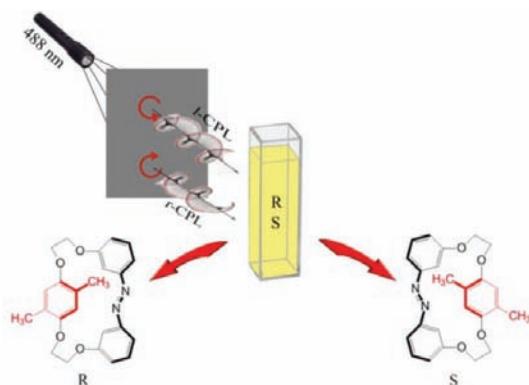


2. 面性不斉誘起反応

タンパク質、糖、DNA に代表される自然界の生体関連化合物は一方の鏡像異性体から成っている (ホモキラリティー)。なぜ、一方の鏡像異性体のみになったのか、なぜ、アミノ酸であれば d 体ではなく l 体なのか、その起源ははっきりしない。一つの可能な説は、まず、何らかの物理的な作用で、一方の鏡像異性体がわずかに多く存在するようになり、その後の化学的な作用でその傾向が増幅されたとするものである。しかし、物理的な作用で一方の鏡像異性体が多くなる、すなわち、例えば $R \longleftrightarrow S$ のような現象の例は多くない。

われわれは、鏡像異性体を区別する、円偏光による新しい光反応の系を実現すべく、研究成果 1 で示したメチル基置換化合物に着目した。光反応性のアゾベンゼン部がトランス体である時、鏡像異性体はお互いに安定だが、光照射で生成するシス体では、鏡像異性体間で容易にラセミ化を起こす。左または右円偏光を照射すると、一方の鏡像異性体 (トランス体) をより多くすることができ、続けてもう一方の円偏光照射を照射することで、もう一方の鏡像異性体がより多くなった。本現象は、トランス体及びシス体の

各鏡像異性体（シス体の鏡像異性体は室温では寿命が短いが存在する）の円偏光に対する吸光係数が異なるために光異性化反応の効率に変化が生じ、結果的に光定常状態でのトランス体の鏡像異性体比が1:1からずれたとして説明できる。実験的に得られた鏡像異性体過剰率は0.3%であり、鏡像異性体のモル吸光係数の差から理論的に予測される値とよく一致した。



もう一つの鏡像異性体過剰反応として、キラル溶媒中での反応が考えられる。*R*-または*S*-*l*-フェネチルアルコール中でジオキシナフタレン回転部位を含む環状アゾベンゼンの誘起円二色性を調べた。その結果、回転部位の自由回転を許容する環状アゾベンゼンのトランス-シス幾何異性体でより大きな円二色性を示すことがわかった。この結果は、回転部位のいずれの面がアゾベンゼンに向かっているかで決定される一時的な面性不斉が、観察された円二色性に寄与しているとして説明できる。さらに、回転部位の回転がシス体で許容され、トランス体で禁止される化合物においては、トランス体からシス体を経由するトランス体に戻るサイクルの光反応によって、溶媒をアキラルにしても消えない一方の鏡像異性体過剰が観察された。本結果は、従来キラル溶媒中においてのみ観察されてきた一時的な不斉構造を、可逆的なトランス-シス幾何異性によって固定する方法として関心がもたれる。

3. キネシン／微小管モータータンパク系の光可逆的運動制御

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、フォトクロミックATP類似体、フォトクロミック阻害剤の運動機能への影響を調べた。フォトクロミック分子表面に関しては、リジン残基を末端に有するアゾベンゼン単分子膜の光異性化反応により微小管移動速度を約15%程度可逆的に変化することがわかっていた。そのメカニズムを明らかにするために、末端残基の種類の影響と無機リン酸生成速度を調べた。その結果、フリーのアミノ基が運動速度に必要であること、三リン酸の加水分解速度が光異性化反応によって可逆的に変化していることが判明した。以上の結果より、

キネシンに対する表面の末端アミノ酸残基に含まれるアミノ基の向きや距離が、キネシンの酵素活性に影響を与えていると解釈できる。その他、フォトクロミックATP類似体が光異性化反応によってキネシンの駆動能を可逆的に約50%変化させること、フォトクロミック阻害剤により微小管タンパク質の脱重合を光スイッチできることを明らかにした。

3. 今後の研究の展望

今年度の研究で、光分子ブレーキ機能を、分子内の回転部位のかさ高さを調整することで実現できることを示すことができた。今後は、得られた光分子ブレーキを発展させて、光エネルギーを使った分子レベルで制御された物質移動が起こる系を構築する。

キネシン／微小管系の光制御に関しては、フォトクロミック分子の構造と特性の相関をより詳細に調べることで、より顕著な光制御が可能となる分子を得ると共に、光制御のメカニズムを明らかにする。同時に、最終的な目標である光駆動（三リン酸の加水分解によって得られるエネルギーではなく、光エネルギーを運動に利用する）を実現するための新分子の設計と合成を試みる。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) T. Fukaminato, T. Doi, N. Tamaoki, K. Okuno, Y. Ishibashi, H. Miyasaka and M. Irie: "Single-molecule Fluorescence Photoswitching of a Diarylethene-erylenebisimide Dyad: Non-destructive Fluorescence Readout", *Journal of the American Chemical Society*, 133(13): 4984-4990 (2011)
- 2) J. Nagasawa, M. Yoshida and N. Tamaoki: "Synthesis, Gelation Properties and Photopolymerization of Macrocyclic Diacetylenedicarboxamides Derived from L-Glutamic Acid and trans-1,4-Cyclohexanediol", *European Journal of Organic Chemistry*, 12: 2247-2255 (2011)
- 3) J. Y. Meng, T. Sakamoto, K. Watanabe, S. Furumi, N. Tamaoki, Y. Chen and T. Nakano: "Synthesis and efficient circularly polarized light emission of an optically active hyperbranched poly(fluorenevinylene) derivative", *Chemical Communications*, 47: 3799-3801 (2011)
- 4) N. Koumura, H. Matsumoto, H. Kawanami, N. Tamaoki and M. Yoshida: "Self-assembled Materials Tuning of solubility and gelation ability of oligomeric electrolyte by anion exchange", *Polymer Journal*, 42(9): 759-765 (2010)
- 5) Y. Oka and N. Tamaoki: "Structure of Silver(I) Complex Prepared from Azobenzenonaphthalenophane, Photochemical Coordination Change of Silver(I) and Silver(II)-Induced Acceleration of Z-E Thermal Isomerization of Azobenzene Unit", *Inorganic Chemistry*, 49: 4765-4767 (2010)
- 6) B. Meethale Chelaveettil, Y. Oka and N. Tamaoki: "A Light-Controlled Molecular Brake with Complete ON-OFF Rotation", *Chemistry-A European Journal*, 16: 3489-3496 (2010)

4.2 総説、解説、評論等

- 1) 深港豪、入江正浩:「フォトクロミック分子を用いた単一分子蛍光スイッチ」、高分子、高分子学会、60(2): 74-75 (2011)
- 2) N. Tamaoki and T. Kamei: "Reversible photo-regulation of the properties of liquid crystals doped with photochromic compounds", *J.Photochem.Photobiol.C-Photochem. Rev.*, Elsevier, 11(2-3): 47-61 (2010)
- 3) 玉置信之:「フォトクロミック化合物の液晶へのドーブと可逆的光制御」、液晶一構造制御と機能化の最前線、シーエムシー出版: 129-138 (2010)
- 4) 古海誓一、玉置信之:「コレステリック液晶を用いた波長可変レーザー」、液晶一構造制御と機能化の最前線、シーエムシー出版: 254-265 (2010)

4.7 講演

b. 一般講演

i) 学会

- 1) 深港豪*、玉置信之、入江正浩:「光ラセミ化を利用した単一分子蛍光スイッチング」、日本化学会大91春季年会、神奈川大学横浜キャンパス (2011-03)
- 2) 玉置信之*:「分子内回転運動の光化学的 ON-OFF 制御」、平成22年度 アライアンス成果報告会、ホテルメトロポリタン仙台ホテル (2011-03)
- 3) 玉置信之*:「分子機械の回転運動の光 ON-OFF スイッチ」、第118回 微小光学研究会「最先端光材料と微小光学」、東北大学 電気通信研究所 (2010-12)
- 4) T. Fukaminato*, T. Doi, M. Tanaka, N. Tamaoki, K. Okuno, Y. Ishibashi, H. Miyasaka and M. Irie: "Fluorescence Photoswitching based on Intramolecular Electron Transfer of Diarylethene-erylenebisimide Dyads", 6th International Symposium on Organic Photochromism, Nisseki Yokohama Hall, Yokohama (2010-10)
- 5) R. Thomas* and N. Tamaoki: "Photo Switching of Induced CD of Azobenzenophanes with a Naphthalene Rotor in Chiral Solvents", 6th International Symposium on Organic Photochromism, Nisseki Yokohama Hall, Yokohama (2010-10)
- 6) N. Tamaoki*: "Photoswitching of Benzene Rotor and Induction of Molecular Chirality by Circular Polarized Light in Cyclic Azobenzenophane", 6th International Symposium on Organic Photochromism, Nisseki Yokohama Hall, Yokohama (2010-10)
- 7) 深港豪*、石橋千英、宮坂博、入江正浩:「分子内電子移動を利用した単一分子蛍光スイッチング」、2010年光化学討論会、千葉大学 西千葉キャンパス (2010-09)
- 8) 深港豪*、亀井敬、玉置信之:「キネシンー微小管系の光変調」、2010年光化学討論会、千葉大学 西千葉キャンパス (2010-09)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 玉置信之*:「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究とメカニカル機能の創出」成果報告 第7回公開シンポジウム、立教大学 太刀川記念館 (2011-01)
- 2) 深港豪*:「単一分子蛍光の光制御」、レーザー学会学術講演会 第31回年次大会 ～最先端の光の創成を目指したネットワーク研究拠点シンポジウム～、電気通信大学 (2011-01)
- 3) 玉置信之*、亀井敬、深港豪、アブドル ラヒム、行成一俊:「光応答性分子によるモータータンパクの光制御及び駆動」、5 研究所 アライアンス「医療材料・デバイス」グループキックオフミーティング、北海道大学 電子科学研究所 (2010-07)
- 4) H. K. Padinhare* and N. Tamaoki: "Photoswitching of Benzene Rotor and Induction of Molecular Chirality by

Circular Polarized Light in Cyclic Azobenzenophane”, ISCD-22nd International Symposium on chirality, Sapporo Convention Center (2010-06)

- 5) Y. Norikane*, M. Yoshida, R. Azumi and N. Tamaoki: “Isomer Stability in Macrocyclic Azobenzene Dimer”, ICSM2010, Kyoto International conference center (2010-06)

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) 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、37800千円、分子のキラリティー (不斉) は生命現象に密接に関わる重要な性質です。通常の分子集団系では、分子それぞれに不斉が存在しても、ラセミ混合物では不斉を議論できません。もし、分子一つ一つの不斉を測定できれば、たとえラセミ混合物においても不斉の議論が可能となります。本研究では、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測定することを目指します。

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

b. 国内外の学会の役職

- 1) 玉置信之: 日本化学会北海道支部 環境安全担当 (2011年3月1日～2012年2月28日)
- 2) 亀井敬: 日本生物物理学会地区編集委員 (2010年4月1日～2011年3月31日)

c. 併任・兼業

- 1) 深港豪: さきがけ「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、2011年2月8日～2011年2月10日
- 2) 全学共通、環境と人間-生体機能高分子が拓く先端生命科学-、玉置信之、2011年1月19日
- 3) 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、玉置信之、2010年7月29日

- 4) 理学部、生物高分子科学、玉置信之、2010年6月30日
- 5) 理学院、生命融合科学概論、玉置信之、2010年5月27日
- 6) 全学共通、基礎化学Ⅰ、玉置信之、2010年4月1日～2010年9月30日
- 7) 理学部、基礎物理化学、玉置信之、2010年4月1日～2010年9月30日
- 8) 生命科学院、生命物質科学特論 (分子組織科学)、玉置信之、2010年4月1日～2010年9月30日

i. ポスドク・客員研究員など

・ポスドク (2名)

- 1) Gutov Oleksii
- 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 謙（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 李 永涛（岡山大学、博士(工学)、
2010.5.10～）
学術研究員 田所 智（北海道大学、理博、2003.9～）
研究生 安岡卓男（愛媛大学医、MD、2001.4～2010.9）
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（2009.4～2011.3.31）
三浦由貴（2011.3.28～）
院 生 前田真秀(D3)、渡部大志(D3)、黒田 拓(D3)、
塚田啓道(D3)、八反田由香(M2)、三上丈晴(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

大脳新皮質は主に6層構造であり、各領野間の相互作用は下流の5層は主に上流の4層に結合し、上流の3層は下流の1, 5, 6層に主に結合する。このことをモデル化するために、まずは数理的に明確なモデルを採用し、ヘテロ結合の効果を調べた。具体的には、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トランスファーエントロピーや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。(山口他)

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ことにより、二つのネットワークは本質的にヘテロになる。これらのネットワークが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、ダイナミックな記憶想起の遍歴過程の中での

ら互いに他の記憶構造を学習可能であることを示した。(李、津田)

3. マルチコンパートメントモデルによる現実的な皮質神経回路の構築

興奮性細胞によるリカレントネットに異なるタイプの抑制性ニューロンを結合させた高次のネットワークに異なる周波数の振動入力を与え、複数の入力情報が保持可能かどうかを調べた。周波数が異なることによる位相のずれをうまく使うことで複数の入力情報はネットワークに保持可能で、でコードも可能になることが分かった。(塚田、津田、山口)

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り、ダイナミクスを調べた。模倣の過程を相手をコピーする過程とコピーしたものと事故の状態を同一視する過程に分けてダイナミクスを構成した。ミラーニューロンの抽象的なモデルになる可能性を指摘した。(津田、カン)

5. 数学によるニューロンの構築

初期に空間に一次的にばらまかれたランダムに選んだ関数の組に対して、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った。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。これは、ニューロンの典型的な二つのタイプを表していて興味深い。また、この選択過程は脳の学習過程に適用可能であり、他者の情報をよりよく受け取るために必要な力学系の学習という通常のシナプス学習より一段レベルの高い学習効果を表している。(渡部、津田)

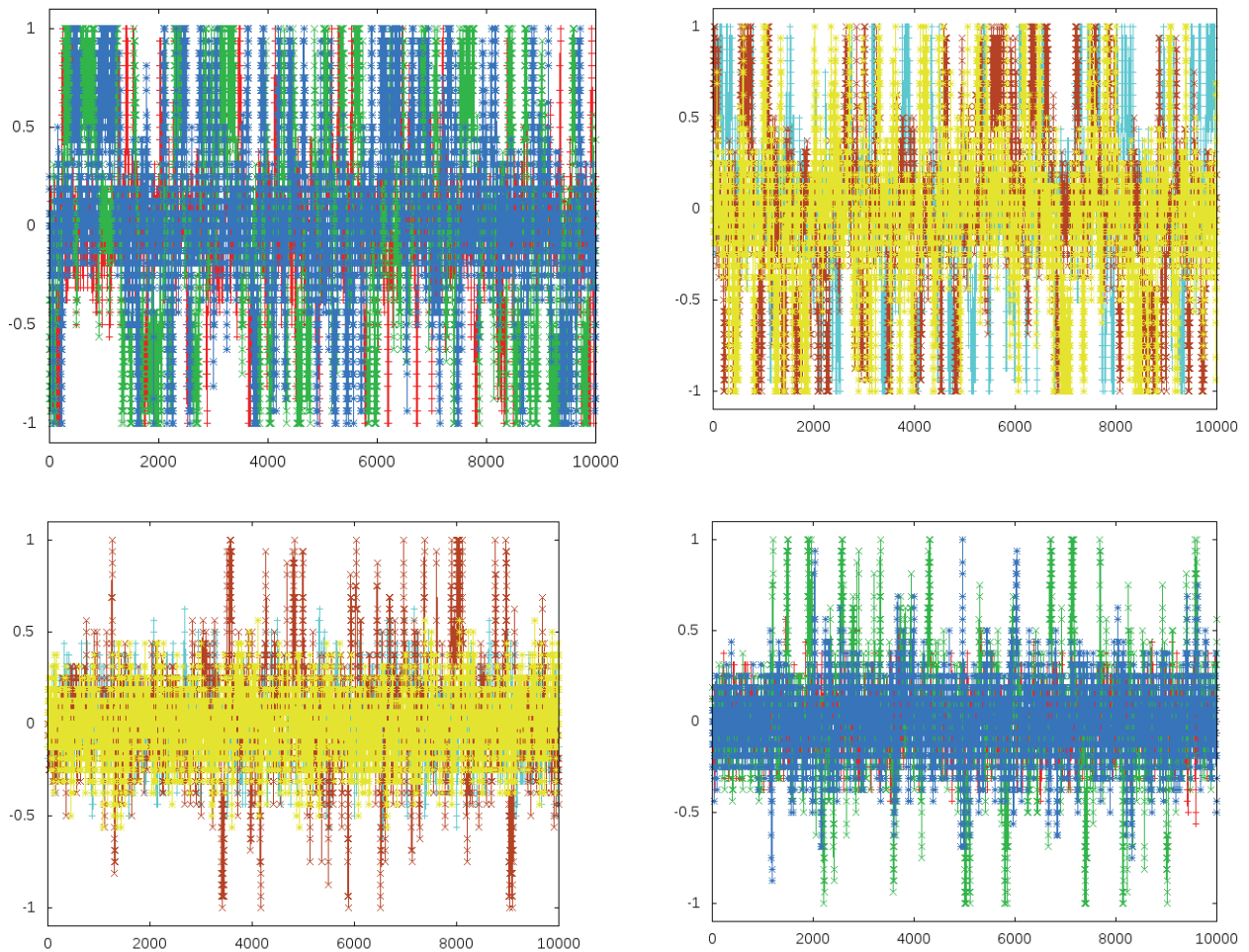
6. カオス的遍歴の機構に関する数学的な理論

昨年に引き続き、研究を行った。次のシナリオをさらに詳細に検討した。

1. 三つ組（カオスの不変集合、ミルナーアトラクター、リドルドベイシン）。
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. フラクタルベイシン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的遍歴になる。(津田)

7. 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・インデュースド・オーダーや、ノイズ・インデュースド・カオスが知られているが、新たに、多重転移や確率的周期性といった雑音誘起現象を発見した。また基礎理論を、回転流体や生体リズムの実験で得られたデータの解析に応用して成果を上げた。(佐藤)



図：縦軸は記憶の想起度合いを表す。1は完全想起。横軸は時間。(左上) システムAの動的記憶想起過程。(左下) システムAが自分の記憶を壊さずにシステムBの記憶を学習したことを表す。(右上) システムBの動的記憶想起過程。(右下) システムBが自分の記憶を壊さずに、システムAの記憶を学習したことを表す。

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、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の遍歴とコントロールコーディングの実証を行っていきたい。特に、Deliberative Decision Making の枠組みでこの問題を解決したい。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ハイブリッド型力学系、ヘテロ結合力学系、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。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したい。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) S. Tadokoro, Y. Yamaguti, H. Fujii and I. Tsuda: “Transitory Behaviors in Diffusively Coupled Nonlinear Oscillators”, Cognitive Neurodynamics, 5: 1-12 (2011)
- 2) M. Iima, Y. Iijima, Y. Sato and Y. Tasaka: “A time-series analysis of the free-surface motion of rotational flow”, Theor. Appl. Mech. Jpn., 59: 187-193 (2011)
- 3) Y. Yamaguti, S. Kuroda, Y. Fukushima, M. Tsukada and I. Tsuda: “A Mathematical Model for Cantor Coding in the Hippocampus”, Neural Networks, Elsevier, 24(1): 43-53 (2011)

4.7 講演

i) 学会

- 1) 飯間信、飯島悠宇、佐藤譲、田坂裕司: 「回転流体における自由表面の遷移動力学の解析」、第59回理論応用力学講演会、東京 (2010-06)

- 2) 田坂裕司、飯間信、佐藤譲：「回転流体自由界面の不規則スイッチングにおける底面-側壁ギャップの影響」、日本流体力学会年会2010、札幌 (2010-09)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 津田一郎：「動的脳の情報創成とカオスの遍歴の役割」、包括脳ネットワーク夏のワークショップ、ホテルさっぽろ芸文館 (2010-07)
- 2) Yutaka Yamaguti, Kousuke Ota, Shigeru Kuroda, Ichiro Tsuda: “Fractal Encoding in Hippocampal CA1”, Comprehensive Brain Science Network- summer workshop (The study on the neural dynamics for understanding communication in terms of complex hetero systems, Grant-in-Aid for Scientific Research on Innovative Areas (2009-2013)), Hotel Sapporo Geibunkan (2010-07).
- 3) 津田一郎：「コミュニケーション脳理解に対する数学的試み」、応用数学連携フォーラム第13回ワークショップ、東北大学 (2010-08)
- 4) 渡部大志、伊藤孝男、津田一郎：「数学でニューロンをつくる」、日本数理生物学会大会20回大会(口頭発表)、北海道大学学術交流会館、北海道 (2010-09)
- 5) 津田一郎、「脳・神経科学における数学的アプローチ」国際高等研究所 研究プロジェクト「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」2010年度第2回研究会 (2010-10)
- 6) 塚田啓道、山口裕、津田一郎： “Transitory memory-retrieval in the neural networks composed of Pinsky-Rinzle model neurons”, 第13回スロベニア日本非線形科学セミナー (ポスター)、早稲田大学、東京 (2010-11)
- 7) Ichiro Tsuda: “A new dynamical systems approach to communicating brains”, The 13th Slovenia-Japan seminar on nonlinear science, Nishiwaseda Campus, Waseda University, November 4th to 6th (2010-11)
- 8) 山口裕：「ヘテロ結合振動子系における分化のダイナミクス」、「物質・デバイス領域共同研究拠点」複雑系数理とその応用に関するシンポジウム、北海道大学 電子科学研究所 (2010-11)
- 9) 飯島悠宇、田坂裕司、佐藤譲、飯間信：「回転流体系における自由表面の不規則スイッチング現象の決定論性の推定」、2010年度応用数学合同研究集会、瀬田 (2010-12)
- 10) I. Tsuda: “A mathematical model for the formation of dynamic memory in the brain”, Far-From-Equilibrium Dynamics 201, RIMS & Shiran-Kaikan, Kyoto University (2011-01)
- 11) 山口裕、津田一郎：「ヘテロ相互作用系における情報伝達構造の切り替わり」、脳と心のメカニズム 第11回冬のワークショップ、ルスツリゾート、北海道 (2011-01)
- 12) 渡部大志、伊藤孝男、津田一郎：数学でニューロンをつくる、脳と心のメカニズム 第11回冬のワークショップ (ポスター)、ルスツリゾート、北海道 2011年1

月11日-13日

- 13) 李永涛、津田一郎：Novelty-induced Memories Transmission between Two Nonequilibrium Neural Networks、脳と心のメカニズム 第11回冬のワークショップ (ポスター)、ルスツリゾート、北海道 2011年1月11日-13日
- 14) 山口裕、津田一郎：「ヘテロ相互作用系における情報伝達構造」、第23回自律分散システムシンポジウム、北海道大学 (2011-01)
- 15) 津田一郎：「コミュニケーション脳のヘテロ複雑システムの理解に向けての研究」、第23回自律分散システムシンポジウム、北海道大学 (2011-01)
- 16) 津田一郎：「神経大規模ネットワークに現れるダイナミクスの様相」、生命ダイナミクスと大規模ネットワークシンポジウム (大阪大学グローバルCOEプログラム、みのお山荘 風の杜 (2011-02)
- 17) 津田一郎：「Complex memory: a theory for the archicorte」、Dynamics of Complex Systems 2011-時間発展の非可逆性と予測可能性の限界に関する諸分野からの提言一、北海道大学 (2011-03)
- 18) 津田一郎：Complex memory: a theory for the archicorte, Dynamics of Complex Systems 2011-時間発展の非可逆性と予測可能性の限界に関する諸分野からの提言一、北海道大学 (2011-03)
- 19) Yuzuru Sato: “Noise-induced phenomena in one-dimensional maps”, Max-Planck Institute Mathematics in the Sciences, Leipzig, Germany, (2010).
- 20) Yuzuru Sato: “Noise-induced phenomena in one-dimensional maps”, NIMS Hot Topics Workshop on APPLIED DYNAMICAL SYSTEMS “Dynamics in Network and Mathematical Neuroscience,” NIMS, Daejeon, Korea, (2010)
- 21) Yuzuru Sato: “Noise-induced phenomena in one-dimensional maps”, Symposium: Applications of complex systems, RIES, Hokkaido University, Sapporo, Japan, (2010).
- 22) Yuzuru Sato: “Noise-induced phenomena in one-dimensional maps”, Kagoshima workshop on nonlinear and Nonequilibrium dynamics, Kagoshima University, Kagoshima, Japan, (2010).
- 23) Yuzuru Sato: “Noise-induced phenomena in one-dimensional maps”, RIKEN Long-term Workshop: Mathematical Sciences and Their Applications, Kamisuwa, (2010)
- 24) Yuzuru Sato: “Noise-induced statistical periodicity in modified Lasota-Mackey map”, BSI Forum, RIKEN, (2010)
- 25) Yuzuru Sato: “Moving Bump Solutions in Two-Dimensional Neural Field”, BSI Forum, RIKEN, (2010)
- 26) Yuzuru Sato: “Robust computation in activation-inhibition field”, The 9th international conference on unconventional computation, Tokyo, Japan, (2010)
- 27) Yuzuru Sato: “Random dynamics from time-series of

rotating fluid”, The 59th National Congress of Theoretical and Applied Mechanics, Tokyo, Japan (2010)

- 28) Yuzuru Sato: “Noise-induced phenomena in one-dimensional maps: Fragility of nonlinear systems in the presence of noise”, Sapporo Winter School 2010 for nonlinear nano-system scienc, Sapporo, Japan (2010)
- 29) Yuzuru Sato: “Noise-induced phenomena in one dimensional maps”, Mathematical life science workshop, Niseko, Japan (2010)
- 30) Yuzuru Sato: “Noise-induced phenomena in one dimensional maps”, Japan Physical Society, Okayama, Japan (2010)
- 31) Yuzuru Sato: “Noise-induced phenomena in one dimensional maps”, Invited seminar, University of Tokyo, Japan (2010)
- 32) Yuzuru Sato: “Noise-induced phenomena in one-dimensional maps”, Queen Mary University of London, London, UK, (2011).
- 33) Yuzuru Sato: “Noise-induced phenomena in one-dimensional maps”, Department of Applied Mathematics at the University of Colorado at Boulder, Colorado, USA, (2011).
- 34) Y. Sato: “Noise-induced statistical periodicity and its applications”, Dynamics of Complex Systems 2011, Hokkaido University, Sapporo, Japan, (2011).

