

研究活動
北海道大学電子科学研究所
平成二十三年度

研究活動

北海道大学電子科学研究所

平成23年度

— 点検評価報告書 —

Research Activities

Research Institute for Electronic Science
Hokkaido University

2011-2012

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24年6月発行

101

平成24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

昨年の福島第一原子力発電所における深刻な原子力事故により、30万を越える人々が現在も故郷を離れて避難生活を余儀なくされています。今回の重大事故から原子力発電が100%安全であるということの根拠は「科学」ではなく、「神話」であったことを多くの国民が痛いほど学びました。安全を表す確率を科学的に求めながらそれが意味することを十分理解し、これからも原子力エネルギーと付き合いしていくのか、それとも別なエネルギーを選択するのか、冷静な、そして科学的で深い議論を進め、判断する必要があるでしょう。



一方、我が国においては、コストの問題などから再生可能エネルギーへの依存度は高くありません。エネルギーはまさに国力であり、我が国が強い産業力を保ちながら経済的に安定した豊かな社会を維持するためには安定したエネルギー供給が不可欠であり、そのためには、様々なエネルギーの選択肢を持つこと、また他国へのエネルギー依存度を低減して自前のエネルギーを創出することが重要となります。これを実現するためにキーとなるのは、再生可能エネルギーを高効率に変換する革新的な科学技術の開発であり、このようなグリーンイノベーションに繋がる科学技術の発展に貢献することが強く求められております。

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。これにより生み出された「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同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。当研究所では、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げるべく、2012年度より附属ナノテクノロジー研究センターを「グリーンナノテクノロジー研究センター」に改組することにしております。また、すでにそこで推進される研究の一部は、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。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、宜しく願いいたします。

平成24年3月

北海道大学 電子科学研究所長
三 澤 弘 明

目次

組織図

I. 研究成果・活動

電子材料物性研究部門	
光電子物性研究分野	4
量子情報フォトンクス研究分野	10
有機電子材料研究分野	17
コヒーレントX線光学研究分野	24
電子機能素子研究部門	
量子機能素子研究分野	30
光波制御材料研究分野	36
細胞機能素子研究分野	41
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	63
電子情報処理研究部門	
情報数理研究分野	68
神経情報研究分野	72
スマート分子研究分野	77
計算論的生命科学研究分野	81
並列分散処理研究分野（客員研究分野）	86
連携研究部門	
理研連携研究分野	88
寄附研究部門	
ニコンバイオイメージングセンター	92
連携研究室	97
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	102
バイオ分子ナノデバイス研究分野	110
ナノ光高機能材料研究分野	117
ナノテク支援室	125
II. 予算	
II-1. 研究成果公表に関する各種の統計表	129
II-2. 予算	131
II-3. 外国人研究者の受入状況	132
II-4. 修士学位及び博士学位の取得状況	133

III. 研究支援体制

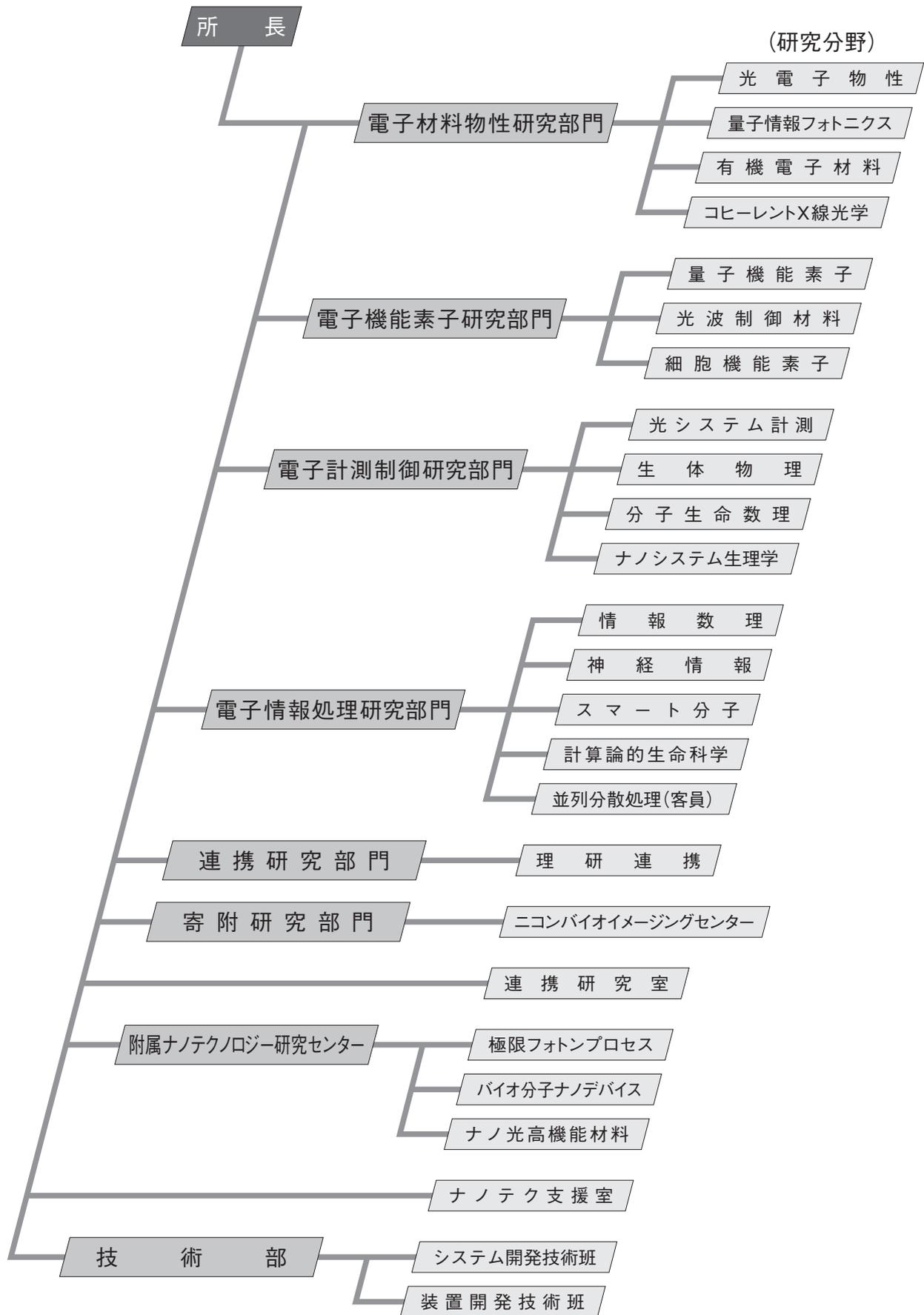
III-1. 技術部	137
III-2. 学術情報	138

IV. 資料

IV-1. 沿革	141
IV-2. 建物	144
IV-3. 現員	144
IV-4. 教員の異動状況	145
IV-5. 構成員	146

表紙の説明「結晶成長過程のシミュレーション」

組織図



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～）
博士研究員 Awasthi Kamlesh（2010.4～2012.3）、
孫凡（2011.11～）

院 生

博士課程

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

姜 鴻菊

修士課程

生沼 要、本間将人

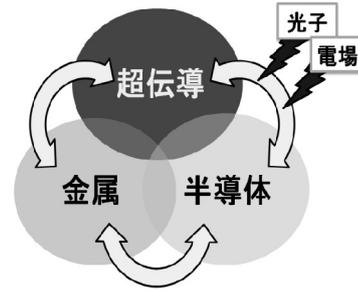


図1. 光と電場を用いる物性の変換と制御

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なっているか、等を調べる。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、「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) 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、有機導体を対象に研究をすすめている (図1)。有機導体は、超伝導相を含む多様な相状態が拮抗して出現し多彩な物理現象を提供する舞台であり、圧力や静磁場などの外部刺激に鋭敏に応答して相変化を示すことが知られている。

本年度は、有機超伝導体である β -(BEDT-TTF) $_2$ I $_3$ (β -I $_3$) の光応答について、時間分解電気伝導度測定を用いた研究を行った。 β -I $_3$ は、2つの超伝導相転移を示し、Low- T_c β 相 ($T_c = 1.5$ K) と High- T_c β 相 ($T_c = 8$ K) が1つの結晶に共存する。この物質に圧力を加えると、BEDT-TTF分子の構造変化が生じると共に、結晶中の High- T_c β 相の割合が増大することが知られている。一方、分子の光励起状態からの緩和によって、分子振動が励起されることがよく知られている。したがって β -I $_3$ を光励起すると分子振動が励起され、構造

変化が誘起されることで、超伝導転移温度の変化につながることを期待されることから、光を用いた超伝導相の制御を目的とした研究の対象物質として着目した。

実験には、本研究室において開発した電気伝導度の時間分解測定システムを用いた。ナノ秒パルスレーザー光 (532 nm) を試料に照射し、それと時間的に同期させたパルス電流を試料に加え、過渡的な電圧値の変化をオシロスコープを用いて測定し電気伝導度の時間分解測定を行った。

相転移温度の近傍において測定を行った結果、光照射によって抵抗値は過渡的に増大するが、時間が経過すると元の抵抗値へ戻り、その緩和時間は温度に依存することが明らかになった。各温度において電気伝導度の光応答の測定を行った結果を、図2に示す。縦軸は、光を照射する前の抵抗値からの変化量であり、横軸はレーザー光照射後の時間を表す。時間プロファイルは、温度に顕著な依存性を示した。緩和時間を温度に対してプロットすると、図3のよ

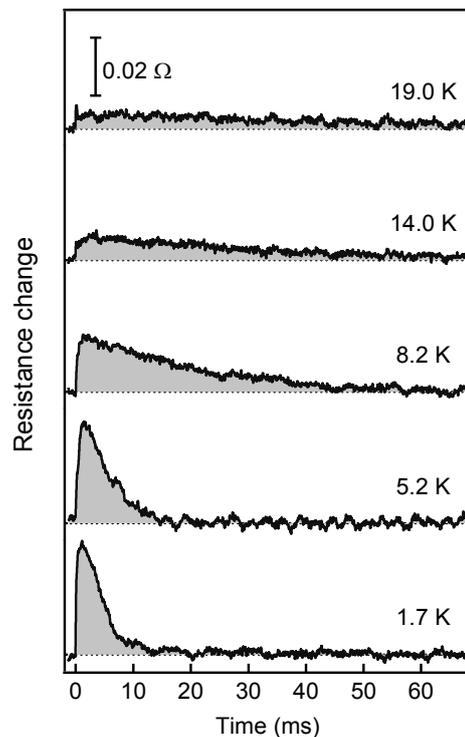


図2. レーザー光照射にともなう抵抗値変化の時間プロファイル。

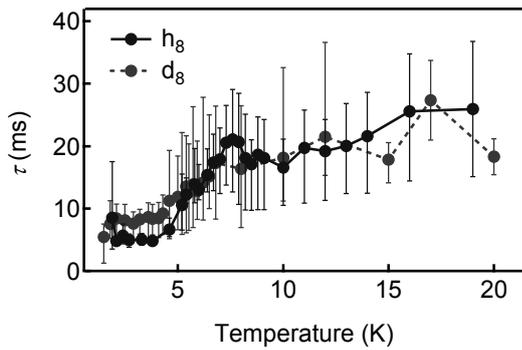


図3. 緩和時間の温度依存性。

うな結果が得られた。水素置換体 (h_8) に関して、 $High-T_c \beta$ 相転移温度よりも高温側の金属相、および5 K以下の温度において温度依存性は比較的小さい。しかし金属相から温度を低下させると、相転移温度の近傍で緩和時間が減少することが明らかになった。

銅酸化物高温超伝導体など、他の超伝導体についての研究から、光励起状態の緩和機構としていくつかのメカニズムが提唱されている。その一つとして、光励起電子が超伝導エネルギーギャップのエネルギー準位まで非常に速く緩和したのち、クーパー対を形成する際に低振動数フォノンと準平衡状態となり、緩和のボトルネックがみられることが知られている。別の機構として、光励起によって超伝導体に渦糸 (Vortex) が生成し、抵抗値の増大をもたらすとしたメカニズムが考えられている。前者のようにフォノンが関与する緩和機構においては、分子を同位体置換することによって分子振動の振動数が変化するため、緩和時間に同位体効果が現れることが期待される。そこで緩和時間における同位体効果を調べるために、重水素置換体 (d_8) を用いて同様の実験を行った。しかし図3に示されるように、 h_8 と d_8 は同様の温度依存性を示しており、フォノンが関与する過程は緩和メカニズムにおいて重要ではないことが示唆された。したがって、 $\beta-I_3$ の光応答においては、光励起により渦糸が生成するメカニズムが重要な役割を演じていることが考えられる。

(b) 自家蛍光寿命イメージング：細胞内 pH の無染色イメージング

生細胞の蛍光寿命イメージング法を用いることにより、蛍光物質によって試料を染色することなく、生体内に元から存在する蛍光物質の蛍光 (自家蛍光) を用いた無染色での細胞診断が可能となる。自家蛍光を用いることによって色素染色による試料の負荷がなくなり、また染色時間が必要ないために、迅速な判断が可能となる。本年度は代表的な自家蛍光成分であるニコチンアミドアデニンジヌクレオチド (NADH) の蛍光寿命を用いて、細胞内の pH を無染色でイメージングできることを示した。

培養細胞である HeLa 細胞内の NADH の蛍光強度画像と対応する蛍光寿命画像の細胞内 pH 依存性を図4に示す。イオノフォアを培養液に加えて細胞内外の pH を等しくしており、細胞外の pH を調製することによって、細胞内 pH を変化させている。蛍光強度画像では、NADH の蛍光強度に細胞内位置依存性があり、強く光っている領域がミトコンドリアに対応し、強度が弱い円形の領域が核になる。一方蛍光寿命画像では、細胞内 pH が小さくなるにつれて、蛍光寿命の値が長くなることがわかった。ミトコンドリアおよび核内、そして細胞全領域平均の蛍光寿命の細胞内 pH 依存性を図4cに示す。細胞内 pH の増加に対して NADH の蛍光寿命が単調に減少しており、図4cのような NADH の蛍光寿命と細胞内 pH との検量線を作成することによって、細胞内 pH を色素で染色することなく定量測定が行えることがわかる。我々の知る限りでは、細胞内イオン濃度を無染色でイメージングした初めての例となる。また NADH の蛍光寿命には細胞内位置依存性があり、核内の NADH の蛍光寿命が、他の領域よりも短いことがわかる。時間相関光子計数法を用いて NADH の蛍光減衰曲線の詳細な解析も行っており、細胞内での蛍光減衰曲線は3成分の指数関数にて再現され、すべての成分の蛍光寿命が細胞内 pH の増加に対して減少することがわかった。細胞内での NADH は、タンパク質と結合した状態と結合していない状態の2つの状態に分けることができる。観測された蛍光寿命の細胞内 pH 依存性は、NADH とタンパク質との分子間相互作用の pH 依存性を示していると考えている。

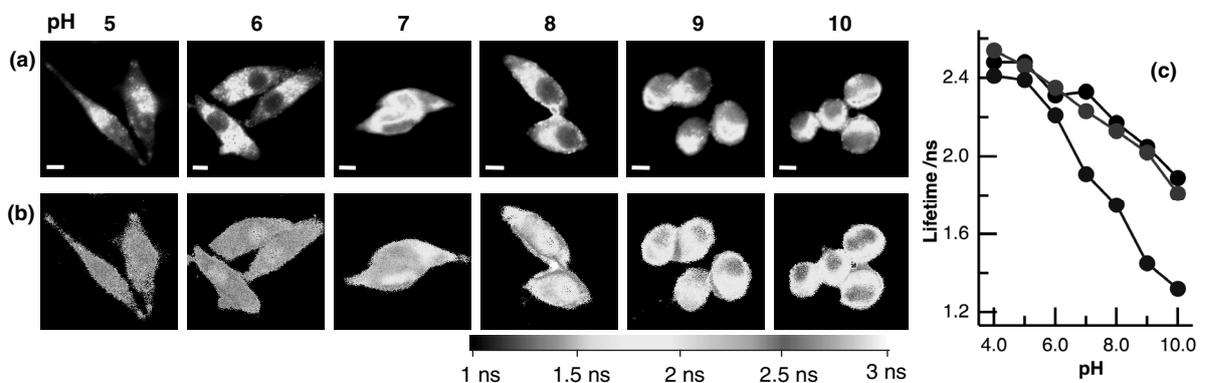


図4. HeLa 細胞内の NADH の蛍光強度画像(a)と対応する蛍光寿命画像(b)の細胞内 pH 依存性。pH は強度画像の上に表示してある。(c) ミトコンドリア(赤)、核(青)、細胞全領域平均(黒)の蛍光寿命の細胞内 pH 依存性。励起 370 nm; 蛍光 417-477 nm。

(c) 蛍光タンパク質の発色団の蛍光減衰曲線における外部電場誘起変化

吸収および蛍光波長が異なる様々な蛍光タンパク質が遺伝子工学によって作られ、細胞や生体組織の可視化に用いられている。光活性機能などを有する次世代蛍光タンパク質も開発されている。これら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およ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起因する。我々は、蛍光タンパク質の発色団のモデル化合物として *p*-HBDI (図5)を用い、静電場との相互作用による発色団の光学過程の変化を検討している。本年度は、*p*-HBDIの蛍光減衰曲線の外部電場効果を測定し、無輻射緩和速度の電場効果について検討した。

図5にPMMA高分子膜中にドーブされた *p*-HBDIの蛍光減衰曲線の外部電場効果を示す。*p*-HBDIの中性状態の蛍光が観測されている。溶液中の蛍光寿命はサブピコ秒であるのに対し、PMMA中においては蛍光寿命の増加が観測され、多成分解析による平均蛍光寿命は約80 psであった。電場がONとOFFのときの減衰曲線の強度差と強度比は、外部電場によって蛍光寿命が増加することによって再現し、1.1 MV cm⁻¹の印加に対して0.1-0.3%の蛍光寿命の増加を見積もることができた。電場との静電的な相互作用によって、*p*-HBDIの中性状態の無輻射緩和速度が減少することを示している。

蛍光タンパク質はポリペプチド鎖の円筒の内部に、発色団が存在する構造を持ち、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の大きさは、10 MV cm⁻¹のオーダーであることが示唆されている。外部電場による変化量は電場の大きさの2乗に比例することから、本結果は、アミノ酸残基との静電的な相互作用が、タンパク質内の発

色団の光学過程に大きな影響を与えていることを示している。また、*p*-HBDIは溶液中においては、*Z*体が安定であるが、PMMA中の蛍光励起スペクトルは、*E*体の吸収スペクトルに一致する成分も観測され、PMMA中では*E*体も存在することがわかった。

3. 今後の研究の展望

光化学反応への電場効果を種々の分子系および生体系を対象として固体膜中および溶液中で徹底して調べることで、自然界における光化学反応と外場との関係をより明らかにする。また、有機導電体の電気・磁氣的性質および光照射効果を調べることで、電気伝導機能への光照射効果および電場効果、さらには電子構造や励起ダイナミクスとの関係を明らかにする。特に、単なる光導電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。光によって誘起される超イオン伝導特性発現の可能性も探る。また、生体内の局所電場に着目しながら、蛍光寿命イメージング分光法を適用することにより生体系におけるダイナミクスや生体内環境への電場効果を明らかにする。さらには強く時間幅の小さなパルス電場を作用させた時に生体内のダイナミクスや機能がどのように変化するかを明らかにする。

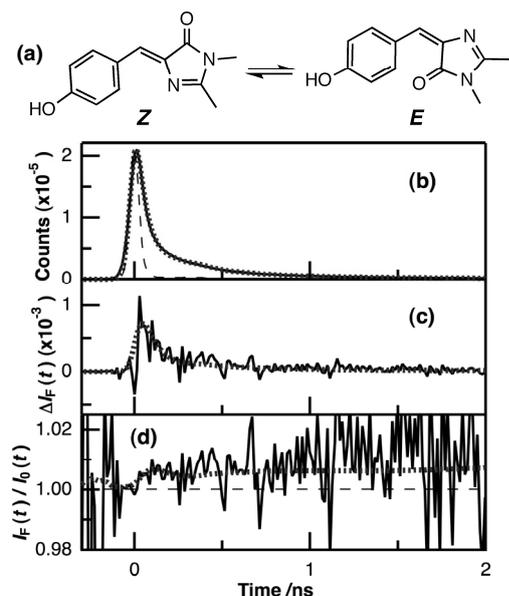


図5. (a) *p*-HBDIの分子構造。PMMA中における *p*-HBDIの蛍光減衰曲線(b)、電場がONとOFFにおける蛍光減衰曲線の強度差(ON-OFF、(c))と強度比(ON/OFF、(d))。実測値を黒、計算値を赤で示す。励起 379 nm; 蛍光 450 nm。印加電圧 1.1 MV cm⁻¹。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) K. Awasthi and N. Ohta: "Magnetic Field Effects on Electro-photoluminescence of Photoinduced Electron Transfer Systems in a Polymer Film", *J. Photochem. Photobiol. A*, 221: 1-12 (2011)
- 2) T. Iimori, F. Sabeth, T. Naito and N. Ohta: "Time-Resolved Photoresponse Measurements of the Electrical Conductivity of the Quasi-Two-Dimensional Organic Superconductor β -(BEDT-TTF)₂I₃ Using a Nanosecond Laser Pulse", *J. Phys. Chem. C*, 115(48): 23998-24003 (2011)
- 3) S. Sekiguchi, K. Niikura, N. Iyo, Y. Matsuo, A. Eguchi, T. Nakabayashi, N. Ohta and K. Ijro: "pH-Dependent Network Formation of Quantum Dots and Fluorescent Quenching by Au Nanoparticle Embedding", *ACS Applied Materials & Interfaces*, 3(11): 4169-4173 (2011)
- 4) S. Ogikubo, T. Nakabayashi, T. Adachi, M. S. Islam, T. Yoshizawa, M. Kinjo and N. Ohta: "Intracellular pH Sensing Using Autofluorescence Lifetime Microscopy", *J. Phys. Chem. B*, 115(34): 10385-10390 (2011)
- 5) M. Mehata, and N. Ohta: "Photo- and Field-induced Charge-separation and Phosphorescence Quenching in Organometallic Complex Ir(ppy)₃", *Appl. Phys. Lett.* 98: 181910-1~3(2011)
- 6) R. Ohshima, T. Nakabayashi, Y. Kobayashi, N. Tamai and N. Ohta: "External Electric Field Effects on State Energy and Photoexcitation Dynamics of Water Soluble CdTe Nanoparticles", *J. Phys. Chem. C*, 115(31): 15274-15281 (2011)
- 7) T. Nakabayashi, K. Hino, Y. Ohta, S. Ito, H. Nakano and N. Ohta: "Electric-Field-Induced Changes in Absorption and Fluorescence of the Green Fluorescent Protein Chromophore in a PMMA Film", *J. Phys. Chem. B*, 115(26): 8622-8626 (2011)
- 8) X. Liu, T. Iimori, R. Ohshima, T. Nakabayashi and N. Ohta: "Electroabsorption Spectra of PbSe Nanocrystal Quantum Dots", *Appl. Phys. Lett.*, 98(16): 161911-1-161911-3 (2011)

4.2 総説・解説・評論等

- 1) 中林孝和、太田信廣:「自家蛍光寿命イメージングの基礎と展開」、光化学、42(2):52-59 (2011)
- 2) 太田信廣、飯森俊文:「超伝導状態を光で誘起できるか?」、現代化学、483:38-44 (2011)

4.3 講演

a. 招請講演

i) 学会

- 1) N. Ohta*: "Electroabsorption and Electrophotoluminescence Measurements in Solution and Solid Films", The Third Asian Spectroscopy Conference, Xiamen, China, 中国 (2011-11 ~ 2011-12)
- 2) N. Ohta*: "Unprecedented Optoelectronic Function in Organic Conductors and in Ionic Solids", 2011 RIES-CIS Symposium, 国立交通大学, 新竹、台湾 (2011-10)
- 3) N. Ohta* and T. Iimori: "Unprecedented Optoelectronic Function in Organic Conductor", 7th IUPAC International Conference on Novel Materials and their Synthesis 21st International Symposium on Fine Chemistry and Functional Polymers, 上海, 中国 (2011-10)
- 4) N. Ohta*: "Intracellular Environmental Assessment Based on Fluorescence Lifetime Microscopy", The 5th Asia and Oceania Conference on Photobiology, 奈良 (2011-07 ~ 2011-08)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) N. Ohta*, T. Nakabayashi and M. Kinjo: "Fluorescence Lifetime Microscopy (FLIM) for the Assessment of the Intracellular Conditions", The 12th RIES-Hokudai International Symposium "KAN", Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo, November 21 - 22, 2011, Sapporo
- 2) 中林孝和*:「蛍光寿命を用いた細胞のその場観察」、分子研シンポジウム2011、岡崎 (2011-05)

iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 中林孝和*:「蛍光寿命の基礎と細胞観察への応用」、第18回細胞生物学ワークショップ、札幌 (2011-11)

b. 一般講演

i) 学会

- 1) 飯森俊文*:「ヨウ化銀におけるイオン伝導度の巨大な光誘起変化」、日本化学会第92春季年会、横浜 (2012-03)
- 2) 飯森俊文*:「有機超伝導体 β -(BEDT-TTF)₂I₃の光励起ダイナミクスとその同位体効果」、日本化学会第92春季年会、横浜 (2012-03)
- 3) 飯森俊文*、サベト フェルザナ、内藤 俊雄、太田信廣:「有機超伝導体における電気伝導度の光応答の時間分解測定」、第59回応用物理学関係連合講演会、東京 (2012-03)
- 4) 太田信廣*、飯森俊文、サベト フェルザナ、カトン ラヒマ:「ヨウ化銀多結晶のイオン伝導度への光照射効果」、第59回応用物理学関係連合講演会、東京 (2012-03)
- 5) 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:「ポリマー中に分散された GFP 発色団のモデル化合物の構造と光学過程の外部電場効果」、第5回分子科学討論会、札幌 (2011-09)

- 6) 大島瑠利子*, 中林孝和、太田信廣:「CdSeナノ粒子の光励起ダイナミクスへの外部電場効果」、第5回分子科学討論会、札幌 (2011-09)
- 7) 清田一穂*, 日野和之、中野博文、中島清彦、中林孝和、太田信廣、関谷博:「4'-N,N-dimethylamino-3-hydroxyflavoneの電荷移動と分子内プロトン移動の環境依存性と電場効果」、第5回分子科学討論会、札幌 (2011-09)
- 8) Islam Serajul Md.*、中林孝和、松本仁、保田昌秀、太田信廣:「Sensing Cellular Metabolic States by Time Resolved Fluorescence of NADH」、第5回分子科学討論会、札幌 (2011-09)
- 9) 飯森俊文*、サベト ファルザナ、内藤俊雄、藤原基靖、太田信廣:「 κ -(BEDT-TTF)₂Cu[N(CN)₂]Br および β -(BEDT-TTF)₂I₃の電気伝導と磁化の照射効果」、分子科学討論会2011、札幌 (2011-09)
- 10) H. Chiang*, T. Iimori, T. Onodera, H. Oikawa and N. Ohta: “Electroabsorption Spectroscopy of DAST Microcrystals in Solution”, 分子科学討論会2011, 札幌 (2011-09)
- 11) F. Sabeth*, T. Iimori and N. Ohta: “Photoirradiation Effect on the Ionic Conductivity of β -AgI”, 分子科学討論会2011, 札幌 (2011-09)
- 12) G. Nishimura* and K. Awasthi: “Complex Formation of Some Near-infrared Cyanine Dyes in Serum Albumin - Serum Albumin Induces a New Reaction”, 第49回日本生物物理学会年会, 兵庫県立大学書写キャンパス、姫路市 (2011-09)
- 13) S. M. Islam*, T. Nakabayashi, J. Matsumoto, M. Yasuda and N. Ohta: “Monitoring Changes in Cellular Environment of Yeast Cells Based on the Time-Resolved Fluorescence Spectra of NADH”, 2011年光化学討論会, 宮崎 (2011-09)
- 14) T. Nakabayashi*, R. Sumikawa, F. Sun, M. Kinjo and N. Ohta: “Copper Ion Sensing Based on the Fluorescence Lifetime of Enhanced Yellow Fluorescent Protein”, 2011年光化学討論会, 宮崎 (2011-09)
- 15) 飯森俊文*、サベト ファルザナ、内藤俊雄、太田信廣:「2次元有機超伝導体 β -(BEDT-TTF)₂I₃の光応答」、2011年光化学討論会、宮崎 (2011-09)
- 16) F. Sabeth*, T. Iimori and N. Ohta: “Time-resolved Measurements of the Photoinduced Changes in the Conductivity of Deuterated β -(BEDT-TTF)₂I₃”, 2011年光化学討論会, 宮崎 (2011-09)
- 17) N. Ohta*, T. Nakabayashi and T. Iimori: “Time-Resolved Electrophotoluminescence Measurements: Electric Field Effects on Photoexcitation Dynamics”, ATTO3 The 3rd International Conference on Attosecond Physics, 北海道大学 (2011-07)

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:「光および電場による反応、機能、物性の制御」、附置研究所間アライアンス「次世代エレクトロニクス」グループ(G1)分科会 琉球大学ジョイントシンポジウム、沖縄 (2011-05)
- 2) 飯森俊文*、太田信廣:「レーザー光を用いた有機超伝導体の電気伝導性の制御」、附置研究所間アライアンス「次世代エレクトロニクス」グループ(G1)分科会 琉球大学ジョイントシンポジウム、沖縄 (2011-05)

4.4 予算獲得状況

a. 科学研究費補助金 (研究代表者、分類名、研究課題、期間)

- 1) 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) 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)

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~

4.5 社会教育活動

a. 公的機関の委員

- 1) 太田信廣: 特別研究等審査会審査委員及び国際事業委員会書面審査委員 (2011年8月1日~2012年7月31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
- 4) 太田信廣: 関西学院大学非常勤講師 (2011年4月1日~2011年9月19日)

b. 国内外の学会の役職

- 1) 太田信廣: 分子科学討論会実行委員長 (2011年度)
- 2) 太田信廣: 光化学討論会実行委員長 (2011年度)
- 3) 太田信廣: 光化学協会常任理事 (2010年1月1日~2011年12月31日)
- 4) 太田信廣: 日本分光学会生細胞分光部会幹事
- 5) 太田信廣: 日本分光学会代議員
- 6) 太田信廣: Local Organizing Committee Member (Third International Conference on Attosecond Physics)
- 7) 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)
- 8) 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)

9) 中林孝和:レーザー学会学術講演会第32回年次大会プログラム委員 (2011年7月6日～2012年3月31日)

c. 新聞・テレビ等の報道

1) 太田信廣、中林孝和、富士フィルム:科学新聞 2011年9月2日「細胞内の水素イオン濃度、無染色で可視化成功」

2) 太田信廣、富士フィルム:日刊工業新聞 2011年9月7日「細胞内のpH分布:染色せず可視化」

d. 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、太田信廣

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

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

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~)

客員教授 Aephraim M. Steinberg (U.C. Berkeley, USA,
Ph.D., 2011.4.1 - 2011.5.30)

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~)

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~)

外国人研究員 Tim Schröder (2011.4.18 - 2011.6.30)

院 生

博士課程

谷田真人、田中 陽、柳澤朋李

修士課程

桃原清太、家藤美奈子、野田哲矢、

横井宇慧、楠木一平

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」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) 非常に低い暗計数を有する、超伝導単一光子検出システムの実現

高い検出効率を維持しながら、低い暗計数を持つ単一光子検出器は非常に重要である。ここで、暗計数とは、光子が入射しない状態でも発生してしまうノイズの事である。我々は、南京大学との共同研究により、今回、可視域において、高い量子効率(30%)を維持したまま、非常に低い

(0.01 Hz以下)暗計数をもつ、超伝導ナノワイヤ単一光子検出器(SNSPD)を用いた光子検出システムの実現に成功した。

南京大学で作成したナノワイヤの幅50nmのSNSPD素子を、我々の開発した冷却システムを用いて、4K程度まで冷却し測定した検出効率を図1に示す。光源としては、白色光源からの光を、可変バンドパスフィルタで特定の波長のみを切り出したものを用いた。その結果、最も検出効率が、高かったのは波長500nmにおける32%だった。そして、600nm、800nm、1000nm、1550nmと波長が長くなるにつれ、それぞれ検出効率が30%、16%、10%、1%と減少していくことを確認した。波長500nmから600nmの領域では、バイアス電流値が0.8程度でも検出効率が劣化せず、0.0015Hzという非常に低い暗計数を実現できた。

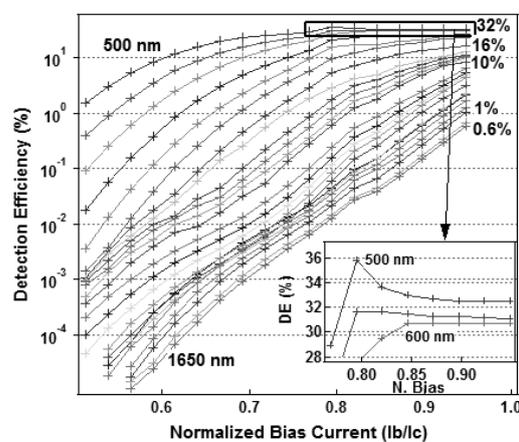


図1. 検出効率の波長依存性

(b) 量子もつれ光子対による高分解能量子光断層撮影に向けた、群速度分散に対する耐性実証実験

光断層撮影(OCT)は低コヒーレンス光干渉を基礎とした、非侵襲な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り、サンプル媒質中の群速度分散効果による分解能の低下が問題となっている。一方、量子力学的なもつれ合いを持つ光子対による二光子量子干渉を基礎とする量子光断層撮影(QOCT)では、群速度分散効果の補償による分解能の向上が可能となる。

我々は名古屋大学との共同研究により、今回、広帯域光源を用いてQOCTの群速度分散への耐性を実証した。量子もつれ合い光子対として広帯域パラメトリック蛍光対(帯域約80nm)を用いたQOCTと、同程度の帯域を持つ光源によるOCTとの比較実証を行なった。群速度分散の影響を調べるためにサンプル経路中に高分散媒質基板を挿入した場合、OCTでは分解能の指標となる干渉信号幅が10倍以上広がった(図2(a)、基板なしでは約4μm)のに対し、QOCTでは広がりを2倍程度に抑制することに成功した(図2(b)、基板なしでは約2μm)。今後は更なる広帯域光源の使用により群速度分散耐性を有するサブミクロン分解能QOCTの

実現が期待される。

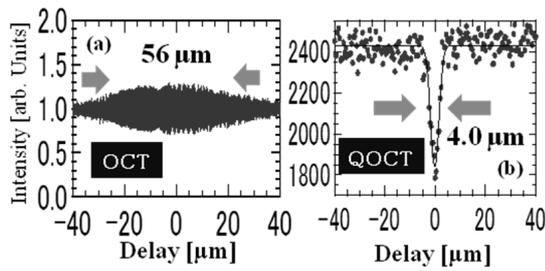


図2. 高分散媒質をサンプル経路に挿入した場合の OCT 信号(a) および量子 OCT 信号(b)

(c) ナノ光ファイバと量子ドットの結合による単一光子デバイスの実現

半導体量子ドットなどの固体単一発光体からの発光は量子情報処理における単一光子源として利用可能な事が知られている。単一発光体からの発光を集める方法として最もよく利用されるのが顕微鏡対物レンズを用いた手法であるが、単一発光体からの発光パターンが光ファイバへの結合には最適ではない事から、開口数(NA)1.4の高倍率対物レンズを使用しても総発光量の1%程度しか光ファイバ内に結合する事ができず、応用上の大きな課題となってきた。この問題を解決するために、我々は、直径が光の波長以下になるまでテーパ状に引き伸ばした光ファイバ(ナノ光ファイバ)を利用する事を検討してきた。ナノ光ファイバは気体原子集団からの発光を効率よく集めることができると実験的に示されており、量子ドットなどの固体単一発光体と結合させる事で、高効率かつ簡便な単一光子源デバイスの実現が期待される。

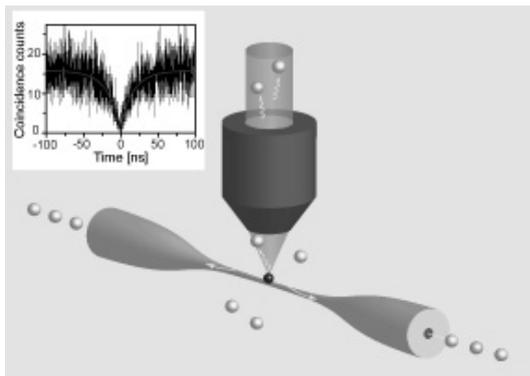


図3. ナノ光ファイバと量子ドットの結合による単一光子デバイス。挿入はファイバ端から射出される発光の単一光子性を証明する二次光子相関ヒストグラム。

今回、我々は、単一の量子ドットから発せられる発光を直接光ファイバに結合する手法を、このナノ光ファイバを用いて開発する事に成功した。直径 300nm・光損失 10%以下という極めて良好な光学特性を有するナノ光ファイバ野作製に成功し、さらにその上に単一の量子ドットを配置する事で、量子ドットの全発光量の 7.4%もの発光がナノ光ファイバを経由して直接シングルモード光ファイバに結合

する事を明らかにした。単一光子源は光を用いた量子通信の光源に相当するもので、光干渉性の確保・既存の光通信インフラの活用などの実用上、「シングルモード光ファイバ」と結合させる事が極めて重要であり、本研究成果は非常に意義のあるものである。

(d) Bi層状構造強誘電体 $\text{Bi}_{4-x}\text{Sm}_x\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ の相転移機構

Bi層状構造強誘電体 $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ (BiT) は、大きい自発分極を持ち、鉛イオンを含まないため強誘電体メモリーへの応用が期待されている物質である。このBiTの Bi^{3+} を Sm^{3+} に置換した $\text{Bi}_{4-x}\text{Sm}_x\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ (BSmT-x) という物質がある。BSmT-x ($x \neq 0$) は逐次相転移を行い、高い方の相転移(正方晶から斜方晶)温度は x にほぼ依存せず $T_H = 670^\circ\text{C}$ 程度であるが、低い方の相転移(斜方晶から単斜晶)温度 T_L は x の増大とともに低下する^[1]。実験目的は T_L で起こる相転移の動的機構を解明することである。図4には、ソフトモード周波数の自乗 ω^2 の換算温度 $T - T_L$ 依存性を示してある。すべての置換率において、1つの直線に乗っていること、つまり換算温度により ω^2 がスケールされていることが分る。直線の式は $\omega^2 = -\alpha(T - T_L) + \beta$ と書け、ここで $\alpha = 0.65 \pm 0.01 \text{ cm}^{-2}/^\circ\text{C}$ 、 $\beta = 320 \pm 10 \text{ cm}^{-2}$ である。ところで、観測したモードは強誘電性相ソフト(FE)モードであると考えられてきたが、我々はこのモードに反電場が伴わないことから、FEモードで無いと結論し、Perez-Mato等の第一原理計算^[2]により示された antiferrodistortive X^{2+} モードであることを明らかにした。

^[1] M. Iwata et al., Jpn. J. Appl. Phys., **47** (2008) 7749.

^[2] J. M. Perez-Mto et al., Phys. Rev. B **77**, (2008) 184104.

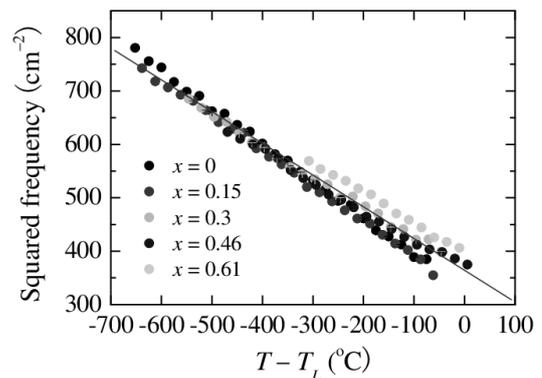


図4. ソフトモード周波数の自乗の換算温度 $T - T_L$ 依存性

3. 今後の研究の展望

本研究分野では現在、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」、科学研究費課題として、「ダイヤモンド結晶欠陥を λ 型原子として利用した、単一光子の

高効率量子メモリの実現」、「非蛍光分子のための輻射場制御型光吸収単一分子分光法の開拓」、「一軸性圧力誘起量子常誘電相における時空間スケールリング」を実施している。これらのプロジェクトの展開として、(a) テーパーファイバ結合微小球を用いた単一光子制御研究、(b) 光量子回路の高度化と応用、(c) パラメトリック蛍光対を用いた新光子源の開発 (d) 単一発光体の精密分光計測、(e) あらたな光子検出器の開発と応用 (f) もつれ合い光子の極限計測への応用などの研究テーマを遂行する予定である。また、量子相転移に関連して、量子常誘電体が示す特異な異常現象と、それをモディファイした物質で発現する超伝導状態とを、時空間スケールリングの観点から統一的に解釈して行く。さらに、磁性体で見られる量子臨界現象との関わりを追求する。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) R. Okamoto, J.L. O'Brien, H.F. Hofmann and S. Takeuchi: "Realization of a Knill-Laflamme-Milburn controlled-NOT photonic quantum circuit combining effective optical nonlinearities", Proc. Natl. Acad. Sci, 108 (25): 10067-10071(2011).
- 2) M. Fujiwara, K. Toubaru, T. Noda, H.Q. Zhao and S. Takeuchi: "Highly Efficient Coupling of Photons from Nanoemitters into Single-Mode Optical Fibers", Nano Lett., 11 (10):4362-4365 (2011).
- 3) M. Fujiwara, K. Toubaru and S. Takeuchi: "Optical transmittance degradation in tapered fibers", Opt. Exp., 19(9): 8596-8601(2011).
- 4) Y. Miyamoto, D. Kawase, M. Takeda, K. Sasaki and S. Takeuchi: "Detection of superposition in the orbital angular momentum of photons without excess components and its application in the verification of non-classical correlation", J. Opt., 13(6): 064027 (2011).
- 5) M. Furuhashi, M. Fujiwara, T. Ohshiro, M. Tsutsui, K. Matsubara, M. Taniguchi, S. Takeuchi and T. Kawai: "Development of microfabricated TiO₂ channel waveguides", AIP Advances, 1 (3): 032102 (2011).
- 6) K. Satoh and Y. Tsujimi: "Anisotropic Nature of the Broad Doublet Spectra in SrTiO₃", J. Korean Phys. Soc. 59 2492-2496 (2011).

4.2 総説・解説・評論等

- 1) 竹内繁樹: 「光子を用いた量子情報科学と表面科学」、表面科学、32(12): 773-778(2011).

4.3 国際会議議事録等に掲載された論文

- 1) S. Subashchandran, R. Okamoto, A. Tanaka, M. Okano, L. Zhang, L. Kang, J. Chen, P. Wu and S. Takeuchi:

"Spectral dependence of ultra-low dark count Superconducting single photon detector for the evaluation of broadband parametric fluorescence", LASE SPIE Photonics west, 8268-66: 237 (2012).

- 2) H.Q. Zhao, M. Fujiwara and S. Takeuchi: "Suppression of photon sidebands in the spectrum of nitrogen vacancy centers in diamond nano-crystals", LASE SPIE Photonics west, 872-31: 249 (2012).

4.7 講演

a. 招待講演

i) 学会

- 1) M. Fujiwara*, H.Q. Zhao, A. Tanaka, H. Takashima, K. Toubaru, T. Noda and S. Takeuchi: "Solid-state photonic quantum phase gates by using fiber-microsphere cavity and diamond NV centers", 20th International Laser Physics Workshop, Bosnia and Herzegovina (2011-07).
- 2) S. Takeuchi*, R. Okamoto, M. Fujiwara, H.Q. Zhao, H.F. Hofmann and J.L. O'Brien: "Photonic quantum circuits and their application", Conference on Quantum Information & Quantum Control, Toronto, Canada (2011-08).
- 3) S. Takeuchi*, R. Okamoto, M. Fujiwara, H. Takashima, M. Okano, S. Subashchandran, A. Tanaka and K. Toubaru: "Toward single photon optical nonlinearities for quantum information and quantum metrology", SPIE Optics + photonics 2011, San Diego, USA (2011-08).
- 4) S. Takeuchi*: "Photonic quantum circuits and their application", 11th Asian Quantum Information Science Conference(AQIS'11), Busan, Korea (2011-08).
- 5) 竹内繁樹*: 「光子を用いた量子回路の実現と展望」、日本物理学会2011年秋季大会、富山大学 (2011-09).
- 6) S. Takeuchi*, R. Okamoto, M. Okano, A. Tanaka, S. Subashchandran, S. Kurimura and N. Nishizawa: "Realization of ultra-broadband entangled photons and application to quantum sensing", LASE SPIE Photonics west, California, USA (2012-01).
- 7) S. Subashchandran*, R. Okamoto, A. Tanaka, M. Okano, L. Zhang, L. Kang, J. Chen, P. Wu and S. Takeuchi: "Spectral dependence of ultra-low dark count Superconducting single photon detector for the evaluation of broadband parametric fluorescence", LASE SPIE Photonics west, California, USA (2012-01).
- 8) 竹内繁樹*: 「分極反転光デバイスで拓く、新しい光量子科学」、2012年春季第59回応用物理学関係連合講演会、早稲田大学 (2012-03).
- 9) S. Takeuchi*: "Nano Optical Fibers for Photonic Quantum Information", Quantum Information and Measurement (QIM), Berlin, Germany (2012-03).
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
 - 1) S. Takeuchi*: "Photonic quantum circuits and their ap-