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) 津田一郎：「第52回サインエス・カフェ札幌「コミュニケーションする脳!? 脳をカオスで語る」」、100人、sapporo55ビル1階インナーガーデン（紀伊国屋書店札幌本店）（2010年7月24日）
- 2) 津田一郎：「文部科学省「物質・デバイス領域共同研究拠点」複雑系数理とその応用に関するシンポジウム」、50人、北海道大学電子科学研究所（2010年11月9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、萌芽研究、カオスネットワークの進化、2008～2010年度
 - 2) 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
 - 3) 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的遍歴の役割、2009～2013年度
 - 4) 津田一郎、HFSP AWARDS 2010、“Deliberative decision-making in rats”、2010～2012年度
 - 5) 佐藤譲、基盤研究C、標準ゲーム力学系の拡張とその応用、2009～2011年度

4.11 受賞

- 1) D. A. Redish, P. Dudchenko, J. Lauwereyns, I. Tsuda and E. Wood: HFSP AWARDS 2010 (RESEARCH GRANTS) “Deliberative decision-making in rats” 2010年4月

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（2010年4月1日～2011年3月31日）
- 2) 津田一郎、独立行政法人科学技術振興機構、「複雑系数理モデル学の基礎理論構築とその分野横断的科学技術応用」国際アドバイザー（2011年1月1日～2011年3月31日）
- 3) 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（2010年4月1日～2011年3月31日）
- 4) 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（2010年4月1日～2011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（2010年4月1日～2011年3月31日）
- 6) 津田一郎、北陸先端科学技術大学院大学、「ナノテク・材料研究者育成の人材システム」評価・審査委員会委員（2010年4月1日～2011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（2010年4月1日～2011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（2010年4月1日～2011年3月31日）
- 9) 津田一郎、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（2010年4月1日～2011年3月31日）
- 10) 津田一郎、大阪大学「人間指向システム論」、非常勤講師（2010年10月1日～2011年3月31日）
- 11) 津田一郎、文部科学省、科学研究費委員会専門委員、2010年4月1日～2010年11月30日）
- 12) 津田一郎、北海道大学数学連携研究センター運営委員、兼務教員（2010年4月1日～2011年3月31日）
- 13) 佐藤譲、北海道大学数学連携研究センター兼務教員（2010年4月1日～2011年3月31日）
- 14) 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）
- 15) 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（2010年6月1日～2011年3月31日）
- 16) 佐藤譲、ヤマハ発動機株式会社、技術コンサルタント（2010年4月1日～2011年2月28日）
- 17) 山口裕、北海道大学数学連携研究センター兼務教員（2010年4月1日～2011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（2010年4月1日～2011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（2010年4月1日～2011年3月31日）

e. 新聞・テレビ等の報道

- 1) 津田一郎：札幌経済新聞 Web 2010年7月22日 札幌・紀伊國屋書店でサイエンスカフェー「脳とコミュニケーション」テーマに
<http://sapporo.keizai.biz/headline/693/>
- 2) 津田一郎：生命誌ジャーナル 65号 WEB版 2010年6月1日「津田一郎・中村桂子対談、“カオスで探る生きものらしさ”、生命誌ジャーナル、65号、2010年、生命誌ジャーナル65号WEB版 http://www.brh.co.jp/seimeishi/journal/65/talk_index.html」

f. 外国人研究者の招聘（氏名、国名、期間）

- 1) Liljenstrom Hans、Sweden（2010年4月13日～2010年4月22日）
- 2) Kang Hunseok、韓国（2010年5月13日～2010年5月21日、2010年10月12日～2010年10月20日）
- 3) Kang Hyeonbae、韓国（2010年5月23日～2010年5月25日）
- 4) Jian ZHAI、中国（2010年、7月21日～2010年8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) 津田一郎、全学共通、微分積分学1、2010年4月1日～2010年9月30日
- 2) 津田一郎、全学共通、微分積分学2、2010年10月1日～2011年3月31日
- 3) 津田一郎、理学部、数理科学基礎、2010年4月1日～2010年9月30日
- 4) 津田一郎、理学部、数理解析学統論、2010年10月1日～2011年3月31日
- 5) 津田一郎、理学研究科、現代数学概説、2010年4月1日～2010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、2010年4月1日～2010年9月30日
- 7) 佐藤譲、数理科学基礎、理学研究科、2010年4月1日～2010年9月30日
- 8) 山口 裕、コンピュータ、理学部、2010年10月1日～2011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、2010年4月1日～2011年3月31日

i. ポスドク・客員研究員など

・ポスドク

李 永涛（電子科学研究所）

・学術研究員

田所 智（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 川合知二 (大阪大学産業科学研究所)

教授 木村 良 (高知工科大学総合研究所)

教授 矢島 收 (㈱北海道新聞社)

連携研究部門

研究目的

連携研究部門は、次世代の科学技術の創出を目指し、研究領域にとらわれない分野横断的な新しいフィールド開拓の更なる進展を図るために、電子科学研究所が所有する研究基盤及び成果を基に、国内外の研究機関と連携して多様な研究を有機的・機動的に展開することを目的としている。



理研連携研究分野

客員教授 田中拓男（阪大院、博士(工学)、2010.4～）

1. 研究目標

本連携研究では、ナノスケールの人工構造体と光波との相互作用を利用して、「光を止める」、「光を閉じ込める」、「光の波長を変える」といった光の性質を自由自在に操作できる新しい光制御技術の開発を行い、それを利用して、全く新しい原理に基づく、高効率光電変換デバイスや光触媒材料、新奇光量子デバイスの創成を目指す。

最近、環境やエネルギー問題が世界的かつ分野横断的に重要視されるようになってきており、中でも光技術が関連する分野としては、太陽電池や光触媒など太陽光のエネルギーを有効に活用する技術が注目されている。これらは決して新しい分野ではなく、古くから研究されてきた分野であるが、未だ根本的に環境・エネルギー問題を解決できる技術にまでは成熟していない。その原因の1つは、これまでの研究・開発のアプローチが、物質中心の視点から行われており、“光”をいかに制御してエネルギーに変換するかという視点からの研究は少なかったからである。例えば、太陽電池に関する研究では、半導体材料や有機色素材料の物性を理論的、実験的に検証し、それを改質することによって高効率化することに主に視点が置かれていた。そのため赤～近赤外域の特定の波長域の光や、特定の光照射条件下においては、理論限界に迫る光電変換効率が既に実現されている。しかし、実際の太陽光は可視光全体を越えて紫外線に及ぶ幅広いスペクトルを含んでおり、その照射状態も、地球の自転に伴ってその照射角が変化したり、曇天時のように拡散された状態で照射されるなど、その条件は幅広くまた時々刻々と変化する。これらさまざまな状態に柔軟に対応して常に最適な状態を確保するようなデバイスを開発することは、物質サイドからのアプローチだけでは対応できず、そのような手法に基づく技術開発はほぼ限界に達していると言って良い。

この限界を超えて新しい原理に基づく高機能光デバイスを作り出すには、物質サイドの最適化と平行して、「光」そのものの特性を知り、光を操る技術との融合が必要である。

例えば、光を物質に強く吸収させるには、光物性的には、吸収係数が高くなるように物質を改質すれば良いとされる。しかし吸収係数の高い物質は、同時に高い反射率を示すので、単に物質の吸収率を上げると、意に反してほとんどの光は反射されて物質に吸収されなくなる。太陽電池では、高効率化のために吸収バンドを光の波長にマッチさせるといった材料改質が積極的に進められたが、一方で、照射された光の大部分は太陽電池の表面で反射して光電効果に寄与しなくなるという矛盾があった。この問題を開発するために、太陽電池の表面に凹凸を設けて光の相互作用を大きくするといった試みも行われているが、抜本的な解決法に

は至っていない。すなわち、光と物質とを強く相互作用させて、例えば太陽電池の光電変換効率を高めるためには、光そのものの特性を知った上で、光をうまく制御して、光と太陽電池との相互作用を最大化することが重要である。

近年、ナノスケールの構造を利用して、光の振る舞い／伝搬を制御する新しい技術が活発に研究されている。これは、バルク体や薄膜といった単純な物質と光との相互作用だけを取り扱っていた従来の光制御技術と異なり、光の波長オーダーもしくはそれ以下の構造を人工的に物質に導入することで、より自在に光の振る舞いを制御しようとする技術で、フォトリソニック結晶や微小共振器による光制御、プラズモニック・メタマテリアルといった技術がそれらを代表している。

理化学研究所の研究室では、最近このプラズモニック・メタマテリアルを研究テーマの中心に設定し、理論解析と実験の両面から全く新しい光制御物質の研究を進めている。メタマテリアルとは、ナノサイズの金属構造体から構成される一種の人工物質であり、この研究では、ナノ金属と光との相互作用を利用することで物質の光学特性を人工的に制御し、これが生み出す新しい光学現象を利用することで、光を自由自在に制御することを目的としている。このメタマテリアルの面白さは、その光学特性が人工的にデザインした金属の形・構造によって制御できる点で、その構造をうまく設計することで、「負の屈折率」を持つ物質や数百万という巨大な屈折率を持つ物質、光の磁場に応答する物質など自然界の材料ではあり得ないような物質を人工的に作り出す事ができることである。

金属微粒子と光との相互作用を取り扱う金属光学は古くから研究されている分野であるが、それらは金属薄膜やナノ金属微小球、周期構造といった単純な形状のものを取り扱うに留まっており、複雑にデザインされた金属構造体との相互作用を取り扱うことはできなかった。これは技術的にそのような複雑な金属構造体を加工することができなかったことが原因である。最近、微細加工技術の大幅な進展によってこの状況が変化し、ナノメートルオーダーの分解能で金属構造体を加工することが可能となり、デザインされた金属微小構造体と光波との相互作用がはじめて現実的な研究課題として研究者に認識されるようになった。つまり、この分野は、「昔からその重要性は認識されていたものの取り扱うことができなかった分野で、今だからこそ実際に取り組むことができるようになった」光科学における重要分野の1つである。そしてこの技術を積極的に利用することによって、光を止める、ある場所に閉じ込めるといった、これまでの光学の常識を超えた光制御技術が現実になる。例えば、ナノ構造をもつ3次元金属体に光を照射すると、光はその内部に浸透するが、樹海に迷い込んだ人間のように、二度と物質表面に帰ってくる事はできず、金属内部で反射・散乱を繰り返すうちに、光のエネルギーは全て金属構造体の方（実際には、金属中の自由電子の振動であるプラズモン）へ移行する。まさに、一度光を捕まえると

二度と離さない光の閉じ込めが実現できる。これを太陽電池の表面に付加することで、表面反射によって光のエネルギーが逃げてしまうことを防ぐことができ、大幅な光電変換効率の向上が期待できる（図1）。

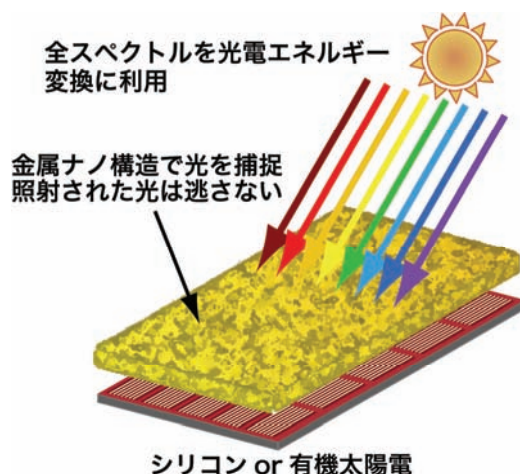


図1. メタマテリアル構造を装荷した高効率光電変換素子

理研では、これまで立体的なナノ金属構造と光波との相互作用を正確に記述する理論的解析技術を元に、主に赤外～可視光で動作するプラズモニック・メタマテリアルに最適な材料選定や構造設計方法を世界に先駆けて明らかにし、さらにこれを用いた新奇光機能デバイスの提案を行ってきた。また、メタマテリアルを構成する3次元ナノ金属構造体を直接加工するレーザー加工法を開発して、実験を通してその有効性を実証してきた。このレーザー加工法は、世界的にオンリーワンの技術として、プラズモニクスやメタマテリアルのコミュニティで世界的に認知されている。一方、本連携研究室のパートナーである北大電子研の三澤、笹木両教授のグループは、高分子の3次元加工や電子線リソグラフィ法を用いた2次元金属構造体のトップダウン加工技術については世界トップレベルの技術を持っている。さらに、高分子の改質や光化学反応など光反応性物質に関する知識と経験も深く、近年では、光子-分子間の結合を4～5桁増強できるという成果を発表している。本連携研究室では、これら2つのグループが持つ技術を相補的に活用し、両者が共同で研究を実施することで、ナノの構造体を使って光を自在に操る技術を付加した従来とは全く異なる原理に基づく超高率光電変換デバイスの実現を目指す。

このような研究を効率良く実行するには、材料物性の知識だけでも、また純粋な光学技術の知識だけでもだめで、電磁気学的理論解析技術、光学材料合成技術、マイクロ／ナノ加工技術、量子光学理論などさまざまな分野の技術を融合させることが必要である。理研田中メタマテリアル研究室が持つナノ光学に関する知識と経験に、北大電子研三澤研究室、笹木研究室の光機能材料、光化学反応、トップダウン型加工技術等を融合・連携させ、これを新しい光エネルギー変換デバイスの高効率化といったテーマに応用して理論解析と実験を通してその有効性を実証する。

2. 研究成果

これまで、光とナノメートルスケールの金属構造との相互作用を解析する電磁界シミュレーション環境を理研 Integrated Cluster Computer System 上に構築した。連携研究室にも有限要素法（FEM）ならびに厳密結合波理論法（RCWA）を利用した電磁界シミュレーション環境を構築し、メタマテリアル構造の設計とその電磁界特性の評価を開始した。現在、このシステムを利用して、広帯域の周波数空間にわたって、光と高い効率で相互作用できる金属構造の最適化を行っている。また、電子線リソグラフィーを用いたナノ金属構造の加工を開始し、その加工条件の最適化を行っている。

3. 今後の研究の展望

電子線リソグラフィーならびにフェムト秒3次元レーザー加工技術を用いた金属ナノ構造の作製と、作製した試料の赤外～可視～紫外の分光計測による光学特性の評価、ならびに計算機を用いた電磁界計算を通して最適な構造設計を行い、高効率光電変換素子に向けた新しい光機能デバイスの開発を目指す。特に、広範囲に広がる太陽光スペクトルを効率良くエネルギー変換するために、これまで光電変換に利用できなかった波長域の光を効率良く波長変換するデバイスと、高いQ値を持ったプラズモニック共振器を利用して光子を補足し、光電変換材料との相互作用時間を拡大して変換効率を向上させるデバイスの2つにフォーカスを絞って研究を行う。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) T. Ohshiro, T. Zako, R. W.-Tamaki, T. Tanaka and M. Maeda, “A facile method towards cyclic assembly of gold nanoparticles using DNA template alone”, Chem Commun. 46, 6132-6134 (2010).

4.2 総説・解説・評論等

- 1) 田中拓男, “プラズモニック・メタマテリアル”, NEW GLASS 25, 9-11 (2010).
- 2) 田中拓男, “2光子還元法を用いた3次元ナノ金属構造のレーザー加工”, レーザ加工学会誌 17, 68-70 (2010).
- 3) 田中拓男, “プラズモニック・メタマテリアル”, 工業材料 58, 68-69 (2010).

4.7 講演

a. 招請講演

i) 学会

- 1) 田中拓男, “プラズモニック・メタマテリアルの創製と新奇光デバイスへの展開”, 第58回応物学会春期 シン

- ポジウム“光科学の未来を拓く-10年先の新規研究領域開拓のために-” (神奈川工科大学) (2011).
- 2) 田中拓男、“共振型3次元メタマテリアルの作製と機能評価”、第58回応物学会春期 シンポジウム”電磁メタマテリアルの現状と将来” (神奈川工科大学) (2011).
 - 3) T. Tanaka, “Plasmonic Metamaterials”, The 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Honolulu, Hawaii, USA) (2010).
 - 4) T. Tanaka, “Towards three-dimensional metamaterials – their design and fabrication technique”, OPT’10 (Southern Taiwan University, Tainan, Taiwan) (2010).
 - 5) 田中拓男、“新光機能材料ープラズモニク・メタマテリアル”、高分子学会 (森戸記念館) (2010).
 - 6) T. Tanaka, “Plasmon enhanced three-dimensional multi-layer optical disk”, ISOM2010, pp. 28-29 (2010).
 - 7) T. Tanaka, “Towards three-dimensional isotropic metamaterials”, Metamaterials 2010 (Karlsruhe, Germany) (2010).
 - 8) T. Tanaka, “Plasmonic metamaterials for artificial magnetic materials in the optical frequency regime”, MSJSympo-Advanced research with synergy between optics and magnetism (2010).
 - 9) T. Tanaka, “Three-Dimensional Metal Nano-Structures for Plasmonic Metamaterials”, 15th OECC 2010 (2010).
 - 10) T. Tanaka, “Design and Fabrication of Plasmonic Metamaterials”, ODF’10 (Pacifico Yokohama, Yokohama, Japan), pp. 215-216 (2010).
 - 11) T. Tanaka, “Two-photon reduction technique for isotropic metamaterials”, The 15th European Conference on Integrated Optics (ECIO10) (Cambridge, UK, UK) (2010).
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) 田中拓男、“メタマテリアル入門”、第1回パイオテンプレート研究会 (オークブラザ2F) (2011).
 - 2) 田中拓男、“メタマテリアルとは”、光協会フォトニクスデバイス・応用技研 (光産業技術振興協会) (2011).
 - 3) 田中拓男、“メタマテリアル 負の屈折率をもつデバイス、研究開発とその応用”、NHK放送技研(NHK縫合技術研究所) (2010).
 - 4) T. Tanaka, “Plasmonic metamaterials and their fabrication techniques”, JGFoS 2010 (Germany) (2010).
 - 5) 田中拓男、“メタマテリアルとは”、富士フィルム (株) 講演会 (2010).
 - 6) T. Tanaka, “Plasmonic metamaterials”, RIKEN-McGill Symposium (McGill University, Canada) (2010).
 - 7) T. Tanaka, “Electromagnetic Metamaterials – plasmonic metamaterials –”, JGFoS 事前勉強会 (2010).
 - 8) 田中拓男、“プラズモニク・メタマテリアル”、理事長ファンドワークショップ「基礎科学が発信する環境エネルギー材料」(2010).
- iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 田中拓男、“プラズモニク・メタマテリアル”、日本オプトメカトロニクス協会セミナー (機会振興会館) (2011).
- 2) 田中拓男、“メタマテリアル”、光拠点若手セミナー (2010).
- 3) 田中拓男、“メタマテリアル”、科学教育振興展覧会 (川越アトレ) (2010).
- 4) 田中拓男、“金属の立体構造をナノスケールで形成する光加工技術ープラズモニク・メタマテリアルの実現をめざしてー”、理研と親しむ会 技術交流会 (2010).

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) 田中拓男、新学術領域研究、共振型3次元メタマテリアルの作製と機能評価 (2010～2014年度)
 - 2) 田中拓男、基盤研究(A)、紫外プラズモニク・メタマテリアル (2010～2012年度).
 - 3) 武安伸幸、挑戦的萌芽、DNAの自己組織化能を用いた可視光領域で磁性を有する新規メタマテリアルの創成 (2010～2011年度).

4.12 社会教育活動

a. 公的機関の委員

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

b. 国内外の学会の役職

- 1) 田中拓男：日本光学会「光学」編集委員 (2009年4月1日～2011年3月31日)

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)、
2006.12～2010.9）

特任准教授 齊藤健太（北大院、博士(理学)、
2011.01～）

特任助教 齊藤健太（北大院、博士(理学)、
2005.10～2010.12）

特任助教 中野雅裕
（東工大院、博士(理学)、2011.01～）

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22年4月～平成23年3月）

平成22年度の延べ利用人数・利用時間は、367人・3327

時間にのぼる。研究者の所属の内訳は、本学では所内はもちろんのこと、創成研究機構・医学部・理学部・工学部・情報科学研究科などが挙げられる（図1）。学外からの利用に関しては、東北大学・横浜市立大学・大阪市立大学・九州工業大学・長崎大学・国立遺伝学研究所やソウル大学など、全国の研究者からの利用があった。

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パンフレットで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22年度は利用者による2報の論文が学術雑誌に掲載された。

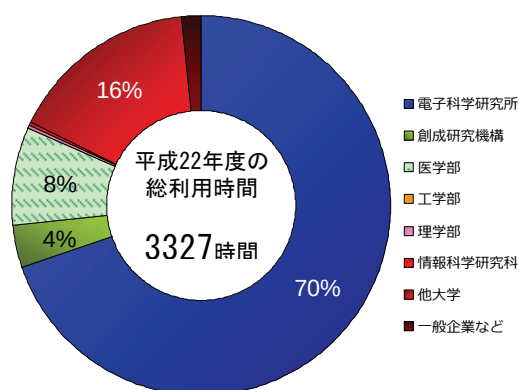


図1. 平成22年度イメージングセンター利用者の主な所属内訳

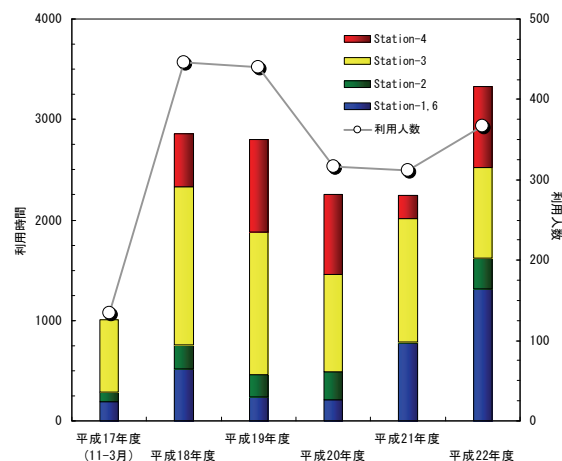


図2. 年度別イメージングセンター利用状況

(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15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。更に近年は、協賛企業の協力のもとで顕微鏡観察・

解析用ソフトウェアの講習会を開催している。本年度の開催では、3日間で延べ40名程度の参加があった。

(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、バイオイメーシング分野における今後の利用が期待される。

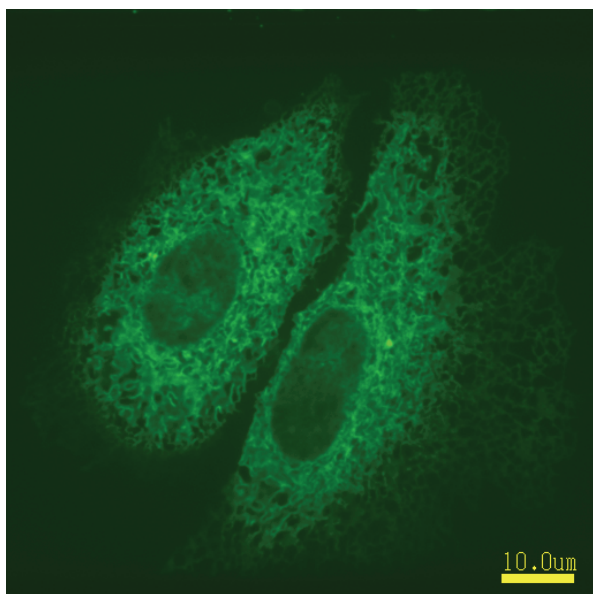


図3. 水銀アークランプを利用したCSU共焦点システムで観察したHeLa細胞小胞体のイメージング。

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、蛍光バイオイメーシ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. Sadamoto, K. Saito, H. Muto, M. Kinjo and E. Ito:

“Direct Observation of Dimerization between Different CREB1 Isoforms in a Living Cell.”, *PLoS ONE*, 6: e20285- (2011)

- 2) K. Horikawa, Y. Yamada, T. Matsuda, K. Kobayashi, M. Hashimoto, T. Matsu-ura, A. Miyawaki, T. Michikawa, K. Mikoshiba, and T. Nagai: “Spontaneous network activity visualized by ultrasensitive Ca^{2+} indicators, yellow Cameleon-Nano.”, *Nature Methods*, 7: 729-732 (2010)
- 3) K. Saito, N. Hatsugai, K. Horikawa, K. Kobayashi, T. Matsu-ura, K. Mikoshiba and T. Nagai: “Auto-luminescent genetically-encoded ratiometric indicator for real-time Ca^{2+} imaging at the single cell level.”, *PLoS ONE*, 5: e9935- (2010)

4.7 講演

b. 一般講演

i) 学会

- 1) T. Nagai and K. Saito: “Auto-luminescent genetically-encoded ratiometric indicator for real-time Ca^{2+} imaging at the single cell level”, Biochemistry and Molecular Biology 2010, 神戸 (2010-12)
- 2) T. Nagai and K. Saito: “Auto-luminescent genetically-encoded ratiometric indicator for real-time Ca^{2+} imaging at the single cell level”, ECS 2010, Warsaw, Poland (2010-09)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 齊藤健太: 「FRET 概論 2-trivial FRET」、第16回細胞生物学ワークショップ、北海道大学 (2010-11)

iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 永井健治、堀川一樹、新井由之: 「蛍光・化学発光性生理機能指示薬の開発」、次世代の生命科学に必要な技術についての打ち合わせ、大崎市 (2010-08)

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) 永井健治、金城政孝、齊藤健太: 「第16回細胞生物学ワークショップ」、14名、2010年11月21～2010年11月26日、北海道大学 電子科学研究所 (札幌市)

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、生物発光一蛍光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
- 2) 齊藤健太、新学術領域研究 研究領域提案型、分割 Rluc-Venus を用いたシナプス形成・消失のリアルタイムイメージング、2011～2012年度

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という問題点を克服し、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ための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。

ここでは、より高い機械強度を持ったハイドロゲルの創製を目標に、有機高分子と無機粒子との複合化を行った。具体的には、多孔性シリカ微粒子を複合化の対象とし、高分子鎖が多孔性無機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では、破断ひずみ（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6wt%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1）。多孔性でないシリカ粒子を同様に導入した場合では、このような高強度化

の効果は得られず、多孔性無機粒子と有機高分子鎖との縫い込み型の複合化が重要な働きをしていることが示唆された。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、多孔性無機粒子の導入量および化学架橋度の2つのパラメータによりゲルの物性を幅広くコントロールすることが可能である（図2）。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。

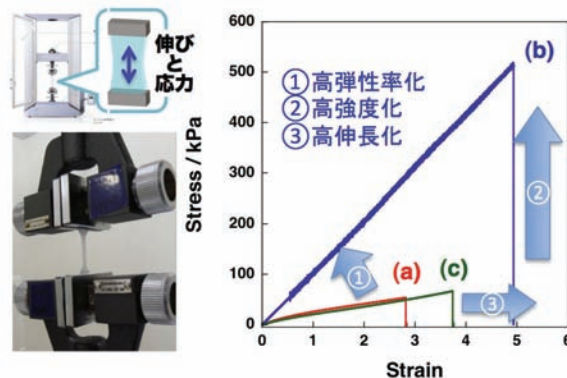


図1. 機械試験の図(左)と応力-ひずみ曲線(右)
ポリアクリルアミドゲル(a)、多孔性シリカを導入したポリアクリルアミドゲル(b)、シリカ粒子を導入したポリアクリルアミドゲル(c)

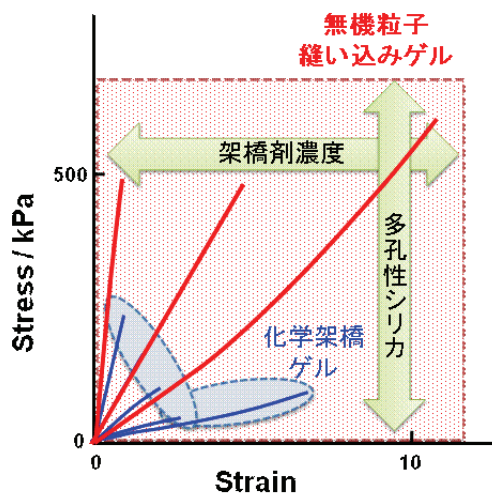


図2. 一般的なハイドロゲルと多孔性無機粒子を導入したゲルの応力-ひずみ曲線

(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る。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の作製を目指し、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を目指して設定している。

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。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。(図3) この方法で、エポキシ系のレジスト膜や金属薄膜のマイクロパターンをハイドロゲルへ転写することに成功した。

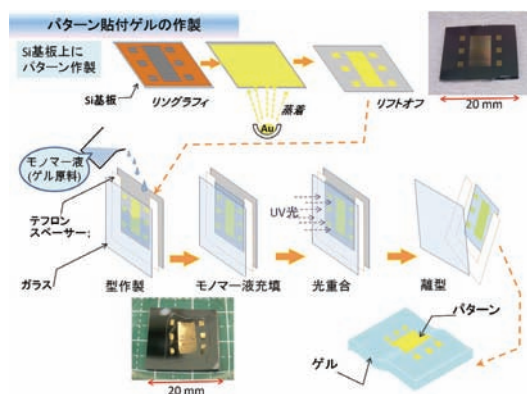


図3. マイクロパターン転写貼付プロセスの概略

実際に、ポリアクリル酸(PAAc)ゲルの重合と同時に金(Au)薄膜マイクロパターンを接合した試料の電子顕微鏡像の一例を図4に示す。線幅 $4\mu\text{m}$ のAuラインパターンの周期構造がPAAc上に正確に転写されていることがわかる。水中ではPAAcゲルは透明であり、その上に周期配列をしたAu薄膜ラインパターンがあるため、これにレーザー光等のコヒーレント光を照射すると回折が起こり、明確なレーザー回折スポットが観察できる。さらに、Au薄膜ラインはPAAcゲル上に接合しているため、ゲルの膨潤・収縮に追従して各Au薄膜ライン間の間隔を変化させることができる。このため、レーザーの回折スポットの間隔は、ゲルの膨潤・収縮にともなって変化する。よって、このレーザー回折スポットの変化を計測すれば、ゲルの膨潤あるいは収縮の状態をリアルタイムで計測することができる。図5は、

この方法によって計測したゲルの膨潤過程である。縦軸はAuラインパターンの間隔であり、シート状のゲル面内の一軸方向に相当する。乾燥状態の試料が純水中で膨潤していく様子が分かる。これにより、今までマクロ的な伸縮しか計測できなかったハイドロゲルの挙動を、マイクロ・ナノスケールで正確に測る方法として期待できる。

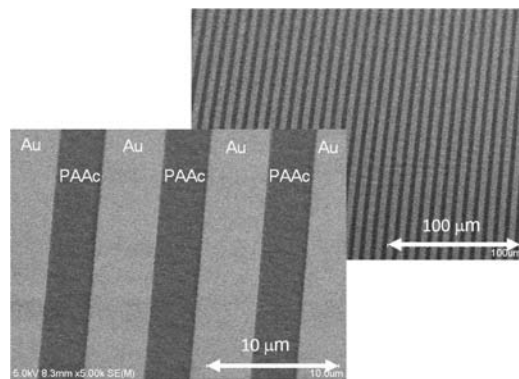


図4. Au薄膜パターンを転写させたPAAcのSEM像

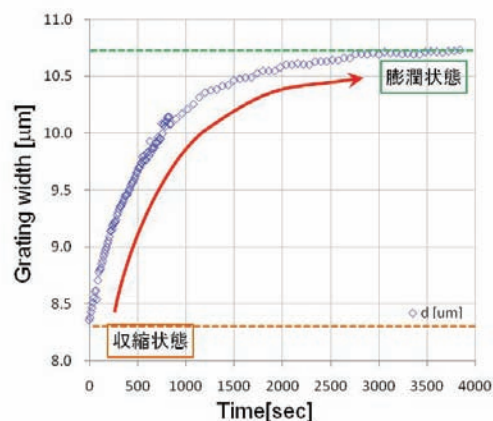


図5. レーザー回折で計測したPAAcゲルの膨潤過程の一例

3. 今後の研究の展望

連携研究室では、2010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、Au薄膜等のマイクロパターンを接合したゲルの膨潤・収縮過程の計測について、時間分解能および空間分解能をより高度化した測定を実現し、電界によるハイドロゲルの応答特性等の計測に発展させることを考えている。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) K-I. Sano, R. Kawamura, T. Tominaga, H. Nakagawa, N. Oda, K. Ijro, and Y. Osada: “Thermoresponsive Microtubule Hydrogel with High Hierarchical Structure”, *Biomacromolecules*, 12(5), 1409-1413 (2011)

4.6 特許

- 1) 長田義仁、佐野健一、富永大輝、居城邦治、三友秀之、岩井覚司：特願2010-108217、『ハイドロゲル、その乾燥物およびハイドロゲルの製造方法』2010年5月10日
- 2) 長田義仁、佐野健一、富永大輝、岸良一、居城邦治、島本直伸、三友秀之：特願2010-108231、『導電性ハイドロゲル、導電性乾燥ゲル、および導電性ハイドロゲルの製造方法』2010年5月10日

4.7 講演

b. 一般講演

i) 学会

- 1) H. Mitomo*, T. Tominaga, K. Sano, K. Ijro and Y. Osada: “Strengthening of the hydrogel with porous inorganic particles”, PACIFICHEM 2010, Honolulu, Hawaii, USA (2010-12)
- 2) K-I. Sano*, R. Kawamura, T. Tominaga, N. Oda, K. Ijro, and Y. Osada: “Creation of actin hydrogel having high-order structure hierarchy”, BMB2010, Kobe (2010-12)
- 3) H. Mitomo*, T. Tominaga, K. Sano, K. Ijro and Y. Osada: “Strengthening of the Hydrogel with Porous Particles”, AsiaNANO2010 (Asian Conference on Nanoscience and Nanotechnology), Miraikan (National Museum of Emerging Science and Innovation), Tokyo (2010-11)
- 4) K-I. Sano*, R. Kawamura, T. Tominaga, N. Oda, K. Ijro, and Y. Osada: “Reversible Gel-Sol Transition of Actin Gel”, AsiaNANO2010 (Asian Conference on Nanoscience and Nanotechnology), Miraikan (National Museum of Emerging Science and Innovation), Tokyo (2010-11)
- 5) H. Mitomo*, T. Tominaga, K. Sano, K. Ijro and Y. Osada: “Advanced Hydrogels with Porous Inorganic Particles”, NCSS2010 (International Conference on Nanoscopic Colloid and Surface Science), Makuhari Messe (International Conference Hall), Chiba (2010-09)
- 6) T. Tominaga*, K-I. Sano, H. Mitomo, and Y. Osada: “Water effect on mechanical properties of polymer networks”, NCSS2010 (International Conference on Nanoscopic Colloid and Surface Science), Makuhari Messe (International Conference Hall), Chiba (2010-09)
- 7) K-I. Sano*, R. Kawamura, T. Tominaga, N. Oda, K. Ijro, and Y. Osada: “Emergent Functions of Spram-Macromolecular Hierarchical Actin Hydrogel”,

NCSS2010 (International Conference on Nanoscopic Colloid and Surface Science), Makuhari Messe (International Conference Hall), Chiba (2010-09)

- 8) 三友秀之*, 富永大輝、佐野健一、島本直伸、居城邦治、長田義仁:「多孔性無機微粒子によるゲルの高強度化」、第59回高分子討論会、北海道大学 (2010-09)
 - 9) R. Kawamura*, K-I. Sano, T. Tominaga, K. Ijro, and Y. Osada: “Autonomous oscillation in mechanical property of actin gel”, 第48回日本生物物理学会年会、東北大学 (2010-09)
 - 10) K-I. Sano*, R. Kawamura, T. Tominaga, N. Oda, K. Ijro, and Y. Osada: “Reversible gel-sol transition of covalently cross-linked actin hydrogel”, 第48回日本生物物理学会年会、東北大学 (2010-09)
 - 11) K-I. Sano*, R. Kawamura, T. Tominaga, N. Oda, K. Ijro, and Y. Osada: “Reversible Gel-Sol Transition of Actin Gel”, Polymer Physics 2010, Ji-nan, China (2010-06)
 - 12) H. Mitomo*, T. Tominaga, K. Sano, K. Ijro and Y. Osada: “Strengthening of the Hydrogel with Inorganic Particles”, 第59回高分子学会年次大会、パシフィコ横浜 (2010-05)
 - 13) R. Kawamura*, T. Tominaga, N. Oda, K. Ijro, and Y. Osada: “Gel-Sol transition of microtubule-gel with high-order hierarchical structure”, 第59回高分子学会年次大会、パシフィコ横浜 (2010-05)
 - 14) K-I. Sano*, R. Kawamura, T. Tominaga, N. Oda, K. Ijro, and Y. Osada: “Reversible Gel-Sol transition of Actin Gel”, 第59回高分子学会年次大会、パシフィコ横浜 (2010-05)
 - 15) K-I. Sano*, T. Tominaga, O. Haruta, H. Nakagawa, K. Ijro, and Y. Osada: “DNA gel cross-linked by intercalation”, 第59回高分子学会年次大会、パシフィコ横浜 (2010-05)
 - 16) N. Oda*, R. Kawamura, T. Tominaga, K. Ijro, R. Kishi, H. Okuzaki, and Y. Osada: “Tropomyosin Hydrogel is able to transfer among the higher-ordered hierarchical structure”, 第59回高分子学会年次大会、パシフィコ横浜 (2010-05)
- ##### ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 10) N. Shimamoto*, H. Mitomo, K. Ijro and Y. Osada: “Fabrication of micro-pattern on hydrogels”, NanoScience Joint Laboratory forum, RIKEN, Wako (2011-03)

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
李 哲煜、石 旭
修士課程
荒木 剛、池谷伸太郎、蝦名 渉、青陽大輔、
旭 秀典、武藤将充

1. 研究目標

銀塩写真の分光増感剤、フォトリソグラフィのレジスト材料、有機エレクトロルミネッセンス (Electro Luminescence: EL) の発光材料、光触媒、湿式太陽電池、有機太陽電池など、種々の光システムや光デバイスにおいて欠くことのできない光化学プロセスは枚挙に暇がなく、これまでの光科学技術の発展に光化学の学理と技術が果たしてきた役割は大きい。これらの光化学反応は、分子の光励起によって開始される。光励起の効率性は分子が有する吸収断面積により決まり、一般的な分子の吸収断面積は $\sim 1 \times 10^{-16} \text{ cm}^2$ 程度であり、この値は、光化学反応でよく利用される可視光の光を $1 \mu\text{m}$ 四方に絞り込んだ時に1つの光子を完全に分子に吸収させるためには、1億にも及ぶ分子が必要であることを示している。すなわち、光と分子の相互作用は、元来それほど大きくなく、物質系に投入された光子を極めて少ない分子数によって完全に吸収し、光励起を可能にする「光の有効利用」という概念は、光デバイスの小型化や低コスト化のみならず、デバイス作製に必要なエネルギーを削減するという観点からも重要である。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基板上に2つの金ナノブロック構造がナノメートルの空隙を有して隣接したナノギャップ金構造体を作製し、表面増強ラマン散乱の電磁的増強効果について明らかにした。また、酸化チタン単結晶基板上に金ナノブロック構造体を作製し、金ナノ構造／酸化チタン基板を電極とした光電変換測定システムの構築を行った。

(i) 表面増強ラマン散乱の電磁的増強効果

光の波長よりも小さい金属ナノ微粒子に光を照射すると、局在表面プラズモン共鳴が誘起され、回折限界よりも遥に小さい領域に光を局在化させることが可能である。特に2つ以上の金属ナノ微粒子がナノメートル幅で近接したナノギャップ金属構造は、入射光電場強度の $\sim 10^5$ 倍に及ぶ光電場増強効果を示すことが理論的に見積もられており、1分子での表面増強ラマン散乱計測が可能になると言われている。しかし、この表面増強ラマン散乱現象は、発見されてから30余年経過しているにもかかわらず、電磁的増強効果の定量的な解析は未だに十分行われていない。従来の表面増強ラマン散乱に関する研究では、構造が規定されていない粗い電極表面や金属ナノ微粒子を基板上に分散する方法を用いて準備された基板が研究に多く利用されていたため、光電場増強効果の再現性が低く、定量性に欠けていたことが一つの要因として考えられている。そこで、我々は電子ビーム露光装置を用いた高精度なリソグラフィー技術により、精密にナノギャップ金構造体を作製し、作製した構造基板をSERS実験に使用してSERSの電磁的な増強効果について検討を行った。

図1(a)に、金ナノブロック構造 ($80 \text{ nm} \times 80 \text{ nm} \times 35 \text{ nm}$) を 10 nm の構造間距離を有して対角線上に2つ配置したナノギャップ金2量体構造の電子顕微鏡写真を示す。なお、ギャップ幅は、近接する構造の端から端までの距離と定義した。図1(b)に、様々なギャップ幅を有するナノギャップ金2量体構造の水中におけるプラズモン共鳴スペクトルを示す。入射光は直線偏光を用い、その偏光方向は2つの構造を結ぶ軸に対して平行とした。ギャップ幅 0 nm の構造 (構造同士が互いに接している構造) は、ピーク波長が 690 nm 付近に存在している。一方、ギャップ幅を 1.8 nm に設計すると、プラズモン共鳴スペクトルはブロードになり、ピーク波長も 760 nm 付近に長波長シフトした。この長波長シフトは、ギャップの形成に基づく微粒子間の電磁的な相互作用である双極子-双極子相互作用に基づいて多重極子が励起されたためと考えられる。また、ギャップ幅 1.8 nm のナ

ノギャップ金2量体構造の共鳴スペクトルは、ピーク波長におけるエクステンション値（共鳴効率）がギャップ幅0 nmに比べて見掛け上小さくなっている。これは多重極子励起に基づいてスペクトルのブロードニングが生じたことが理由の一つと考えられる。さらに、ギャップ幅3.5 nmおよび5.5 nmの構造は790 nm付近にまでプラズモン鳴バンドのピーク波長がシフトし、ギャップ幅100 nmの構造に比べて約110 nm以上長波長にピーク波長が存在する。ギャップが数 nmの時に観測されるピーク波長の長波長シフトは双極子-双極子相互作用によるものであり、FDTDシミュレーション解析から、数ナノメートルのギャップにおいては、入射光電場強度の 10^4 倍におよぶ光電場増強が誘起されると見積もられた。

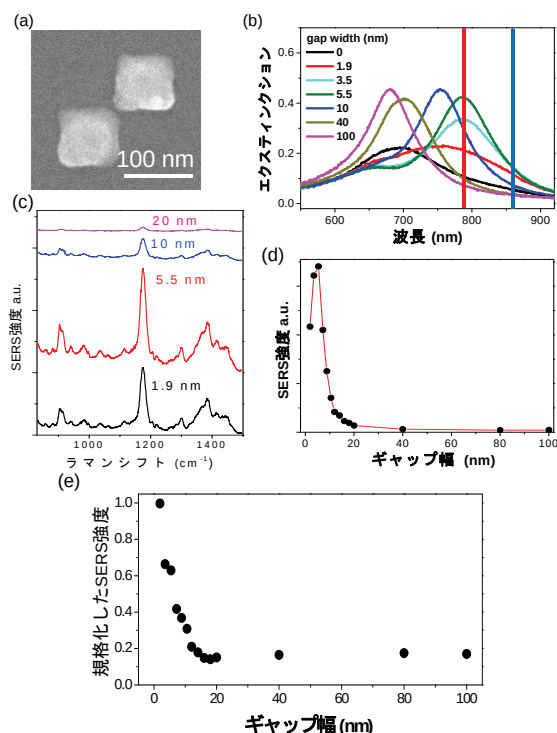


図1. (a) ナノギャップ金2量体構造の電子顕微鏡写真(ギャップ幅: 10 nm), (b) さまざまなギャップ幅を有するナノギャップ金2量体構造の水におけるプラズモン共鳴スペクトル, 図中赤い線は入射レーザー波長, 青い線はラマン散乱波長, (c) クリスタルバイオレット水溶液のSERSスペクトル, (d) 1173 cm^{-1} におけるSERS強度のギャップ幅依存性, (e) 電磁場理論式を用いて規格化したSERS強度のギャップ幅依存性

図1(c)に、ナノギャップ金2量体構造を用いて測定したクリスタルバイオレット分子 ($1 \times 10^{-4}\text{ mol/l}$) のSERSスペクトルを示す。SERS強度は、ギャップ幅の減少とともに増大し、ギャップ幅0 nm (連結した構造) の構造は、ギャップ幅5.5 nmの構造に比べてSERS強度が減少することが明らかになった。ラマンシフト 1173 cm^{-1} におけるSERS強度をギャップ幅に対してプロットしたグラフを図1(d)に示す。ギャップ幅20 nm～100 nmの構造におけるSERS強度はほとんど変化していないのに対して、ギャップ幅が20 nm以下になるとSERS強度は急激な増加を示し、ギャップ幅5.5 nmの構造でSERS強度が最大値を示した。

図1(d)において最も注目すべき点は、SERS強度が最大になるギャップ幅が1.8 nmや3.5 nmではなく、5.5 nmの構造となる点である。これは、入射レーザー波長およびラマン散乱波長におけるプラズモンの共鳴効率、ギャップ幅によって異なることに起因すると考えられる。つまり、ギャップ幅によってプラズモン共鳴波長や共鳴効率が異なるため、実験から得られたSERS強度を単純に比較することは困難である。したがって、プラズモン共鳴スペクトルが変化してもSERS強度を比較することが可能な解析方法を導出する必要がある。

通常ラマン散乱シグナルの強度は、式(1)に示すように、ラマン散乱に寄与する分子数、分子のラマン散乱断面積、および入射したレーザー光強度に依存することが知られている。

$$P_s(\nu_s) = N \sigma_R I(\nu_i) \quad (1)$$

ここで、 N はラマン散乱に寄与した分子数、 σ_R は散乱断面積 ($10^{-31} \leq \sigma_R \leq 10^{-29}\text{ cm}^2/\text{分子}$)、 $I(\nu_i)$ は励起レーザー光の強度、 ν_i は入射光の周波数、 ν_s はストークス周波数である。一方、SERSシグナルは、プラズモンによる光電場増強効果と分子が金属表面に化学吸着した際に形成される電荷移動準位が入射場と共鳴することにより見かけ上のラマン散乱断面積が増大する化学的な効果の2つがシグナルの増強に影響を及ぼす。特に、プラズモンによる増強効果は、入射光の表面電界強度だけでなく、散乱光の輻射効率にも影響を及ぼすことが理論的研究から示唆されている。したがって、SERSシグナルの強度は以下の式のように与えられる。

$$P_s(\nu_s) = N \sigma_{\text{SERS}} L(\nu_i)^2 L(\nu_s)^2 I(\nu_i) \quad (2)$$

ここで、 $L(\nu_i)^2$ は入射場の光電場増強ファクター $L(\nu_i) = |E_{\text{loc}}(\nu_i)|/|E_0|$ であり、 $L(\nu_s)^2$ は散乱場の光電場増強ファクター $L(\nu_s) = |E_{\text{loc}}(\nu_s)|/|E_0|$ を示している。また、化学効果による見かけ上のラマン散乱断面積が増大する効果は、ピリジンなどの化学効果を強く示す分子において $\sim 10^2$ 倍程度有することがこれまでの研究から見積もられてきた。したがって、式(2)ではバルクのラマン散乱断面積とは異なる σ_{SERS} と定義した。重要な点は、SERSにおけるプラズモンによる増強効果は、入射光の波長における光電場増強因子と散乱光の波長における光電場増強因子の両方に影響を及ぼすことが理論的に予測されている点である。そこで、本研究では、金ナノブロック構造の光電場増強効果が、光と金属ナノ構造の共鳴の効率に対して高い相関を有することから、入射レーザー光の波長およびラマン散乱光の波長におけるプラズモン共鳴スペクトルのエクステンション値を基に、SERS強度の規格化を行った。