- plication”, 第11回田村記念シンポジウム、大阪府立大学 (2011-12).
- b. 一般講演**
- i) 学会**
- 1) S. Takeuchi*, R. Okamoto, M. Fujiwara, H.Q. Zhao, H.F. Hofmann and J.L. O'Brien: “Optical Quantum Circuit Combining Tailored Optical Nonlinearities”, CLEO Europe-EQEC2011, Munich, Germany (2011-05).
 - 2) A. Tanaka*, R. Okamoto, H.H. Lim, S. Subashchandran, M. Okano, S. Kurimura and S. Takeuchi: “Collinear Ultra-broadband Parametric Fluorescence Generated from 10%-chirped Quasi Phase Matched Device”, CLEO Europe-EQEC2011, Munich, Germany (2011-05).
 - 3) M. Okano*, R. Okamoto, A. Tanaka, S. Subashchandran, S. Ishida, N. Nishizawa and S. Takeuchi: “Broadband spontaneous parametric fluorescence toward high-resolution quantum optical coherence tomography”, International Conference on Quantum Information (ICQI), Ottawa, Canada (2011-06).
 - 4) M. Okano*, R. Okamoto, A. Tanaka, S. Subashchandran, S. Ishida, N. Nishizawa and S. Takeuchi: “Generation of broadband spontaneous parametric fluorescence and its application to quantum optical coherence tomography”, SPIE Optics + photonics 2011, San Diego, USA (2011-08).
 - 5) R. Okamoto*, J.L.O' Brien, H.F. Hofmann and S. Takeuchi: “Realization of a photonic quantum circuit combining effective optical nonlinearities”, Quantum Information Processing and Communication (QIPC)2011, Swiss (2011-09).
 - 6) 岡野真之*, 岡本亮, 田中陽, S. Subashchandran, 石田周太郎, 西澤典彦, 竹内繁樹: 「量子光断層撮影に向けた広帯域パラメトリック蛍光対による二光子量子干渉実験」、日本物理学会2011年秋季大会、富山大学 (2011-09).
 - 7) 小野貴史*, 岡本亮, 竹内繁樹: 「標準量子限界を超える光位相測定感度実現方法の比較」、日本物理学会2011年秋季大会、富山大学 (2011-09).
 - 8) S. Subashchandran*, R. Okamoto, A. Tanaka, M. Okano, L. Zhang, L. Kang, J. Chen, P. Wu and S. Takeuchi: “Development of superconducting nanowire single photon detection system for evaluation of ultra broadband parametric fluorescence”, 日本物理学会2011年秋季大会、富山大学 (2011-09).
 - 9) 岡本亮*, J.O' Brien, H.F. Hofmann, 竹内繁樹: 「Knill-Laflamme-Milburn制御ノットゲートの実現」、日本物理学会2011年秋季大会、富山大学 (2011-09).
 - 10) 藤原正澄*, 須貝祐子, 藤井律子, 野田哲矢, 桃原清太, 趙洪泉, 橋本秀樹, 竹内繁樹: 「ナノ光ファイバーによる単一分子分光とその光合成色素蛋白複合体への応用」、日本物理学会2011年秋季大会、富山大学 (2011-09).
 - 11) 藤原正澄*, 野田哲矢, 桃原清太, 趙洪泉, 竹内繁樹: 「ナノテーバ光ファイバによる単一発光体の蛍光検出定量評価」、日本物理学会2011年秋季大会、富山大学 (2011-09).
 - 12) 谷田真人*, 岡本亮, 竹内繁樹: 「光量子回路を用いた量子制御スワップ操作の実現」、日本物理学会2011年秋季大会、富山大学 (2011-09).
 - 13) 家藤美奈子*, 岡本亮, 山形浩一, 今井寛, 藤原彰夫, 竹内繁樹: 「光子の位相パラメータのAdaptiveな量子推定実験」、日本物理学会2011年秋季大会、富山大学 (2011-09).
 - 14) 田中陽*, 岡本亮, Hwan Hong Lim, 岡野真之, Shanthi Subashchandran, 栗村直, Labao Zhang, Lin Kang, Jian Chen, Peiheng Wu, 廣畑徹, 竹内繁樹, 「チャーブ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II」、日本物理学会2011年秋季大会、富山大学 (2011-09).
 - 15) 野田哲矢*, 藤原正澄, 趙洪泉, 高島秀聡, 竹内繁樹: 「ファイバ結合微小球共振器の光量子デバイスへの応用—極低温での共鳴周波数制御—」、日本物理学会2011年秋季大会、富山大学 (2011-09).
 - 16) H.Q. Zhao*, M. Fujiwara, T. Noda and S. Takeuchi: “Phonon side band suppression in NV-fluorescence spectrum by use of substrate effect”, 日本物理学会2011年秋季大会、富山大学 (2011-09).
 - 17) 千葉孝志*, 藤原英樹, 堀田純一, 竹内繁樹, 笹木敬司: 「高分子薄膜中単一分子の三重項状態寿命解析による局所領域酸素濃度測定法の開発」、第47回応用物理学会北海道支部/第8回日本光学会北海道地区合同学術講演会、北海道大学 (2012-01).
 - 18) H.Q. Zhao*, M. Fujiwara and S. Takeuchi: “Suppression of photon sidebands in the spectrum of nitrogen vacancy centers in diamond nano-crystals”, LASE SPIE Photonics west, California, USA (2012-01).
 - 19) T. Schröder*, M. Fujiwara, T. Noda, H.Q. Zhao, O. Benson and S. Takeuchi: “Near-field coupling of a single NV center to a tapered fiber”, LASE SPIE Photonics west, California, USA (2012-01).
 - 20) 藤原正澄*, 野田哲矢, 桃原清太, 趙洪泉, 竹内繁樹: 「7k極低温下における極細テーバ光ファイバと微小球共振器の結合と距離制御」、日本物理学会第67回年次大会、関西学院大学 (2012-03).
 - 21) T. Yanagisawa*, Y. Tsujimi, and M. Iwata: “Photo-Induced Phenomena in $\text{Bi}_{4-x}\text{La}_x\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ ”, 12th European Meeting on Ferroelectricity, Bordeaux (2011-06).
 - 22) Y. Tsujimi*, H. Minami and H. Uwe: “Light Scattering Study in SrTiO_3 under Uniaxial Pressure”, 12th European Meeting on Ferroelectricity, Bordeaux (2011-06).
 - 23) 辻見裕史*, 南英俊, 植寛素: 「一軸性圧力下における

- SrTiO₃の光散乱III」、日本物理学会2011年秋季大会、富山大学 (2011-09).
- 24) 楠一平*, 辻見裕史, 岩田真: 「Bi層状構造強誘電体の構造相転移と光散乱」、日本物理学会2011年秋季大会、富山大学 (2011-09).
 - 25) 辻見裕史*: 「一軸性圧力下における SrTiO₃の光散乱スペクトル」、日本物理学会第67回年次大会、関西学院大学 (2012-03)
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) 岡野真之*, 岡本亮, 竹内繁樹: 「広帯域な周波数相関を持つ量子もつれ光子対の量子光断層撮影への応用」、附置研究所間アライアンス「次世代エレクトロニクス」グループ(G1)分科会、沖縄コンベンションセンター (2011-05).
 - 2) 岡野真之*, 竹内繁樹: 「光子を用いた量子情報技術に関する研究」、附置研究所間アライアンス「次世代エレクトロニクス」グループ(G1)分科会、沖縄コンベンションセンター (2011-05).
 - 3) 岡野真之*, 岡本亮, 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」、第24回量子情報技術研究会 (QIT24)、東京工業大学 (2011-05).
 - 4) 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」、第24回量子情報技術研究会 (QIT24)、東京工業大学 (2011-05).
 - 5) 小野貴史*, 岡本亮, 竹内繁樹: 「もつれ合い光子の微分干渉顕微鏡への応用」、第24回量子情報技術研究会 (QIT24)、東京工業大学 (2011-05).
 - 6) 家藤美奈子*, 岡本亮, 山形浩一, 今井寛, 藤原彰夫, 竹内繁樹: 「光子の位相パラメータのAdaptiveな量子推定実験」、第24回量子情報技術研究会 (QIT24)、東京工業大学 (2011-05).
 - 7) 田中陽*, 岡本亮, Hwan Hong Lim, 岡野真之, Shanthi Subashchandran, 栗村直, 竹内繁樹, 「チャープ疑似位相整合素子による広帯域パラメトリック蛍光対のスペクトル特性」、第24回量子情報技術研究会 (QIT24)、東京工業大学 (2011-05).
 - 8) 野田哲矢*, 藤原正澄, 趙洪泉, 高島秀聡, 竹内繁樹: 「微小球の共鳴周波数温度特性の材質依存性」、第24回量子情報技術研究会 (QIT24)、東京工業大学 (2011-05).
 - 9) 谷田真人*, 岡本亮, 竹内繁樹: 「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」、第24回量子情報技術研究会 (QIT24)、東京工業大学 (2011-05).
 - 10) 岡本亮*: 「光子レベルの非線形素子を組み合わせた光量子回路の実現」、第二回先端フォトンクスシンポジウム、東京都港区 (2011-10).
 - 11) M. Fujiwara*, T. Noda, K. Tobaru, A. Tanaka, H.Q. Zhao and S. Takeuchi: “Solid-state photonic quantum phase gates by using fiber-microsphere cavity and diamond NV centers”, 電子研国際シンポジウム、札幌市 (2011-11).
 - 12) 小野貴史*, 岡本亮, 竹内繁樹: 「標準量子限界を超える光位相測定感度実現方法の比較」、第25回量子情報技術研究会 (QIT25)、大阪大学 (2011-11).
 - 13) S. Subashchandran*, R. Okamoto, A. Tanaka, M. Okano, L. Zhang, L. Kang, J. Chen, P. Wu and S. Takeuchi: “Ultra-low dark count Superconducting single photon detectors: Spectral dependence of detection efficiency”, 第25回量子情報技術研究会 (QIT25)、大阪大学 (2011-11).
 - 14) 岡野真之*: 「広帯域量子もつれ光子対光源による量子光断層撮影」、大阪大学産業科学研究所第67回産研学術講演会、大阪大学 (2011-11).
 - 15) A. Tanaka*, R. Okamoto, H.H. Lim, S. Subashchandran, M. Okano, S. Kurimura, L. Zhang, L. Kang, J. Chen, P. Wu, T. Hirohata and S. Takeuchi: “Single-shot broadband photon spectroscopy of parametric fluorescence generated from chirped MgSLT crystal towards realization of mono-cycle photonic entanglement”, The 15th SANKEN International Symposium 2012/The 10th SANKEN Nanotechnology Symposium, Osaka Univ., (2012-01).
 - 16) 竹内繁樹*: 「量子もつれ光と、物質・材料・生命研究」、平成23年度物質・デバイス領域共同研究拠点特定研究[A-1]公開ワークショップ「量子もつれ光を用いた、新しい物質・材料・生命研究の創成」、大阪大学 (2012-02).
- iii) コロキウム・セミナー等・その他
- 1) 竹内繁樹*: 「光量子回路を用いた量子サイバネティクスの研究展開」、第5回科研費量子サイバネティクス総括班会議、京都市 (2011-06).
 - 2) M. Fujiwara*, K. Tobaru, T. Noda, H.Q. Zhao and S. Takeuchi: “Solid-state photonic quantum phase gates by using fiber-microsphere cavity system and diamond NV centers”, 第5回科研費量子サイバネティクス総括班会議、京都市 (2011-06).
 - 3) H.Q. Zhao*, M. Fujiwara and S. Takeuchi: “NV center investigation for the application in quantum phase gate”, 第5回科研費量子サイバネティクス総括班会議、京都市 (2011-06).
 - 4) 家藤美奈子*, 岡本亮, 山形浩一, 今井寛, 藤原彰夫, 竹内繁樹: 「光子の位相パラメータのAdaptiveな量子推定実験」、第5回科研費量子サイバネティクス総括班会議、京都市 (2011-06).
 - 5) 小野貴史*, 岡本亮, 竹内繁樹: “Application of entangled photon to the differential interference contrast microscope”, 量子情報処理プロジェクト夏期研修会2011、京都大学 (2011-08).
 - 6) 田中陽*, 岡本亮, Hwan Hong Lim, 岡野真之, Shanthi Subashchandran, 栗村直, 竹内繁樹: 「超広帯域二光子状態の周波数もつれ測定」、量子情報処理プロジェクト夏期研修会2011、京都大学 (2011-08).

- 7) 竹内繁樹*、笹木敬司、岡本亮、藤原正澄、高島秀聡、趙洪泉:「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」、総務省情報通信研究開発成果発表会・ICT重点技術の研究開発の推進第3回成果発表会、千葉市(2011-10).
- 8) 竹内繁樹*:「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、東京都(2011-10).
- 9) 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生成および量子光断層撮影への応用」、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、東京都(2011-10).
- 10) 藤原正澄:「光子の発生・検出・制御技術の開発と量子科学への応用」、第24回産研技術室報告会一温故知新、次の飛翔へー、大阪大学(2011-12).
- 11) 竹内繁樹*:「光子を用いた新規量子計測技術の開拓」、First「量子情報処理プロジェクト」/新学術領域「量子サイバネティクス」全体会議2011、京都市(2011-12).
- 12) 小野貴文*、岡本亮、竹内繁樹:「もつれ合い光子の微分干渉顕微鏡への応用 ～もつれ合い顕微鏡実現に向けて～」、First「量子情報処理プロジェクト」/新学術領域「量子サイバネティクス」全体会議2011、京都市(2011-12).
- 13) 小野貴文*、岡本亮、竹内繁樹:「もつれ合い光子対の微分干渉顕微鏡への応用」、電子科学研究所平成23年度研究交流会、北海道大学(2012-01).

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) 竹内繁樹、:「平成23年度物質・デバイス領域共同研究拠点特定研究[A-1]公開ワークショップ「量子もつれ光を用いた、新しい物質・材料・生命研究の創成」、50名、大阪大学産業科学研究所(大阪)(2012)、2012年2月24日

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) 南京大学(Prof. Jian Chen)

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

d. 受託研究

- 1) 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-2014年度

- 2) 竹内繁樹、最先端研究開発支援プログラム、2009年度-2013年度

4.10 予算獲得状況

a. 科学研究費補助金

- 1) 竹内繁樹、新学術領域研究、量子サイバネティクス-量子制御の融合的研究と量子計算への展開、2009年度-2013年度
- 2) 竹内繁樹、越野和樹、基盤研究 A、ダイヤモンド結晶欠陥を λ 型原子として利用した、単一光子の高効率量子メモリの実現、2011年度~2013年度
- 3) 藤原正澄、若手研究B、非蛍光分子のための輻射場制御型光吸収単一分子分光法の開拓、2011年度~2012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ルリング、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

d. 奨学寄付金

- 1) 竹内繁樹:光科学技術研究振興財団

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) 竹内繁樹: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(2011年4月1日~2012年3月31日)
- 5) 竹内繁樹:独立行政法人情報通信研究機構専門委員(2011年4月1日~現在)

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

- 1) 竹内繁樹、岡本亮：日刊工業新聞 2011年6月7日「光子1個で動作 北大、光量子回路を開発」
- 2) 竹内繁樹、岡本亮：マイコミジャーナル 2011年6月16日「北大、光子1個で動作するスイッチの集積化に成功」
- 3) 竹内繁樹、岡本亮：科学新聞 2011年6月17日「光子1個で動作する非線形スイッチ実現」
- 4) 竹内繁樹、岡本亮：PHYSORG 2011年6月24日“All-optical quantum computation, step1:A controlled-NOT photonic gate”

f. 外国人研究者の招聘

- 1) Aephraim M. Steinberg, University of Toronto (2011年4月16日～5月27日)
- 2) T. Schröder, Humboldt-Universität(2011年4月18日～6月30日)
- 3) Jeremy L O'Brien, University of Bristol (2011年9月4日～6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、2011年4月1日～2012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、2011年4月1日～2012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、2011年4月1日～2012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、2011年4月1日～2012年3月31日
- 5) 理学部物理学科、外国語文献講読、辻見裕史、2011年4月1日～2011年9月31日
- 6) 理学部物理学科、誘電体物理学（群論と格子振動）、辻見裕史、2011年4月1日～2011年9月31日
- 7) 全学教育、基礎物理学 I、辻見裕史、2011年4月1日～2011年9月31日
- 8) 理学部物理学科、相転移物性物理学（物質構造と構造相転移Ⅱ）、辻見裕史、2011年前期集中講義

j. 修士学位及び博士学位の取得状況

・修士課程（4名）

- 1) 家藤美奈子（大阪大学基礎工学研究科）
- 2) 桃原清太（大阪大学基礎工学研究科）
- 3) 野田哲矢（大阪大学基礎工学研究科）
- 4) 楠 一平（北海道大学大学院理学院）

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)、福原克郎 (DC2)、
劉 尊奇 (DC2)、敵 寅男 (DC1)、
荒木瑞揮 (MC1)、水谷純也 (MC1)、
吉竹 理 (MC1)

1. 研究目標

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

2. 研究成果

(a) 水素結合による超分子ローターの運動制御

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、 $\text{Cs}_2\text{([18]crown-6)}_3\text{[Ni(dmit)}_2\text{)]}_2$ や (anilinium) $\text{([18]crown-6)[Ni(dmit)}_2\text{]}$ 結晶における、 [18]crown-6 分子の回転運動や、anilinium (ani^+) カチオンあるいは m -fluoroanilinium ($m\text{-Fani}^+$) カチオンの 180° フリップ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 ($m\text{-Fani}^+$) $\text{([18]crown-6)[Ni(dmit)}_2\text{]}$ 結晶では、anilinium カチオンのフリップフロップ運動が、固体中で分極反転場を起こすことで強誘電体となることを見いだした。この反転エネルギーを制御することができれば、新たな物性制御手法を確立することができる。そこで本研究では、固体中での超分子カチオンと水素結合ネットワークによる物性制御を目指した開発を行った。結晶中の水素結合ネットワークの実現は、超分子カチオンと対アニオンによる結晶空間の精密設計が重要である。こ

れまでに、水素結合形成が可能なアミノ基を分子内に2つ有する p -phenylenediamine とクラウンエーテルから構築される超分子カチオンが、分子外側に水素結合可能な多数の酸素原子をもつポリオキソメタレート金属錯体アニオン (POM^+) が、安定な結晶を形成することを見いだした。そこで新たに、Flip-Flop 運動による双極子モーメントの反転が可能な o -phenylenediamine (HOPD^+) カチオンを含む塩を合成した。このカチオンは、双極子モーメントを有する有機カチオンであり、 $m\text{-Fani}^+$ と同様に結晶内での分子回転運動により誘電応答を発現する可能性が高い。従ってカチオン部位に水素結合による相互作用を導入することにより、これまで不可能であった分子運動制御を実現できる可能性が高い。そこで $(\text{HOPD}^+)_4\text{([12]crown-4)}_4\text{[PMo}_{12}\text{O}_{40}]^{4-}\cdot 4\text{CH}_3\text{CN}$ (**1**)、 $(\text{HOPD}^+)_4\text{([15]crown-5)}_4\text{[PMo}_{12}\text{O}_{40}]^{4-}$ (**2**)、および $(\text{HOPD}^+)_4\text{([18]crown-6)}_4\text{[PMo}_{12}\text{O}_{40}]^{4-}\cdot 8\text{CH}_3\text{CN}$ (**3**) を作製し、これらの結晶の水素結合の変化を比較する事で、発現する強誘電性を検証した。

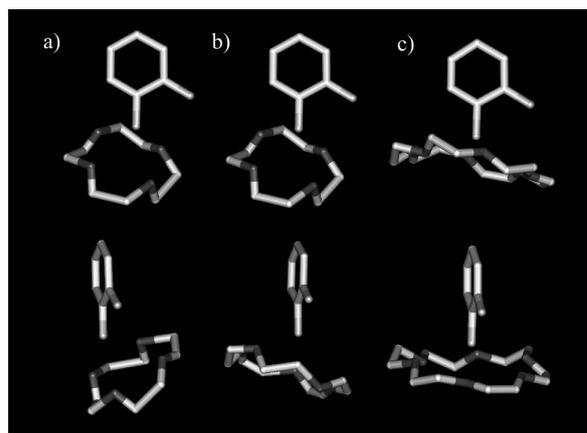
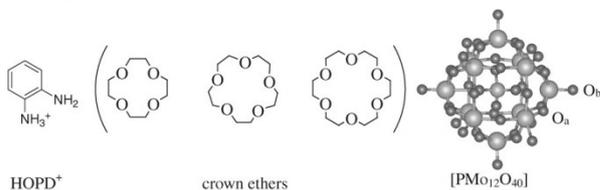


図1. 結晶(a) 1, (b) 2, (c) 3の超分子カチオンの構造

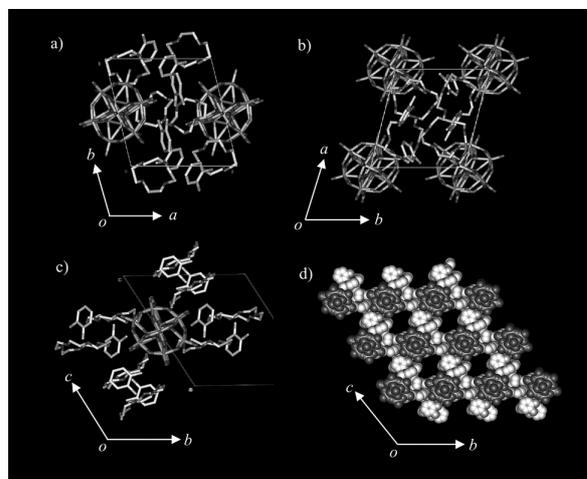


図2. (a) 結晶1、(b) 結晶2、(c) 結晶3のパッキング構造、および (d) 結晶3のCPK標記による一次元チャンネル構造

結晶**1**から**3**中の1つのアンモニウム基は、N-H \cdots O水素結合を通じて、クラウンエーテルの環サイズにより異なる構造の超分子カチオンを形成した(図1)。図2に、結晶**1**から**3**の、分子配列を示す。結晶**1**と**3**は、超分子カチオンとPOM⁴⁻間に安定な二次元的な水素結合ネットワークを形成することがわかった。しかし、結晶**1**と**3**は超分子カチオンとPOM⁴⁻間に存在する0次元の細孔内に結晶溶媒としてアセトニトリル分子を取り込んだ構造であることがわかった。この溶媒分子は、熱的に不安定で温度上昇とともに溶媒分子脱離による結晶の劣化が顕著であった。さらに、安定な水素結合ネットワークにより、超分子カチオンの結晶内における分子運動が阻害されたため、結晶**1**と**3**は誘電応答をほとんど示さなかった。一方結晶**2**は、(HOPD⁺)[15crown-5]超分子カチオンと、POM⁴⁻との間に、最近接のカチオン-アニオン配列が形成された。さらに結晶**2**は、(HOPD⁺の結晶内における熱揺動による双極子モーメントの反転により、顕著な誘電応答を280K付近で示すことが明らかとなった。これは、RHF計算より得られた80 kJmol⁻¹という比較的小さな、超分子カチオンの回転ポテンシャルとも矛盾しない。本研究により、超分子カチオンサイズと水素結合による誘電応答の制御の可能性を明らかにすることができた。

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) 物理吸着保護材による金ナノ粒子集積体の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。我々は、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の合成に初めて成功した。そこで本研究では、新たなる2Tと同様平面的な分子構造をもち、かつ一軸異方性あるいは二軸異方性の磁気異方性を有するフタロシアニンドoubleデッカー型金属錯体MPc₂ (M = Tb, Dy, Er)を物理吸着させた金ナノ粒子集積体TbPc₂-AuNP (**4**), DyPc₂-AuNP (**5**), TbPc₂-AuNP (**6**)を合成し、それらの吸着形態をもとに量子伝導挙動および磁気特性を検討した。

図3に、**4**から**6**のTEM像を示す。各金ナノ粒子の粒径

は4nm程度であり、粒子間はフタロシアニン環の面間隔に相当する約0.5nmで凝集していた。従ってこれらの集積体は、2T-AuNPと同様、金ナノ粒子とフタロシアニン環の π 電子系によるファン・デル・ワールス相互作用により安定化し図3(d)のような吸着構造を構築していると予想できる。

4の電子輸送特性は温度に依存する、主に3つの挙動が現れた。室温から220K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。それ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。さらに、25K以下の極低温領域において、トンネル電子と希土類イオンの4f電子が相関した特異な伝導挙動が発現することを見いだした。また、**4**のM-H曲線では、単分子磁石となるTbPc₂とは異なるヒステリシス挙動が発現する。さらに、交流磁化率測定では周波数依存性が見られたが、Cole-Coleプロットによる緩和過程は、TbPc₂とは異なる二段階の磁化緩和過程がみられ、トンネル電子と4f電子の層間が裏付けられる結果を得た。現在、**5**、**6**についても量子伝導挙動と磁気挙動の相関を検討しており、ランタニド原子の違いにより、トンネル電子と4f電子の相関が異なることを明らかにしつつある。本研究により、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。

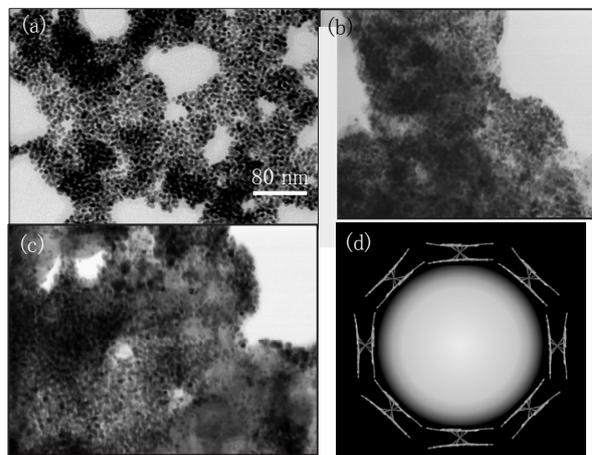


図3. (a)-(c)**4**から**6**のTEM像および、(d)金ナノ粒子への、LnPc₂錯体の吸着構造模式図。

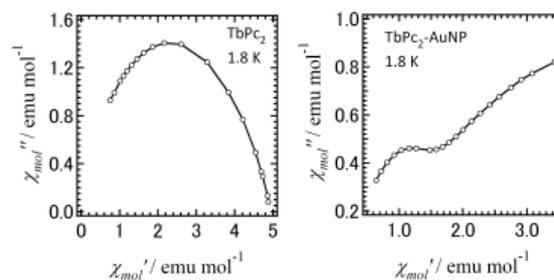


図4. (a)TbPc₂および(b)TbPc₂-AuNPの、1.8KにおけるCole-Coleプロット

(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、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)₂]_n (**5**, bpetha=1,2-bis(4-pyridyl)ethane) が構造転移を伴いながらCO₂ガスを高選択的に吸着することが見出された。また錯体**5**はPF₆⁻アニオンによって塞がれたCu(II)のアキシャ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。選択性の発現原因は、ルイス塩基性分子の配位原子周りの立体的混み合い具合によるものと考えられている。そこで本研究では、ルイス塩基性分子に対する吸着選択性を制御することを目的に、潜在的ルイス酸点周りの立体障害を軽減させた新規柔軟性1次元金属錯体 [[Cu(PF₆)₂(bpetha)(2,2'-bpy)]·PF₆]_n (**6**, 2,2'-bpy=2,2'-bipyridine) を作製し、その結晶構造と吸着特性を調べた。

錯体**6**の構造を図5に示す。Cu(II)イオンは、エクアトリアル位から2個のbpetha配位子と1個の2,2'-bpy配位子が、アキシャル位から1個のPF₆⁻アニオンが弱配位した5配位構造をとっていた。bpetha配位子はCu(II)イオン間を架橋し、ジグザグ型1次元鎖が形成していた。錯体**5**の錯体**6**の潜在的ルイス酸点周りの立体的混み合い具合を比較したところ、平面型配位子2,2'-bpyを有する錯体**6**は錯体**5**よりも立体的に混み合っていないルイス酸点を有していた。

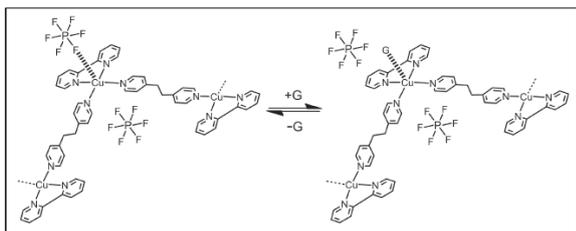


図5. 錯体**6**の1次元構造

そこで、各種ルイス塩基性分子の吸着特性を比較したところ（図6）、錯体**6**は錯体**5**よりも低圧側で構造転移を伴ったルイス塩基性分子（メタノール、水）の吸着を示すことが明らかとなった。また、錯体**5**は配位原子（酸素）にエチル基がついたエタノールを吸着しなかったが、錯体**6**は相対圧0.06以上で錯体1molあたり約1molのエタノールを吸着した。以上の結果は、潜在的ルイス酸点周りの立体的混み合いを軽減させることによりルイス塩基性分子の吸

着が促進されることを意味しており、我々の提案した吸着メカニズムが正しいことを証明することができた。

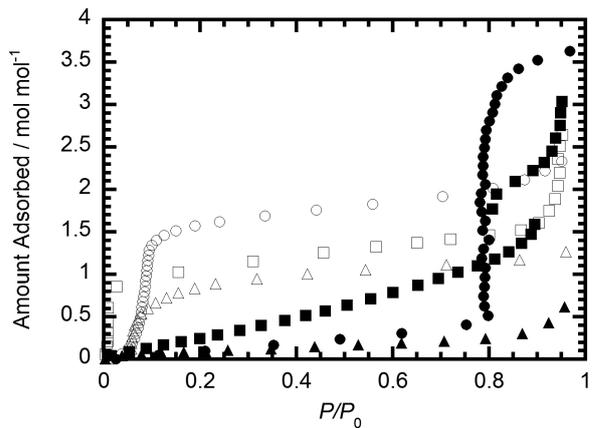


図6. 錯体**5**および**6**の各種ルイス塩基性ゲスト分子に対する吸脱着特性 (triangles: エタノール, squares: メタノール, circles: 水, filled symbols: 錯体**5**, open symbols: 錯体**6**)

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、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) Toru Endo, *Tomoyuki Akutagawa, Shin-ichiro Noro and *Takayoshi Nakamura, “Supramolecular Cations of the m-fluoroanilinium(dibenzo[18]crown-6) in Ferromagnetic Salt”, Dalton Trans., 40, 1491–1496 (2011).
- 2) *Ken-ichi Sakai, Tomoyuki Akutagawa and Takayoshi Nakamura, “An Imidazolate- and Azide-Bridged Copper(II) Coordination Polymer Consisting of Alternating Di- and Mononuclear Units”, Eur. J. Inorg. Chem., 116–120 (2011).
- 3) *Shin-ichiro Noro, Tomonori Ohba, Katsuo Fukuhara, Yukiko Takahashi, Tomoyuki Akutagawa and *Takayoshi Nakamura, “Diverse Structures and Adsorption Properties of Quasi-Werner-type Copper(II) Complexes with Flexible and Polar Axial Bonds”, Dalton Trans., 40, 2268–2274 (2011).
- 4) Ryo Tsunashima, De Liang Long, Toru Endo, Shin-ichiro Noro, Tomoyuki Akutagawa, Takayoshi Nakamura, Raul Quesada Cabrera, Paul F. McMillan, Paul Kogerler and *Leroy Cronin, “Exploring the Thermochromism of Sulfite-embedded Polyoxometalate Capsules” Phys. Chem. Chem. Phys., 13, 7295–7297 (2011).
- 5) *Shin-ichiro Noro, K. Fukuhara, Kazuya Kubo and *Takayoshi Nakamura, “Rational Construction of Wide Coordination Space and Control of Adsorption Properties in One-Dimensional Cu(II) Coordination Polymer”, Crystal Growth and Design, 11, 2379–2385 (2011).
- 6) *Tomoyuki Akutagawa, Fumito Kudo, Ryo Tsunashima, Shin-ichiro Noro, Leroy Cronin and *Takayoshi Nakamura, “Hydrogen-Bonded Assemblies of Two-Electron Reduced Mixed-Valence [XMo12O40] (X = P and Si) with p-Phenylenediamines”, Inorg. Chem., 50, 6711–6718 (2011).
- 7) Qiong Ye, *Tomoyuki Akutagawa, Norihisa Hoshino, Takemitsu Kikuchi, Shin-ichiro Noro, Ren Gen Xiong and *Takayoshi Nakamura, “Polymorphs and Structural Phase Transition of [Ni(dmit)₂]- Crystals Induced by Flexible (trans-Cyclohexane-1,4-diammonium)(Benzo[18]crown-6)₂ Supramolecule”, Crystal Growth and Design, 11, 4175–4182 (2011).
- 8) Hong-Ling Cai, Wen Zhang, Jia-Zhen Ge, Yi Zhang, Kunio Awaga, Takayoshi Nakamura and *Ren Gen Xiong, “4-(cyanomethyl)anilinium Perchlorate: A New Displacive-Type Molecular Ferroelectric”, Phys. Rev. Lett., 107, 147601 (2011).
- 9) Qiong Ye, *Tomoyuki Akutagawa, Heng Yun Ye, Tian Hang, Jia Zhen Ge, Ren-Gen Xiong, Shin-ichiro Noro and *Takayoshi Nakamura, “Structural Phase Transition Due to the Flexible Supramolecule of (4-cyanomethylanilinium) ([18]crown-6) in [Ni(dmit)₂]- Crystal”, Cryst. Eng. Commun., 13, 6185–6191 (2011).
- 10) Qiong Ye, Kiyonori Takahashi, Norihisa Hoshino, Takemitsu Kikuchi, *Tomoyuki Akutagawa, Shin-ichiro Noro, Sadamu Takeda and *Takayoshi Nakamura, “Huge Dielectric Response and Molecular Motions in Paddle-Wheel [CuII2 (Adamantylcarboxylate)4(DMF)2]·(DMF)2”, Chem. Eur. J., 17, 14442–14449 (2011).
- 11) T. Itou,* K. Yamashita, M. Nishiyama, A. Oyamada, S. Maegawa, K. Kubo, R. Kato : NMR measurements on two different carbon atoms of the organic spin-liquid material EtMe3Sb[Pd(dmit)₂]₂, Physical Review B, 094405- (2011)*
- 12) Kazuya Kubo,* Takuya Shiga, Takashi Yamamoto, Akiko Tajima, Taro Moriwaki, Yuka Ikemoto, Masahiro Yamashita, Elisa Sessini, Maria Laura Mercuri, Paola Deplano, Yasuhiro Nakazawa, Reizo Kato : Electronic State of Conducting Single Molecule Magnet Based on Mn-salene Type Complex and Ni-Dithiolene Complex, Inorg. Chem., 8, 9337–9344(2011)*
- 13) Shinya Takaishi, *Nozomi Ishihara, Kazuya Kubo, Keiichi Katoh, Brian K. Breedlove, Hitoshi Miyasaka, Masahiro Yamashita : Paramagnetic-Diamagnetic Phase Transition Accompanied by Coordination Bond Formation in the Dithiolate Complex Na[Ni(pdt)2]·2H2O, Inorg. Chem., 3, 6405–6407 (2011)*
- 14) *Atsushi Kobayashi, Yui Suzuki, Tadashi Ohba, Shin-ichiro Noro, Ho-Chol Chang, *Masako Kato, “Ln-Co-Based Rock-Salt-Type Porous Coordination Polymers: Vapor Response Controlled by Changing the Lanthanide Ion”, Inorg. Chem., 50, 2061–2063 (2011).
- 15) Hirofumi Hara, *Atsushi Kobayashi, Shin-ichiro Noro, Ho-Chol Chang, *Masako Kato, “Vapour-adsorption and chromic behaviours of luminescent coordination polymers composed of a Pt(II)-diimine metalloligand and alkaline-earth metal ions”, Dalton Trans., 40, 8012–8018 (2011).

4.7 講演

招待講演

i) 国際学会

- 1) T. Nakamura “Organic-Inorganic Hybrid Systems toward “Dynamic” Functional Materials” 1st Discussion Symposium on ‘Inorganic Biology and Protocells: Engineering Artificial Life’, Glasgow, UK, September 13, 2011.
- 2) T. Nakamura “Ferroelectrics and Multiferroics based on Supramolecular Rotators” the third RIES-CIS Symposium, Hsinchu, Taiwan, October 28, 2011.

一般講演

i) 国内学会

- 1) 渡辺恵里、伊藤哲明、西山昌秀、小山田明、前川覚、久保和也、加藤礼三：(Me₄Sb)_x(EtMe₃Sb)_{1-x}[Pd(dmit)₂]₂の混晶系の13C-NMR、日本物理学会 第67回年次大会、(20110324)
- 2) 伊藤哲明、渡辺恵里、久保田健朗、西山昌秀、小山田明、前川覚、久保和也、加藤礼三：二次元面平行ないし面垂直の印加磁場下におけるEtMe₃Sb[Pd(dmit)₂]₂の単結晶13C-NMR、日本物理学会 第67回年次大会(20110324)
- 3) 劉尊奇、李 玲、久保和也、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義：4-aminopyridinium/[18]crown-6誘導体超分子カチオンを含む[Ni(dmit)₂]塩の結晶構造と物性、「次世代エレクトロニクス」グループ(G1)分科会(20110510)
- 4) 福原克郎、野呂真一郎、久保和也、中村貴義：1次元銅金属錯体内に異種のアニオンが混在した固溶体の合成、2011年度 ナノマクロ物質・デバイス・システム創成アライアンス-「次世代エレクトロニクス」グループ分科会(20110510)
- 5) 久保和也、遠藤格、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義：三次元構造を持つ[MnCr(oxalate)₃]-錯体と超分子カチオンからなる塩の構造と物性、2011年度 ナノマクロ物質・デバイス・システム創成アライアンス-「次世代エレクトロニクス」グループ分科会(20110510)
- 6) 敵寅男、芥川智行、久保和也、野呂真一郎、中村貴義：3-fluoroadamantylammonium/dibenzo[18]crown-6/[Ni(dmit)₂]塩の構造と物性、日本化学会北海道支部2011年 夏季研究発表会(20110723)
- 7) 劉尊奇、李 玲、久保和也、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義：Pyridazinium/[18]crown-6誘導体超分子カチオンを含む[Ni(dmit)₂]塩の結晶構造と物性、日本化学会北海道支部 2011年 夏季研究発表会(20110723)
- 8) 劉尊奇、李 玲、久保和也、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義：Aminopyridine誘導体/dibenzo[18]crown-6超分子カチオンを含む[Ni(dmit)₂]塩の構造と物性、日本化学会北海道支部 2011年 夏季研究発表会(20110723)
- 9) 福原克郎、野呂真一郎、久保和也、中村貴義：異なるアニオンが混在した固溶体型銅金属錯体の作製とガス吸着挙動、日本化学会北海道支部 2011年 夏季研究発表会(20110723)
- 10) 福原克郎、野呂真一郎、久保和也、中村貴義：選択的CO₂吸着特性を示す1次元銅金属錯体における混合アニオン効果、錯体化学会第61回討論会(20110900)
- 11) 荒木瑞揮、野田裕樹、久保和也、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義：希土類フタロシアニンダブルデッカー型錯体(M = Tb, Er, Dy)/金ナノ粒子集積体の合成と物性、第5回分子科学討論会(20110900)
- 12) 久保和也、吉竹理、遠藤格、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義：Metal-Organic Frameworks Based on [MnII CrIII(oxalate)₃]- Toward Multifunctional Materials, One Day Symposium, Cronin lab, 13th September 2011 'Inorganic Biology and Protocells: Engineering Artificial Life' (20110900)
- 13) S. Maegawa, T. Itou, K. Yamashita, M. Nishiyama, A. Oyamada, K. Kubo, R. Kato: Quantum Spin Liquid in a Spin-1/2 Antiferromagnet on the Triangular Lattice, Et-Me₃Sb[Pd(dmit)₂]₂, International Conference of Magnetic and Superconducting Materials 2011 (MSM11) (20110900)
- 14) Kazuya Kubo, Ryu Zunqi, Shin-ichiro Noro, Tomoyuki Akutagawa, Takayoshi Nakamura: Crystal structures and physical properties of [Ni(dmit)₂] salts including 4-aminopyridinium/[18]crown-6 derivatives, European Conference on Molecular Electronics 2011 (20110907)
- 15) 吉竹理、久保和也、遠藤格、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義：置換anilinium/dicyclohexano[18]crown-6超分子カチオンを導入した[MnCr(oxalate)₃]-錯体の構造と物性、第5回分子科学討論会(20110921)
- 16) 敵寅男、芥川智行、久保和也、野呂真一郎、中村貴義：(3-fluoro-1-adamantylammonium)[18]crown-6[Ni(dmit)₂]-の多形と物性、第5回分子科学討論会(20110921)
- 17) 劉尊奇、李 玲、久保和也、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義：4-aminopyridinium/[18]crown-6誘導体超分子カチオンを含む[Ni(dmit)₂]塩の結晶構造と物性、第5回分子科学討論会(20110921)
- 18) 福原克郎、野呂真一郎、久保和也、中村貴義：分極した無機アニオン分子混合による1次元銅金属錯体の吸着挙動制御、第5回分子科学討論会(20110921)
- 19) 久保和也、吉竹理、遠藤格、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義：Metal-Organic Frameworks Based on [MnII CrIII(oxalate)₃]- Toward Multifunctional Materials, Second Hokkaido - SEU Univ. bilateral symposium on material science (20111000)
- 20) 福原克郎、野呂真一郎、久保和也、中村貴義：Synthesis and Gas Adsorption Properties of Copper Coordination Polymers Containing Two Kinds of Inorganic Anion Molecules, The Third Asian Conference on Coordination Chemistry (3rd ACCC) (20111017)
- 21) 久保和也、遠藤格、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義：Crystal Structures and Physical Properties of Three Dimensional Metal-Organic Framework Based on [MnII CrIII(oxalate)₃]- Complexes Including Supramolecular Rotators, The Third Asian Conference on Coordination Chemistry (3rd ACCC) (20111017)
- 22) 福原克郎、野呂真一郎、久保和也、中村貴義：Control of gas adsorption properties in porous copper coordination polymer using anion-mixing method, The Third SEU-Hokkaido University Bilateral Symposium on Material Science (20111100)
- 23) 久保和也、吉竹理、遠藤格、野呂真一郎、芥川智行、

- 中村貴義 : Crystal structure and physical properties of (m-fluoroanilinium) (dicyclohexano[18]crown-6) [MnCr(oxalate)3], The Third SEU-Hokkaido University Bilateral Symposium on Material Science (20111100)
- 24) 敵寅男、芥川智行、久保和也、野呂真一郎、中村貴義 : 3-Fluoro-1-adamantylammonium - Crown Ether Supramolecular Rotators in [Ni(dmit)₂] Salts, The 12th RIES-Hokudai International Symposium (20111121)
- 25) 福原克郎、野呂真一郎、久保和也、中村貴義 : Control of Gas Adsorption Properties in Copper(II) Coordination Polymers with Hetero Inorganic Anions, The 12th RIES-Hokudai International Symposium "KAN" 「観」 (20111121)
- 26) 吉竹理、久保和也、遠藤格、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義 : (m-fluoroanilinium)(dicyclohexano[18]crown-6) [MnCr(oxalate)3] 結晶の構造と物性、化学系学協会北海道支部 2012年冬季研究発表会 (20120131)
- 27) 敵寅男、芥川智行、久保和也、野呂真一郎、中村貴義 : 多形を有する (3-fluoroadamantylammonium)([18]crown-6) [Ni(dmit)₂] 塩の構造と物性、化学系学協会北海道支部 2012年 冬季研究発表会 (20120131)
- 28) 荒木瑞揮、野田裕樹、久保和也、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義 : 希土類フタロシアニンダブルデッカー型錯体 (M = Tb, Dy) を物理吸着させた金ナノ粒子集積体の合成と機能発現、化学系学協会北海道支部 2012年 冬季研究発表会 (20120131)
- 29) 福原克郎、野呂真一郎、久保和也、中村貴義 : 1,3-bis(4-pyridyl)propane配位子が架橋した多孔性銅錯体におけるCO₂ガス吸着状態の評価、日本化学会第92春季年会 (20120325)
- 30) 野呂真一郎、久保和也、中村貴義 : ウェルナー型銅金属錯体による「フェイク分子」の創出、日本化学会第92春季年会 (20120325)
- 31) 吉竹理、久保和也、遠藤格、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義 : (m-fluoroanilinium+)(dicyclohexano[18]crown-6) 超分子ローターと [MnCr(oxalate)3]-錯体の複合化による分子性マルチフェロイック材料の開拓、日本化学会第92春季年会 (20120326)
- 32) 荒木瑞揮、野田裕樹、久保和也、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義 : ダブルデッカー型希土類フタロシアニン (M=Tb, Dy, Lu)/金ナノ粒子集積体の伝導挙動と磁性、日本化学会第92春季年会 (20120326)
- 33) 敵寅男、芥川智行、久保和也、野呂真一郎、中村貴義 : ([18]crown-6)[Ni(dmit)₂] 結晶多形における超分子ローターの分子運動と誘電応答、日本化学会第92春季年会 (20120327)
- 34) 劉尊奇、李 玲、久保和也、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義 : (アミノピリジン-クラウンエーテル)誘導体超分子カチオン/[Ni(dmit)₂] 塩の構造と誘電性、日本化学会第92春季年会 (20120327)

4.9 共同研究

d. 受託研究

- 1) 野呂真一郎、戦略的創造研究推進事業 さきがけ (科学技術振興機構)、「フェイク分子」法による多孔性金属錯体空間の超精密ポテンシャル制御とオンデマンド二酸化炭素分離機能発現」、2011年度～2014年度 : 本研究は、分子固溶に基づく「フェイク分子」法により、従来の分子合成技術では構築不可能な“仮想分子”を構築し、CO₂吸着ポテンシャル場を“超精密”に創出することで、極めて高い構造設計性・柔軟性を有する多孔性金属錯体による吸着分離材料を創製し、低エネルギーコスト・高選択的かつ大量にCO₂を分離することができる“オンデマンドな完全CO₂吸着分離”の実現をめざす。
- 2) 野呂真一郎、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 化学品原料の転換・多様化を可能とする革新グリーン技術の開発 (NEDO)、「気体原料の高効率利用技術の開発」、2010年度～2012年度 : 本研究では、気体原料から化学品原料を得るための技術開発 (触媒及び分離材料開発) 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) 中村貴義、基盤研究B、分子ローター型強誘電体の開拓 (2011～2013年度)
- 2) 中村貴義、新学術領域研究、希土類フタロシアニンを介した金ナノ粒子間の量子伝導制御 (2011～2012年度)
- 3) 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)
- 4) 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)
- 5) 野呂真一郎、特別研究員奨励費、固相分子ローター構造に基づく複合強誘電物質の開拓 (2011～2012年度)

f. その他

- 1) 中村貴義 (学術研究助成基金助成金、挑戦的萌芽研究) : 「確率共鳴現象を利用した人工分子モーターの実現」、(2011～2013年度)
- 2) 野呂真一郎 (野口研究所 野口遵研究助成金) : 「高効率二酸化炭素分離へ向けた柔軟性軽金属配位高分子吸着材料の開発」、2011年度

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、電子材料科学特論、中村貴義、野呂真一郎
- 2) 環境科学院、環境物質科学実習 I、中村貴義、野呂真一郎、久保和也
- 3) 環境科学院、環境物質科学実習 II、中村貴義、野呂真一郎

- 一郎、久保和也
- 4) 環境科学院、環境物質科学論文購読Ⅰ、中村貴義、野呂真一郎、久保和也
 - 5) 環境科学院、環境物質科学論文購読Ⅱ、中村貴義、野呂真一郎、久保和也
 - 6) 環境科学院、環境物質科学特別研究Ⅰ、中村貴義、野呂真一郎、久保和也
 - 7) 環境科学院、環境物質科学特別研究Ⅱ、中村貴義、野呂真一郎、久保和也
 - 8) 環境科学院、分子環境学特論Ⅲ、野呂真一郎
 - 9) 全学教育、化学Ⅱ、野呂真一郎
- i. **ポスドク・客員研究員など**
- ・ポスドク (1名)
 - 1) Ye Hen Gyun (日本学術振興会外国人特別研究員)
- j. **修士学位及び博士学位の取得状況**
- ・博士後期課程 (1名)
 - 1) 遠藤大五郎
 - ・博士論文
 - 1) 遠藤大五郎: 動的超分子カチオン構造を有するポリオキソメタレート結晶の構造と物性

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~)

助教 木村隆志 (阪大院、工博、2011.4~)

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) 定説を覆す染色体構造の解明

DNAは直径2ナノメートルの細い糸で、ヒストンと呼ばれる糸巻きに巻かれて、直径約11ナノメートルのヌクレオソーム線維を作る。1976年、イギリスのクルーグ (1982年ノーベル化学賞受賞) らは、このヌクレオソーム線維がらせん状に規則正しく折り畳まれて、直径約30ナノメートルのクロマチン線維ができると提唱した。現在広く受け入れられている定説では、染色体は、このクロマチン線維が、らせん状に巻かれて100ナノメートルの線維をつくり、つぎに200-250ナノメートル、さらには500-750ナノメートルのように、規則正しいらせん状の階層構造を形成するとされてきた。実際、分子生物学の最も有名な教科書である「細胞の分子生物学」や高等学校の生物IIの教科書にもこの定説が記載されている。

大型放射光施設 SPring-8 を用いた実験から、我々はこの定説を覆す結果を得た。まず、直径約30ナノメートルのクロマチン線維の証拠の一つとされてきたX線散乱に現れるピークが、染色体の本体ではなく、染色体の表面に付着したリボソームによることを突き止めた。さらに、独自に開発した超小角X線散乱装置を用いることで、従来は測定が難しかった、1マイクロメートルほどの大きさをもつ染色