図1(e)に、SERS強度を入射レーザー光の波長およびラマン散乱光の波長のエクステンション値で規格化し、ギャップ幅に対してプロットしたグラフを示す。規格化されたSERS強度は、ギャップ幅が20 nm～100 nmの構造では一定であるのに対して、ギャップ幅が18 nm以下においてギャップ幅の減少とともに顕著に増大し、ギャップ幅1.8 nmの構造でピークを示した。興味深いことに、図1(e)ではギ

ギャップ幅5.5 nm 付近にピークが存在しなくなり、SERS 強度を規格化することによりナノギャップの形成に基づく光電場の局在効果のみを抽出することに成功した。

(ii) 金ナノ構造／酸化チタン電極を用いた可視・近赤外光電変換システム

高効率な太陽電池の開発は、将来の低炭素社会を実現する上で極めて重要である。高い光電変換効率を有する太陽電池を実現するためには、紫外から赤外波長域の太陽光の持つ幅広いスペクトルに対応したシステムの開発が必要である。酸化チタン半導体電極を作用極として用い、波長400 nm 以下の紫外光を照射すると極めて高い効率で光電変換できることが1972年に本多-藤嶋によって初めて明らかにされて以来、光電変換を可能にする波長をより長波長にする研究は数多くなされてきた。近年では、酸化チタン半導体電極に色素増感剤として有機金属錯体を用いた湿式太陽電池や金ナノ微粒子を酸化チタン表面に分散させた太陽電池により700～800 nm 程度までの長波長の光を光電変換できることが報告されている。しかし、地表に到達する太陽光スペクトルのうちの25%以上を占める800～1300 nm の近赤外光を有効に利用できる太陽電池はほとんど開発されていない。筆者らは、金属ナノ構造を用いて近赤外光を高効率に捕集・局在させる光アンテナの作製、およびその光電変換システムへの展開を進め、近赤外光を光電変換する方法論を見出した。

ルチル型単結晶酸化チタン基板（0.05 wt% Nb ドープ）上に光アンテナ構造として、電子線リソグラフィ／リフトオフ法により図2(a)の電子顕微鏡写真に示すような金ナノブロック構造体（構造サイズ240 nm×110 nm×40 nm、構造間距離 縦方向：300 nm、横方向：200 nm）を2 mm 四方の領域に作製した。光電変換特性は、三極式電気化学計測システムを用い、作用極に金ナノロッド構造／酸化チタン電極、対極に白金電極、参照電極に飽和カロメル電極を用いた。電解質水溶液として塩化カリウムまたは過塩素酸カリウム水溶液（0.1 M）を用い、キセノンランプからの光を分光器により単色光（スペクトル幅10 nm）とし、それを励起光として光電気化学測定を行った。

図2(b)に無偏光、および直線偏光を照射した場合の金ナノブロック構造体のプラズモン共鳴スペクトル、図2(c)に光電変換効率（Incident Photon to Current Efficiency: IPCE）のアクションスペクトルを示す。これらのスペクトルから、いずれの偏光照射条件においてもIPCE アクションスペクトルはプラズモン共鳴スペクトルの形状と同様の応答を示すことが明らかになった。また、図2(d)に示した内部量子効率（Internal Quantum Efficiency: IQE）は波長依存性を示し、プラズモン共鳴ピーク波長付近において10～15%に達した。IQE がプラズモン共鳴スペクトルと同様な形状を示すことは、金ナノロッド構造の光アンテナ効果による光捕集だけでなく、光電場増強効果が光電流の発生に寄与していることが示唆される。また、光電流の時間依存性を測定

したところ、電子供与体となる分子を含まない電解質水溶液のみで200時間以上安定に光電流が発生することが確認された。この事実は、本光電流発生において水が電子源となっている可能性があることを示しており、水の酸化的分解によって酸素、および過酸化水素が発生しているかを、今後確認する予定にしている。現在得られている実験結果からだけで、本光電流発生のメカニズムの詳細を議論することは困難であるが、局在プラズモン共鳴に基づき増強された近接場光が金の内殻電子または自由電子を励起することによって電子・正孔対が形成され、励起された電子は直ちに酸化チタンの伝導電子帯に電子移動し、正孔は酸化チタンの表面準位にトラップされ、水から電子を受け取ることにより光電流が観測されると推測している。

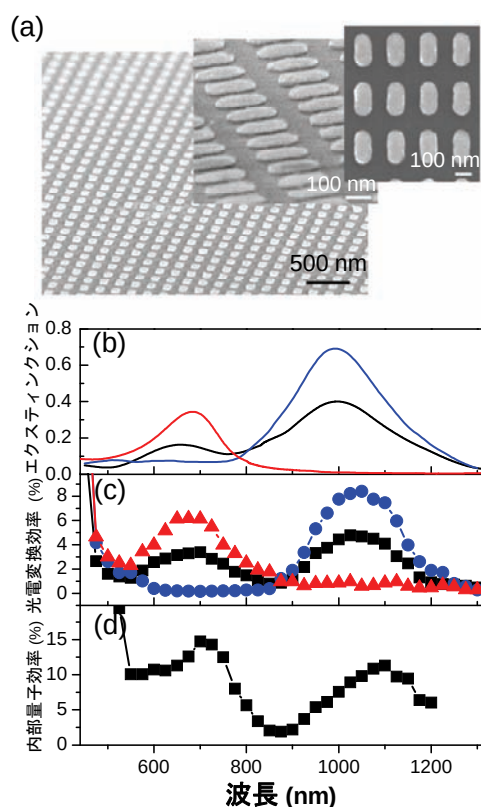


図2. (a) 金ナノブロック構造体を配列した酸化チタン電極の電子顕微鏡写真(左: 斜め75°から観察, 中央: 斜め75°から観察した像の拡大写真, 右: 上面図), (b) 金ナノブロック構造のプラズモン共鳴スペクトル (黒: 無偏光照射条件, 赤: 直線偏光照射 (横モード), 青: 直線偏光照射 (縦モード)), (c) 光電変換効率 (IPCE) アクションスペクトル (黒: 無偏光照射, 赤: 直線偏光照射 (横モード), 青: 直線偏光照射 (縦モード)), (d) 内部量子効率の波長依存性

3. 今後の研究の展望

今後は、同位体を有する H_2^{18}O を電解質溶媒として用い、酸素の発生を GC-MS 測定により確認および定量し、光電流発生のメカニズムについて明らかにする。また、散乱によるロスを抑減させる金属ナノ構造の設計を模索し、高い光電変換効率を目指すとともに、近赤外光による新しい人工光合成系・太陽電池への展開を図る。

4. 資料

4.1 学術論文

- 1) H. Segawa, K. Ueno, Y. Yokota, H. Misawa, T. Yano, and S. Shibata: “Nano-patterning of a TiO₂-organic Hybrid Material Assisted by Localized Surface Plasmon”, J. Am. Ceram. Soc., 93, 6, 1634-1638(2010).
- 2) K. Juodkazis, J. Juodkazyte, P. Kalinauskas, T. Gertus, E. Jelmakas, H. Misawa, S. Juodkazis: “Influence of laser microfabrication on silicon electrochemical behavior in HF solution”, J. Solid State Electr. 14, 5, 797-802 (2010).
- 3) V. Mizeikis, S. Joudkazis, K. Sun, and H. Misawa: “Fabrication of Frequency-Selective Surface Structures by Femtosecond Laser Ablation Of Gold Films”, J. Laser Micro Nanoengineering, 5, 2, 115-120(2010).
- 4) T. Tsuji, Y. Yokota, K. Ueno, M. Tsuji, H. Misawa: “Influence of Localized Surface Plasmon Resonance on Shape Changes of Nanostructures: Investigation Using Metal Nanoblocks in Halide Solutions”, J. Photochem. Photobiol. A: Chem., 212, 1, 13, 20-26(2010).
- 5) Y. Nishijima, K. Ueno, Y. Yokota, K. Murakoshi, and H. Misawa: “Plasmon-Assisted Photocurrent Generation from Visible to Near-Infrared Wavelength Using a Au-Nanorods/TiO₂ Electrode”, J. Phys. Chem. Lett., 1, 13, 2031-2036(2010).
- 6) B. B. Xu, H. Xia, L. G. Niu, Y. L. Zhang, K. Sun, Q. D. Chen, Y. Xu, Z. Q. Lv, Z. H. Li, H. Misawa, and H. B. Sun: “Flexible Nanowiring of Metal on Nonplanar Substrates by Femtosecond-Laser-Induced Electroless Plating”, Small, 6, 16, 1762-1766(2010).
- 7) F. Ito, R. Ohta, Y. Yokota, K. Ueno, H. Misawa, and T. Nagamura: “Near-infrared Fluorescence Enhancement by Regularly Arranged Gold Nanoblocks”, Chem. Lett., 39, 11, 1218-1219(2010).
- 8) Q. Sun, H. Asahi, Y. Nishijima, N. Murazawa, K. Ueno, H. Misawa: “Pulse duration dependent nonlinear propagation of a focused femtosecond laser pulse in fused silica”, Opt. Exp., 18, 24, 24495-24503(2010).
- 9) Y. Yokota, K. Ueno, and H. Misawa: “Highly Controlled Surface-Enhanced Raman Scattering Chips Using Nanoengineered Gold Blocks”, Small, 7, 2, 252-258 (2011).
- 10) Z. Li, K. Sun, M. Sunayama, Y. Matsuo, V. Mizeikis, R. Araki, K. Ueno, M. Abe, and H. Misawa: “On-chip Fraction Collection for Multiple Selected ssDNA Fragments Using Isolated Extraction Channels”, J. Chromatogr. A, 1218, 7, 997-1003(2011).
- 11) K. Imura, K. Ueno, H. Misawa, and H. Okamoto: “Anomalous Light Transmission from Plasmonic Capped Nano-apertures”, Nano lett., 11, 3, 960-965(2011).

- 12) Y. Yokota, K. Ueno, and H. Misawa: “Essential Nanogap Effects on Surface-Enhanced Raman Scattering Signals from Closely Spaced Gold Nanoparticles”, Chem. Commun., 47, 12, 3505-3507(2011).

4.2 総説・解説・評論等

- 1) 上野貢生、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」、触媒、52(3): 166-171 (2010).
- 2) 上野貢生、三澤弘明:「光-分子強結合反応場で何が起きているのか?—微小空間での光と分子の相互作用を追う」、月刊化学、65(4): 22-27 (2010).
- 3) 上野貢生、三澤弘明:「プラズモンリソグラフィーによるナノ加工」、超精密、16: 37-42 (2010).
- 4) 三澤弘明:「広がるプラズモニクス研究」(巻頭言)、光学、40(2): 67 (2011).
- 5) S. Gao, K. Ueno, and H. Misawa: “Plasmonic Antenna Effects on Photochemical Reactions”, Acc. Chem. Res., 44(4): 251-260 (2011).

4.3 国際会議議事録等に掲載された論文

- 1) Q. Sun, H. Asahi, N. Murazawa, K. Ueno, H. Misawa: “Effect of drying process on photon-polymerized microstructures in resists”, Proceedings of Advances in Optoelectronics and Micro/Nano-Optics (AOM), OSA-IEEE-COS, 1-4 (2010).

4.4 著書

- 1) 三澤弘明、松尾繁樹:「3次元フォトニック結晶」、ナノ粒子・マイクロ粒子の調整と応用技術、シーエムシー出版: 270-276 (2010).
- 2) 上野貢生、三澤弘明:「第14章 プラズモン増強場を用いた光ナノ加工」、近接場光のセンシング・イメージング技術への応用-最新のバイオ・化学・デバイス分野への展開-、シーエムシー出版: 155-162 (2010).

4.6 特許

・PCT 出願

- 1) 奥津哲夫、三澤弘明、上野貢生: PCT/JP2010/064908, 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、2010年9月2日
- 2) 三澤弘明、西島喜明、上野貢生、村越敬: PCT/JP2010/065052, 光電変換装置、光検出装置、及び光検出方法、2010年9月2日
- 3) 上野貢生、三澤弘明: PCT/JP2011/001192, フォトリジストパターンの作製方法、2011年3月1日

4.7 講演

i) 学会

- 1) H. Misawa*, K. Ueno, N. Murazawa, and Y. Yokota:

- “Nanoparticle Plasmon-assisted Photochemical Reactions”, The Nanostructures for Energy Conversion Symposium, 217th Meeting of the Electrochemical Society, Vancouver, Canada (2010-04).
- 2) H. Misawa*, K. Ueno, Y. Nishijima, Y. Yokota: “Photochemistry on Nanoengineered Gold Structures”, The International Conference on Nanophotonics 2010, Tsukuba (2010-06).
 - 3) H. Misawa*, Y. Nishijima, K. Ueno, Y. Yokota, K. Murakoshi: “Plasmon-Assisted Photocurrent Generation System from Visible to Near-infrared Wavelength”, XXIII IUPAC Symposium on Photochemistry, Ferrara, Italy (2010-07).
 - 4) N. Tamai*, L. Wang, Y. Nishijima, K. Ueno, H. Misawa, A. Kiya, Y. Okuno, Y. Niidome: “Coherent Phonon Vibration of Gold Nanostructures and Its Control by Two Excitation Pulses”, XXIIIth IUPAC Symposium on Photochemistry, Ferrara, Italy (2010-07).
 - 5) H. Misawa*, Y. Nishijima, K. Ueno, Y. Yokota, K. Murakoshi: “Plasmon Assisted Photocurrent Generation from Ultraviolet to Near-Infrared Wavelength”, 18th International Conference on Photochemical Conversion and Storage of Solar Energy (IPS-18), Seoul, Korea (2010-07).
 - 6) T. Geldhauser*, S. Ikegaya, A. Kolloch, N. Murazawa, K. Ueno, J. Boneberg, P. Leiderer, E. Scheer, H. Misawa: “Visualization and measurement of the near field enhancement of gold nanotriangles by two-photon polymerization”, 7th International Conference on Photo-Excited Processes and Applications, Copenhagen, Denmark (2010-08).
 - 7) H. Misawa*, Y. Nishijima, K. Ueno, Y. Yokota, and K. Murakoshi: “Plasmon-Assisted Photocurrent Generation from Visible to Near-infrared Wavelength Using an Au-Nanorods/TiO₂ Electrode”, Korea-Japan Joint Forum 2010 on Organic Materials for Electronics and Photonics (KJF2010), Fukuoka (2010-08).
 - 8) H. Misawa*: “Plasmon-Enhanced Photochemical Reactions”, Korea Nano Optical Society 2010 (KNOS 2010), Korea (2010-08).
 - 9) 上野貢生: 「プラズモン増強場を用いた光ナノ加工技術の開発」、平成22年 電気学会 電子・情報・システム部門大会、熊本大学 (2010-09).
 - 10) 治田将*, 三澤弘明、上野貢生、横田幸恵、西井準治、田和圭子、奥津哲夫: 「金ナノ構造を利用したタンパク質の光誘起結晶化」、2010年光化学討論会、千葉大学 (2010-09).
 - 11) 上野貢生*, 呉伯涛、横田幸恵、三澤弘明: 「プラズモン増強場における2光子フォトリソミック反応の定量測定」、2010年光化学討論会、千葉大学 (2010-09).
 - 12) 辻剛志*, 上野貢生、横田幸恵、辻正治、三澤弘明: 「ナノブロックを用いた金属ナノ粒子の光誘起形状変化の解析」、2010年光化学討論会、千葉大学 (2010-09).
 - 13) 横田幸恵*, 王麗, 上野貢生, 邱建榮, 三澤弘明: 「制御された銀ナノブロック構造のプラズモン分光特性」、2010年光化学討論会、千葉大学 (2010-09).
 - 14) 玉井尚登*, 王莉、西島喜明、上野貢生、三澤弘明、新留康朗: 「金ナノ構造体のコヒーレント音響フォノンとプラズモンカップリング」、第4回分子科学討論会、大阪大学 (2010-09).
 - 15) 原田洋介*, 井村考平、岡本裕巳、西島喜明、上野貢生、三澤弘明、長瀬和也、大西大: 「ナノ空間におけるプラズモン増強効果」、第4回分子科学討論会、大阪大学 (2010-09).
 - 16) 吉田裕*, 谷津茂男、渡辺精一、西島喜明、上野貢生、三澤弘明、加藤隆彦: 「レーザー照射によるシリコン表面ナノ複合構造と表面増強ラマン散乱」、第71回 応用物理学会学術講演会、長崎大学 (2010-09).
 - 17) 石黒裕康*, 田中嘉人、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場解析(3)」、第71回 応用物理学会学術講演会、長崎大学 (2010-09).
 - 18) 中竜大*, 中村光廣、中野敏行、佐藤修、木村充宏、田原譲、久下謙一、鈴木芳生、三澤弘明、上野貢生: 「高分解能原子核乾板による暗黒物質の方向性検出実験-超微粒子乳剤製造状況および反跳原子核読み出し開発状況」、日本物理学会2010秋季大会、九州工業大学 (2010-09).
 - 19) K. Ueno*, B. Wu, Y. Yokota, H. Misawa, “Quantitative Analysis of Plasmon-Assisted Two-Photon Photochromic Reactions on Gold Nanoparticles”, 6th Asian Photochemistry Conference 2010, Wellington, New Zealand (2010-11).
 - 20) Q. Sun*, H. Asahi, N. Murazawa, K. Ueno, H. Misawa, “Effect of drying process on photopolymerized microstructures in resists”, Advances in Opto-electronics and Micro/nano-optics 2010, Guangzhou, China (2010-12).
 - 21) Z. Li*, K. Sun, M. Sunayama, K. Ueno, R. Araki, M. Abe, H. Misawa: “On-chip DNA fraction collection using isolated extraction channels”, The Tenth Asia-Pacific International Symposium on Microscale Separations and Analysis, Hong Kong, China (2010-12).
 - 22) H. Misawa*, K. Ueno, N. Murazawa, Y. Nishijima, Y. Yokota: “Photochemical reactions on nano-engineered gold particles”, 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, Honolulu, USA (2010-12).
 - 23) K. Ueno*, S. Takabatake, Y. Nishijima, Y. Yokota, H. Misawa: “Nanogap-assisted surface plasmon nanolithography”, 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, Honolulu, USA (2010-12).
 - 24) Y. Yokota*, K. Ueno, H. Misawa: “Mechanistic analysis of

- electromagnetic field enhancement effects on surface-enhanced Raman scattering using nano-engineered gold particles”, 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, Honolulu, USA (2010-12).
- 25) M. Muto*, N. Murazawa, K. Ueno, H. Misawa: “Reversible phase transition control of polymer gels with gold nano structures”, 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, Honolulu, USA (2010-12).
- 26) S. Ikegaya*, K. Ueno, N. Murazawa, H. Misawa: “Spectral properties of closely-spaced gold nanoblock pairs”, 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, Honolulu, USA (2010-12).
- 27) Y. Yokota*, K. Ueno, H. Misawa, “Surface-Enhanced Raman Scattering signals from closely-spaced gold nanoblocks”, 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, Honolulu, USA (2010-12).
- 28) T. Geldhauser*, S. Ikegaya, A. Kolloch, N. Murazawa, K. Ueno, P. Leiderer, E. Scheer, H. Misawa: “Plasmonics on nanotriangles generated by nanosphere lithography”, 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, Honolulu, USA (2010-12).
- 29) Y. Nishijima*, K. Ueno, Y. Yokota, K. Murakoshi, H. Misawa, “Construction of plasmonic solar cell working from ultraviolet to near infrared wavelength”, 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, Honolulu, USA (2010-12).
- 30) N. Murazawa*, K. Ueno, H. Kato, M. Muto, H. Misawa, “Manipulation of microspheres using localized surface plasmon on gold nanostructures”, 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, Honolulu, USA (2010-12).
- 31) 中治光童*, 木場隆之, 村山明宏, 佐久間美緒, 横田幸恵, 上野貢生, 三澤弘明: 「InGaN 薄膜表面における Au ナノ構造の作製と光学特性」, 第58回 応用物理学会学術講演会, 神奈川工科大学 (2011-3).
- 32) 玉井尚登*, 王莉, 西島喜明, 上野貢生, 三澤弘明: 「金ナノプレート対のプラズモンカップリングとコヒーレント音響フォノンダイナミクスの近赤外過渡吸収分光」, 第58回 応用物理学会学術講演会, 神奈川工科大学 (2011-3).
- 33) 西島喜明*, 村澤尚樹, 上野貢生, 椎屋由紀子, 米澤孝枝, 堀田祐司, 三澤弘明: 「顕微空間分解計測を用いた有機LEDデバイスの光取り出し効率解析」第58回応用物理学関係連合講演会, 神奈川工科大学 (2011-03).
- 34) 三澤弘明*: 「光ナノアンテナを用いた広波長帯域太陽光エネルギー変換システムの構築」, 日本化学会第91春季年会, 日本化学会第91春季年会 講演予稿集 (2011).
- 35) 上野貢生*: 「制御された金属ナノ構造による光増強場の創製と化学反応への応用」, 日本化学会第91春季年会, 日本化学会第91春季年会 講演予稿集 (2011).
- 36) 西島喜明*, 上野貢生, 三澤弘明: 「金ナノ構造/n型半導体電子移動系を用いた光電間特性のプラズモン増強効果」, 日本化学会第91春季年会, 日本化学会第91春季年会 講演予稿集 (2011).
- 37) 青陽大輔*, 村澤尚樹, 西島喜明, 上野貢生, 三澤弘明: 「積層型金ナノ構造が示す光捕集効果の検討」日本化学会第91春季年会, 日本化学会第91春季年会 講演予稿集 (2011).
- 38) 横田幸恵*, 王麗, 上野貢生, 邸建栄, 三澤弘明: 「チタン/銀コアシェル型ナノ構造のプラズモン増強効果」日本化学会第91春季年会, 日本化学会第91春季年会 講演予稿集 (2011).
- 39) 小竹勇己*, 西島喜明, 上野貢生, 三澤弘明: 「金ナノ構造/酸化チタン電極を用いた太陽電池の光電変換特性」日本化学会第91春季年会, 日本化学会第91春季年会 講演予稿集 (2011).
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) K. Ueno*: “Gold nanoparticle enhanced non-linear photochemical reactions”, International Conference on Core Research and Engineering Science of Advanced Materials, Osaka University (2010-06).
- 2) 上野貢生*: 「プラズモン増強を利用した光化学反応場の創成」, 分子研研究会「プラズモン増強光電場の分子科学研究への展開」, 分子科学研究所 (2010-06).
- 3) 上野貢生*, 「金属ナノ構造による光化学反応場の創成」, 学術講演会, 名古屋大学 (2010-06).
- 4) 上野貢生*: 「金属ナノ構造による光化学反応増強場の創成」, 第32回光化学若手の会, モンタナリポート岩沼 (2010-07).
- 5) 原田洋介*, 井村考平, 岡本裕巳, 西島喜明, 上野貢生, 三澤弘明, 長瀬和也, 大西大: 「金ナノ粒子が相互作用した半導体光電変換素子の近接場光電流イメージング」, ナノオプティクス研究グループ 第19回研究討論会, 早稲田大学 (2010-07).
- 6) K. Ueno*: “Surface Plasmon-Assisted Non-linear Photochemical Reactions on Nano-Engineered Gold Particles”, Joint Symposium of TOCAT6/APCAT5 and 25th CRC International Symposium, Toya Park Hotel Tensho (2010-07).
- 7) 三澤弘明*: 「フェムト秒レーザーによる3次元加工」日本光学会 (応用物理学会) 光波シンセシス研究グループ主催第17回研究会「光波シンセシスとトポロジエ工学」, 札幌 (2010-07).
- 8) K. Ueno*: “Plasmon Enhanced Photocurrent Generation”, US-Japan Nanotechnology Overview and Young Researchers Exchange Program on Nanomanufacturing, University of Illinois Urbana-Champaign (2010-10).
- 9) H. Misawa*, Y. Nishijima, K. Ueno, Y. Yokota and K. Murakoshi: “Plasmon-Assisted Photocurrent Generation

System”, The 4th GCOE International Symposium: Towards a Sustainable Future, Hokkaido University (2010-11).