体の全ての長さスケールにわたるX線散乱測定が可能になった。この結果、定説から予想される約100ナノメートルや約200-250ナノメートルなどの線維の存在を示す散乱ピークは観察されなかった。今回の一連の結果は、定説のモデルにあるクロマチン線維も、クロマチン線維がさらに規則正しく束ねられた高次の構造も存在しないことを示している。すなわち、ヒト染色体はヌクレオソーム線維の不規則な折り畳みによって構築されていることを発見した (図1)。



図1. ヌクレオソーム線維 (赤い線) が染色体の中に不規則に収納されている。染色体には、コンデンシン (青色) やトイソメラーゼIIという蛋白質が軸のように存在する。

(b) X線自由電子レーザーを用いた複雑系生体分子の構造可視化に向けた研究

新世代のX線であるX線自由電子レーザー (XFEL) を用いた複雑系生体分子の構造可視化法の構築を目指した研究を進めた。XFELがフェムト秒の時間幅をもちコヒーレントであることを活用し、溶液中で自然な状態にある生体分子を、分子の動きの時間スケールよりも短いX線露光で、止まった構造を可視化する未踏の手法を構築することを目標にする。図2に、我々が提案するパルス状コヒーレントX線溶液散乱法の模式図を示す。

本年度は、測定装置内の真空中においても、制御された試料環境下でパルス状コヒーレントX線溶液散乱測定を可能にする試料ホルダとして、環境セルを開発した。開発した環境セルは、溶液試料をシリコンナイトライドの薄膜でサンドイッチした構造をもっている。XFELのシングルショットで環境セルは破壊されると予想されるため、シリコン基盤にアレイ状に多数の環境セルを配置した。研究の結果、設計通りの構造を持った環境セルを開発することに成功した。さらに、金のナノ粒子集合体や生体分子試料に対して、X線自由電子レーザーを照射した際に得られるコヒーレント回折パターンのシミュレーションを行い、XFEL波長、カメラ長 (試料検出器間距離) などの実験条件を定めた。X線のフルエンス、検出器のピクセルサイズなどは現状利用可能な装置のパラメータを使用した。また、複雑系生体分子の構造可視化法を可能にするアルゴリズムの開発も進めた。

開発した環境セルに、金のナノ粒子集合体やバクテリア

などの生物試料を封入して、X線自由電子レーザー施設SACLAを用いて、パルス状コヒーレントX線溶液散乱測定を行った。測定の結果、試料が破壊される前の状態からのコヒーレントX線回折パターンをXFELのシングルショットで計測することに成功した。環境セルや溶液からのバックグラウンド散乱の影響は観察されず、開発した環境セルが高精度のパルス状コヒーレントX線溶液散乱測定に適していることが示された。

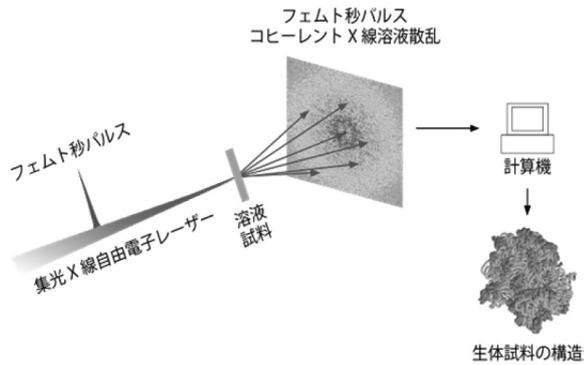


図2. パルス状コヒーレントX線溶液散乱法の模式図

(c) コヒーレントX線を用いた走査透過X線顕微鏡システムの構築

放射光X線の優れた性能を最大限に活用した顕微鏡として、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(図3)。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。

本年度は、アダプティブX線集光鏡システムとコヒーレントX線イメージングアルゴリズムの開発を行った。アダ

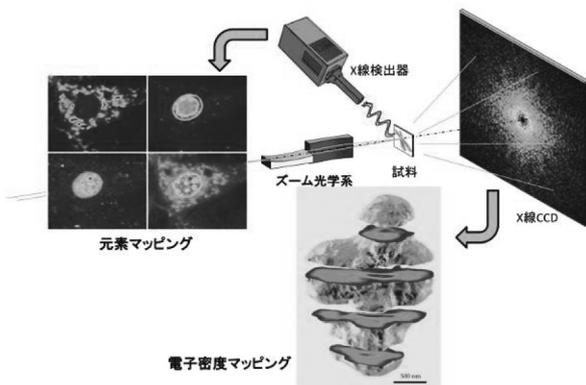


図3. コヒーレントX線を用いた走査透過X線顕微鏡システムの概念図

プティブX線集光鏡システムは、主に数値計算の面からの検討を行った。昨年度導入した数値計算用のグラフィックカードを使用し、本光学系用の波動光学シミュレータの構築を行った。448コアを用いた並列化計算に最適化したプログラムを組むことにより、従来と比較しておよそ20倍の計算時間の短縮及び高精度化を可能にした。この波動光学シミュレータを用いてアダプティブX線集光鏡システムの設計・開発を行う上で必須となる斜入射角などの必要アライメント精度の検討を行った。

さらに、本光学系で実現される集光ビームを用いた回折顕微鏡の新規アルゴリズムの検討を行った。回折顕微鏡では、通常、孤立していない空間的に広がった試料を、一つのコヒーレント回折パターンから像再構成することは難しい。新規アルゴリズムでは、2個の集光点を持つ本光学系の特徴を利用して、X線集光ビームの照射関数を制御することによって、試料を擬似的に孤立していると見なせる状態にして問題の解決を図る。計算機シミュレーションでは二次元波動光学シミュレータにより算出したX線集光ビームの強度分布を用いた。この結果、新規アルゴリズムでは試料像を再構成することに成功し、空間的に広がった試料を一つのコヒーレント回折パターンから像再構成することが可能であることを確認した。

(d) 超高速光誘起構造変化の動画イメージングに向けた研究

サブミクロンサイズの結晶材料中における光誘起構造変化を、ピコ・フェムト秒の時間分解能で動画観察することを目指した研究を進めた。本年度は、試料となるナノ結晶の合成および、合成されたナノ結晶に対するコヒーレントX線回折測定を行った。この結果、SPring-8 BL19LXUを用いて、二酸化バナジウムのナノ結晶からのコヒーレントX線回折パターンを測定することに成功した(図4)。さらに、試料をブラッグ点近傍でロックさせ、異なるロック角でコヒーレント散乱パターンを記録して、逆空間で3次元的なコヒーレントX線回折データを取得することに成功した。

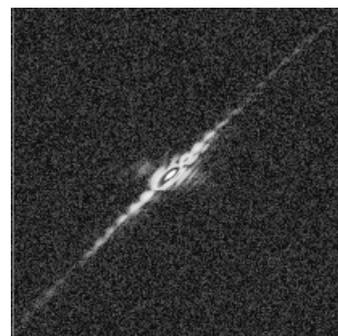


図4. 二酸化バナジウムのナノ結晶からのコヒーレントX線回折パターン。SPring-8のBL19LXUを用いて測定した。

3. 今後の研究の展望

X線自由電子レーザー施設 SACLA が本年度完成し、年度末にユーザー利用が開始された。来年度以降、SACLA を利用した研究を加速させる。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、究極的には空間・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。また、溶液中で自然な状態にある生体分子をイメージングすることを目指した研究を進める。

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) Y. Nishino, M. Eltsov, Y. Joti, K. Ito, H. Takata, Y. Takahashi, S. Hihara, A.S Frangakis, N. Imamoto, T. Ishikawa, and K. Maeshima: “Human mitotic chromosomes consist predominantly of irregularly folded nucleosome fibres without a 30-nm chromatin structure”, EMBO J. 31, 1644-1653 (2012).
- 2) K. Yamauchi, H. Mimura, T. Kimura, H. Yumoto, S. Handa, S. Matsuyama, K. Arima, Y. Sano, K. Yamamura, K. Inagaki, H. Nakamori, J. Kim, K. Tamasaku, Y. Nishino, M. Yabashi and T. Ishikawa: “Single-nanometer focusing of hard x-rays by Kirkpatrick-Baez mirrors”, J. Phys.: Condens. Matter, IOP Publishing, 23(39): 394206- (2011)
- 3) H. Mimura, T. Kimura, H. Yumoto, H. Yokoyama, H. Nakamori, S. Matsuyama, K. Tamasaku, Y. Nishino, M. Yabashi, T. Ishikawa and K. Yamauchi: “One-dimensional sub-10-nm hard X-ray focusing using laterally-graded multilayer mirror”, Nucl. Instrum. Methods. A, Elsevier, 635(1): S16-S18 (2011)

4.2 総説・解説・評論等

- 1) 西野吉則: 「X-ray Diffraction Limit Workshop Series Workshop 1 - Diffraction Microscopy, Holography and Ptychography using Coherent Beams 報告」、放射光、日本放射光学会、24(5): 273-274 (2011)
- 2) 西野吉則: 「コヒーレント X 線イメージング」、計測と制御、計測自動制御学会、50(5): 314-319 (2011)

4.3 国際会議議事録等に掲載された論文

- 1) Y. Takahashi, R. Tsutsumi, Y. Nishino, H. Mimura, S. Matsuyama, T. Ishikawa and K. Yamauchi: “Development of Coherent X-ray Diffraction Apparatus with Kirkpatrick-Baez Mirror Optics”, AIP Conf. Proc., American Institute of Physics, 1365: 231-234 (2011)

- 2) Y. Takahashi, Y. Nishino, R. Tsutsumi, N. Zettsu, K. Yamauchi, T. Ishikawa and E. Matsubara: “Element-specific high-resolution diffraction microscopy using focused hard X-ray beam”, Diamond Light Source Proc., Cambridge University Press, 1(SRMS-7): e136- (2011)

4.4 著書

- 1) Y. Nishino: “Coherent X-Ray Diffraction for High-Contrast Bioimaging”, Synchrotron Radiation and Structural Proteomics (Pan Stanford Series on Nanobiotechnology Vol.3), Pan Stanford Publishing, Eugenia Pechkova and Christian Riedel, Eds.: 105-124 (2011)
- 2) 西野吉則: 「細胞の中の染色体を立体的に映し出す技術とは?」、ブルーバックス「放射光が解き明かす驚異のナノ世界 -魔法の光が拓く物質世界の可能性-」、講談社、日本放射光学会編: 108-110 (2011)
- 3) 石川哲也、北村英男、矢橋牧名、西野吉則、足立伸一: 「世界を変える X 線レーザー」、ブルーバックス「放射光が解き明かす驚異のナノ世界 -魔法の光が拓く物質世界の可能性-」、講談社、日本放射光学会編: 251-267 (2011)

4.5 講演

a. 招待講演

i) 学会

- 1) 西野吉則*: 「コヒーレント X 線イメージング」、平成 23 年度日本顕微鏡学会北海道支部学術講演会、北海道大学、工学部オープンホール (2011-12)
- 2) 西野吉則*: 「極端紫外線自由電子レーザーを用いたフェムト秒ホログラフィー」、日本物理学会 2011 年秋季大会、富山大学 五福キャンパス (2011-09)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 西野吉則*: 「コヒーレントイメージング」、日本学術振興会回折構造生物第 169 委員会第 38 回研究会、ゆうぼうと、品川区、東京 (2012-02)
- 2) Y. Nishino*, M. C. Newton and T. Kimura: “Exploring the Nanoworld using Coherent X-rays”, The 12th RIES-Hokudai International Symposium, Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (2011-11)
- 3) 西野吉則*: 「コヒーレント光イメージング」、第 11 回 X 線結像光学シンポジウム、東北大学、片平さくらホール (2011-11)
- 4) Y. Nishino*: “Toward Coherent X-ray Diffraction using XFEL”, JSPS-DFG Bilateral Seminar on “Use of X-ray Free-Electron Lasers for Nano- and Life-Sciences”, Kyoto University (2011-10)
- 5) 西野吉則*: 「コヒーレント X 線を利用したバイオイメージング」、日本学術振興会マイクロビームアナリシス第 141 委員会第 145 回研究会、名城大学 名駅サテライト (2011-09)

- 6) Y. Nishino* : “Toward Coherent Imaging Using XFEL”, The 4th International Workshop on FEL Science, Palm Cove, Cairns, Queensland, Australia (2011-08~2011-09)
- 7) 西野吉則* : 「WS1 “Diffraction Microscopy, Holography and Ptychography using Coherent Beams” の報告」、XDL2011 ワークショップ報告会、研究交流センター国際会議場、つくば (2011-07)
- 8) 西野吉則* : 「コヒーレントX線を活用したナノイメージング」、レーザ顕微鏡研究会第37回講演会、理化学研究所、和光 (2011-07)
- 9) Y. Nishino* : “Imaging Cellular Organelles”, X-ray Diffraction Limit Workshop Series Workshop 1 - Diffraction Microscopy, Holography and Ptychography using Coherent Beams, Cornell University, Ithaca, New York, USA (2011-06)
- 10) 西野吉則* : 「XFEL を用いた超高速現象のコヒーレントイメージングに向けて」、日本学術振興会 アモルファス・ナノ材料第147委員会 第112回研究会、弘済会館、千代田区、東京 (2011-05)
- 11) 西野吉則* : 「コヒーレントX線が拓く構造可視化の新技术」、強光子場科学研究懇談会平成22年度第2回懇談会、パシフィコ横浜 (2011-04)

iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) Y. Nishino* : “コヒーレントX線が拓くナノ世界”、東京大学理学部化学教室第1395回 雑誌会セミナー、東京大学本郷キャンパス (2011-04)

b. 一般講演

i) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 西野吉則*、マーカス クリスチャン ニュートン、木村隆志 : 「コヒーレントX線イメージング」、北海道大学電子科学研究所平成23年度研究交流会、北海道大学、電子科学研究所 (2012-01)

ii) コロキウム・セミナー等・その他

- 2) Y. Nishino* : “Photonics / Optics Research in RIES, Hokkaido University”, Discussion meetings at ENS de Lyon, Ecole Normale Supérieure de Lyon, France (2011-10)

4.6 共同研究

a. 受託研究

- 1) 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

4.7 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
- 2) 西野吉則、萌芽研究、フェムト秒コヒーレントX線を

活用した複雑系生体高分子の溶液構造可視化法の構築、2011~2012年度

- 3) 木村隆志、スタートアップ、硬X線汎用光学系構築のための集光用形状可変ミラーの開発、2011~2012年度

4.8 社会教育活動

a. 北大での担当授業科目

- 1) 工学部、生体工学概論、西野吉則、2012年2月1日
- 2) 全学共通、ナノテク・ナノサイエンス概論Ⅱ、西野吉則、2011年12月8日
- 3) 全学共通、量子ビーム物質科学特論、西野吉則、2011年11月11日
- 4) 情報科学研究科、バイオナノ工学特論、西野吉則、2011年10月1日~2012年3月31日
- 5) 全学共通、環境と人間、西野吉則、2011年6月24日
- 6) 工学部、ナノ工学基礎、西野吉則、2011年4月1日~2012年3月31日
- 7) 工学部、科学技術英語演習、西野吉則、2011年4月1日~2012年3月31日
- 8) 工学部、情報エレクトロニクス演習、木村隆志、2011年4月1日~2011年9月30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

修士課程

吉田 徹、釜谷 悠介

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、もしトップダウンー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くるボトムアップ系である。バイオ系に代表される自律分散系その他、たとえば半導体量子ドットなど無機物のセルフアセンブル系を含め、広くボトムアップ系に期待が集まっている。しかしながら、両系は未だに専ら独立で、トップダウン、ボトムアップ両系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、非常に高い清浄度を実現可能なクリーンユニットとして、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)デンタルサーフェィシステム(DSS)の開発に成功した。歯科技工作業における塵肺防止可能性が示され、技工師の潜在的塵肺罹患リスクの解消に向けての実験的検証がなされた。

また上記の超高清浄度を実現可能なCUSPを素子作製のプロセス環境として応用しつつ、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。出発物質としてnタイプのSiを用いて、これに対し、ストライプ状にGe、並びにCを拡散することで、図1の右下内挿図に示すようにギャップの異なる3つの領域を持つ面状半導体構造を形成することを試みた。この後、Al薄膜を蒸着し、再度熱拡散を行うことでpn接合を作成したところ、予備実験的では有るが、図1に示すように、光起電力の発生を確認した。この結果より、Si基板をベースとして用いて昇降順を最適化したマルチストライプを形成できることが示唆された。図1の左下内挿図に示すようにXPS分析により内部に酸素の侵入があることが判明した。GeやCの拡散のクオリティーを上げる意味でも、これを抑制することのできる熱拡散条件を確立し、変換効率の向上を図ることが今後の課題である。

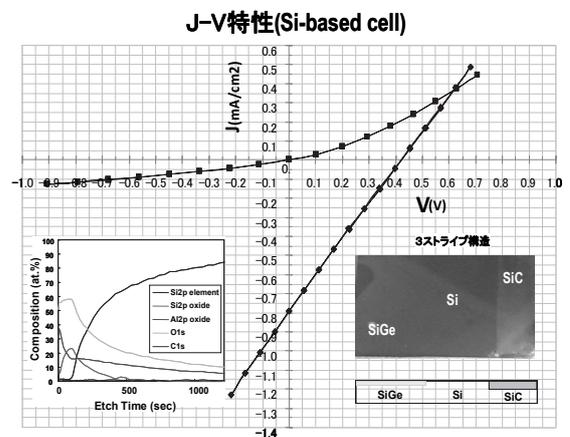


図1. 素子のJ-V特性、XPS分析結果(内挿図左)、及び、3ストライプ構造(内挿図右)。

(a2) ポリエチレンナフタレート有機膜上の $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ 薄膜における表面・界面状態と磁気特性

次世代超高密度メモリやBeyond CMOS スwitch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 $1 \sim 20$ nm の強磁性薄膜を用いれば、 $1 \times 1 \sim 20 \times 20$ nm² 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(MR)効果が期待できる。また、単一/少数分子系のキャラクタリゼーションも可能となる。今回、我々はこのような新機能デバイスの作製を目指し、電極材料として期待できるポリエチレンナフタレート(PEN)有機膜上の $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ 薄膜について、その表面・界面状態と磁気特性を調べた。

PEN有機膜(帝人デュポン社製 TEONEX Q65、長さ10 mm、幅2 mm、膜厚25 μm)上の $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ 薄膜の作製には抵抗加熱式磁場中真空蒸着装置を用いた。抵抗加熱にはBNルツボとWフィラメントを用い、 $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ がPEN有機膜に均一に、かつ、ビーム状に蒸着するように、BNルツボの形状・寸法、及び、遮熱板の開口部寸法をシュテファンボルツマンの式、及び、幾何学的シミュレーションを用いて、厳密に設計した。また、蒸着時にPEN有機膜の温度がガラス転移温度(=120°C)を超えないように、遮熱板、及び、冷却機構を設置した。蒸着パワーは280-350 W、蒸着時の真空度は $\sim 10^{-3}$ Pa、蒸着膜厚レートは0.5-1.2 nm/minとした。磁気異方性を付与するための面内磁場の大きさは360 Oeとした。膜厚測定には触針差型膜厚計による機械的手法、及び、ダイオード励起固体(DPSS)レーザーによる光学的手法を用いた。表面観察には原子間力顕微鏡(AFM)を用いた。構造解析には透過型電子顕微鏡(TEM)を用いた。磁化測定にはマイクロ磁気光学カー効果(MOKE)測定装置を用いた。磁気抵抗(MR)効果測定には磁場中直流4端子法を用いた。

図2(a)に $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ /PENの断面TEM像を示す。PEN有機膜へのNi、Fe原子拡散が見られず、明瞭な界面が形成できていることがわかる。また、 $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ 表面が平坦であることも確認できる。図2(b)、(c)にPEN及び $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ /PENにおける表面AFM像を示す。観察スケールは 500×500 nm²である。PENの表面粗さ R_q は1.3 nmで、有機膜としては平坦な膜が形成されている。また、 $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ /PENの表面粗さ R_q は1.2 nmで、同様に有機膜上の金属薄膜としては平坦な膜が形成されている。

図3にマイクロMOKEにより室温で測定した $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ /PENの磁化曲線を示す。 $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ の膜厚は13 nm、20 nm、35 nmである。外部磁場の方向は磁化容易軸に平行である。マイクロMOKEで用いた光源はViolet半導体レーザー(波長=405 nm)で、観察スポット径は3-4 μm である。観察位置は

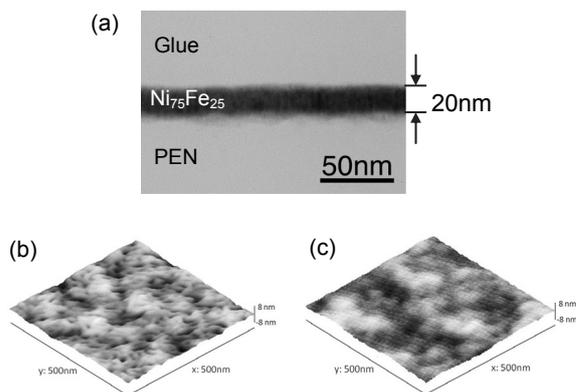


図2. (a) $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ (20nm)/PENの断面TEM像、(b) PEN及び(c) $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ (14nm)/PENにおける表面AFM像

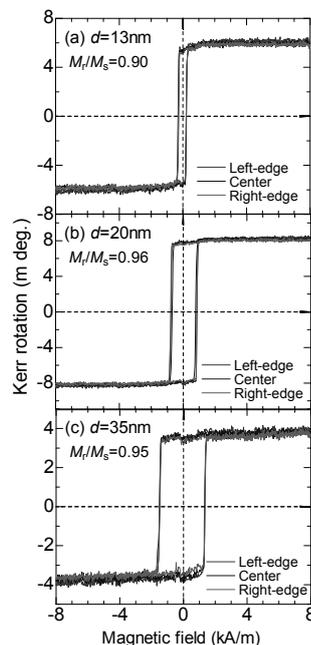


図3. マイクロMOKEにより室温で測定した $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ /PENの磁化曲線

サンプルの左エッジ、中央、右エッジである。いずれの膜厚においても角型比 M_r/M_s は0.9-0.96と大きな値を示す。また、観察位置依存性に関しては、いずれのサンプルにおいても左エッジ、中央、右エッジともほぼ同じ振る舞いを示している。これらの結果はPEN有機膜上の $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ 薄膜では、一軸磁気異方性が完全に付与されていて、磁化状態がほぼ単磁区構造に近い状態になっていることを示している。これはまたエッジからスピンを注入するナノスケール接合では極めて好適であることを示している。

図4に直流4端子法により室温で測定した $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ /PENのMR効果を示す。外部磁場の方向は磁化困難軸に平行である。センス電流は1mAであり、外部磁場に対して平行に流している。図4からわかるように、いずれの膜厚でも、異方性磁気抵抗(AMR)効果が明瞭に見られた。すなわち、磁化方向が電流と平行であるときは抵抗が最大値 R_{\parallel} を示し、垂直であるときは抵抗が最小値 R_{\perp} を示す。以上より、

表面・界面状態、並びに、磁気特性の観点から、Ni₇₅Fe₂₅/PENは我々の提案しているナノスケール接合(接合サイズ10-40 nm)の電極材料として極めて有望であることがわかった。

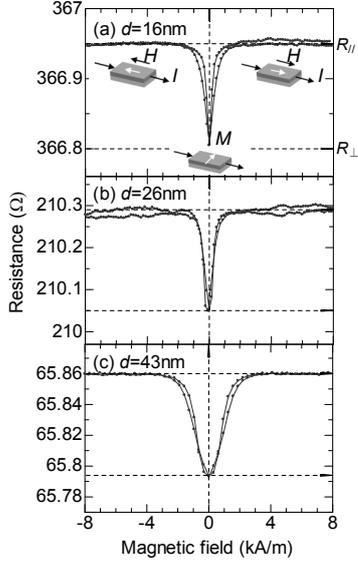


図4. 直流4端子法により室温で測定したNi₇₅Fe₂₅/PENのMR効果

(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、この構造に反転対称性の無い化合物半導体であるGaAsやGaSbを挟んだ際に、これらの物質で3次のDresselhausスピン軌道相互作用が働いた場合のスピン伝導に関して、今年度は考察した。図5に計算に用いた強磁性体/化合物半導体/強磁性体のモデルを示す。