- 10) 上野貢生*:「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」、JST さきがけ3研究領域合同研究報告会、東京大学 (2011-01).
- 11) 三澤弘明*、西島喜明、五味祐樹、高榕輝、近藤敏彰、上野貢生、村越敬、益田秀樹、井上晴夫:「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」、特定領域研究「光-分子強結合反応場の創成」第8回公開シンポジウム、日本科学未来館 (2011-01).
- 12) 三澤弘明、呉伯涛、上野貢生*、横田幸恵:「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-プラズモン増強場における2光子フォトリソグラフィ反応の定量解析-」、特定領域研究「光-分子強結合反応場の創成」第8回公開シンポジウム、日本科学未来館 (2011-01).
- 13) 横田幸恵*、上野貢生、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-制御されたナノギャップ金構造の表面増強ラマン散乱特性-」、特定領域研究「光-分子強結合反応場の創成」第8回公開シンポジウム、日本科学未来館 (2011-01).
- 14) 村澤尚樹*、青陽大輔、上野貢生、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-高次金属ナノ周期構造の作製と光電場増強効果解析-」、特定領域研究「光-分子強結合反応場の創成」第8回公開シンポジウム、日本科学未来館(2011-01).
- 15) 上野貢生*、高島聡章、大西広、伊藤弘子、西島喜明、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-ナノギャップリソグラフィーによる光ナノ加工技術の開発-」、特定領域研究「光-分子強結合反応場の創成」第8回公開シンポジウム、日本科学未来館 (2011-01).
- 16) 上野貢生*:「プラズモン増強場の創製と化学反応への展開」、光科学研究企画ワーキング・光科学異分野横断萌芽研究会-異分野融合のツールとしての「光」-、大阪大学 (2011-02).
- 17) K. Ueno*: “Fabrication of metallic nanostructures for the enhancement of optical near fields and its chemical applications”, 日本化学会第91春季年会アジア国際シンポジウム、神奈川大学 (2011-03).

iii) コロキウム・セミナー・その他

- 1) H. Misawa*: “Plasmon Assisted Photochemistry”, 学術講演会(East China Normal University), Shanghai, China (2010-06).
- 2) 三澤弘明*:「光と物資の新しい相互作用-光-分子強結合反応場の創成-」、講演会(富士フイルム(株)先端コア研究所)、神奈川 (2010-07).
- 3) 三澤弘明*:「局在プラズモンによる新しい励起プロセスを用いた光化学反応」、【光化学基礎講座12】光化学

の基礎概念と実験技術講座 2010、大阪大学吹田キャンパス(2010-11).

- 4) 三澤弘明*:「見えない光、赤外線を利用する太陽電池」、学術講演会『北海道から発信するグリーンイノベーション』、北海道大学学術交流会館 (2010-11).

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7回シンポジウム」、東北大学(仙台)(2010年5月21日~2010年5月22日).
- 2) 三澤弘明:「特定領域研究「光-分子強結合反応場の創成」および新学術領域研究「半導体における動的相関電子系の光科学」領域合同シンポジウム、日本科学未来館(東京)(2010年5月27日~2010年5月28日).
- 3) 井村孝平、上野貢生、秋山毅、岡本裕巳:「分子研究会プラズモン増強光電場の分子科学研究への展開」、岡崎コンファレンスセンター(愛知)、(2010年6月18日).
- 4) 三澤弘明: “The Nanostructure-Enhanced Photochemical Reactions”, 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, Honolulu, USA (2010年12月15日~16日).
- 5) 三澤弘明:「特定領域研究「光-分子強結合反応場の創成」第8回シンポジウム」および「化学者のためのプラズモン講座-物質と強く相互作用する光の「場」の創出-」、日本科学未来館(東京)(2011年1月27日~2011年1月28日).

4.9 共同研究

- 1) 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。
- 2) 三澤弘明、上野貢生(ローム株式会社):「表面プラズモンを用いたナノ構造形成技術とナノ構造デバイスの特性に関する研究」、2010年度~2011年度、現在のナノインプリント技術における離型や鋳型の耐久性に関する問題を解決するため、新たなナノ構造の複製技術の開発を目的とする。
- 3) 三澤弘明、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と評価」、2010年度~2011年度、フェムト秒レーザー加工およびウェットエッチングを用いた微細孔形成技術に関し、基盤内斜め配線インターポーザーへの応用に向けた微細化を目的とする。
- 4) 三澤弘明(地方独立行政法人北海道立総合研究機構):「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」、2010年度~2011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(株式会社エクオス・リサーチ):「高効率太陽光発電に関する研究」、2010年度～2011年度、サステナブルエネルギー社会実現の為に技術探求を目的として、プラズモン共鳴を利用した太陽光発電技術について研究をおこなう。

d. 受託研究

- 1) 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)(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」、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。
- 2) 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、プラズモニッ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確立する。
- 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)、「ナノギャップ金属構造を利用した赤外テラヘルツ光検出システム」、2010年度～2013年度: ナノギャップを有する金属ナノ構造を用いて、従来とは全く異なった原理で動作する赤外・テラヘルツ (THz) 波を周波数選択的に検出する光センサーを構築する。
- 4) 三澤弘明、福井孝志、西井準治、笹木敬司、村越敬、上野 貢生、松尾 保孝、低炭素社会構築に向けた研究基盤ネットワーク整備事業(文部科学省)「光アンテナ搭載高効率光電変換システム研究拠点の整備構想」、2010年度～2014年度: ハブ拠点との連携によって、低炭素社会に貢献する次世代太陽光発電のための新規な光電変換材料およびデバイス研究を推進することを目的とする。

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) 村澤尚樹、若手研究B、局在プラズモン共鳴によって

補足された液晶液滴の挙動解析、2010～2011年度

- 5) 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 科学技術動向センター 専門調査委員(2006年4月4日～2012年3月31日)
- 2) 三澤弘明: 科学技術振興機構 戦略的創造研究推進事業 研究領域「光の利用と物質材料・生命機能」領域アドバイザー(2008年5月9日～2013年3月31日)
- 3) 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)
- 4) 三澤弘明: 日本学術振興会 先端科学(FoS) シンポジウム事業委員会 専門委員(2008年8月1日～2011年3月31日)
- 5) 三澤弘明: 電気通信大学共同研究員(2008年4月1日～2012年3月31日)
- 6) 三澤弘明: NEDO ピアレビュー(2009年3月1日～2012年3月31日)
- 7) 三澤弘明: European Research Council ピアレビュー(2010年7月21日～2013年12月31日)

b. 国内外の学会の役職

- 1) 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～2011年3月22日)
- 2) 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～)
- 3) 三澤弘明: ACS Applied Materials & Interfaces, Editorial Advisory Board(2009年1月1日～)
- 4) 三澤弘明: Journal of Physical Chemistry, Advisory Board Member(2010年1月1日～2012年12月31日)
- 5) 三澤弘明: 光化学協会理事(2010年1月1日～2011年12月31日)
- 6) 三澤弘明: Journal of Photochemistry and Photobiology C: Photochemistry Reviews, Deputy Editor(2010年1月1日～)
- 7) 三澤弘明: 日本化学会 学術活性化委員会委員(2010年4月30日～2011年2月28日)

8) 三澤弘明：LPM2011 国際顧問委員会、A member of the International Advisory Committee of LPM2011 (2010年7月10日～2011年7月10日)

9) 上野貢生：日本分析化学会北海道支部 幹事(2010年4月1日～)

10) 上野貢生：光科学異分野横断萌芽研究会 組織委員 (2011年2月28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：西安交通大学客員教授 (2009年1月3日～現在)

3) 上野貢生：科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業 さきがけ研究員 (2007年10月1日～2014年3月31日)

4) 上野貢生：自然科学研究機構分子科学研究所客員准教授 (2010年4月1日～2012年3月31日)

e. 新聞掲載記事

1) 三澤弘明：2010.4.24、経済ナビ北海道 (TVh)、「普及に大きな可能性 次世代太陽光パネル」

2) 三澤弘明：2010.9.27、プレスリリース (北海道大学)、「近赤外光に対応した光アンテナ搭載光電変換システムの開発にはじめて成功」

3) 三澤弘明：2010.9.29、日刊工業新聞 (日刊)、「近赤外光で効率4倍 北大次世代太陽電池へ応用」

4) 三澤弘明：2011.2.1、「ナノの覗き孔は、塞ぐと光がよく通る!」

5) 三澤弘明：2011.2.2、日刊工業新聞 (日刊)、「ナノサイズの穴にフタ 透過する光強くなる」

6) 三澤弘明：2011.2.2、日経産業新聞、「微小な穴使う発光素子」

7) 三澤弘明：2011.2.2、化学工業日報、「貴金属ナノ微粒子に光強度を高める性質」

8) 三澤弘明：2011.2.2、中部経済新聞、「超微細工学性質を発見」

9) 三澤弘明：2011.2.11、科学新聞、「ナノの孔は塞ぐと光がよく通!」

10) 三澤弘明：2011.3.22、中部経済新聞、「ナノの穴ふさぎ光通す」

f. 外国人研究者の招聘 (氏名、国名、期間)

1) Sajeev John、カナダ (2010年8月26日～28日)

2) Thomas W. Ebbesen、フランス (2010年12月21日～2010年12月22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、2010年4月1日～2010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、2010年10月1日～2011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、2010年10月1日～2011年3月31日

4) 工学部、生体工学概論「バイオセンシング」、三澤弘明、

2010年12月22日

5) 工学部、情報エレクトロニクス演習、村澤尚樹、2010年4月1日～2010年3月31日

6) 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、上野貢生、2010年5月14日

7) 大学院共通講義、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論Ⅱ、上野貢生、2011年2月9日

h. 北大以外での非常勤講師 (対象、講義名、担当者、期間)

1) 上野貢生、名古屋大学工学部、応用計測化学、2010年6月23日

2) 三澤弘明、大阪大学工学研究科、環境・エネルギー化学特別講義Ⅱ、2010年11月11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成と光化学反応への応用」・博士研究員、2008.10.16～2010.09.30)

2) 西島喜明 (5研究所「附置研究所間アライアンスによるナノとマクロをつなぐ物質・デバイス・システム創製戦略プロジェクト」、2010.4.1～2011.3.31)

3) 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)

4) 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成と光化学反応への応用」・博士研究員、2009.1.1～)

5) 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、2010.2.1～2011.3.31)

6) 横田幸恵 (日本学術振興会特別研究員(DC2)、2010.4.1～2011.3.31)

7) 張佑専 (文部科学省 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「光アンテナ搭載高効率光電変換システム研究拠点の整備構想」・博士研究員、2010.10.16～)

j. 修士学位及び博士学位の取得状況

・修士課程 (3名)

1) 荒木剛：Fabrication of gold nanostructured TiO₂ electrodes by laser interference lithography/dry-etching and their photoelectric conversion properties (2光束レーザー干渉リソグラフィ/ドライエッチングによる金ナノ構造/酸化チタン電極の作製と光電変換特性に関する研究) (2011年3月)

2) 池谷伸太郎：Optical properties of closely-spaced gold nanoblock pairs (制御された2量体型ナノギャップ金構造のプラズモン分光特性に関する研究) (2011年3月)

3) 蝦名渉：Fabrication of three dimensional photonic crystals by optical-phase-mask lithography (位相マスクを用いた多光子多光束干渉露光による3次元フォトニック結晶の作製に関する研究) (2011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～)

博士研究員 野村尚生 (2010.9～2011.3)

院 生

博士課程

西尾 崇、永川桂大、関口翔太、王 国慶

修士課程

南原克行、渡辺雪江、武蔵裕介、江口明日美

学部生

伊與直希、松永達也

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金属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を使った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) DNAを利用した機能性銀ナノ粒子の作製

金属ナノ構造体の作製法の開発は化学・バイオセンシング、ナノエレクトロニクスそしてプラズモニクスなど広い研究分野で重要なテーマになっている。バイオ高分子、特にDNAを鋳型とした金属ナノ構造の自己組織的な作製法が注目されている。金属に対する吸着エネルギーが最も高いアデニンを選び、オリゴヌクレオチド(アデニン20量体:dA20)の存在下で、塩化銀の光還元反応(UVを5分間照射)を行ったところ単分散の銀ナノ粒子が得られた(図1a)。XPS測定において原料の塩素のピークが観察されないことから銀ナノ粒子であることを支持している。このようなサイズの均一な銀ナノ粒子はアデニンの連続配列を添加す

ることで再現良く得られたが、他の配列では観察されなかった。この銀ナノ粒子の表層はdA20で被覆されているため、ラマン散乱を測定すると電場増強によりアデニンのシグナルが強く得られた。また銀のクラスター由来の蛍光も観察されることから、蛍光発光とラマン散乱活性の2つの特徴を同時にもつナノ粒子であることがわかった。図1bは細胞に添加した時の蛍光イメージングとラマン散乱スペクトルを示している。得られた銀ナノ粒子は細胞内の分子プローブとしてイメージング解析に応用できると期待される。

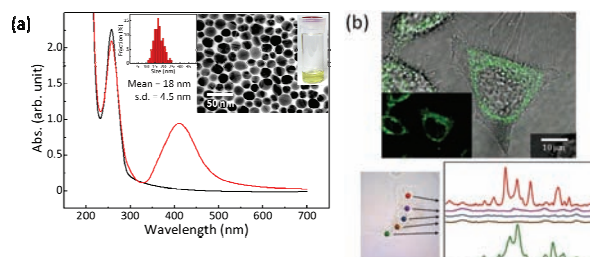


図1. dA20を鋳型にして作製した銀ナノ粒子のUV-Vis吸収スペクトルとTEM像(a)と蛍光像とラマンスペクトル(b)

(b) 細胞にダメージを与えない細胞剥離技術の開発

細胞移植や組織移植による再生医療では、効率のよい細胞培養法や組織培養法の開発が求められている。これまでの細胞培養では、増殖した細胞を培養基材から剥離するためにトリプシンが用いられてきた。トリプシンはタンパク質分解酵素であるので、接着性のタンパク質を分解することにより細胞を剥離できるが、同時に細胞表層のタンパク質も分解してしまい、細胞自身を傷つけてしまうことが知られている。細胞種によっては継代時の生存率が著しく低くなる場合もあり、培養細胞を効率よく得るためには、生存率の高い細胞剥離技術の開発が求められている。そこで、DNAブラシを固定化した基材上で細胞を培養し、ヌクレアーゼ(DNase)によってDNAを分解することで、細胞を剥離する手法を開発した(図2)。ストレプトアビジンをコートした基材にビオチン化DNAを固定した。これをポリメラーゼで伸長することでDNAブラシを作製した。この表面でHeLaおよびNIH3T3細胞を培養したところ、接着性、増殖性は通常の細胞基材とほぼ同等であった。これにDNaseを添加すると、細胞はシート状もしくは塊として剥離し、細胞を無傷で回収できることがわかった。これによりトリプシン処理に弱い細胞の培養・回収が可能となった。

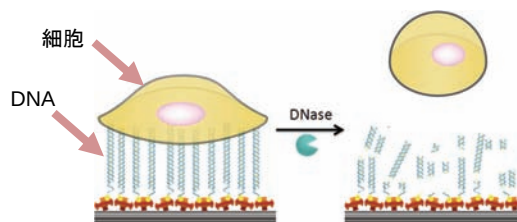


図2. DNAブラシ上での細胞培養と剥離の模式図

(c) フッ素修飾金ナノ粒子の高速細密充填法の開発

金属ナノ構造体の作製法としてナノ粒子の自己組織化を利用する手法が、低コスト・大面積・高機能を同時に実現するための手法として期待されている。粒子の自己組織化のためには粒子間同士が結合しうるリガンド分子を提示させる手法があるが、規則的で大きな面積での配列化には限界がある。粒子間の相互作用を利用しないナノ粒子の配列方法として、粒子を分散させた溶媒を乾燥させる手法がある。シンプルであり、大面積での調整が可能で、工業化に向くウェットプロセスに組み込むことで実用化が期待できる。これまでトルエンなどの高沸点溶媒を使い、さらに不揮発性の分子を添加して溶媒の蒸発速度を遅くすることで粒子の配列化が行われてきた。

最近、筆者らはフッ素分子で被覆したナノ粒子が、低沸点溶媒から高速で配列化することを見出した。テフロンに代表されるフッ素化(高)分子の特徴として、低い分子間力からもたらされる非粘着性、低摩擦係数などが挙げられる。したがって、フッ素化有機化合物で修飾したナノ粒子は粒子間相互作用が小さい界面を有していることが期待される。事実、粒子間相互作用が弱いことで熱力学的に最安定である最密充填構造へ粒子が誘導されやすいと報告されている。しかしパーフルオロアルカン是一般にフッ素溶媒に溶解するものの、一般的な有機溶剤や水への溶解性はきわめて低い。フッ素を導入したテトラエチレングリコール (FTEG) で修飾した金ナノ粒子 (直径15nm) はTHF、メタノール、クロロホルムなど様々な溶媒に非常に良く分散できた。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(図3)。この現象の特徴はTHFなどの溶媒はキャスト後数分以内に蒸発するため非常に高次構造が高速で作製できる点にある。本手法は高い溶媒分散性と粒子の潤滑性を同時に実現することで、一般性の高い簡便な、粒子配列化が可能となることを明らかにした。

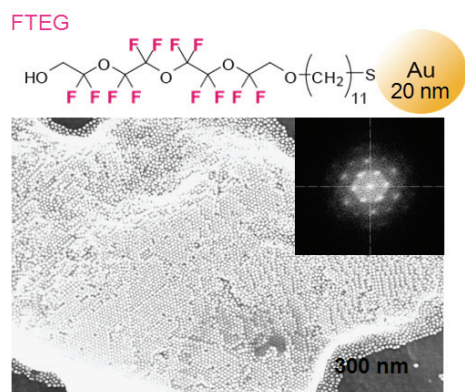


図3. フッ素化エチレングリコール修飾による金ナノ粒子の高速組織化

(d) ウイルスカプセルを用いた薬剤輸送キャリアー開発

薬剤輸送において、細胞への導入効率が高く、細胞内で薬剤を選択的に放出するキャリアーを作製することは重要である。ウイルスタンパク質が自己集合してできるウイルスカプセルは通常のウイルスと同様の経路で細胞に取り込まれるため、薬剤キャリアーとして注目されている。しかし、これまでの研究の多くは、薬剤を内包させることに着眼しており、刺激に応答した薬剤の徐放機構を持たせた例はほとんどない。そこで今回、動物細胞に導入可能なJCウイルスカプセルに対し、ジスルフィド結合で薬剤モデル分子を修飾することで、細胞内のグルタチオン (GSH) 濃度に応じた分子放出を目的とした(図4)。

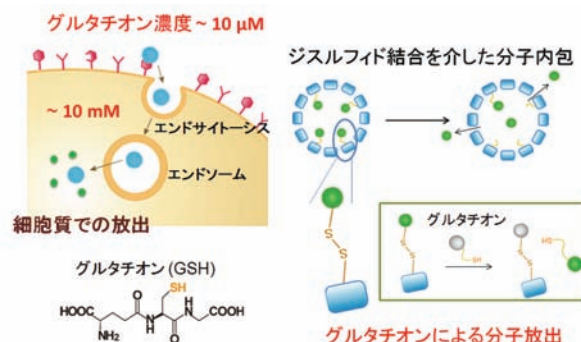


図4. 細胞質での特異的な薬剤放出を狙った、ジスルフィド結合を介したウイルスカプセル内部への薬剤(色素)内包

JCウイルスカプセルはシステイン残基をウイルスカプセルの内側にのみ提示している。それらシステイン残基に、ジスルフィド結合を介して蛍光分子 (BODIPY) を修飾した。この蛍光色素を薬剤モデル分子と考え、グルタチオン存在下で実際にジスルフィド結合が解離し、色素が放出されるかどうかを蛍光相関分光法 (FCS) によって評価した。細胞外部ではグルタチオンの濃度は非常に低く数マイクロMであることが知られているが、細胞質は10 mMである。FCSの結果から10 mMのグルタチオンを添加すると1分以内にほぼすべての色素がウイルスから離脱していることがわかった。一方低濃度のグルタチオンでは約1時間かかることから、細胞質で特異的に薬剤放出できることが示唆された。現在、細胞実験により細胞内での特異的な放出を実証している。

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) K-I. Sano, R. Kawamura, T. Tominaga, H. Nakagawa, N. Oda, K. Ijro, Y. Osada: “Thermoresponsive Microtubule Hydrogel with High Hierarchical Structure”, *Biomacromolecules*, 12(5): 1409-1413 (2011)
- 2) T. Nishio, K. Niikura, Y. Matsuo and K. Ijro: “Self-lubricating Nanoparticles: Self-Organization into 3D-Superlattices during a Fast Drying Process”, *Chem. Commun.*, 46: 8977-8979 (2010)
- 3) Y. Hirai, H. Yabu, Y. Matsuo, K. Ijro and M. Shimomura: “Biomimetic bi-functional silicon nanospoke-array structures prepared by using self-organized honeycomb templates and reactive ion etching”, *Journal of Materials Chemistry*, 20(48): 10804-10808 (2010)
- 4) Y. Hirai, H. Yabu, Y. Matsuo, K. Ijro and M. Shimomura: “Preparation of self-organized porous polymer masks for Si dry etching”, *Macromolecular Symposia*, 295(1): 77-80 (2010)
- 5) 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: 「自己組織化ハニカムフィルムに対するラット骨髄間葉系幹細胞の応答」、表面科学、31(8): 392-399 (2010)
- 6) K. Niikura, K. Nambara, T. Okajima, Y. Matsuo and K. Ijro: “Influence of Hydrophobic Structures on the Plasma Membrane Permeability of Lipid-like Molecules”, *Langmuir*, 26(12): 9170-9175 (2010)
- 7) 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(13): 2298-2300 (2010)

4.3 国際会議議事録等に掲載された論文

- 1) K. Ijro, A. Tanaka, Y. Matsuo, Y. Hashimoto, K. Nagakawa, N. Ohtake, T. Suzuki, H. Sawa and K. Niikura: “Self-assembled Hierarchic Structures of Metal-Molecule Hybrids for Sensing and Electronic Devices”, *ICEP 2010 Proceedings*: 179-184 (2010)

4.4 著書

- 1) 松尾保孝、居城邦治: 「ナノワイヤー」、現代界面コロイド科学の事典、丸善株式会社: 166-167 (2010)

4.7 特許

- 1) 長田義仁、佐野健一、富永大輝、居城邦治、三友秀之、岩井寛司: 特願2010-108217, 『ハイドロゲル、その乾燥物およびハイドロゲルの製造方法』2010年5月10日
- 2) 長田義仁、佐野健一、富永大輝、岸良一、居城邦治、島本直伸、三友秀之: 特願2010-108231, 『導電性ハイ

ドロゲル、導電性乾燥ゲル、および導電性ハイドロゲルの製造方法』2010年5月10日

4.7 講演

i) 学会

- 1) 松永達也*、新倉謙一、永川桂大、鈴木忠樹、小林進太郎、澤洋文、居城邦治: 「金ナノ粒子をコアにしたウイルスワクチン作製と免疫付与能に及ぼすサイズ・形状効果」、日本化学会第91回春季年会、神奈川大学横浜キャンパス (2011-03)
- 2) 王国慶*、石川綾子、西尾崇、南原克行、新倉謙一、居城邦治: 「蛍光-ラマンイメージングのためのDNA被覆ナノ微粒子の合成」、日本化学会第91回春季年会、神奈川大学横浜キャンパス (2011-03)
- 3) 新倉謙一*、南原克行、岡嶋孝治、松尾保孝、居城邦治: 「細胞膜修飾高分子を用いたガン細胞特異的な微粒子導入」、日本化学会第91回春季年会、神奈川大学横浜キャンパス (2011-03)
- 4) 永川桂大*、野村尚生、新倉謙一、鈴木忠樹、松尾保孝、澤洋文、居城邦治: 「ウイルス様ナノカプセルを包含した金ナノシェル型構造体の構築」、日本化学会第91回春季年会、神奈川大学横浜キャンパス (2011-03)
- 5) 熊野英和、末宗幾夫*、松尾保孝、居城邦治、西尾崇、小田島聡、井田惣太郎、和田雅樹、飯島仁史、中島秀朗: 「剥離層を用いたAg埋め込み半導体ピラー構造の作製と発光特性評価」、第58回応用物理学関係連合講演会、神奈川工科大学 (2011-03)
- 6) K. Ijro*, O. Haruta, K. Niikura and Y. Matsuo: “DNA-Templated Assembly of Azobenzene at the Air-Water Interface”, PACIFICHEM 2010, Honolulu, Hawaii, USA (2010-12)
- 7) K. Nambara*, K. Niikura, T. Okajima, Y. Matsuo and K. Ijro: “Effect of hydrophobic structures of prodrugs on cellular membrane permeability”, PACIFICHEM 2010, Honolulu, Hawaii, USA (2010-12)
- 8) Y. Musashi*, K. Niikura, T. Suzuki, H. Sawa, M. Kinjo and K. Ijro: “Glutathione-triggered drug release from virus capsules”, PACIFICHEM 2010, Honolulu, Hawaii, USA (2010-12)
- 9) K. Nagakawa*, K. Niikura, N. Ohtake, T. Suzuki, Y. Matsuo, H. Sawa and K. Ijro: “Construction of Virus-Specific Gold Nanostructure toward Sensitive Detection”, PACIFICHEM 2010, Honolulu, Hawaii, USA (2010-12)
- 10) K. Ijro*, A. Ishikawa, G. Wang, K. Niikura and Y. Matsuo: “DNA Sequence Selective Photo-induced Preparation of Metal Nanoparticle”, PACIFICHEM 2010, Honolulu, Hawaii, USA (2010-12)
- 11) K. Niikura*, N. Ohtake, T. Suzuki, Y. Musashi, Shintaro Mikuni, H. Sawa and K. Ijro: “Preparation of stimulus-responsive virus capsule enabling controlled release of

- target molecules”, PACIFICHEM 2010, Honolulu, Hawaii, USA (2010–12)
- 12) Y. Watanabe*, Y. Matsuo, K. Niikura and K. Ijro: “Nucleobase-selective metallization of DNA for preparation of nano-gap electrodes”, PACIFICHEM 2010, Honolulu, Hawaii, USA (2010–12)
 - 13) A. Eguchi*, Y. Matsuo, K. Niikura and K. Ijro: “Polymerization of DNA from primer-template immobilized on substrate for fabrication of nanodevices”, PACIFICHEM 2010, Honolulu, Hawaii, USA (2010–12)
 - 14) T. Nishio*, K. Niikura, Y. Matsuo and K. Ijro: “Preparations of well-dispersed fluorinated-nanoparticles in polar media”, PACIFICHEM 2010, Honolulu, Hawaii, USA (2010–12)
 - 15) S. Sekiguchi*, K. Niikura, S. Yoshimura and K. Ijro: “Lectin activity of nuclear pore complex hydrogel revealed by sugar-displaying gold nanoparticles”, PACIFICHEM 2010, Honolulu, Hawaii, USA (2010–12)
 - 16) Y. Hirai*, H. Yabu, Y. Matsuo, K. Ijro and M. Shimomura: “Patterning of superhydrophobic and superhydrophilic nanostructured silicon surfaces by UV-O₃ treatment”, PACIFICHEM 2010, Honolulu, Hawaii, USA (2010–12)
 - 17) H. Mitomo*, T. Tominaga, K. Sano, K. Ijro and Y. Osada: “Strengthening of the hydrogel with porous inorganic particles”, PACIFICHEM 2010, Honolulu, Hawaii, USA (2010–12)
 - 18) K-I. Sano*, R. Kawamura, T. Tominaga, N. Oda, K. Ijro, and Y. Osada: “Creation of actin hydrogel having high-order structure hierarchy”, BMB2010, Kobe (2010–12)
 - 19) K-I. Sano*, R. Kawaura, T. Tominaga, N. Oda, K. Ijro, and Y. Osada: “Reversible Gel-Sol Transition of Actin Gel”, AsiaNANO2010 (Asian Conference on Nanoscience and Nanotechnology), Miraikan (National Museum of Emerging Science and Innovation), Tokyo (2010–11)
 - 20) 居城邦治*: 「同位体顕微鏡によるバイオイメーシングの可能性」、第30回 日本マグネシウム学会総会、NTT 武蔵野研究開発センタ (東京) (2010–11)
 - 21) K. Nagakawa*, K. Niikura, T. Suzuki, Y. Matsuo, H. Sawa and K. Ijro: “Preparation of gold nanoshell for single-virus particle detection”, AsiaNANO2010(Asian Conference on Nanoscience and Nanotechnology), Miraikan (National Museum of Emerging Science and Innovation), Tokyo (2010–11) 20)
 - 22) Y. Watanabe*, Y. Matsuo, K. Niikura and K. Ijro: “Base sequence selective metallization of DNA block copolymer”, AsiaNANO2010(Asian Conference on Nanoscience and Nanotechnology), Miraikan (National Museum of Emerging Science and Innovation), Tokyo (2010–11)
 - 23) A. Eguchi*, Y. Matsuo, K. Niikura and K. Ijro: “The synthesis of long DNA from oligonucleotide immobilized on substrate”, AsiaNANO2010(Asian Conference on Nanoscience and Nanotechnology), Miraikan (National Museum of Emerging Science and Innovation), Tokyo (2010–11)
 - 24) K. Nambara*, K. Niikura, T. Okajima, Y. Matsuo and K. Ijro: “Efficient Delivery of Nanoparticles into Cancer Cells Facilitated by Cellular Membrane-Retaining Cationic Polymers with Artificial Ligands”, AsiaNANO2010(Asian Conference on Nanoscience and Nanotechnology), Miraikan (National Museum of Emerging Science and Innovation), Tokyo (2010–11)
 - 25) Y. Musashi*, K. Niikura, H. Sawa, M. Kinjo and K. Ijro: “Preparation of virus capsules enabling glutathione-triggered drug release”, AsiaNANO2010(Asian Conference on Nanoscience and Nanotechnology), Miraikan (National Museum of Emerging Science and Innovation), Tokyo (2010–11)
 - 26) G. Wang*, Y. Matsuo, K. Niikura and K. Ijro: “Fabrication of Alternative Metal/Polymer Hybrid Conductive Nanowire with a DNA Template”, AsiaNANO2010(Asian Conference on Nanoscience and Nanotechnology), Miraikan (National Museum of Emerging Science and Innovation), Tokyo (2010–11)
 - 27) K. Niikura*, S. Sekiguchi, S. Yoshimura and K. Ijro: “Carbohydrate Modification of Nanoparticles Allows the Rapid Passage through the Nuclear Pore Barrier”, AsiaNANO2010(Asian Conference on Nanoscience and Nanotechnology), Miraikan (National Museum of Emerging Science and Innovation), Tokyo (2010–11)
 - 28) H. Mitomo*, T. Tominaga, K. Sano, K. Ijro and Y. Osada: “Strengthening of the Hydrogel with Porous Particles”, AsiaNANO2010(Asian Conference on Nanoscience and Nanotechnology), Miraikan (National Museum of Emerging Science and Innovation), Tokyo (2010–11)
 - 29) H. Mitomo*, T. Tominaga, K. Sano, K. Ijro and Y. Osada: “Advanced Hydrogels with Porous Inorganic Particles”, NCSS2010 (International Conference on Nanoscopic Colloid and Surface Science), Makuhari Messe (International Conference Hall), Chiba (2010–09)
 - 30) K-I. Sano*, R. Kawamura, T. Tominaga, N. Oda, K. Ijro, and Y. Osada: “Emergent Functions of Spram-Macromolecular Hierarchical Actin Hydrogel”, NCSS2010 (International Conference on Nanoscopic Colloid and Surface Science), Makuhari Messe (International Conference Hall), Chiba (2010–09)
 - 31) R. Kawamura*, K-I. Sano, T. Tominaga, K. Ijro, and Y. Osada: “Autonomous oscillation in mechanical property of actin gel”, 第48回日本生物物理学会年会、東北大学 (2010–09)
 - 32) K-I. Sano*, R. Kawamura, T. Tominaga, N. Oda, K. Ijro, and Y. Osada: “Reversible gel-sol transition of covalently

- cross-linked actin hydrogel”, 第48回日本生物物理学会年会、東北大学 (2010-09)
- 33) 西尾崇*, 新倉謙一、松尾保孝、居城邦治: 「フッ素化テトラエチレングリコール誘導体界面が誘起するナノ粒子自己組織化構造」、第59回高分子討論会、北海道大学 (2010-09)
 - 34) 渡辺雪江*, 松尾保孝、新倉謙一、居城邦治: 「非天然塩基を導入したDNAブロックコポリマーの酵素合成および塩基配列選択的な金属化」、第59回高分子討論会、北海道大学 (2010-09)
 - 35) 南原克行*, 新倉謙一、岡嶋孝治、松尾保孝、居城邦治: 「物質の細胞膜透過における疎水部構造の影響」、第59回高分子討論会、北海道大学 (2010-09)
 - 36) 南原克行*, 新倉謙一、岡嶋孝治、松尾保孝、居城邦治: 「細胞表層修飾可能な高分子を用いたガン細胞への高効率な物質導入」、第59回高分子討論会、北海道大学 (2010-09)
 - 37) 江口明日美*, 松尾保孝、新倉謙一、居城邦治: 「固体基板上でのオリゴヌクレオチド伸長反応によるホモシークエンス二重鎖DNAの合成」、第59回高分子討論会、北海道大学 (2010-09)
 - 38) 武蔵裕介*, 新倉謙一、大竹(石塚)範子、澤洋文、居城邦治: 「刺激応答型分子放出可能なウイルスカプセルの作製」、第59回高分子討論会、北海道大学 (2010-09)
 - 39) 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: 「ウイルスのシアル酸認識を利用した有機/無機ハイブリッドナノ粒子の構築」、第59回高分子討論会、北海道大学 (2010-09)
 - 40) 関口翔太*, 新倉謙一、吉村成弘、松尾保孝、居城邦治: 「マルトオリゴ糖界面によって特異的に促進されるナノ微粒子の核移行」、第59回高分子討論会、北海道大学 (2010-09)
 - 41) 三友秀之*, 富永大輝、佐野健一、島本直伸、居城邦治、長田義仁: 「多孔性無機微粒子によるゲルの高強度化」、第59回高分子討論会、北海道大学 (2010-09)
 - 42) 下村政嗣*, 下澤楯夫、堀繁久、水島未記、居城邦治、松尾保孝: 「昆虫に学ぶマテリアル・デザインの戦略」、第59回高分子討論会、北海道大学 (2010-09)
 - 43) 平井悠司*, 藪 浩、松尾保孝、居城邦治、下村政嗣: 「自己組織化高分子構造をマスクとして用いたシリコン微細構造の作製と濡れ性パターンニング」、第59回高分子討論会、北海道大学 (2010-09)
 - 44) 平井悠司*, 藪 浩、松尾保孝、居城邦治、下村政嗣: 「銀微細間隙を有する銀蒸着ピラー構造化膜を用いた表面増強ラマン散乱測定」、第59回高分子討論会、北海道大学 (2010-09)
 - 45) 木村-須田廣美*, 梶原誠、坂本直哉、小林幸雄、居城邦治、坂本尚義、大和英之: 「同位体顕微鏡システムおよび振動分光法によるマウス骨質の解析」、第59回高分子討論会、北海道大学 (2010-09)
 - 46) 山本広佑*, 坂本直哉、西尾崇、居城邦治、坂本尚義: 「安定同位体を標識とした細胞イメージング」、日本分析化学会第59年会、東北大学川内北キャンパス (2010-09)
 - 47) K. Ijro*: “Synthesis of DNA-nanoparticle/ DNA-nanostructure for fabrication of single-electron device”, SPIE Optics + Photonics 2010, San Diego, USA (2010-08)
 - 48) K. Ijro*: “Base Sequence Specific Metallization of Single DNA Molecule for Application to Nano Devices”, 13th International Conference on Organized Molecular Films (LB13), Quebec City, Canada (2010-07)
 - 49) K. Nambara*, K. Niikura, T. Okajima, Y. Matsuo and K. Ijro: “Design of Hydrophobic Structures of Prodrugs to Enhance Cellular Membrane Permeability”, 13th International Conference on Organized Molecular Films (LB13), Quebec City, Canada (2010-07)
 - 50) A. Eguchi*, Y. Matsuo, K. Niikura and K. Ijro: “Enzymatic synthesis of poly(dG)-poly(dC) on substrate for fabrication of nanodevices”, 13th International Conference on Organized Molecular Films (LB13), Quebec City, Canada (2010-07)
 - 51) K-I. Sano*, R. Kawamura, T. Tominaga, N. Oda, K. Ijro, and Y. Osada: “Reversible Gel-Sol Transition of Actin Gel”, Polymer Physics 2010, Ji-nan, China (2010-06)
 - 52) 渡辺雪江*, 松尾保孝、新倉謙一、居城邦治: 「非天然塩基を導入したDNAブロックコポリマーの酵素合成と単一分子観察」、第59回高分子学会年次大会、パシフィコ横浜 (2010-05)
 - 53) 江口明日美*, 松尾保孝、新倉謙一、居城邦治: 「固定基板上に固定化したオリゴヌクレオチドの伸長反応による長鎖DNAの合成」、第59回高分子学会年次大会、パシフィコ横浜 (2010-05)
 - 54) 関口翔太*, 新倉謙一、吉村成弘、松尾保孝、居城邦治: 「糖鎖修飾ナノ微粒子で明らかにする核膜孔ゲルのレクチン活性」、第59回高分子学会年次大会、パシフィコ横浜 (2010-05)
 - 55) 石川綾子、松尾保孝、鈴木 健二、新倉謙一、居城邦治*: 「単電子デバイスの構築を目指したDNA-金属ナノ粒子-DNAの合成」、第59回高分子学会年次大会、パシフィコ横浜 (2010-05)
 - 56) 新倉謙一*, 関口翔太、吉村成弘、松尾保孝、居城邦治: 「糖鎖修飾により促進されるナノ粒子の核移行とメカニズム解明」、第59回高分子学会年次大会、パシフィコ横浜 (2010-05)
 - 57) H. Mitomo*, T. Tominaga, K. Sano, K. Ijro and Y. Osada: “Strengthening of the Hydrogel with Inorganic Particles”, 第59回高分子学会年次大会、パシフィコ横浜 (2010-05)
 - 58) R. Kawamura*, T. Tominaga, N. Oda, K. Ijro, and Y. Osada: “Gel-Sol transition of microtubule-gel with high-

- order hierarchical structure”, 第59回高分子学会年次大会、パシフィコ横浜 (2010-05)
- 59) K-I. Sano*, R. Kawamura, T. Tominaga, N. Oda, K. Ijro, and Y. Osada: “Reversible Gel-Sol transition of Actin Gel”, 第59回高分子学会年次大会、パシフィコ横浜 (2010-05)
 - 60) K-I. Sano*, T. Tominaga, O. Haruta, H. Nakagawa, K. Ijro, and Y. Osada: “DNA gel cross-linked by intercalation”, 第59回高分子学会年次大会、パシフィコ横浜 (2010-05)
 - 61) N. Oda*, R. Kawamura, T. Tominaga, K. Ijro, R. Kishi, H. Okuzaki, and Y. Osada: “Tropomyosin Hydrogel is able to transfer among the higher-ordered hierarchical structure”, 第59回高分子学会年次大会、パシフィコ横浜 (2010-05)
 - 62) K. Ijro*: “Self-assembled Hierarchic Structures of Metal-Molecule Hybrids for Sensing and Electronic Devices”, ICEP2010, Sapporo Convention Center, Hokkaido (2010-05)
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) N. Shimamoto*, H. Mitomo, K. Ijro and Y. Osada: “Fabrication of micro-pattern on hydrogels”, NanoScience Joint Laboratory forum, RIKEN, Wako (2011-03)
 - 2) K. Ijro*, G. Wang, Y. Matsuo, K. Niikura, L. Hong, H. Tanaka and T. Ogawa: “The narrowest hybrid conductive nanowire templated by DNA and its characterization using PCI-AFM”, International Symposium on Engineering Neo-Biomimetics II -Soft Nanomaterials and Soft Robotics-, AIST Tsukuba Central 1 (2011-02)
 - 3) T. Nishio, N. Iyo*, K. Niikura, Y. Matsuo and K. Ijro: “Self-assembly of Nanoparticles Controlled by A Novel Fluorinated Surfaces”, International Symposium on Engineering Neo-Biomimetics II -Soft Nanomaterials and Soft Robotics-, AIST Tsukuba Central 1 (2011-02)
 - 4) K. Niikura*, S. Sekiguchi, S. Yoshimura and K. Ijro: “Multivalent Display of Maltooligosaccharide Allows a Transport of Nanoparticles through Nuclear Pores”, International Symposium on Engineering Neo-Biomimetics II -Soft Nanomaterials and Soft Robotics-, AIST Tsukuba Central 1 (2011-02)
 - 5) T. Matsunaga*, K. Niikura, T. Suzuki, K. Nagakawa, S. Kobayashi and K. Ijro: “Preparation of Virus protein-coated gold nanoparticles as mimetics of virus like particle”, International Symposium on Engineering Neo-Biomimetics II -Soft Nanomaterials and Soft Robotics-, AIST Tsukuba Central 1 (2011-02)
 - 6) 渡辺雪江*, 松尾保孝, 新倉謙一, 居城邦治: 「ナノギャップ電極作製のための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」、第45回高分子学会北海道支部研究発表会、北海道大学 (2011-02)
 - 7) 松永達也*, 新倉謙一, 永川桂大, 鈴木忠樹, 小林進太郎, 澤洋文, 居城邦治: 「金ナノ粒子をコアとしたウイルスワクチン作製と免疫付与能のサイズ・形状依存性」、第45回高分子学会北海道支部研究発表会、北海道大学 (2011-02)
 - 8) G. Wang*, Y. Matsuo, K. Niikura and K. Ijro: “Fabrication of Alternative Metal/Polymer Hybrid Conductive Nanowire with a DNA Templates”, The 4th GCOE International Symposium “Towards a Sustainable Future”, Hokkaido University (2010-11)
 - 9) 江口明日美*, 松尾保孝, 新倉謙一, 居城邦治: 「オリゴスクレオチドの伸長反応による固体基板上での poly(dG)-poly(dC) の合成」、2010年度北海道高分子若手研究会、洞爺サンパレス (2010-08)
 - 10) G. Wang*, Y. Matsuo, K. Niikura and K. Ijro: “Fabrication of DNA-Templated Metal/Polymer Hybrid Conductive Nanowires”, 2010年度北海道高分子若手研究会、洞爺サンパレス (2010-08)
 - 11) 武蔵裕介*, 新倉謙一, 鈴木忠樹, 澤洋文, 金城政孝, 居城邦治: 「グルタチオンに反応して薬剤放出可能なウイルスカプセルの作製」、2010年度北海道高分子若手研究会、洞爺サンパレス (2010-08)
 - 12) K. Niikura*, K. Nagakawa, T. Suzuki, Y. Matsuo, H. Sawa and K. Ijro: “Viral Detection based on Sialic Acid-displaying Au-Particle Arrangement”, The 25th International Carbohydrate Symposium (ICS2010), Makuhari Messe International Convention Complex, Tokyo(Chiba) (2010-08)
 - 13) S. Sekiguchi*, K. Niikura, S. Yoshimura and K. Ijro: “Mechanism for nuclear import of maltooligosaccharide-coated nanoparticles”, The 25th International Carbohydrate Symposium (ICS2010), Makuhari Messe International Convention Complex, Tokyo(Chiba) (2010-08)
 - 14) 武蔵裕介*, 新倉謙一, 澤洋文, 金城政孝, 居城邦治: 「グルタチオンに反応して薬剤放出できるウイルスカプセルの作製」、第4回北大若手研究者交流会、北海道大学 (2010-07)
 - 15) 南原克行*, 岡嶋孝治, 新倉謙一, 居城邦治: 「脂質様分子の細胞内取り込みにおける疎水部構造の効果」、第20回バイオ・高分子シンポジウム、東京大学 (2010-07)
 - 16) 関口翔太*, 新倉謙一, 吉村成弘, 居城邦治: 「糖鎖修飾によって促進されるナノ微粒子の核移行」、第20回バイオ・高分子シンポジウム、東京大学 (2010-07)
 - 17) 居城邦治*: 「DNAの分子認識を利用した単電子デバイスのための金属ナノ構造の構築」、応用物理学会応用電子物性分科会研究例会「自己組織化技術の探索-分子エレクトロニクス集積化のために-」、首都大学東京 (2010-07)
 - 18) 武蔵裕介*, 新倉謙一, 鈴木忠樹, 澤洋文, 金城政孝, 居城邦治: 「グルタチオンに反応して薬剤放出できるウ

イルスカプセルの作製」、日本化学会北海道支部2010年夏季研究発表会、函館工業高等専門学校(2010-07)

- 19) K. Ijro*, A. Tanaka, K. Niikura and Y. Matsuo: “Metal-lization of Single DNA Molecule for Application to Nano Devices”, 2010 Japan-Taiwan Bilateral Polymer symposium (JTBPSS’10), Centennial Hall, Hokkaido University (2010-07)

4.9 共同研究

b. 民間等との共同研究

- 1) 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)
- 2) 居城邦治、松尾保孝、伊藤晃壽(富士フイルム(株))、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」(2007~2011年度)

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、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)
- 2) 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) 居城邦治、基盤研究 B、DNA 共役量子ドットのプログラマブルナノメッキによる単電子トランジスタの開発(2010~2012年度)
- 2) 居城邦治、挑戦的萌芽研究、環状DNAのプログラマブルナノメッキによるメタマテリアルの創製(2010~2012年度)
- 3) 新倉謙一、挑戦的萌芽研究、細胞膜の流動性に着目した癌細胞特異的なナノ粒子の創製(2010~2011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)
- 6) 関口翔太、特別研究員奨励費、核膜孔ゲルの糖鎖選択的通過を利用した新規マテリアルの創製(2010~2012年度)

f. その他

- 1) 居城邦治、新倉謙一、松尾保孝、ノーステック財団研究開発助成事業 スタートアップ研究補助金:「iPS細胞やES細胞などを高生存率で継代できる新規培養基材の開発」(2010年度)

- 2) 新倉謙一、川合最先端プロジェクトサポート若手研究助成:「ゲーティングナノポアの信号増幅を目指したウイルス修飾法の開発」(20010~2011年度)

4.11 受賞

- 1) 武蔵裕介:「グルタチオンに応答して薬剤放出できるウイルスカプセルの作製」、日本化学会北海道支部2010年夏季研究発表会「優秀講演賞」(2010.7.24)
- 2) Guoqing Wang: “Tailoring the Structure and Conductivity of Metal Nanochain by Photopolymerization”, 11th Chitose International Forum (CIF’11) on Photonics Science and Technology, Poster Award (2010.10.15)

4.12 社会教育活動

a. 公的機関の委員

- 1) 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~2011年3月18日)

b. 国内外の学会の役職

- 1) 居城邦治: 社団法人高分子学会 バイオ・高分子研究会 運営委員(2002年4月1日~現在)
- 2) Kuniharu Ijro: Asian Conference on Nanoscience & Nanotechnology (AsiaNANO), Steering Committee (2004年度~現在)
- 3) 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)
- 4) 新倉謙一: (社)高分子学会男女共同参画委員(2007年4月1日~2012年5月30日)
- 5) 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)

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(ナノ構造技術の探索と展開)」領域アドバイザー(2006年6月19日~2012年3月31日)
- 2) 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)
- 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) 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~2011年11月30日)
- 5) 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)
- 6) 居城邦治: (社)高分子学会 第30期前期「高分子」編集委員会委員(2010年6月1日~2012年5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、居城邦治、2011年2月8日
- 2) 総合化学院、物質化学Ⅲ(分子組織科学)、居城邦治、新

倉謙一、2010年10月1日～2011年3月31日

- 3) 全学共通、環境と人間(先端の化学)、居城邦治、2010年4月1日～2010年9月30日
- 4) 理学院、特別研究Ⅱ、居城邦治、新倉謙一、2010年4月1日～2011年3月31日
- 5) 理学院、特別研究Ⅳ、居城邦治、新倉謙一、2010年4月1日～2011年3月31日
- 6) 理学院、特別研究Ⅴ、居城邦治、新倉謙一、2010年4月1日～2011年3月31日
- 7) 総合化学院、特別研究Ⅰ、居城邦治、新倉謙一、2010年4月1日～2011年3月31日
- 8) 総合化学院、特別研究Ⅲ、居城邦治、新倉謙一、2010年4月1日～2011年3月31日
- 9) 理学院、論文購読Ⅱ、居城邦治、新倉謙一、2010年4月1日～2011年3月31日
- 10) 理学院、論文購読Ⅳ、居城邦治、新倉謙一、2010年4月1日～2011年3月31日
- 11) 理学院、論文購読Ⅴ、居城邦治、新倉謙一、2010年4月1日～2011年3月31日
- 12) 総合化学院、論文購読Ⅰ、居城邦治、新倉謙一、2010年4月1日～2011年3月31日
- 13) 総合化学院、論文購読Ⅲ、居城邦治、新倉謙一、2010年4月1日～2011年3月31日

i. ポスドク・客員研究員など

・ポスドク（1名）

野村尚生（北海道大学大学院理学院）

j. 修士学位及び博士学位の取得状況

・修士課程（4名）

南原克行、渡辺雪江、武蔵裕介、江口明日美

・博士課程（4名）

西尾崇、永川桂大、関口翔太、王 国慶

・修士論文

- 1) 南原克行：細胞膜の特性を利用した細胞内への物質輸送に関する研究

- 2) 渡辺雪江：DNAブロックコポリマーの合成および塩基選択的な金属化によるナノギャップ構造の作製

・博士論文

- 1) 西尾崇：Surface modification of nanoparticles for biomolecular recognition and 3D self-ordering (バイオ分子認識と3D自己配列を目指したナノ微粒子の表面修飾)

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、Claus Hermannstaedter

院 生

江國晋吾、中島秀朗、和田雅樹、井田惣太朗、

Nahid Akhter Jahan、飯島仁史、桜井誠也

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) クーパー対発光ダイオードの特性解析

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。我々は2006年に電子クーパー対と正孔対の発光再結合による量子もつれ光子対の発生法を提案し、2008年にInGaAs系クーパー対発光ダイオード(LED)を試作した結果、注入電流250 μ A一定の条件下で、ニオブウム超伝導臨界温度8.3K以下において、温度の低下に対する急激な発光増強を観測した。またこのような新現象を理解するために、超伝導効果を取り入れた理論解析を行った。今年度は、発光寿命の測定を行うと共にこの新たに開発した理論モデルで、クーパー対LEDの特性解析を進めた。