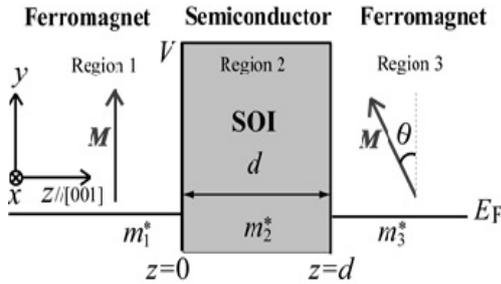


図5. 計算に用いた強磁性体/化合物半導体/強磁性体のモデル

計算に用いたモデルハミルトニアンは以下の式である。式中の τ_x, τ_y はPauli行列で、 Δ_i は各領域での交換エネルギーである。式(3)が、3次のDresselhausスピン軌道相互作用ハミルトニアンで、 γ_i はスピン軌道結合定数である。この効果がある場合のスピン伝導を計算した。

$$H^{(i)} = H_0^{(i)} + H_D^{(i)} + V(z), \quad (1)$$

$$H_0^{(i)} = \frac{\hbar^2 \mathbf{k}_\sigma^2}{2m_i^*} - \frac{\Delta_i}{2} \mathbf{n}_i \cdot \boldsymbol{\tau}, \quad (2)$$

$$H_D^{(i)} = \gamma_i (\tau_x k_{x\sigma} - \tau_y k_{y\sigma}) k_{z\sigma}^2. \quad (3)$$

半導体バリアの膜厚を変化させて計算した磁気抵抗(MR)比の計算結果を図6に示す。その結果、スピン軌道相互作用が働かない普通の絶縁体バリアの場合、MR比はバリア膜厚を変えても常に正であるが、GaAs半導体バリアの場合、非常にバリア膜厚が薄い場合(0.01~0.02nm)は、MR比は正であるが、厚みを増すとすぐに負になってしまい、バリア膜厚が3nmまで、ずっと負のままであった。一方、スピン軌道相互作用の大きいGaSb半導体バリアの場合、GaAsと同様に非常にバリア膜厚が薄い場合(0.01~0.02nm)は、MR比は正で厚みを増すとすぐに負になってしまうが、やがて、厚みが1nm程度で符号を変えて、再び正になることが判明した。これらの現象は、マイノリティ・キャリアが半導体中のスピン軌道相互作用で、スピンフリップすることを考慮すると説明することが出来、そのために要する厚みが、GaAs半導体バリアの場合、約10.253nm程度であり、GaSb半導体バリアの場合は2.42nm程度であることから、説明が出来た。そのため、GaAs半導体バリアの場合、厚みが5nm以上あれば、GaSb同様に再びMR比は正になると考えられる。この結果から、スピン量子十字構造素子に、化合物半導体を挟めば、負のMR比を有するデバイスを作製することが可能であることを定量的に予想することが出来た。

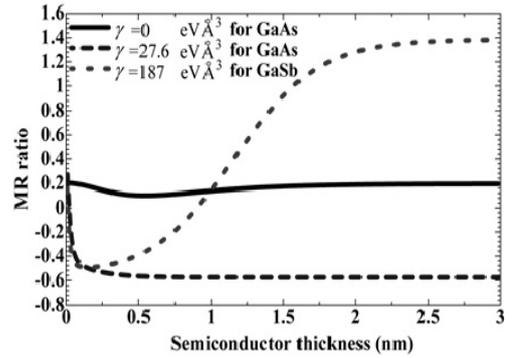


図6. 磁気抵抗(MR)比の半導体バリア膜厚依存性

図7は、バリア膜厚が1nmでの磁気抵抗(MR)比のスピン軌道結合定数依存性である。スピン軌道相互作用は、極めて小さくても膜厚がある程度(Fermi波長以上)あれば効果があり、MR比は負になることがわかる。

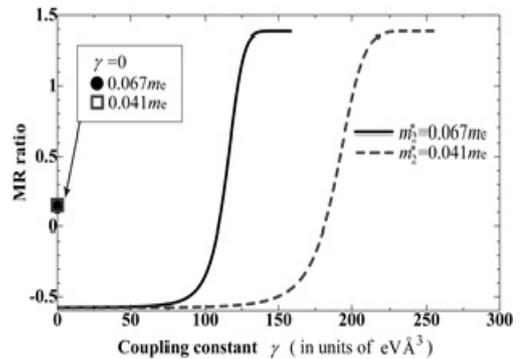


図7. 磁気抵抗(MR)比の結合定数依存性(バリア厚=1nm)

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。理論の方からは、ラシュバスピ軌道相互作用ならびに Dresselhaus スピン軌道相互作用は、ゲージ場の観点から見ると非可換ゲージ場なので、これらを利用するデバイスにおいて、AB 効果のようなゲージ場固有の特性を見出していくことが今後必要である。また、既存のスピ現象においても、位相不変量が隠れていることも十分考えられるので、それらの探索も行う予定である。さらに、電極にトポロジカル絶縁体を用いた場合におけるエッジを介したスピン注入の問題にも取り組む予定である。また工学部の植村先生の協力のもと伝統的なスピン注入の解釈にも注力する予定である。

プラットフォームベースのアプローチでは、廉価にして高性能である CUSP 技術を展開し、“Clean space for the rest of us”の観点で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ンニングが用いられ、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 x y 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。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。またフォトン・フォトキャリア直交性と黒体放射源フルスペクトル光電変換可能性を生かした新型太陽電池の特性向上を図っていく。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) K. Kondo, “Spin Transport in Ferromagnet/Semiconductor/Ferromagnet Structures with Cubic Dresselhaus Spin-Orbit-Interaction”, *J. Appl. Phys.*, 111, 07C713-1-07C713-3 (2012).
- 2) H. Kaiju, T. Abe, K. Kondo and A. Ishibashi: “Surface Roughness and Magnetic Properties of Co Ferromagnetic Thin Films on Polyethylene Naphthalate Organic Substrates”, *J. Vac. Soc. Jpn*, 55, 187-190 (2012).
- 3) H. Sasakura, C. Hermannstadter, S. N. Dorenbos, N. Akopian, M. P. Kouwen, J. Motohisa, Y. Kobayashi, H. Kumano, K. Kondo, K. Tomioka, T. Fukui, I. Suemune and V. Zwiller, “Longitudinal and transverse exciton-spin relaxation in a single InAsP quantum dot embedded inside a standing InP nanowire using photoluminescence spectroscopy”, *Phys. Rev. B*, 85, 075324-1-075324-7 (2012).
- 4) H. Kaiju, T. Abe, K. Kondo and A. Ishibashi, “Surface Morphologies and Magnetic Properties of Fe and Co Magnetic Thin Films on Polyethylene Naphthalate Organic Substrates”, *J. Appl. Phys.*, 111, 07C104-1-07C104-3 (2012).
- 5) 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).

4.4 著書

- 1) H. Kaiju, K. Kondo and A. Ishibashi: “Lithography-Free Nanostructure Fabrication Techniques Utilizing Thin-Film Edges”, *Recent Advances in Nanofabrication Techniques and Applications*, InTech, ISBN 978-953-307-602-7, Chapter 28 : 569-590 (2011).

4.6 特許

・国内特許

- 1) 石橋晃、海住英生、ラコビッチ ユーリ、ドネガン ジョン: “量子装置の製造方法”, 特願2011-052327
- 2) 海住英生、石橋晃: 「コバルト薄膜およびその形成方法ならびにナノ接合素子およびその製造方法ならびに配線およびその形成方法」特願2011-197115
- 3) 石橋晃、“高潔浄環境システム”, PCT/JP2011/066648

・国際特許

- 1) A. Ishibashi and H. Kaiju: "Probe, method for manufacturing probe, probe microscope, magnetic head, method for manufacturing magnetic head, and magnetic recording/reproducing device" 13/379,564
- 2) A. Ishibashi and H. Kaiju: "Sonde, Methode zur Herstellung einer Sonde, Sonden-Mikroskop, Magnetkopf, Methode zue Herstellung eines Magnetkopf und einer magnetischen Aufnahme- und Wiedergabevorrichtung", P41892/DE

4.7 講演

a. 招待講演

- 1) H. Kaiju*, K. Kondo, M. Ishimaru, Y. Hirotsu and A. Ishibashi, "Fabrication of Nanoscale Junctions Utilizing Thin-Film Edges", 1st Annual World Congress of Nano-S&T, Dalian, China (2011-10).

b. 一般講演

i) 学会

- 1) 海住英生*、阿部太郎、近藤憲治、石橋晃:「ポリエチレンナフタレート有機膜上のCo強磁性薄膜における表面粗さと磁気特性」、第52回真空に関する連合講演会、学習院大学 (2011-11)
- 2) K. Kondo*, "Spin Transport in Ferromagnet /Semiconductor/Ferromagnet Structures with Cubic Dresselhaus Spin-Orbit-Interaction", 56th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, Scottsdale, USA (2011-10-2011-11).
- 3) K. Kondo*, H. Kaiju and A. Ishibashi: "Microscopic Magneto-Optic Kerr Effect Spectroscopy in Ni75Fe25 and Fe Ferromagnetic Thin Films on Organic Substrates", 56th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, Scottsdale, USA (2011-10-2011-11).
- 4) H. Kaiju*, T. Abe, K. Kondo and A. Ishibashi, "Surface Morphologies and Magnetic Properties of Fe and Co Magnetic Thin Films on Polyethylene Naphthalate Organic Substrates", 56th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, Scottsdale, USA (2011-10- 2011-11).
- 5) 中谷公一*、大澤孝、佐藤嘉晃、石橋晃、大畑昇:「デンタルセイフティシステムの開発(第一報) 歯科技工士の塵肺症罹患の潜在的リスクの解消」、日本歯科技工学会第33回学術大会、東京 タワーホール船堀 (2011-10).
- 6) 大澤孝*、中谷公一、佐藤嘉晃、石橋晃、大畑昇:「デンタルセイフティシステムの開発(第二報) 研磨作業中の塵埃の観測結果について」、日本歯科技工学会第33回学術大会、東京 タワーホール船堀 (2011-10).
- 7) 近藤憲治*、海住英生、石橋晃:「ニッケル強磁性電極の点接触による巨大熱起電力」、日本物理学会秋季大会、富山大学 (2011-09).

- 8) 海住英生*、阿部太郎、近藤憲治、石橋晃:「ポリエチレンナフタレート有機膜上のFe、Ni75Fe25、Ni薄膜の表面状態と磁気特性」、日本物理学会秋季大会、富山大学 (2011-09).

- 9) 海住英生*、近藤憲治、石橋晃:「薄膜エッジを利用したNi/NiO/Niナノスケールトンネル接合の作製とその電流電圧特性」、日本物理学会秋季大会、富山大学 (2011-09).

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 石橋晃*、河西 剛、海住英生、近藤憲治、川口敦吉、スザン ホワイト:「フォトン・フォトキャリア直交型マルチストライプ半導体太陽電池とその作製環境としてのClean Unit System Platform (CUSP)の展開 I」、PV Japan 2011 東京ビッグサイト (2011年12月5-7日))
- 2) 河西剛*、中谷公一、望月進、嶋島武広、大澤孝、佐藤嘉晃、大畑昇、石橋晃:「フォトン・フォトキャリア直交型マルチストライプ半導体太陽電池とその作製環境としてのClean Unit System Platform (CUSP)の展開 II」、PV Japan 2011 東京ビッグサイト (2011年12月5-7日))
- 3) 石橋晃*、大澤孝、中谷公一、大橋美久、佐藤嘉晃、大畑昇:「CUSPによるデンタルセイフティシステム(DSS)の実現」、北海道大学-北洋銀行包括連携事業 市民医療特別セミナー、京王プラザホテル札幌 (2012年3月8日)

4.9 共同研究

c. 民間等との共同研究

- 1) 石橋晃 (産業技術総合研究所):平成22年度 物質・デバイス領域共同研究「CUSP清浄環境のミニマルファブ応用可能性の検討」
- 2) 石橋晃 (帝人株式会社):平成22年度 物質・デバイス領域共同研究「無機半導体ベースのフォトン・フォトキャリア直交型光電変換素子の検討」
- 3) 石橋晃 (株式会社ビオフレックス):平成22年度 物質・デバイス領域共同研究「機能性フィルターを用いた高清浄環境の研究」
- 4) 石橋晃 (日本牛乳野菜株式会社):平成22年度 物質・デバイス領域共同研究「CUSP清浄環境のミニマルファブ応用可能性の検討」

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

c. 大型プロジェクト・受託研究

- 1) 海住英生(科学技術振興機構 戦略的創造研究推進事業 (さきがけ)):「スピン量子十字素子を用いた新規な高性能不揮発性メモリの創製」、2009～2012年度

～2012年3月31日

- 6) 理学部、物理外国語文献講読Ⅰ、近藤憲治、2011年10月1日～2011年3月31日
7) 理学院、量子デバイス物理学(量子輸送と非平衡グリーン関数)、近藤憲治、2011年10月1日～2011年3月31日

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(2011年4月1日～2012年3月31日)

b. 国内外の学会の役職

- 1) 海住英生:応用物理学会 北海道支部 会計幹事(2011年4月1日～2013年3月31日)
2) 海住英生:応用物理学会 北海道支部講演会 世話人(2011年4月1日～2012年3月31日)
3) 海住英生:第47回応用物理学会北海道支部/第8回日本光学会北海道地区合同学術講演会 実行役員(2011年11月1日～2012年1月31日)
4) 海住英生:応用物理学会 リフレッシュ理科教室 会場担当(2011年8月1日～2011年11月4日)
5) 海住英生:応用物理学会 サイエンスオリエンテーリング 説明委員(2011年10月28日～2011年10月29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)
2) 海住英生:科学技術振興機構 戦略的創造研究推進事業(さきがけ) 委嘱研究者(2009年10月1日～2013年3月31日)

d. その他

- 1) 石橋晃:2011北大電子研公開 市民向け講演(2011年6月5日)
2) 近藤憲治:Intermag2012のレフェリー(2012年3月27日～2012年4月15日)

e. 新聞・テレビ等の報道

- 1) 「シーズテック、CUSP フルラインアップ」、日本経済新聞、2011-09-29
2) H. Kaiju, K. Kondo, A. Ono, N. Kawaguchi, J. H. Won, A. Hirata, M. Ishimaru, Y. Hirotsu and A. Ishibashi: IOP Science, Nanotechnology, 2012年2月3日 “One Year On, The fabrication of Ni quantum cross devices with a 17 nm junction and their current-voltage characteristics”

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、2011年4月1日～2011年9月30日
2) 全学共通、現代物理学入門(分担)、石橋晃、2011年4月1日～2011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、2011年4月1日～2010年9月30日
4) 理学院、半導体物理学Ⅰ、石橋晃、2011年10月1日～2012年3月31日
5) 理学部、物理学外国語演習、石橋晃、2011年10月1日

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 池田 弘 (九大院、工博、2011.4~)
大学院生 岡本晋太郎 (総合化学院M1)
柴田千尋 (総合化学院M1)
学部生 柴田智弘 (理学部化学科)
荘司孝斗 (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逐することで、光導波、回折、光閉じ込め、反射防止などのフォトニック機能の発現を目指す。特に、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) ガラスインプリント法に関する研究

モールド成形法は、光学ガラスレンズやナノインプリント法など精密成形を必要とする素子の作製に用いられている。モールド成形における問題点の一つはガラスがモールドから離形する際に生じる破損である。特に成形難易度の高いガラスナノインプリントは離形による破損が生じやすく、成形できる構造や面積が限られる。本研究では、ガラスインプリントによる高機能素子の作製を目指し、モールド成形におけるガラス離形挙動の解明を行っている。問題となるガラスとモールドの破損原因を明らかにするためには、成形・離形過程におけるガラスとモールドの界面相互作用を明らかにする必要があるが、ガラスの成形・離形過程は高温で行われるため、直接的な観察や測定が困難である。本研究では、ガラス成形におけるガラスの変形・離形の定量的評価方法の構築に取り組んだ。

ガラス離形過程の観察のため離形力に着目した。成形したガラスをモールドから離形する際、化学的な反応による接着が生じていないにも関わらず離形力（引張り応力）が生じ、この離形力が大きいときにガラスとモールドの破損が起こる。離形力の発生原因とガラスやモールド依存性を明らかにするため、装置の開発に取り組んだ。平行平板状に切削研磨したガラスを装置に設置し、ガラス成形温度で

ある軟化温度近傍まで上昇させ、平板モールドで数MPaの圧力にて成形した。成形終了後の離形時に生じた離形力をロードセルで測定した。成形終了後のガラス成形体表面の湾曲を触針式粗さ計にて評価した。実験には、レンズ成形に用いられる市販のリン酸塩ガラスとホウ酸塩ガラスを用いた。

結果の一例として、 SiO_2 モールドの厚さを変えた時の離形力と湾曲の関係を図1に示す。離形力はモールド厚みに対して大きく増加し、湾曲は大きく減少することがわかった。離形力およびガラス成形体の湾曲は、モールドの剛性（厚み、ヤング率）に依存しており、剛性に対して離形力は増加し、湾曲は減少することが明らかとなった。実際のレンズ成形用のモールドに用いられるタングステンカーバイドは剛性が大きいことから、高い面精度が求められる成形には適しているが、離形力は大きいと、ガラスやモールドに対して負荷が大きくなると考えられる。面精度よりもガラスへの負荷の低減が求められるような成形では、グラスシーカーボンなどの剛性が小さなモールドを選択する必要があると考えられる。今後、得られた知見をもとにガラスインプリント法による電子・光学素子の開発に取り組む。

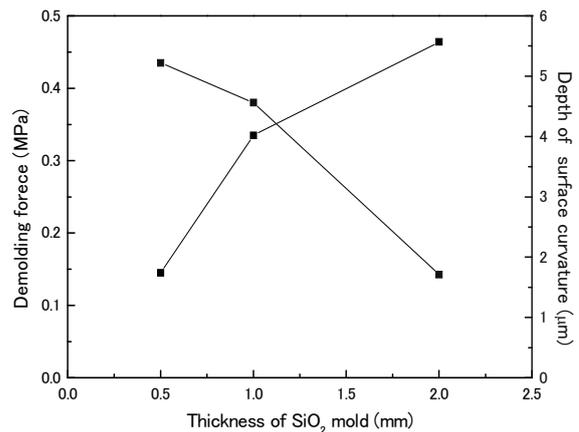


図1. 離形力とガラス成形体の湾曲に対するモールド厚み依存性。離形膜としてPtをコートした SiO_2 モールドを用いて、リン酸塩ガラス（K-PSK200、住田光学製）を 420°C で成形して離形した。

(b) マイクロ流体型SiNブレード化可変レンズ

Optofluidicsは、フォトニクスとマイクロ流体デバイスを複合化した素子であり、固体素子に比べ、光学特性の大きな可変性が得られるといった利点がある。これまでに流体レンズ形状の能動的制御、フォトニックバンドギャップやプラズモニック特性のチューニングに関する研究がなされてきたが、素子の多くは半導体加工プロセスで作製されており、その平面性からデバイス設計には制限が大きい。そこで、我々はフェムト秒レーザー非線形リソグラフィを用いた立体的表面加工手法により、大きな高低差を有する流路にブレード化したSiN回折レンズを内装した。図2は素子を模式的に示している。SiNは高い屈折率を有するため、光との相互作用が大きく、可視波長光に対しても SiO_2 回折

レンズの半分程度の溝深さで十分な結合効率を得ることが出来る。この素子では、高屈折率液滴を流路内で生成し、SiN レンズ上を移動させることで集光特性を切り替えるが、本年度は、素子の設計と基本的な光学特性を検証し、理論値に近い集光特性を得た。今後は詳細なスイッチング特性の評価と表面形状が流体移動に与える影響を実験と理論の両面から検討していく。

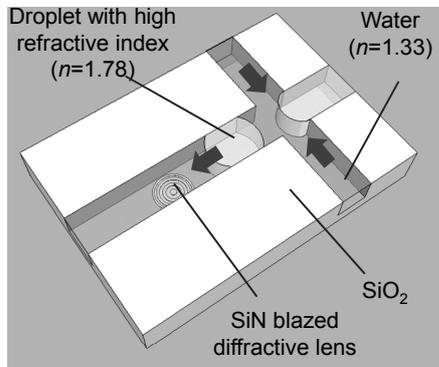


図2. マイクロ流体を用いたSiN回折レンズのスイッチング素子

(c) 金属回折格子を利用した表面プラズモン共鳴

表面プラズモンポラリトンの励起が可能である金属回折格子の高感度センシングへの応用が検討されている。回折格子表面の金属膜厚が薄く、基板両側の屈折率が近い場合、長距離伝搬モードと短距離伝搬モードの2種類のSPPが励起されることが知られている。図3は、Ag回折格子の基板側(裏面)から励起した際の、反射光強度の角度依存性を示している。基板上には屈折率の異なる媒質を配置した。励起光としてHe-Neレーザ(波長633nm)を用いた。入射角が15~20度付近および25度付近に、それぞれ長距離伝搬モードと短距離伝搬モードが観察された。このような反射スペクトルは、格子表面に成膜したAg膜の表面粗さに強く依存し、ピーク位置および半値幅に変化が見られた。今後、表面粗さが光学特性に与える影響を詳細に検討するとともにセンサーへの応用を進める。

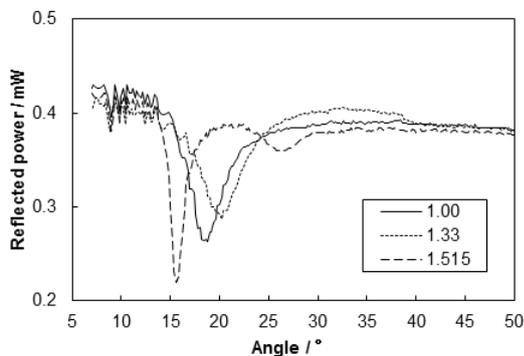


図3. 異なる屈折率媒体を上面に配置したときのAg回折格子からの反射スペクトル。表面プラズモン共鳴に起因した2つのピークが観察される。

(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(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多く残されている。例えば、ラフな表面を有する生体表面の濡れ広がり(濡れ)は栄養吸収の重要な過程であるものの、まだよく分かっていない。その中でモデル小腸壁(表面フラクタル次元が2.2次元の寒天ゲル)を作製し、アルコール水溶液の濡れ広がりを調べることで濡れのダイナミクスにおける表面ラフネスの影響を調べた。図4に実験結果を示す。平らな寒天ゲル上での水の濡れ広がり(濡れ)の挙動はTannerの法則(接触角の時間変化 $\theta(t) \propto t^{-0.3}$)に従うが、マランゴニ効果を示すアルコール水溶液では著しく速い濡れ広がり($\propto t^{0.9}$)が観測された(図4(b))。一方、フラクタル寒天ゲルでは水の濡れ広がり(濡れ)は早くなったが、アルコール水溶液の濡れ広がり(濡れ)は抑制され、両者の振る舞いがほぼ同じとなった($\propto t^{-0.5}$)。これらの振る舞いは濡れ広がり(濡れ)の際の粘性によるエネルギー散逸、マランゴニ効果による表面張力バランスの変化、フラクタル寒天ゲルの表面ラフネスによるピン止め効果の顕在化によって理論的に説明できることが明らかとなった。

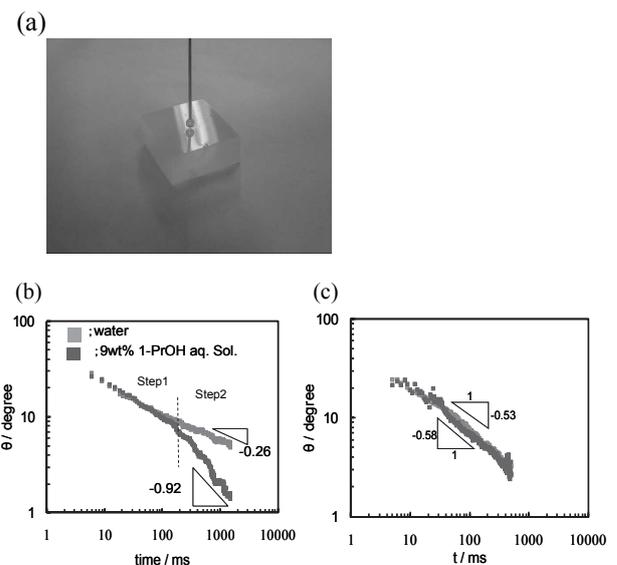


図4. (a) 平らな寒天ゲル上での実験の外観、(b) & (c) 平らな寒天ゲルとフラクタル寒天ゲル上での濡れ広がり(濡れ)の結果。赤：純水、緑：9 wt% プロパノール水溶液。

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。オフ軸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) H. Mayama and Y. Nonomura: “Theoretical Consideration of Wetting on a Cylindrical Pillar Defect: Pinning Energy and Penetrating Phenomena”, *Langmuir*, 27: 3550-3560 (2011)
- 2) A. Uyama, S. Yamazoe, S. Shigematsu, M. Morimoto, S. Yokojima, H. Mayama, Y. Kojima, S. Nakamura and K. Uchida: “Reversible photo-control of surface wettability between hydrophilic and superhydrophobic surfaces on an asymmetric diarylethene solid surface”, *Langmuir*, 27: 6395-6400 (2011).
- 3) K. Tawa, X. Cui, K. Kintaka, J. Nishii and K. Morigaki: “Sensitive bioimaging in microfluidic channels on the plasmonic substrate: Application of an enhanced fluorescence based on the reverse coupling mode”, *J. Photo. Photo. A: Chemistry*, 221: 261-267 (2011).
- 4) M. Mizoshiri, Y. Hirata, J. Nishii and H. Nishiyama: “Large refractive index changes of a chemically amplified photoresist in femtosecond laser nonlinear lithography”, *Optics Express*, 19: 7673-7679 (2011).
- 5) Y. Tamura, R. Kawamura, K. Shinkawa, A. Kakugo, Y. Osada, J. Gong and H. Mayama: “Dynamic self-organization and polymorphism of MT assembly through active interaction with kinesin”, *Soft Matter*, 7: 5654-5659 (2011).
- 6) H. Nishiyama, M. Mizoshiri, Y. Hirata and J. Nishii: “Fabrication of SiO₂ hybrid microlens structures using femtosecond laser nonlinear lithography”, *IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering*, 18: 072011-1-072011-4 (2011).
- 7) 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”, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 50: 06GL02-1-072011-3 (2011).
- 8) N. Nishikawa, A. Uyama, T. Kamitanaka, H. Mayama, Y. Kojima, S. Yokojima, S. Nakamura, K. Tsujii and K. Uchida: “Photoinduced Reversible Topographical Changes on Diarylethene Microcrystalline Surfaces with Biomimetic Wetting Properties”, *Chem. Asian J.*, 6: 2400-2406 (2011).
- 9) I. Yamada, N. Yamashita, K. Tani, T. Einishi, M. Saito, K. Fukumi and J. Nishii: “Fabrication of a mid-IR wire-grid polarizer by direct imprinting on chalcogenide glass”,

Optics Letters, 36(19): 53882-53884 (2011).