当初パルス電流駆動による寿命測定を試みたが、発光強度が不足して測定が困難であった。そこで、LED構造を外からパルスレーザ励起して、発光の過渡応答から発光寿命の測定を行った。図1の■は、LEDのSiN絶縁膜で覆われたInGaAs表面で超伝導電極の影響を受けない部分について測定した発光寿命である。一方、超伝導電極部分で発光寿命を見積もると、●で示すようにNbの超伝導臨界温度8.3K以下で発光寿命の急激な短縮（発光再結合確率の増大）が起きていることが判った。これに対して、昨年開発した理論で特性を検討したのが同図の実線であり、測定結果をよく説明していることがわかる。この発光再結合寿命

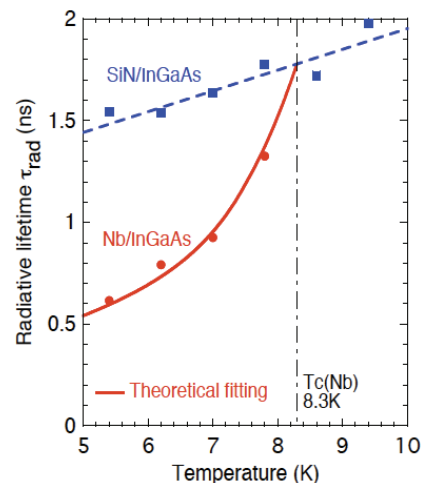


図1. 発光再結合寿命の測定結果。■は表面がSiN絶縁膜で覆われた部分で測定した結果であり、●はNb超伝導電極部分で測定した発光寿命。実線は電子クーパー対と正孔対の再結合を考慮した発光寿命の理論値。

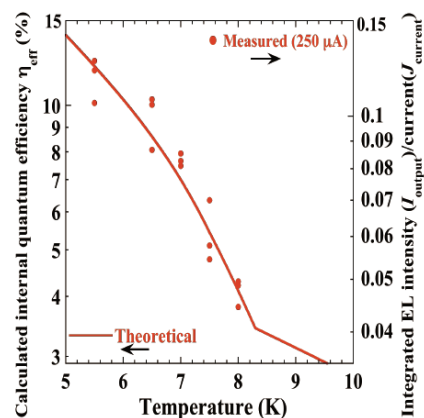


図2. 注入電流250 μ A一定の条件下で観測されたLEDの積分発光強度の温度依存性（●）と発光再結合寿命の検討結果に基づく理論との比較（実線）。

の測定結果を用いると（非発光再結合寿命も系統的な測定で求まっている）、LEDの量子効率を求めることが出来る。これを測定されたLEDの積分発光強度と比べたのが図2である。●で示された超伝導臨界温度以下での発光増強の観測結果が、実線で示した理論によって非常によく説明されることが判る。

(b) InAsP/InPナノワイヤに埋め込んだ単一量子ドットからの単一光子発生

半導体ナノワイヤ、特にヘテロ構造を内包した構造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より、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。我々は、北大・本久・福井グループ、デルフト工科大学・Zwilerグループ、日大・井上グループと共同で、ナノワイヤの光子生成特性について研究を進めている。

測定を行ったナノワイヤは、(111) InP基板表面にスパッ

タ法でSiO₂膜を形成し、電子ビーム露光を用いて1 mm 間隔で直径100 nm 程度の開口を形成し、選択 MOVPE（有機金属気相成長）した試料である。

このようにして作製したナノワイヤを、光学測定系のマイクロクライオスタットで4Kまで冷却し、50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632.8 nm の He-Ne レーザを用いた。観測した発光スペクトルの例を図3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。

このナノワイヤからの発生光子を図4(a)に示す超伝導単一光子検出器(SSPD)を用いて光子相関測定した。ナノワイヤの発光波長は赤外の1200 nm 付近であるため、通常InGaAs 単一光子検出器を用いるが、シリコン単一光子検出器に比べてダークカウントが大きく、単一光子の検出は容易ではない。これに比べると SSPD は極低温に冷却する必要はあるが、ダークカウントは極めて低く、その点では有利である。図3(a)に示すように、ナノワイヤサンプルから出た光子をビームスプリッタ(BS)で2経路にわけ、それぞれの経路に到達した光子をSSPDで検出して、両者の同時計数確率を測定する。その結果を図4(b)に示す。遅延時間零の点が、二つの経路で光子が同時計数される確率であり、明瞭なディップを示す。これは光子のアンチバンチングと呼ばれ、このナノワイヤ中の量子ドットから一度に単一の光子が発生していることを示している。

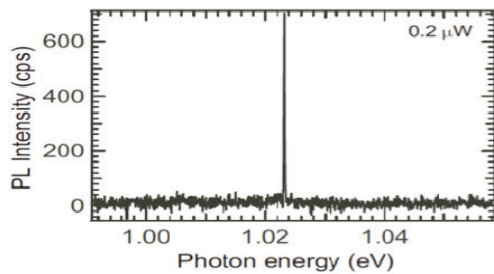


図3. 0.2μWの弱い光励起で観測されるInP ナノワイヤ中に埋め込まれた単一InAsP 量子ドットからの発光スペクトル（測定温度は4K）。

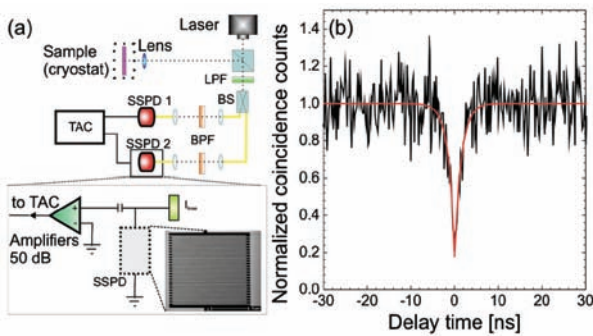


図4. (a) 1 対の超伝導単一光子検出器(SSPD)を用いた光子相関測定の様式図と SSPD の SEM 観察像。(b) 測定された光子の同時計数カウントの、ビームスプリッタ(BS)後の2経路の遅延時間差に対する依存性。

(c) 単一量子ドット内の励起子偏光モードによる1光子2モード干渉の観測

広く知られるYoungの二重スリットの実験は、粒子と波動の二重性に見られるように量子力学の本質を含み、これまで中性子や原子、電子、C₆₀に至るまで多くの系で実施されている。しかしながら、これらの実験の多くは光源の外部に干渉系を設けたもので、固体素子の光源内部に形成される2モード間の干渉実験は電子モードを用いたものに限られている。本研究分野では、固体素子である単一の半導体量子ドット内に形成される分裂した2つの中性励起子(X⁰) 準位（2つの直交する直線偏光モード|V> / |H> に対応）がYoungの二重スリットの実験のスリットに、強度検出の際の直線偏光角依存性がYoungの実験におけるスクリーン上の干渉強度の位置依存性に対応することに着目し、1光子干渉の観察を試みた。

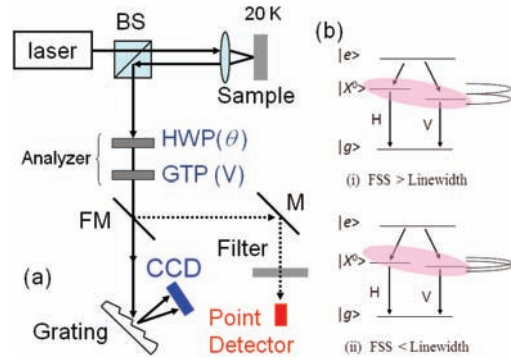


図5. (a) 1光子干渉測定系。試料（単一量子ドット）からの発光を偏光 analyzer を介して2通りの検出器（CCDと点検出器）で強度検出し、HWPを回転させてその検出偏光依存性を測定する。(b) ドット内の励起子準位構造のタイプによる which-path 情報の有無。

試料はGaAs(001)基板上にMBE成長した単一In_{0.75}Al_{0.25}As量子ドットである。単一光子の発生はHBT測定系を用いた光子離群の観測により確認されており、図5(a)に示すように1/2波長板(HWP)の回転により偏光角度依存性を測定する実験系を使用した。ドットは図5(b)の2タイプのものを用意した。(i)タイプは発光線幅80 μeV、励起子準位の微細構造分裂(FSS) 110 μeVであり、2つのモードの分離が明瞭であるため、光子がどちらのモードに属するかという情報 = which-path 情報を持つ。一方、(ii)タイプは発光線幅100 μeV、FSS 30 μeVであるため、ほぼ2つのモードスペクトルが重なっており、which-path 情報は喪失している状況にある。

図6(a)、(b)は、横軸に検出偏光角度、縦軸に光子エネルギーを取ったX⁰発光強度の等高線図を示す。(a)では信号レベルが明瞭に二値化されているが、これは生成光子がwhich-path 情報を持つためである。一方、(b)では不明瞭で、which-path 情報が（あるとしても）十分弱い状態にあることが分かる。図6(c)、(d)は、それぞれのタイプの量子ドットの強度の偏光依存性測定結果をエネルギー積分し、それ

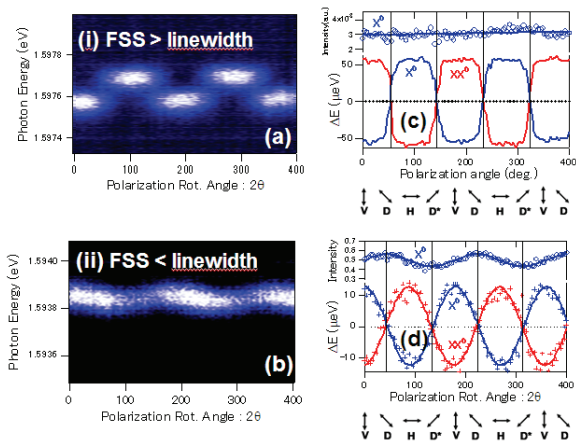


図6. 1光子2モード干渉の測定結果。(a), (b)は X^0 発光強度の等高線図であり、(c), (d)はそのエネルギー積分強度および平均エネルギーからのエネルギーシフトの様子を示す。

を X^0 線の発光エネルギーと比較したものである。(c)では積分の結果平滑化されている一方で、(d)の場合には強度の変動が観察され、さらにこの強度変化の位相が X^0 発光エネルギーの変化に対して $\pi/4$ ずれていることが分かる。解析の結果、これは入力的光子状態を偏光2モードの重ね合わせであるとした場合に説明可能であり、よく知られたYoungの二重スリットの実験の干渉と基本的に同等の結果である。

さらに、which-path情報を持つ(i)のタイプのドットについて、点検出器を用いてエネルギーを識別せずに測定を行った。結果、図6(d)と同様の波形が得られた。これは、which-path情報を与えるエネルギーラベルを識別せずに測定を行ったことに対応し、生成光子の偏光モードの識別不可能性のため干渉が生じたものと考えられる。

3. 今後の研究の展望

今年度の研究により、クーパー対に関与した発光プロセスを理論と実験の対応からより定量的に検討することにより、クーパー対による新しい発光プロセスに対する理解を深め、またその発光機構をより明確にした。今後、量子もつれ光子対発生の確認を進めていく。そのためには、発生した光子対をLEDから効率よく外部に取り出す必要があるさらに、クーパー対LEDの発光波長である1550 nmにおける高効率単一光子検出器も重要で、国際共同研究も含めて、その検討を進めている。

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、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、SSPDを用いて波長 ~ 1200 nm帯において2次の光子相関測定を行い、発生する光子のアンチバンチングを確認した。ナノワイヤ構造は光の波長よりも小さい直径を有することから、外部への光場のしみ出しが大きく、半導体/空気界面での全反射の影響を小さくでき、高い光子取り出

し効率が期待され、今後の単一光子発生源の有力候補である。

さらに量子ドット内における光学遷移において、1光子発光過程でありながら、二つの励起子状態間であたかもヤングのスリットによる干渉と同様の干渉効果が観測された。これは発光過程における励起子状態の識別を行わないときにのみ観測されており、新たな物理現象の発見である。

これらの研究成果を元にして、さらに効率の良い単一光子源、量子もつれ光子対源の研究開発、関連の物理、さらにその応用の可能性を探る。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) R. Inoue, H. Takayanagi, T. Akazaki, K. Tanaka, and I. Suemune: "Transport Characteristics of a Superconductor-based LED" *Supercond. Sci. Technol.* **23** (2010) 034025.
- 2) 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).
- 3) 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.
- 4) 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.
- 5) 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.
- 6) 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.
- 7) 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* **8**, (2011) 337-339.

4.2 総説、解説、評論等

- 1) 笹倉弘理、鍛冶怜奈、足立智、武藤俊一：「核スピンを光で見る・操作する-半導体量子ドットの動的核偏極」、日本物理学会誌、日本物理学会、65(4)：247-251 (2010)

4.4 著書

- 1) 末宗幾夫：「量子ドットエレクトロニクスの最前線」エス・ティー・エス出版、2011年3月25日（分担執筆）、426ページ、第1編 基礎編 第2章 物性制御 第3節 微小共振器-量子ドットとの結合による励起子状態の制御 pp. 95-109.

4.7 講演

a. 招待講演

- 1) 林雄二郎、田中和典、赤崎達志、定昌史、熊野英和、末宗幾夫：「Superconductor-based Light Emitting Diode: Demonstration of Role of Cooper Pairs in Radiative Recombination Processes」2010年（平成22年）秋季第71回応用物理学会学術講演会「優秀論文賞受賞記念講演」17a-T-1.
- 2) I. Suemune, H. Sakakura, K. Tanaka, Y. Asano, R. Inoue, H. Takayanagi, T. Akazaki, J.-H. Huh, C. Hermannsdäster, and H. Kumano: “Cooper-pair Light Emitting Diodes” International Symposium on Nanoscale Transport and Technology, January 11-14, 2011, NTT Atsugi R&D Center/ Atsugi, Kanagawa Japan, We-13, p.65.

b. 一般講演

i) 学会

- 1) 中島秀朗、江国晋吾、熊野英和、飯島仁史、笹倉弘理、末宗幾夫、「金属埋め込み InAs 量子ドットからの高効率単一光子発生」電子情報通信学会レーザ・量子エレクトロニクス研究会技術報告2010年6月25日、東京。
- 2) 中島秀朗、江国晋吾、熊野英和、飯島仁史、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強度飽和領域における高純度単一光子発生」2010年（平成22年）秋季第71回応用物理学関係連合講演会（平成22年10月14日-17日、長崎大学）16p-NC-13, p. 14-089.
- 3) 許載勲、Claus Hermannstaedter、赤羽浩一、Nahid A. Jahan、和田雅樹、笹倉弘理、飯島仁史、井田惣太郎、佐々木雅英、末宗幾夫：「1.5 μ m 帯単一光子源に向けたナノコーン構造の作製」2010年（平成22年）秋季第71回応用物理学関係連合講演会（平成22年10月14日-17日、長崎大学）17a-P13-10, p.14-124.
- 4) 桜井誠也、小田島聡、末宗幾夫：「InAs 量子ドット形状異方性の GaAs 埋め込みプロセス依存性」2010年（平成22年）秋季第71回応用物理学関係連合講演会（平成22年10月14日-17日、長崎大学）17a-P13-11, p.14-125.
- 5) 飯島仁史、宮村壮太、中島秀朗、井田惣太郎、小田島聡、熊野英和、西尾崇、松尾保孝、居城邦治、末宗幾

夫：「剥離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）秋季第71回応用物理学関係連合講演会（平成22年10月14日-17日、長崎大学）17a-P13-12, p. 14-126.

- 6) 桜井誠也、小田島聡、末宗幾夫「In-flush 法による InAs/GaAs 量子ドットのディスク化」第46回応用物理学会北海道支部/第7回日本光学会北海道地区 合同学術講演会、室蘭工業大学 (2011-1)
 - 7) 飯島仁史、和田雅樹、中島秀朗、井田惣太郎、小田島聡、熊野英和、西尾崇、松尾保孝、居城邦治、末宗幾夫「剥離層を用いた金属埋め込み半導体ピラーの作製と光学評価」第46回応用物理学会北海道支部/第7回日本光学会北海道地区 合同学術講演会、室蘭工業大学 (2011-1)
 - 8) N. A. Jahan, H. Iijima, C. Hermannstadter, T. J. Rotter, P. Ahirwar, G. Balakrishnan, H. Kumano, and I. Suemune 「The Thermal Escape Mechanism and Optical Characteristics of InGaSb/AlGaSb Quantum Wells」第46回応用物理学会北海道支部/第7回日本光学会北海道地区 合同学術講演会、室蘭工業大学 (2011-1)
 - 9) 松田恒祐、江国晋吾、熊野英和、末宗幾夫「三種の偏光基底による光子対の非局所性の評価」第46回応用物理学会北海道支部/第7回日本光学会北海道地区 合同学術講演会、室蘭工業大学 (2011-1)
 - 10) 江国晋吾、松田恒祐、熊野英和、末宗幾夫「超伝導 EPR 光子対評価に向けた混合もつれ状態のモデル光源による検討」第46回応用物理学会北海道支部/第7回日本光学会北海道地区 合同学術講演会、室蘭工業大学 (2011-1)
 - 11) 飯島仁史、和田雅樹、中島秀朗、井田惣太郎、小田島聡、熊野英和、西尾崇、松尾保孝、居城邦治、末宗幾夫「剥離層を用いた Ag 埋め込み半導体ピラー構造の作製と発光特性評価」第58回応用物理学関係連合講演会、神奈川工科大学 (2011-3)
 - 12) 桜井誠也、小田島聡、末宗幾夫「In-flush 法による InAs/GaAs 量子ディスクの作製と発光特性評価」第58回応用物理学関係連合講演会、神奈川工科大学 (2011-3)
 - 13) 中島秀朗、熊野英和、飯島仁史、笹倉弘理、末宗幾夫「量子ドット励起子状態における荷電遷移レートの評価」第58回応用物理学関係連合講演会、神奈川工科大学 (2011-3)
 - 14) 江国晋吾、松田恒祐、熊野英和、末宗幾夫「量子もつれ合い光子対-古典的光子混合モデル光源を用いた超伝導 EPR 光子対源特性劣化要因の検討」第58回応用物理学関係連合講演会、神奈川工科大学 (2011-3)
- #### ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) H. Kumano, H. Nakajima, S. Ekuni, S. Miyamura, J.-H. Huh, H. Sakakura, and I. Suemune: “Quantum-dot Single Photon Emitter of Higher Photon Extraction Efficiency and

- Lower Multiple-photon Emission Probability with Metal-embedded Structure” The 6th International Conference on Quantum Dots (Quantum Dot 2010) Nottingham, UK, April 26–30, 2010.
- 2) H. Nakajima, S. Ekuni, H. Kumano, S. Miyamura, D. Kato, S. Ida, H. Sasakura, N. Namekata, I. Suemune: “Strongly suppressed multi-photon generation from a single quantum dot in metal-embedded structure with second-order photon correlation measurements” 37th International Symp. on Compound Semiconductors, Kagawa, May 31–June 4, 2010.
 - 3) I. Suemune, Y. Idutsu, M. Takada, H. Sasakura, H. Kumano: “Toward Conversion from Electron Pairs to Photon Pairs in Quantum Dots” Electronic Materials Conference, June 23–25, 2010, Notre Dame, Indiana, USA.
 - 4) I. Suemune, Y. Asano, K. Tanaka, R. Inoue, H. Takayanagi, H. Sasakura, T. Akazaki, and H. Kumano: “Exploring Spontaneous Simultaneous Photon-pair Generation in Semiconductors” 30th International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS 2010), July 25–30, 2010, Seoul, Korea.
 - 5) R. Inoue, H. Takayanagi, M. Jo, T. Akazaki, and I. Suemune: “Transport Properties of a Superconductor–Semiconductor Junction with Superlattice Structure” 30th International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS 2010), July 25–30, 2010, Seoul, Korea.
 - 6) H. Sasakura, K. Tanaka, J.-H. Huh, T. Akazaki, H. Kumano, and I. Suemune: “Electron–Cooper–pair Operated Long-wavelength Light Emitting Diodes” International Semiconductor Laser Conference, September 26–30, 2010, Kyoto.
 - 7) J.-H. Huh, C. Hermannstädter, K. Akahane, N. A. Jahan, M. Wada, H. Sasakura, S. Ida, M. Sasaki, I. Suemune: “Fabrication of Metal-buried Nano-cone Structures for Single Photon Generation” 23rd International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC 2010) November 9–12, 2010, Fukuoka, 11B–6–3.
 - 8) J.-H. Huh, H. Sato, S. Ito, Y. Idutsu, K. Tanaka, T. Akazaki, and I. Suemune: “Precise Slit-width Control of Niobium Apertures for Superconducting LED” 23rd International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC 2010) November 9–12, 2010, Fukuoka, 12D–11–55.
 - 9) C. Hermannstädter, J.-H. Huh, N. A. Jahan, H. Sasakura, K. Akahane, M. Sasaki, and I. Suemune: “Single InAs/InGaAlAs quantum dot luminescence from metal buried nano-cone structures at around $1.55\ \mu\text{m}$ ” International Symposium on Nanoscale Transport and Technology, January 11–14, 2011, NTT Atsugi R&D Center/ Atsugi, Kanagawa Japan.
 - 10) S. Odashima, S. Sakurai, I. Suemune: “InAs/GaAs Quantum Disks Prepared by Metalorganic Molecular Beam Epitaxy” 4th Int. Symp. Global COE Program of Center for Next-Generation Information Technology Based on Knowledge Discovery and Knowledge Federation, January 18–19, 2011, Hokkaido University, Japan, N-03.
 - 11) H. Nakajima, S. Ekuni, H. Kumano, Y. Idutsu, S. Ida, H. Sasakura, I. Suemune: “Metal-embedded Semiconductor Single Quantum Dot as a Novel Highly Pure Single Photon Source” 2011 SPIE Photonic West Conference, Opto, Physics and Simulation of Optoelectronic Devices XVIII, January 22–27, 2011, San Francisco, CA, USA, 7947–05.
 - 12) I. Suemune, J.-H. Huh, C. Hermannstädter, K. Akahane, N. A. Jahan, S. Ida, M. Wada, H. Sasakura, H. Iijima, M. Sasaki: “FDTD Simulation of Metal-embedded Single Quantum Dot and Improved Photon Extraction with Corn Structure” 2011 SPIE Photonic West Conference, Opto, Physics and Simulation of Optoelectronic Devices XVIII, January 22–27, 2011, San Francisco, CA, USA, 7933–43.
 - 13) I. Suemune, Y. Asano, H. Sasakura, C. Hermannstädter, J.-H. Huh, K. Tanaka, T. Akazaki, R. Inoue, H. Takayanagi, and H. Kumano: “Radiative Interband Transition of Cooper Pairs in a Semiconductor” American Physical Society Meeting, March 21–25, 2011, Dallas, Texas, USA.
- #### 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）：「超伝導フォトニクスの創成とその応用」、2005～2010年度、これまで遊離していた超伝導研究領域とフォトニクス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) 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
 - 2) 末宗幾夫、特別研究員費（2010年度～2012年度）量子情報応用にむけた半導体結合量ドット・量子リングの研究
 - 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
- #### 4.11 受賞
- 1) 林雄二郎、田中和典、赤崎達志、定昌史、熊野英和、末宗幾夫：「Superconductor-based Light Emitting Diode:

Demonstration of Role of Cooper Pairs in Radiative Recombination Processes」2010年（平成22年）応用物理学会「優秀論文賞受賞」

- 2) 江国晋吾、松田恒祐、笹倉弘理、熊野英和、末宗幾夫「伝導EPR光子対評価に向けた混合もつれ状態のモデル光源による検討」2011年（平成23年）第46回応用物理学会北海道支部学術講演会（平成23年1月7日-8日、室蘭工業大学）「発表奨励賞受賞」

来の光子状態評価に関する基礎的研究」

- 2) 井田惣太郎：「金属埋め込み量子ドットピラー構造のFDTD法を用いた構造最適化に関する研究」
- 3) 和田雅樹：「単一量子ナノ構造における励起子エネルギー制御及び光取り出し効率改善に関する研究」
- 4) 中島秀朗「金属埋め込み量子ドットを用いた高効率単一光子発生に関する研究」

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）

e. 新聞・テレビ等の報道

- 1) 2010年7月8日 日経産業新聞「情報暗号化する新素子 北大など 超伝導・LED応用」

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、笹倉弘理、2010年4月1日～2011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、2010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、2010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、2010年10月1日～2011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 2010年4月1日～2011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）
Claus Hermannstaedter（日本学術振興会）

j. 修士学位及び博士学位の取得状況

・修士学位

- 1) 江國晋吾：「量子-古典混成光源を用いた固体光子源由

ナノテク支援室

ナノテク支援室

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 鷺見将太（2009.5～）
 学術研究員 和島順也（2009.7～2010.3）
 技術補佐員 福本 愛（2007.6～）

1. 研究目標

ナノテクノロジーとよばれる超微細加工やナノ計測・分析は広範囲な社会的課題を解決するための技術・産業創出には欠かせない非常に重要な役割を果たす鍵となっている。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22年4月～平成23年3と月）