- 10) 西山宏昭: 「Microfluidic devices with off-axis diffractive focusing reflectors for refractive index sensing」、第28回 センサ・マイクロマシンと応用システムシンポジウム 論文集、1: 671-674 (2011).
- 11) K. Kintaka, T. Majima, J. Inoue, K. Hatanaka, J. Nishii and S. Ura: “Cavity-resonator-integrated guided-mode resonance filter for aperture miniaturization”, *Optics Express*, OSA, 20(2): 1444-1449 (2012).
- 12) M. Mitsuishi, S. Morita, K. Tawa, J. Nishii and T. Miyashita: “Spontaneous Emission Control of CdSe/ZnS Nanoparticle Monolayer in Polymer Nanosheet Waveguide Assembled on a One-Dimensional Silver Grating Surface”, *Langmuir*, 28: 2313-2317 (2012).
- 13) B. Hong, D. Li, Q. Lei, L. Xu, W. Fang and H. Mayama: “Kinetics on formation of super water repellent surfaces from phase transformation in binary mixtures of trimyristin and tripalmitin”, *Colloids Surf. A*, 396: 130-136 (2012).
- 14) Y. Nonomura, S. Chida, E. Seino and H. Mayama: “Anomalous Spreading with Marangoni Flow on Agar Gel Surfaces”, *Langmuir*, 28: 3799-3806 (2012).

4.4 講演

a. 招請講演

- 1) J. Nishii: “Imprint process for optical device with periodic structure”, *Smart Nano-Micro Materials and Devices(SPIE)*, Melbourne, Australia (2011-12).
- 2) H. Mayama: “Fractal in Material”, *Collaborative Conference on 3D & Materials Research (3DMR 2011)*, Ramada Plaza Jeju Hotel, Jeju, South Korea, Korea (2011-6~2011-7).
- 3) 西井準治: 「いま求められている次世代光学素子」、大阪府立大学工学研究科マテリアル工学分野講演会、大阪府立大学 (2011-04)
- 4) 西井準治、田和圭子、金高 健二: 「プラズモン回折格子」、ナノインプリント研究会、東京 (2012-02).
- 5) J. Nishii*: “Photonic functions induced by subwavelength structure”, 2011 RIES-CIS Symposium, 台湾交通大学, 台湾 (2011-10).
- 6) 西井準治: 「次世代光学素子の製造のためのナノインプリント技術」、第2回 ナノインプリント技術フェア(ファインテックジャパン)、東京ビッグサイト (2011-04).
- 7) 西山宏昭、西井準治: 「微細構造を用いたフォトニクス機能とその応用」、北大-理研連携研究分野セミナー、北大 (2011-12).

b. 一般講演

i) 学会

- 1) 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 nano-materials, Pusan, Korea (2011-06).
- 2) 眞山博幸、野々村美宗：「円柱状欠陥の濡れ」、ナノ学会第9回大会、北海道大学学術交流会館 (2011-06).
 - 3) 柴田千尋、田和圭子、金高健二、西井準治：「表面プラズモン共鳴による蛍光増強のための回折格子の形状最適化」、日本化学会北海道支部2011年夏季研究発表会、室蘭工業大学 (2011-07).
 - 4) 北村直之、福味幸平、西井準治：「ビスマスリン酸塩ガラスにおける光学特性への第三成分の影響」、2011年秋季第72回応用物理学会学術講演会、山形大学 (2011-8～2011-9).
 - 5) 森田晋平、三ツ石方也、宮下徳治、田和圭子、西井準治：「格子状周期構造を用いた高分子ナノシート/CdSe ナノ粒子ハイブリッド集積による発光素子の作製」、2011年秋季第72回応用物理学会学術講演会、山形大学 (2011-08).
 - 6) 北嶋千誉、高島秀聡、藤原英樹、西井準治、笹木敬司：「金コートAFMチップとファイバ結合トロイド共振器のカップリング」、2011年秋季第72回応用物理学会学術講演会、山形大学 (2011-08).
 - 7) 山田逸成、山下直人、谷邦彦、柴西俊彦、斉藤光徳、福味幸平、西井準治：「カルコゲナイドガラスへのインプリント加工による赤外用ワイヤグリッド偏光子の製作」、2011年秋季第72回応用物理学会学術講演会、山形大学 (山形市) (2011-08).
 - 8) 岡本普太郎、西山宏昭、西井準治：「集光型回折格子内装マイクロ流体素子による屈折率センシング」、第72回応用物理学会学術講演会、山形大学 (2011-08).
 - 9) 西山宏昭、溝尻瑞枝、西井準治：「フェムト秒レーザ直接重合による露光部での導波モード生成」、第72回応用物理学会学術講演会、山形大学 (2011-08).
 - 10) H. Nishiyama and J. Nishii: “Femtosecond laser nonlinear lithography for 3D nanoimprint molds”, The 2nd Japan-China-Korea Joint Conference on MEMS/NEMS, Jeju, Korea (2011-09).
 - 11) 千田茂希、情野恵莉、眞山博幸、野々村美宗：「マランゴニ対流によるゲル表面における濡れの促進」、第63回コロイドおよび界面化学討論会、京都大学 (吉田キャンパス) (2011-09).
 - 12) 情野恵莉、千田茂希、眞山博幸、野々村美宗：「寒天ゲル表面におけるコロイド分散液の濡れダイナミクス」、第63回コロイドおよび界面化学討論会、京都大学 (吉田キャンパス) (2011-09).
 - 13) 眞山博幸、野々村美宗：「円柱状欠陥の濡れにおける自由エネルギー変化」、第63回コロイドおよび界面化学討論会、京都大学 (吉田キャンパス) (2011-09).
 - 14) 眞山博幸、千田茂希、情野恵莉、田中倫哉、野々村美宗：「フラクタル寒天ゲルにおける濡れ挙動」、第5回分子科学討論会2011札幌、札幌コンベンションセンター (2011-09).
 - 15) 西山宏昭、岡本普太郎、西井準治：「オフアクシス集光型回折格子を内装したマイクロ流体素子による屈折率センシング」、第28回「センサ・マイクロマシンと応用システム」シンポジウム、タワーホール船堀 (2011-09).
 - 16) T. Yasui, K. Tawa, C. Hosokawa, J. Nishii and A. Matsumoto: “Sensitive Fluorescence Microscopic Observation of Neurons Cultured on a Plasmonic Chip”, Nanoimprint and Nanoprint Technology, Jeju, Korea (2011-10).
 - 17) H. Nishiyama and J. Nishii: “Three-dimensional imprint molds fabricated using femtosecond laser nonlinear lithography”, 24th International Microprocesses and Nanotechnology Conference, ANA Hotel Kyoto (2011-10).
 - 18) H. Nishiyama and J. Nishii: “Guiding mode generation of photoresists using femtosecond laser induced direct polymerization”, The 12th RIES-Hokudai International Symposium, Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (2011-11).
 - 19) S. Okamoto, H. Nishiyama and J. Nishii: “Fabrication of microfluidic devices with off-axis diffraction focusing reflectors”, The 12th RIES-Hokudai International Symposium, Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (2011-11).
 - 20) 池田弘、眞山博幸、西山宏昭、西井準治：「平板モードプレスによるガラスの変形・離型特性」、第52回ガラスおよびフォトニクス材料討論会、イーグレひめじ (2011-11).
 - 21) S. Okamoto, H. Nishiyama and J. Nishii: “SiO₂-based microfluidic devices with off-axis diffractive focusing lenses for refractive index sensing”, The 28th Japan-Korea International Seminar on Ceramics, Okayama convention center (2011-11).
 - 22) 北嶋千誉、高島秀聡、藤原英樹、西井準治、笹木敬司：「テーパファイバ結合トロイド共振器を介した局在プラズモンの高効率励起」、第47回応用物理学会北海道支部/第8回日本光学会北海道地区合同学術講演会、北海道大学 学術交流会館 (2012-01).
 - 23) 柴田智広、西山宏昭、西井準治：「金属周期構造を用いた高感度プラズモニックチップの研究」、応用物理学会北海道支部学術講演会、北大学術交流会館 (2012-01).
 - 24) 柴田智広、西山宏昭、西井準治：「プラズモン回折格子の金属膜質と光学特性」、The 22nd Meeting on Glasses for Photonics、東京工業大学 (2012-02).
 - 25) 森田晋平、三ツ石方也、田和圭子、西井準治、宮下徳治：「表面プラズモン/導波モード共存条件を満たした高分子ナノ集積体による発光変調と旋光識別」、第59回応用物理学関係連合講演会、早稲田大学早稲田キャンパス (2012-03).
 - 26) 柴田智広、西山宏昭、田和圭子、池田弘、西井準治：「プラズモン回折格子の光学特性」、第59回応用物理学関係

連合講演会、早稲田大学早稲田キャンパス (2012-03).

- 27) 眞山博幸、田中倫哉、野々村美宗:「マルチピラー表面の濡れ」、日本物理学会第67回年次大会、関西学院大学西宮上ヶ原キャンパス (2012-03).
- 28) 田中倫哉、眞山博幸、野々村美宗:「マルチピラー表面における水滴の三次元観察」、日本化学会第92春季年会、慶應義塾大学日吉キャンパス・矢上キャンパス (2012-03).
- 29) 安井力、田和圭子、細川千恵、西井準治、青田浩幸、松本昭:「プラズモニックチップ上で培養した神経細胞の高感度蛍光顕微鏡観察」、日本化学会第92春季年会 (2012)、慶応大学日吉キャンパス (2012-03).

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 眞山博幸、野々村美宗:「1本のピラーの濡れ」、第一回ソフトマター研究会、キャンパスプラザ京都 (2011-08).
- 2) 眞山博幸、千田茂希、情野恵莉、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」、第一回ソフトマター研究会、キャンパスプラザ京都 (2011-08).
- 3) 西山宏昭、眞山博幸、西井準治:「サブ波長光学による高効率フォトン利用デバイスの研究 -非線形光リソグラフィ-による立体的表面加工」、ナノマクロ物質・デバイス・システム創製 アライアンス第2回新エネルギー材料・デバイスグループ研究会、北大学術交流会館 (2011-10).
- 4) 藤原英樹、田中嘉人、高島秀聡、西井準治、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」、「新エネルギー材料・デバイス」グループ研究会、北海道大学 学術交流会館 (2011-10).
- 5) H. Mayama, H. Nishiyama and J. Nishii: “Thermodynamics and dynamics in wetting”, The 12th RIES-Hokudai International Symposium “観”, Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (2011-11).
- 6) H. Mayama, S. Chida, E. Seino, T. Tanaka and Y. Nonomura: “Thermodynamics and dynamics of wetting on rough surface”, 2012 International Symposium on Nature-Inspired Technology, High1 Resort, Kangwon, Korea (2012-01).
- 7) H. Mayama, S. Chida, E. Seino, T. Tanaka and Y. Nonomura: “Wetting Phenomena on Fractal Agar Gels as Model Biological Surface”, SOFTINTERFACE INTERNATIONAL MINI-SYMPOSIUM ON BIOINTERFACE-INTERFACE BETWEEN BIO AND MATERIALS-[SIMS2012], University of Tsukuba (2012-03).

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) 眞山博幸、基盤研究 C 一般、マルチピラー表面におけるエネルギー障壁の理論的考察とその実験的評価、

2011~2013年度

- 2) 西井準治、基盤研究 B 一般、金属サブ波長構造を用いた動的プラズモン増強場の創製、2011~2012年度
 - 3) 西井準治、萌芽研究、電界加速プロトン-アルカリ全置換による新規高温プロトン伝導体の創製、2011~2012年度
 - 4) 西山宏昭、若手研究 B 一般、フェムト秒レーザパルスの特異的なチャン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) 西山宏昭、池谷科学技術振興財団、非線形光リソグラフィの露光分解能向上と立体的表面を有する光学材料の開発、2011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、2011年度

細胞機能素子研究分野

教授 上田哲男 (北大院、薬博、1998.2～2012.3)
 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、2010.4～2012.3)
 院 生 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的機能を、非線形ダイナミクスに基づいて解明する。

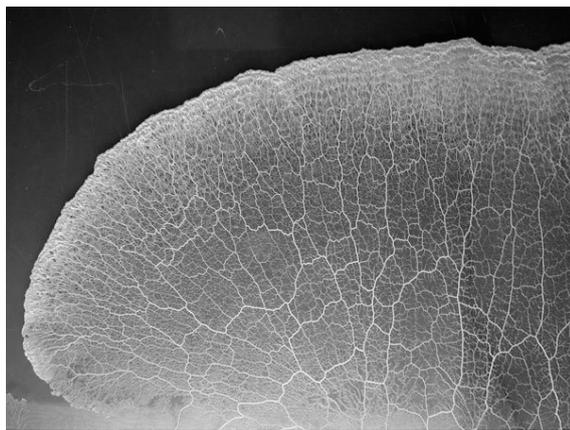


図1. 寒天上を這う粘菌変形体。

2. 研究成果

(a) 細胞形態と細胞運動に関する突然変異

真性粘菌の変形体は仮足を進展させ、後部には原形質の流路と成る管ネットワークを形成しながら、自由に細胞形状を変形させて環境を探索する。細胞全体はおおよそ2分の周期で協同的な収縮弛緩運動をおこない、それにより発生した静水圧差が原形質流動の駆動力と成り、伸展する仮足部分へと原形質を輸送する。また、ある程度の大きさの変形体では(質量5mg程度)仮足部分は伸展と枝分かれを繰り返しながら変形し移動をする。野生株と突然変異株においてこれらの動態を調べた結果、特徴の異なる変異株が見つかった。

用いた真正粘菌は培養温度を24℃から30℃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特徴をもつ株である。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に、細胞内にはある遺伝子に変異の起

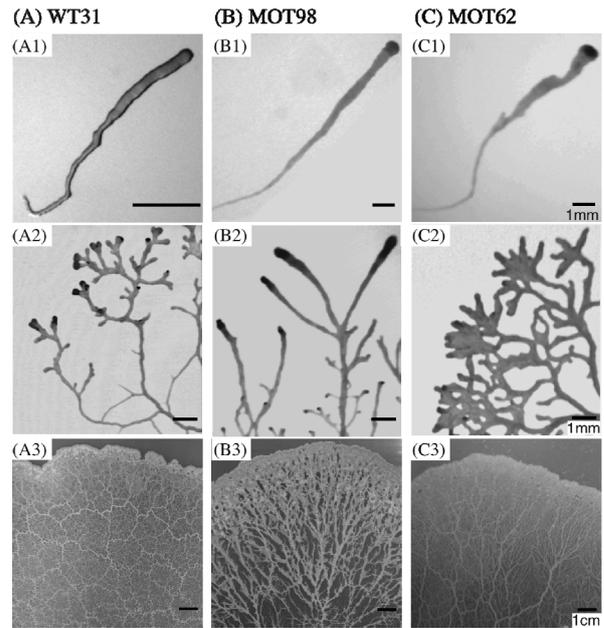


図2. 伸展する変形体の細胞形態。(A)野生株(WT31株)、(B, C)突然変異株(それぞれMOT98, MOT62株)

きた染色体のみが単相で存在する。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び出した6つの変異株と野生株の細胞形態と運動の比較を行った結果、それらが典型的に異なる2種を選び出した。これらの株の変形体を一定量(約5mg)、寒天ゲル上に置くとやが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2A2, B2, C2)。外見上の違いは、MOT98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、MOT62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(図3)。いずれの株も30分から1時間程度の長周期の変動をしめたことであ

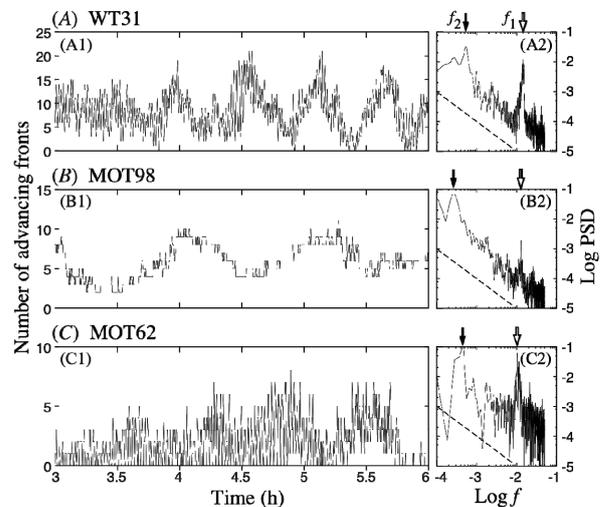


図3. 野生株と突然変異株がしめす伸展端の数の時間変化とそのパワースペクトル。

る。パワースペクトルに f_2 で示したピークがそれにあたる。これは収縮弛緩および原形質流動の2分リズムより非常に長い周期をもつ細胞リズムの存在を示唆している。また、WT31株とMOT62株ではおよそ2分の収縮弛緩振動と同調した伸展数の変動が見られるが（パワースペクトルの f_1 ）、MOT98ではほとんど見られない。これは収縮リズムに合わせてWT31とMOT62が前進と後退を繰り返して伸展するのに対して、MOT98が前進し続ける伸展様式をしめすためである。これらの細胞運動の違いを詳しく調べるため、原形質流動を駆動する収縮弛緩運動の時空間パターンと伸展様式の関係性を調べた結果、それぞれの株が異なる振動パターンと伸展速度のパターンを示すことが明らかになった。収縮弛緩リズムと同調して野生株は前進と後退を繰り返し、MOT62株は伸展と停止を繰り返す。一方、MOT98株は前進を続け、その振動パターンは他の2株とは大きく異なり、先端の部分では振動を示さず一定の位相を示している。このように細胞運動の明確に異なる突然変異体を見いだすことに成功した。

この真正粘菌 *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。

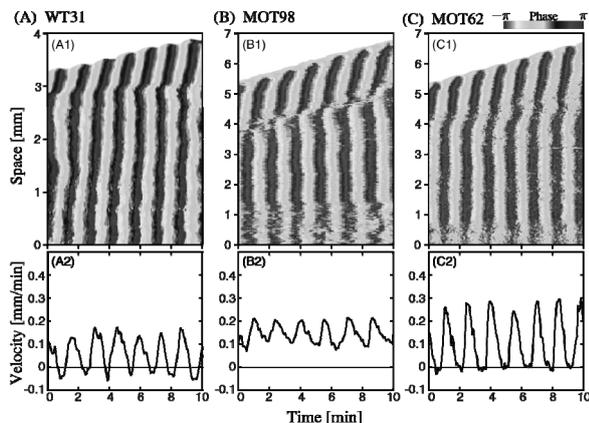


図4. 各株がしめす伸展する変形体の収縮弛緩パターン（上段）と伸展速度の時間変化（下段）

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ふ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) M. Hörning, S. Takagi, K. Yoshikawa: "Controlling activation site density by low-energy far-field stimulation in cardiac tissue", *Physical Review E*, 85, 061906 (2012)
- 2) K.-I Ueda, S. Takagi, Y. Nishiura, T. Nakagaki: "Mathematical model for contemplative amoeboid locomotion", *Physical Review E*, 83, 021916 (2011)

4.2 総説、解説、評論等

- 1) Marcel Hörning, 高木清二: 「非線形で心筋不整を治療する。」、数理科学、No. 581: 43-5150 (2011)

4.7 講演

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) T. Ueda: "Dynamic organization of the cell behavior by the *Physarum* plasmodia", *Dynamic Organization and Motility of Single Cells*, Max-Planck-Institute für Physik Komplexer System, Dresden, Germany (2011-9)
- 2) 高木清二: 「心筋組織における回転ラセン波の発生と外部電場による制御」、TWS7: 反応拡散系の解析と制御、東京大学 (2011-01)
- 3) 黒田茂、高木清二、上田哲男「Allometry in the true slime mold during free locomotion」 定量生物学の会、名古屋大学 (2011-01)
- 4) 高木清二、黒田茂、上田先生「真正粘菌による複合刺激の知覚と行動」 定量生物学の会、名古屋大学 (2011-01)

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) Ulrike Strachauer, Germany, Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, 2011年5月11日～6月25日

g. 北大での担当授業科目 (対象、講義名、担当者、期間)

- 1) 全学教育、一般教育演習、西野浩史、高木清二、2011年4月1日～8月31日

i. ポスドク・客員研究員など

- ・ポスドク (1名)
黒田 茂

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～)
 研究員 田中嘉人 (阪大院、工博、2008.10～)
 院 生
 博士課程
 任 芳
 修士課程
 北嶋千誉、真田彬央、齊 君、兼田翔吾、
 小松聖矢、近藤 圭

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光マニピュレーションを利用した極微弱な力の解析、単一光子源の開発に向けた単一分子・単一ナノ微粒子の分光計測システムの開発、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) ナノギャップ局在プラズモン場におけるナノ粒子の光捕捉解析