平成22年度の支援状況として超微細加工に関する利用件数は76件、利用延べ日数は3827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を含めて利用件数は134件、利用延べ日数は807日となっている。全支援課題数210件となり、そのうち委託事業（成果報告書有り）は114件、自主事業（報告書義務無し）は96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）の内訳は以下の通りである。

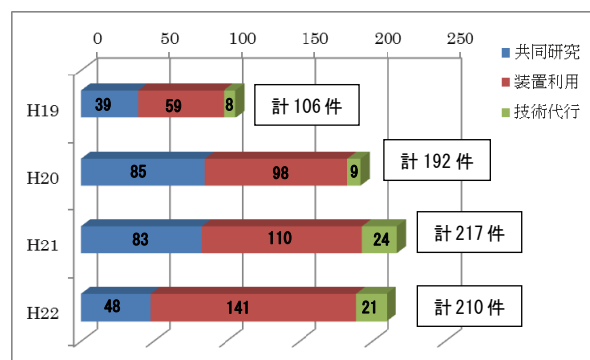


図1. 支援件数推移

支援課題数、支援日数共に昨年とほぼ同程度であった。

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
H22	国内	14	7	92	113
	国際	81	0	65	146
	年度計	95	7	157	259
合計		234	13	571	818

表1. 支援課題による研究成果

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4年間で44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

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。平成22年度は新たな試みとして、北大から東北大学へ技術者を派遣し、透過電子顕微鏡に関する技術取得を目的とした支援者交流を行った。一方で、早稲田大学、広島大学、佐賀県立九州シンクロトロン研究センターからの支援者を受け入れ、ナノ加工・ナノ計測に関する技術講習を行い、ナノテクノロジー技術者の技術力向上への支援を行った。また、平成22年度ナノネット事業5大成果として本学支援成果「ダイナミックマスキングスリソグラフィ技術による3次元光重合体の作製に関する研究」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(Nanotech2011)において成果報告を行った。

(c) 新装置の導入と低炭素研究ネットワーク事業

北海道大学は「低炭素社会構築に向けた研究基盤ネットワークの整備」事業において、サテライト研究拠点「光アンテナ搭載高効率光電変換システム研究拠点の整備構想」(拠点長:佐伯浩、研究代表:三澤弘明)が採択された。本事業は「グリーン・ナノテクノロジー」の研究開発を加速推進することを目的とする文部科学省のプロジェクトであり、18拠点(3ハブ拠点/15サテライト拠点)がネットワーク化し、最先端の研究開発機器を広く有効活用すると共に、研究拠点相互の連携を強め、「低炭素社会」の早期実現を目指す研究推進プログラムとなっている。これにより、クリーンルーム内に新規の支援装置として、世界ではじめて加速電圧125 kVをもつ電子線描画装置(エリオニクス製:ELS-F125)が導入された。また、原子層堆積装置(ALD)やレーザー直接描画装置、クリーンルーム外には光電子分光装置(PEEM)や太陽光シミュレーターを導入し、グリーンテクノロジーの研究推進を可能にした。

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、低炭素研究ネットワーク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22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、松尾保孝、第66回日本顕微鏡学会・学術講演会、名古屋国際会議場(2010-05)
- 2) 松尾保孝、上野貢生、「ダイナミックマスキングスリソグラフィ技術による3次元光重合体の作製に関する研究」、国際ナノテクノロジー総合展(Nanotech2011)、東京ビッグサイト(2011-2)

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
- 2) 三澤弘明、北海道大学、光アンテナ搭載高効率光電変換システム研究拠点の整備構想、2010年度

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)

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19年	平成20年	平成21年	平成22年
電子材料 物性部門	欧 文		30 (25)	33 (33)	39 (39)	41 (25)
	邦 文		0	2 (2)	2 (2)	0
電子機能 素子部門	欧 文		20 (20)	19 (19)	19 (12)	27 (15)
	邦 文		1 (1)	3 (3)	1 (1)	0
電子計測 制御部門	欧 文		23 (21)	15 (15)	20 (18)	18 (18)
	邦 文		1 (1)	3 (2)	0	1
電子情報 処理部門※	欧 文		42 (40)	56 (54)	26 (25)	22 (21)
	邦 文		2 (2)	1 (1)	1	1
ナノテクノロジー 研究センター	欧 文		16 (15)	39 (38)	34 (30)	21 (18)
	邦 文		3 (1)	2 (2)	1 (1)	1 (1)
計	欧 文		117 (108)	128 (126)	129 (116)	119 (87)
	邦 文		7 (5)	9 (8)	5 (4)	3 (1)

()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19年	平成20年	平成21年	平成22年
電子材料 物性部門	総説等		4	5	5	4
	著 書		1	1	2 (1)	1
電子機能 素子部門	総説等		3	4 (1)	7 (1)	3 (1)
	著 書		6	1	2 (1)	2 (2)
電子計測 制御部門	総説等		14 (1)	6	10	11 (2)
	著 書		4	0	3 (2)	1
電子情報 処理部門※	総説等		15	16 (1)	10	10 (1)
	著 書		3	6 (2)	7 (3)	3
ナノテクノロジー 研究センター	総説等		5 (1)	8 (3)	6 (1)	1
	著 書		8	3 (1)	10	2
計	総説等		38 (2)	33 (4)	38 (2)	28 (4)
	著 書		19	9 (2)	23 (7)	9 (2)

()内の数は欧文

※客員研究分野は除外した。

※共著に関しては、出版物の数で表示（出版物の数×研究者ではない）。したがって「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19年	平成20年	平成21年	平成22年
電子材料 物性部門	国際学会	32 (9)	47 (14)	28 (8)	15 (8)
	国内学会	60 (5)	44 (1)	45 (5)	30 (3)
電子機能 素子部門	国際学会	18 (3)	25 (6)	6 (1)	20 (3)
	国内学会	40 (4)	24 (1)	17 (4)	25 (3)
電子計測 制御部門	国際学会	26 (7)	19 (9)	33 (16)	30 (15)
	国内学会	55 (10)	35 (5)	39 (14)	59 (31)
電子情報 処理部門 ※	国際学会	17 (7)	16 (3)	5 (1)	11 (2)
	国内学会	38 (9)	57 (10)	40 (1)	28 (4)
ナノテクノロジー 研究センター	国際学会	13 (3)	34 (5)	8 (4)	31 (8)
	国内学会	30 (1)	58 (5)	28 (1)	42 (1)
計	国際学会	94 (25)	109 (30)	77 (29)	103 (36)
	国内学会	197 (26)	169 (20)	162 (25)	180 (42)

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19年度	平成20年度	平成21年度	平成22年度
業 務 費	169,473	169,867	160,255	199,162
科学研究費補助金	279,947 (59)	329,741 (72)	319,314 (68)	376,484 (63)
その他の補助金	4,357 (4)	20,460 (7)	6,638 (5)	36,361 (7)
寄 附 金	42,856 (16)	32,012 (12)	37,679 (11)	29,615 (11)
受託事業等経費	226,609 (32)	427,412 (34)	495,891 (38)	896,500 (41)
(受託研究費)	184,803 (20)	393,081 (20)	462,226 (26)	832,207 (28)
(共同研究費)	41,806 (12)	34,331 (14)	33,665 (12)	64,293 (13)
合 計	723,242(111)	979,492(125)	1,019,777(122)	1,538,122(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21年度	平成22年度
電 子 材 料 物 性 部 門	科学研究費補助金	93,567(16)	90,163(13)
	その他の補助金	1,960 (3)	0
	寄 附 金 I	0	2,000 (1)
	寄 附 金 II	0	0
	受託事業等経費	119,689 (6)	113,662 (8)
	(受託研究費)	117,359 (4)	111,662 (7)
	(共同研究費)	2,330 (2)	2,000 (1)
	小 計	215,216(25)	205,825(22)
電 子 機 能 素 子 部 門	科学研究費補助金	12,854 (6)	28,460 (7)
	その他の補助金	0	0
	寄 附 金 I	0	0
	寄 附 金 II	10,237 (3)	2,952 (4)
	受託事業等経費	66,045 (7)	38,984 (4)
	(受託研究費)	59,425 (5)	16,684 (3)
	(共同研究費)	6,620 (2)	22,300 (1)
	小 計	89,136(16)	70,396(15)
電 子 計 測 制 御 部 門	科学研究費補助金	67,631(17)	98,061(15)
	その他の補助金	4,290 (1)	30,463 (4)
	寄 附 金 I	0	8,743 (3)
	寄 附 金 II	9,943 (5)	200 (1)
	受託事業等経費	126,906 (9)	62,746 (8)
	(受託研究費)	123,056 (8)	55,926 (7)
	(共同研究費)	3,850 (1)	6,820 (1)
	小 計	208,770(32)	200,213(31)

電子情報処理部門	科学研究費補助金	75,017 (19)	75,219 (15)
	その他の補助金	0	0
	寄附金Ⅰ	0	1,220 (1)
	寄附金Ⅱ	0	0
	受託事業等経費	20,061 (4)	28,133 (5)
	(受託研究費)	18,456 (2)	19,110 (2)
	(共同研究費)	1,605 (2)	9,023 (3)
	小計	95,078 (23)	104,572 (21)
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	910 (1)	3,101 (2)
	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	13,858 (1)	0
	(受託研究費)	13,858 (1)	0
	(共同研究費)	0	0
	小計	29,268 (3)	17,601 (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	69,335 (9)	81,480 (11)
	その他の補助金	388 (1)	5,898 (3)
	寄附金Ⅰ	0	0
	寄附金Ⅱ	2,999 (2)	0
	受託事業等経費	149,332 (11)	652,975 (16)
	(受託研究費)	130,072 (6)	628,825 (9)
	(共同研究費)	19,260 (5)	24,150 (7)
	小計	222,054 (23)	740,353 (30)

()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19年度	平成20年度	平成21年度	平成22年度
電子材料物性部門	8	6	11	8
電子機能素子部門	2	14	0	1
電子計測制御部門	12	13	4	4
電子情報処理部門	8	1	4	4
ナノテクノロジー研究センター	1	0	9	6
計	25	34	28	23

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22年度

● 理学院

- 南原 克行：細胞膜の特性を利用した細胞内への物質輸送に関する研究
- 渡辺 雪江：DNAブロックコポリマーの合成および塩基選択的な金属化によるナノギャップ構造の作製
- 木村 太郎：ルンフェラーゼの可逆的再構成と高効率エネルギー移動を原理とする新規 cAMP 指示薬 PKAchu の開発と細胞内cAMP動態の可視化

● 情報科学研究科

- 石黒 裕康：「散乱型近接場顕微鏡を用いた金ナノ構造光局在場の直接観測に関する研究」“Direct imaging of localized fields in gold nanostructures using a scattering-type near-field microscope”
- 太田 宏紀：「単一CdSe/ZnS量子ドット発光ダイナミクスの基板依存性に関する研究」“Substrate dependence of emission dynamics for single CdSe/ZnS quantum dots”
- 荒木 剛：Fabrication of gold nanostructured TiO₂ electrodes by laser interference lithography/dry-etching and their photoelectric conversion properties (2 光束レーザー干渉リソグラフィー／ドライエッチングによる金ナノ構造／参加チタンの電極の作製と光電変換特性に関する研究)
- 池谷 伸太郎：Optical properties of closely-spaced gold nanoblock pairs (制御された2量体型ナノギャップ金属構造のプラズモン分光特性に関する研究)
- 蝦名 渉：Fabrication of three dimensional photonic crystals by optical-phase-mask lithography (位相マスクを用いた多光子多光束干渉露光による3次元フォトニック結晶の作製に関する研究)

Ⅱ－4－2) 博士学位

平成22年度

● 理学院

- 川口 敦吉：A Study of the Origin of the Open Circuit Voltage in Organic Bulk Heterojunction Solar Cells (有機バルクヘテロ接合太陽電池における開放端電圧の起源に関する研究)
- 西尾 崇：Surface modification of nanoparticles for biomolecular recognition and 3D self-ordering (バイオ分子認識と3D自己配列を目指したナノ微粒子の表面修飾)

● 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	
	21年	22年	21年	22年
理 学 院	26	22	22	18
工 学 研 究 科	5	5	4	4
環 境 科 学 院	7	6	7	6
情 報 科 学 研 究 科	30	25	6	6
生 命 科 学 院	0	1	2	3
総 合 化 学 院	0	2	0	2
計	68	61	42	40

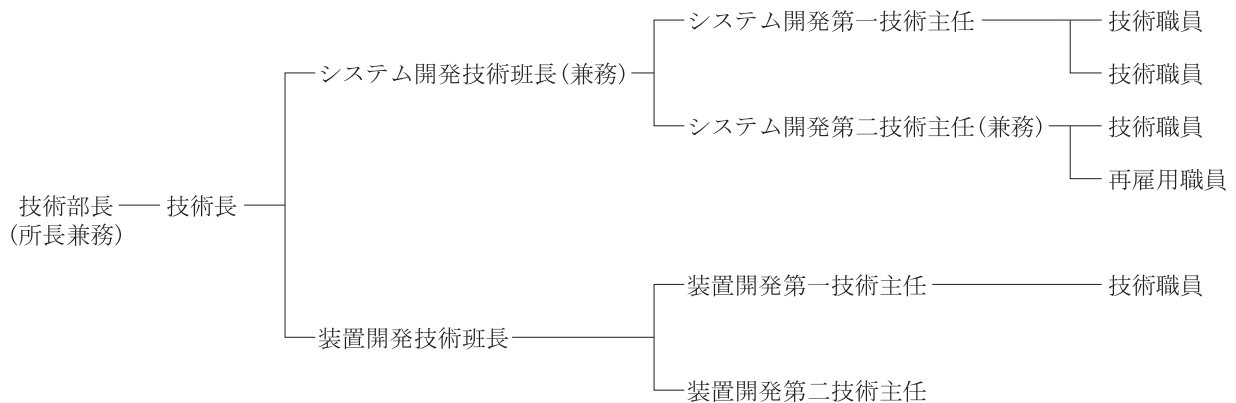
Ⅲ. 研究支援体制

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19年	平成20年*	平成21年*	平成22年*
和 書	5,806	5,554	5,564	5,591
洋 書	20,983	17,390	17,438	17,477
計	26,789	22,944	23,002	23,068

2. 所蔵雑誌種類数

年 度	平成19年	平成20年*	平成21年*	平成22年*
和雑誌	121	116	135	125
洋雑誌	390	412	413	431
計	511	528	548	556

3. 購入外国語雑誌受入種類数

年 度	平成19年	平成20年*	平成21年*	平成22年*
和雑誌	34	41	48	55
洋雑誌	29	29	21	21
計	63	70	69	76

4. 学外文献複写数

年 度	平成19年	平成20年*	平成21年*	平成22年*
依 頼	65	78	108	57
受 付	136	252	248	179

* 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、17,900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の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(22. 10 協定終了)
 - 19. 4 附属ナノテクノロジー研究センターの「10年時限」撤廃
 - 19. 10 電子材料物性研究部門相転移物性研究分野を量子情報フォトンクス研究分野に名称変更
電子機能素子研究部門超分子分光研究分野を廃止
電子計測制御研究部門自律調節研究分野を分子生命数理研究分野に名称変更
 - 20. 1 バングラデシュ・ダッカ大学物理化学生物薬学先端科学研究センターとの学術交流協定締結
(21. 12 大学間交流協定へ移行 責任部局：大学院歯学研究科)
 - 20. 1 台湾・国立台湾師範大学光電科学技術研究所との学術交流協定締結
 - 20. 4 台湾・国立台湾大学物理学科との研究交流に関する覚書締結

20. 6 米国・カリフォルニア大学ロサンゼルス校カリフォルニアナノシステム研究所を代表するカリフォルニア大学評議会との学術交流協定締結
20. 10 電子情報処理研究部門極限フォトンプロセス研究分野をスマート分子研究分野に名称変更
附属ナノテクノロジー研究センターナノ材料研究分野を極限フォトンプロセス研究分野に名称変更
附属ナノテクノロジー研究センターナノデバイス研究分野をバイオ分子ナノデバイス研究分野に名称変更
寄附研究部門「ニコンバイオイメーjingセンター研究部門」開設期間更新（更新期間3年）
22. 3 フランス・リヨン高等師範学校との学術交流協定締結
22. 4 電子材料物性研究部門ナノ光高機能材料研究分野をコヒーレントX線光学研究分野に名称変更
電子機能素子研究部門分子認識素子研究分野を光波制御材料研究分野に名称変更
電子計測制御研究部門量子計測研究分野を生体物理研究分野に名称変更
附属ナノテクノロジー研究センターナノ材料理論研究分野をナノ光高機能材料研究分野に名称変更
連携研究部門理研連携研究分野を新設
22. 9 ドイツ・オットー・フォン・ゲーリケ大学マクデブルク自然科学部との学術交流協定締結
23. 1 台湾・国立交通大学理学院との学術交流協定締結

[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	(故) 井上 久遠
	永井 信夫
平成18年4月	八木 駿郎
平成19年4月	狩野 猛
	下澤 楯夫
	下村 政嗣
	伊福部 達
平成21年4月	栗城 真也

IV-2. 建物

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

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

延面積欄の（ ）内の数字は増築分で内数

IV-3. 現員（平成22年度）

（7月1日現在）

職 名	人 数
教 授	17 (4)
准 教 授	12
講 師	1
助 教	20
特任准教授	2
特 任 助 教	2
教 員 小 計	54 (4)
技 術 部	9
合 計	63 (4)

（ ）内の数字は客員で外数

IV-4. 教員の異動状況（平成22年度）

○転入状況

所属部門	職 名	氏 名	採用年月日	前 職
電子材料物性研究部門	教 授	西 野 吉 則	22. 4. 1	(独)理化学研究所専任研究員
電子機能素子研究部門	准教授	西 山 宏 昭	22. 4. 1	大阪大学大学院工学研究科助教
電子計測制御研究部門	助 教	新 井 由 之	22. 4. 1	大阪大学大学院生命機能研究科特任助教
電子計測制御研究部門	助 教	川 上 良 介	22. 6. 16	自然科学研究機構生理学研究所専門研究員
電子材料物性研究部門	助 教	久 保 和 也	22. 11. 1	東北大学大学院理学研究科特任助教
電子計測制御研究部門	助 教	酒 井 恭 輔	22. 12. 1	京都大学次世代研究開拓ユニット特定助教
電子材料物性研究部門	助 教	NEWTON MARCUS CHRISTIAN	23. 1. 16	英国・サリー大学リサーチフェロー

○転出状況

所属部門	職 名	氏 名	退職年月日	転 出 先
寄附研究部門	特任准教授	堀 川 一 樹	22. 9. 30	国立遺伝学研究所准教授

○北海道大学内での異動

所属部門	職 名	氏 名	発令年月日	発令および前職
電子計測制御研究部門	助 教	日 比 輝 正	22. 4. 1	採用・電子科学研究所博士研究員
電子材料物性研究部門	准教授	野 呂 真一郎	22. 6. 1	昇任・電子科学研究所助教
寄附研究部門	特任准教授	齊 藤 健 太	23. 1. 1	配置換・電子科学研究所特任助教
寄附研究部門	特任助教	中 野 雅 裕	23. 1. 1	配置換・電子科学研究所博士研究員

○定年

所属部門	職 名	氏 名	定年年月日	定年後就職先
電子機能素子研究部門	教 授	上 田 哲 男	23. 3. 31	北海道大学電子科学研究所特任教授

(23. 4. 1)

IV-5. 構成員（平成22年度）

所 長 三 澤 弘 明

電子材料物性研究部門

光電子物性研究分野

教 授 太 田 信 廣
准教授 中 林 孝 和
助 教 飯 森 俊 文

量子情報フォトンクス研究分野

教 授 竹 内 繁 樹
准教授 辻 見 裕 史
助 教 岡 本 亮
助 教 藤 原 正 澄

有機電子材料研究分野

教 授 中 村 貴 義
准教授 野 呂 真一郎
助 教 久 保 和 也

コヒーレントX線光学研究分野

教 授 西 野 吉 則
助 教 NEWTON MARCUS CHRISTIAN

電子機能素子研究部門

量子機能素子研究分野

教 授 石 橋 晃
講 師 近 藤 憲 治
助 教 海 住 英 生

光波制御材料研究分野

教 授 西 井 準 治
准教授 西 山 宏 昭
助 教 眞 山 博 幸

細胞機能素子研究分野

教 授 上 田 哲 男
助 教 高 木 清 二

電子計測制御研究部門

光システム計測研究分野

教 授 笹 木 敬 司
准教授 藤 原 英 樹
助 教 酒 井 恭 輔

生体物理研究分野

教 授 根 本 知 己
助 教 日 比 輝 正
助 教 川 上 良 介

分子生命数値研究分野

教 授 小松崎 民 樹
准教授 李 振 風
助 教 西 村 吾 朗
助 教 寺 本 央

ナノシステム生理学研究分野

教 授 永 井 健 治
助 教 松 田 知 己
助 教 新 井 由 之

電子情報処理研究部門

情報数理研究分野

教 授 西 浦 廉 政
助 教 柳 田 達 雄
助 教 飯 間 信

神経情報研究分野

准教授 青 沼 仁 志
助 教 西 野 浩 史

スマート分子研究分野

教 授 玉 置 信 之
助 教 亀 井 敬 豪
助 教 深 港

計算論的生命科学研究分野

教 授 津 田 一 郎
准教授 佐 藤 讓
助 教 山 口 裕

並列分散処理研究分野（客員）

教 授 川 合 知 二
(大阪大学産業科学研究所)
教 授 木 村 良
(高知工科大学総合研究所)
教 授 矢 島 收
(株式会社北海道新聞社)

ナノテクノロジー研究センター

センター長（兼） 笹 木 敬 司

極限フォトンプロセス研究分野

教 授 三 澤 弘 明
准教授 上 野 貢 生
助 教 村 澤 尚 樹

バイオ分子ナノデバイス研究分野

教 授 居 城 邦 治
准教授 新 倉 謙 一

ナノ光高機能材料研究分野

教 授 末 宗 幾 夫
准教授 熊 野 英 和
助 教 笹 倉 弘 理

寄附研究部門（ニコンバイオイメージングセンター）

寄附研究部門教員（兼） 上 田 哲 男
" 永 井 健 治
特任准教授 齊 藤 健 太
特任助教 中 野 雅 裕

ナノテク支援室

准教授 松 尾 保 孝
特任助教 孫 凱

連携研究部門

理研連携研究分野

客員教授 田 中 拓 男

連携研究室

特任准教授 島 本 直 伸

技術部

技術部長（兼）	三 澤 弘 明	非常勤研究員	AWASTHI KAMLESH
技術長	大 沼 英 雄	研究支援推進員	高 橋 美 美
システム開発技術班		〃	杉 山 瑠 那
班長	大 沼 英 雄	〃	佐 藤 うらら
第一・第二技術主任	伊勢谷 陽 一	〃	辻 田 由 香
技術職員	今 村 逸 子	事務補佐員	山 田 美 和
〃	小 林 健太郎	〃	山 口 由美子
〃	遠 藤 礼 暁	技術補佐員	平 厚 子
嘱託職員	土 田 義 和	〃	奥 原 亜 季
装置開発技術班		〃	菅 原 侑 子
班長	太 田 隆 夫	〃	福 本 愛
第一技術主任	平 田 康 史	事務補助員	大 越 直 美
第二技術主任	女 池 竜 二	〃	笠 置 水 美
技術職員	武 井 将 志	〃	佐々木 喜 代
		〃	藤 田 朋 子
契約職員・短時間勤務職員		〃	高 藤 志 帆
特定専門職員	笠 晴 也	〃	村 本 麻衣子
博士研究員	趙 洪 泉	〃	高 木 由 紀
〃	岡 野 真 之	〃	三 浦 由 貴
〃	小 野 貴 史	〃	平 出 ありさ
〃	YE HENGYUN	〃	渡 邊 祐 希
〃	黒 田 茂	技術補助員	濱 田 辰 夫
〃	田 中 嘉 人	〃	秦 昊
〃	伊 藤 正 寛	〃	藤 田 昌 久
〃	渡 辺 毅	〃	岡 田 孟 矩
〃	矢 留 雅 亮	〃	伊 藤 僚 子
〃	THOMAS REJI	〃	菊 池 東
〃	GUTOV OLEKSII	〃	小 泉 絢 花
〃	三 友 秀 之	〃	阿 部 香 代
〃	GELDHAUSER TOBIAS RUPERT	〃	館 山 絵 美
〃	西 島 喜 明	〃	池 谷 伸太郎
〃	許 載 勳	〃	蝦 名 涉
学術研究員	SUBASHCHANDRAN SHANTHI	〃	青 陽 大 輔
〃	中 嶋 直 樹	〃	荒 木 剛
〃	高 島 秀 聡	〃	旭 秀 典
〃	渡 邊 崇 之	〃	武 藤 将 充
〃	田 所 智	〃	三 浦 亜希子
〃	大 西 広		
〃	星 山 満 雄		
〃	高 橋 平七郎		
〃	小 山 正 孝		
〃	笠 沼 由 香		
〃	和 島 順 也		

（平成23年3月末日現在）