光照射した金属ナノギャップ構造におけるプラズモン共鳴により、回折限界よりも小さなギャップ部分に高強度の光を局在させることができる。このナノギャップ局在プラズモン場における電場勾配が集光レーザーよりも遥かに大きいことから、集光レーザーを用いた光捕捉では難しいナノ粒子の捕捉が期待されている。本研究では、捕捉粒子が周辺近接場に与える影響に着目し、ナノギャップ局在プラズモン場におけるナノ粒子光捕捉を解析した。その結果、捕捉粒子の屈折率が高い場合やサイズがギャップ幅程度の場合、プラズモン局在場を大きく変化させるためポテンシャル形状も変化し、Rayleigh近似が成り立つ場合に比べ最大捕捉力、光捕捉ポテンシャル深さ共に捕捉粒子の屈折率・サイズに強く依存することが分かった (図1)。本研究により、ナノギャップ局在プラズモンを用いた新しい光相互作用の実現に向けた、ナノギャップ局在プラズモンによ

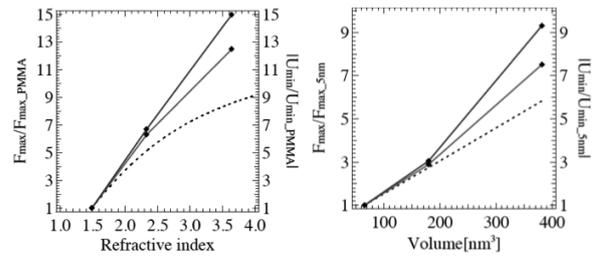


図1. 最大捕捉力(赤)と光捕捉ポテンシャル(青)の粒子屈折率および粒子サイズ依存性.黒波線は Rayleigh 近似。

る光捕捉のメカニズムを明らかにするデータが得られた。

(b) ナノ粒子に作用する局在プラズモン増強放射圧のポテンシャル解析

金属ナノ構造に光を照射すると、プラズモン共鳴により回折限界を遥かに越える微小空間に高強度の光を閉じ込めることができる。このプラズモン局在場で働く放射圧を利用した高効率ナノ粒子捕捉に関する研究は近年いくつか報告されているが、捕捉された粒子に働く放射圧についての解析はほとんど行われていない。そこで本研究では、金属ナノ構造上の粒子における位置揺らぎ情報を測定するシステムを新たに開発し、ナノギャップを有する金ナノブロックペアで生じるプラズモン局在場において、粒径100 nmの単一ナノ粒子に働く放射圧を捕捉ポテンシャルより解析した。図2は、二つの入射光強度 (15 kW/cm², 30 kW/cm²) で捕捉した粒子についてブロックペアの長軸(X)及び短軸(Y)方向の位置揺らぎヒストグラムより算出される捕捉ポテンシャルである。これらの捕捉ポテンシャルの±100 nmの範囲を調和振動子で近似してバネ定数を導出したところ、光強度を2倍にすることでバネ定数が約2倍になった (15 kW/cm²の時 X: 0.46 [fN/nm], Y: 0.52 [fN/nm], 30 kW/cm²の時 X: 0.93 [fN/nm], Y: 1.09 [fN/nm])。これらの結果は、捕捉粒子の影響を含む電磁場シミュレーションを元に計算するMaxwell応力法によって得られるバネ定数と良い一致を示した。

(c) 金属ナノ周期構造における光局在場の増強効果

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。さらに、金属ナノ粒子ペアを適切にアレイ状に配置することで、隣接する構造

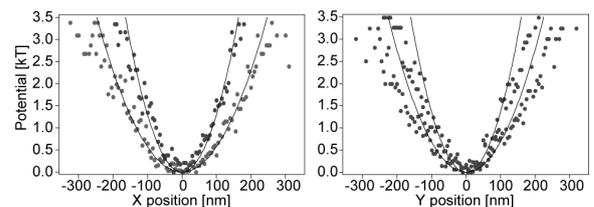


図2. 金ナノブロックペアの長軸(X)及び短軸(Y)方向においてナノ粒子に作用する捕捉ポテンシャル。入射光強度: (青) 15 kW/cm²、(赤) 30 kW/cm²。

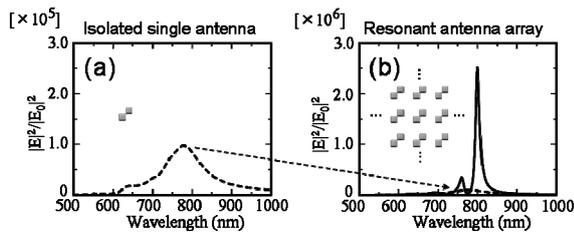


図3. ナノギャップ部における局在場スペクトル (a) 単独で存在する金ナノ構造、(b) アレイ状に配置した共鳴する金ナノ構造。

間に共鳴が起こり、光局在場がより増強されることが期待される。我々は、有限要素法に基づく数値計算により、正方格子状に配置した金属ナノ粒子ペアの適切な共鳴条件を検討した。計算モデルでは、ガラス基板中の空気中に金ナノブロックペアを配置し、無限に続くアレイ構造を表現するため周期境界条件を適用した。図3に、ギャップ部分での光局在場スペクトルを示す。単独で存在する場合(a)には、スペクトル幅は約100 nm、ピーク強度は約 10^6 であった。一方、アレイ状構造において隣接する金属ナノ粒子ペアの間隔を徐々に変化させていくと、530 nm付近で鋭い共鳴ピークが現れた。この共鳴条件(b)において、スペクトル幅は約20 nmと狭まり、ピーク強度は約 2.5×10^6 と単独で存在する場合に比べ、一桁以上も増強することが分かった。なお、強度は金ナノブロックペアが存在しない場合での光強度($|E_0|^2$)で規格化している。この結果は、適切な金属ナノ粒子ペアのアレイ状配置により、光局在場を大幅に増強させることが可能であること示唆している。今後のサンプル設計に役立てていきたい。

(d) テーパーファイバ結合トロイド共振器を利用した高効率局在プラズモン励起システムの構築

光と金属ナノ構造との相互作用により金属ナノ構造の表面近傍に入射光の電場より遙かに強い光局在場(局在表面プラズモン)が生じ、この光局在場を利用した光反応の増強効果が様々な分野で研究されている。しかし、局在プラズモンを励起させる際に、伝搬光のモード断面積と金属ナノ構造サイズとの間のミスマッチにより、伝搬光を金属ナ

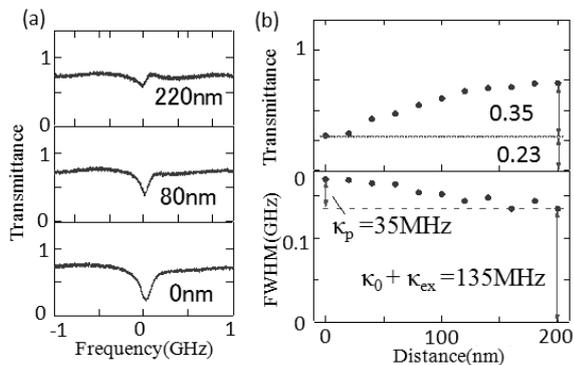


図4. (a) 各トロイド-探針間距離に対する透過率スペクトルと (b) 共鳴ディップの透過率と線幅のトロイド-探針間距離依存性。

ノ構造に効率よく結合させる事は困難である。この問題に対して、高Q値微小共振器を介す事により、局在プラズモン共鳴と共振器の共鳴効果によって、金属ナノ構造のナノメートルスケールの微小空間に100%の光結合効率で全入射光エネルギーを集光する事が可能となる。この100%光結合を実現する為、昨年度に引き続き、本研究所内の西井教授のグループと共同で作製した高Q値かつモード選択性の高いトロイド共振器を用い、テーパーファイバ結合トロイド共振器と金属ナノ構造(金コートAFMチップ)間の高効率光結合について研究を行った。その結果、金コートAFMチップがトロイド表面に近づくに従い、共鳴波長においてテーパーファイバ端から出射する光透過率が減少する様子を確認した(図4)。透過率および共鳴ディップの半値全幅の変化量から、入射光を金コートAFMチップの局所領域(消光断面積 440 nm^2 に相当)に約35%の結合効率で集光させる事に成功した。

(e) ITO 基板上的の単一CdSe/ZnS 量子ドット発光特性の電場依存性

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るQDsの帯電化によって起きると考えられており、QDsの置かれた基板表面状態に強く依存すると期待される。昨年度は、産業的に重要な透明電極(ITO)基板上における単一量子ドットの振る舞いについて報告を行い、基板に依存したトラップ状態の変化が量子ドットの発光特性に対して重要な役割を果たしている事を示した。本年度はさらにQDsをITO基板で挟み込んだ構造を作製し、QDsに外部電場を印加した状態でのQDsの発光特性について、光子検出時間差(PIT)測定により発光ダイナミクスやトラップ状態について解析を行った。図5は、印加する外部電場を(a)0、(b)-300、(c)+300 kV/cmとした際の発光強度の時間変化を示している。結果から、外部電場の振幅と極性に依りて、発光明滅の挙動が変化している様子が確認できる。また、同時に行

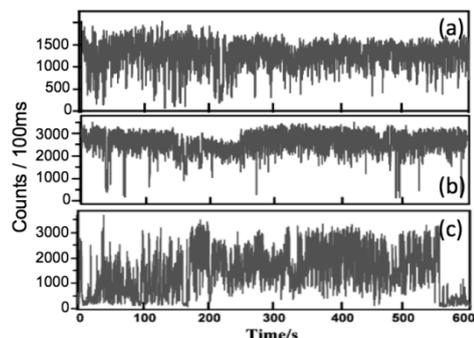


図5. ITO 基板上における CdSe/ZnS 量子ドットの発光強度の時間変化の外部電場依存性。それぞれ外部電場が (a) 0、(b) -300、(c) +300 kV/cm の場合。

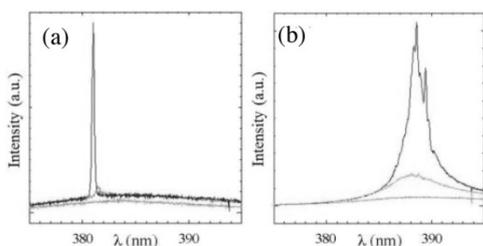


図6. 欠陥を導入した ZnO ランダム構造の測定結果。
(a)欠陥、及び、(b)欠陥以外の場所におけるレーザー発振スペクトル。

ったPIT測定の結果から、 $-300 (+300)$ kV/cmの電場印加を行った際にトラップ準位からの回復レートが増加(減少)する様子を確認できた事から、ITO基板上では、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発光明滅抑制の主な原因であると考えられ、印加電場によってITO表面の電子密度を変化させる事で単一-QDsの発光特性が変化する事を確認した。

(f) 酸化亜鉛ナノ粒子フィルム内欠陥を用いたランダムレーザー発振

近年、波長オーダーの不規則な屈折率分布をもつランダム構造を用いたレーザー発振や増強自然放出、光双安定等の非線形現象に関する研究が盛んに報告されている。この構造は、簡便・安価に作製できる利点を持つが、空間的・周波数的に局在モードを制御する事は困難である。これに対して我々は、構造中に散乱体を配置しない欠陥領域を設けるだけの簡便な局在モード制御方法を数値解析的に提案してきた。本年度は、欠陥を導入した酸化亜鉛(ZnO)ナノ粒子ランダム構造中に誘起されるレーザー発振特性の測定を行う事によって、本提案手法による局在モード制御方法の実験的な検証を試みた。その結果、欠陥と欠陥以外の場所で測定した発振スペクトル(図6)を比較すると、欠陥以外ではZnOの発光ピークにおいてマルチモードの典型的なランダムレーザー発振が誘起されているのに対し、欠陥においては、発光ピークとは異なる短波長側の波長域において、ほぼ単一モードの発振ピークが確認できた。さらに、欠陥におけるしきい値(6 MW/cm^2)が欠陥以外でのしきい値(80 MW/cm^2)に比べて約13倍も低くなっている事や、欠陥付近に強く局在したレーザー発振強度分布が確認できたことから、欠陥の導入によってレーザー発振特性が大きく変化し、欠陥において低しきい値かつ少数モードのレーザー発振が誘起される事を示した。

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、「もつれ合い局在プラズモンによる超高効率2光子反応プロセス」、「プラズモン局在場による放射圧クーリング」、「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」、「不規則構造を利用した高効率光捕集構造の開発」、「1

分子光捕捉を目指したプラズモニックナノ構造の作製」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の開発、(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

- 1) Y. Tanaka and K. Sasaki: "Efficient optical trapping using small arrays of plasmonic nanoblock pairs", *Appl. Phys. Lett.*, 100: 021102/1-021102/3 (2012)
- 2) Y. Tanaka and K. Sasaki: "Optical trapping through the localized surfaceplasmon resonance of engineered gold nanoblock pairs", *Opt. Exp.*, 19(18): 17462-17468 (2011)
- 3) H. Fujiwara, H. Ota, T. Chiba and K. Sasaki: "Temporal response analysis of trap states of single CdSe/ZnS quantum dots on a thin metal substrate", *J. Photochem. Photobiol., A*, 221(2-3): 160-163 (2011)
- 4) Y. Miyamoto, D. Kawase, M. Takeda, K. Sasaki and S. Takeuchi: "Detection of superposition in the orbital angular momentum of photons without excess components and its application in the verification of non-classical correlation", *J. Opt.*, 13(6): 064027- (2011)
- 5) Y. Tanaka, H. Ishiguro, H. Fujiwara, Y. Yokota, K. Ueno, H. Misawa and K. Sasaki: "Direct Imaging of Nanogap-mode Plasmon-resonant Fields", *Opt. Exp.*, 19(8): 7726-7733 (2011)

4.2 解説・総説・評論等

- 1) 田中嘉人、藤原英樹、笹木敬司: 「ナノギャップ局在プラズモンの直接観察」、*化学工業*、62(5): 33-38 (2011)

4.7 講演

a. 招待講演

- 1) 笹木敬司*: 「局在プラズモン結合微小光共振器を用いた超高効率プロセスシステムの構築」、*光科学技術研究振興財団 研究助成報告講演会、光科学技術研究振興財団* (2012-03)
- 2) 笹木敬司*: 「プラズモン局在場のナノイメージング」、*理研電子研連携セミナー、北海道大学電子科学研究所1階会議室* (2011-12-2)
- 3) 田中嘉人*、笹木敬司: 「ナノギャップ局在プラズモンの高空間分解イメージング」、*日本分光学会北海道支部シンポジウム、北海道大学 創成科学研究棟* (2011-10)

- 4) 笹木敬司* : 「光局在场におけるフォトンのふるまい」、プラズモン化学シンポジウム、日本科学未来館 (2011-09)

b. 一般講演

- 1) 田中嘉人*、笹木敬司 : 「ナノ粒子に作用する局在プラズモン増強放射圧のポテンシャル解析」、2012年春季第59回応用物理学関係連合講演会、早稲田大学 早稲田キャンパス (2012-03)

- 2) R. Fang*, K. Kitajima, H. Takashima, H. Fujiwara and K. Sasaki: “Second harmonic generation by an efficient localized plasmon excitation using a tapered fiber-coupled microsphere”, 2012年春季第59回応用物理学関係連合講演会、早稲田大学 早稲田中・高等学校 興風館 (2012-03)

- 3) 酒井恭輔*、野村健介、田中嘉人、笹木敬司 : 「ナノギャップ周期構造の電場増強効果」、2012年春季第59回応用物理学関係連合講演会、早稲田大学 早稲田キャンパス (2012-03)

- 4) K. Sasaki*, H. Takashima, Y. Tanaka and H. Fujiwara: “Highly efficient photon coupling into a plasmonic nanostructure using a fiber-coupled microspherical cavity”, 2012 SPIE Photonics West, The Moscone Center, San Francisco, USA (2012-01)

- 5) H. Fujiwara*, Kun Sei, Hiroki Ohta, Takashi Chiba, and Keiji Sasaki: “Trap state lifetime analysis of single CdSe/ZnS quantum dots on a thin conductive film”, 2012 SPIE Photonics West, The Moscone Center, San Francisco, USA (2012-01)

- 6) 真田彬央*、田中嘉人、笹木敬司 : 「ナノギャップ局在プラズモン場によるナノ粒子の光捕捉解析」、第47回応用物理学学会北海道支部/第8回日本光学会北海道地区合同学術講演会、北海道大学 学術交流会館 (2012-01)

- 7) 北嶋千誉*、高島秀聡、藤原英樹、西井準治、笹木敬司 : 「テーパファイバ結合トロイド共振器を介した局在プラズモンの高効率励起」、第47回応用物理学学会北海道支部/第8回日本光学会北海道地区合同学術講演会、北海道大学 学術交流会館 (2012-01)

- 8) 兼田翔吾*、田中嘉人、笹木敬司 : 「ナノ粒子に作用するプラズモン局在场放射圧のポテンシャル解析」、第47回応用物理学学会北海道支部/第8回日本光学会北海道地区合同学術講演会、北海道大学 学術交流会館 (2012-01)

- 9) 千葉孝志*、藤原英樹、堀田純一、竹内繁樹、笹木敬司 : 「高分子薄膜中単一分子の三重項状態寿命解析による局所領域酸素濃度測定法の開発」、第47回応用物理学学会北海道支部/第8回日本光学会北海道地区合同学術講演会、北海道大学 学術交流会館 (2012-01)

- 10) 真田彬央*、田中嘉人、笹木敬司 : “Nano-optical trapping of small particles with plasmonic nanostructures”, 12th RIES-Hokudai International Symposium “KAN”, Chateraise

Gateaux Kingdom Sapporo (2011-11)

- 11) 笹木敬司* : “Efficient excitation of localized plasmons via a tapered fiber coupled microresonator”, 12th RIES-Hokudai International Symposium “KAN”, Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (2011-11)

- 12) 田中嘉人*、石黒裕康、藤原英樹、上野貢生、三澤弘明、笹木敬司 : 「ナノギャッププラズモン光局在场の直接観察」、日本光学会年次学術講演会 Optics & Photonics Japan 2011、大阪大学コンベンションセンター (2011-10)

- 13) 笹木敬司* : 「プラズモン光局在场中の単一ナノ粒子に作用する放射圧のポテンシャル解析」、日本光学会年次学術講演会 Optics & Photonics Japan 2011、大阪大学コンベンションセンター (2011-10)

- 14) 藤原英樹*、田中嘉人、高島秀聡、西井準治、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」、 「新エネルギー材料・デバイス」グループ研究会、北海道大学 学術交流会館 (2011-10)

- 15) 竹内繁樹*、笹木敬司、岡本亮、藤原正澄、高島秀聡、趙洪泉 : 「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」、総務省情報通信研究開発成果発表会・ICT重点技術の研究開発の推進第3回成果発表会、幕張メッセ国際会議場 (2011-10)

- 16) Y. Tanaka*, H. Ishiguro, H. Fujiwara, Y. Yokota, K. Ueno, H. Misawa and K. Sasaki: “Direct Observation of Nanogap-Mode Plasmon-Resonant Fields”, Nanoplasmonic Sensors and Spectroscopy 2011, Chalmers Johanneberg Campus, Gothenburg, Sweden (2011-09)

- 17) 真田彬央*、田中嘉人、笹木敬司 : 「ナノギャップ局在プラズモン場におけるナノ粒子の光捕捉解析」、2011年秋季 第72回 応用物理学学会学術講演会、山形大学小白川キャンパス (2011-08 ~ 2011-09)

- 18) K. Sei*, H. Ota, H. Fujiwara and K. Sasaki: “Temporal Response Analysis of Trap State of Single CdSe/ZnS Quantum Dots on a Thin ITO Substrate”, 2011年秋季 第72回 応用物理学学会学術講演会、山形大学小白川キャンパス (2011-8~2011-9)

- 19) 笹木敬司* : 「金コートAFMチップとファイバ結合トロイド共振器のカップリング」、2011年秋季 第72回 応用物理学学会学術講演会、山形大学小白川キャンパス (2011-8~2011-9)

- 20) 田中嘉人*、笹木敬司 : 「金ナノダイマーアレイを使った微粒子の光トラッピング」、2011年秋季 第72回 応用物理学学会学術講演会、山形大学小白川キャンパス (2011-8~2011-9)

4.8 シンポジウムの開催

- 1) 笹木敬司 : 「2011年度日本分光学会北海道支部シンポジウム」北海道大学創成科学研究棟(札幌市) (2011年10月6日)

4.10 予算獲得状況

a. 科学研究費補助金

- 1) 笹木敬司: 基盤研究(A)「もつれ合い局在プラズモンによる超高効率2光子反応プロセス」2011~2013年度
- 2) 笹木敬司: 萌芽研究「プラズモン局在場による放射圧クーリング」2011~2012年度
- 3) 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年度
- 4) 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ックナノ構造の作製」2010~2011年度

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年度

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~2012年3月31日)
- 2) 笹木敬司: 日本学術振興会 外部評価委員 (2011年5月20日~2012年3月31日)
- 3) 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~2012年11月30日)
- 4) 笹木敬司: 科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業 (CREST) 領域アドバイザー (2008年5月26日~2014年3月31日)
- 5) 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~2016年3月31日)
- 6) 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)
- 4) 笹木敬司: 応用物理学会刊行委員 (2012年3月12日~現在)
- 5) 笹木敬司: 日本分光学会北海道支部長 (2011年4月1日~2013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~2013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、

笹木敬司、2011年12月7日~2011年12月9日

- 2) 情報科学研究科、電子情報工学演習II、笹木敬司、2011年10月1日~2012年3月31日
- 3) 工学部、電磁気学、藤原英樹、2011年10月1日~2012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、2011年10月1日~2012年3月31日
- 5) 全学共通、環境と人間: 量子から生命まで、光とナノテクで切り拓く最先端科学、藤原英樹、2011年5月6日
- 6) 情報科学研究科、情報エレクトロニクス特別研究第二、笹木敬司、2011年4月1日~2012年3月31日
- 7) 情報科学研究科、情報エレクトロニクス特別演習、笹木敬司、2011年4月1日~2012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、2011年4月1日~2012年3月31日
- 9) 工学部、光エレクトロニクス、笹木敬司、2011年4月1日~2011年9月30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

・博士課程 (1名)

- 1) シャーラル カドリ ビン アヨブ
“Photothermally induced vibration of an optically driven atomic force microscope cantilever”

・修士課程 (3名)

- 1) 北嶋千誉:「テーパファイバ結合トロイド共振器を利用した高効率局在プラズモン励起システムの構築」
- 2) 真田彬央:「ナノギャップ局在プラズモンによるナノ粒子の光捕捉」
- 3) 齊 君:「ITO 基板上的の単一CdSe/ZnS 量子ドット発光ダイナミクスの解析」

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～)
博士研究員 飯島光一郎 (京大院、生命科学博、
2012.1～)
修士1年 一本嶋佐理、武田和樹
学部4年 青柳佑佳、澤田和明
学部3年 伊藤里紗、長内尚之、渡邊裕貴
技術補佐員 菊池 東 (2010.6～2012.3)
技術補佐員 小泉絢花 (2010.10～2012.3)
技術補佐員 洞内 響 (2011.6～)
事務補佐員 高藤志帆 (2010.9～)

1. 研究目標

本年度は新たに飯島光一郎博士を博士研究員として採用した。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生体用“*in vivo*”2光子顕微鏡システムを構築することに成功した(図1)。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てきた。一方で、他の臓器、観察対象では、同様の観察に成功したという報告は少なく、脳神経系ほどには盛んに使用されているとは言い難い。我々は一連の“*in vivo*”2光子顕微鏡システムを用いた研究によって、その原因は標本の種類や観察部位に依存した光学的なパラメーターの非一様性にあることを見出した。現在、多様な臓器や生組織への応用を図っている。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観察との同時実行は、組織由来の波長依存的な収差のため困難であった。これらの問題点を克服すべく、光学的パラメーターの計測とレーザー光導入光学系の改良を開始した。

特に、昨年度に引き続き、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

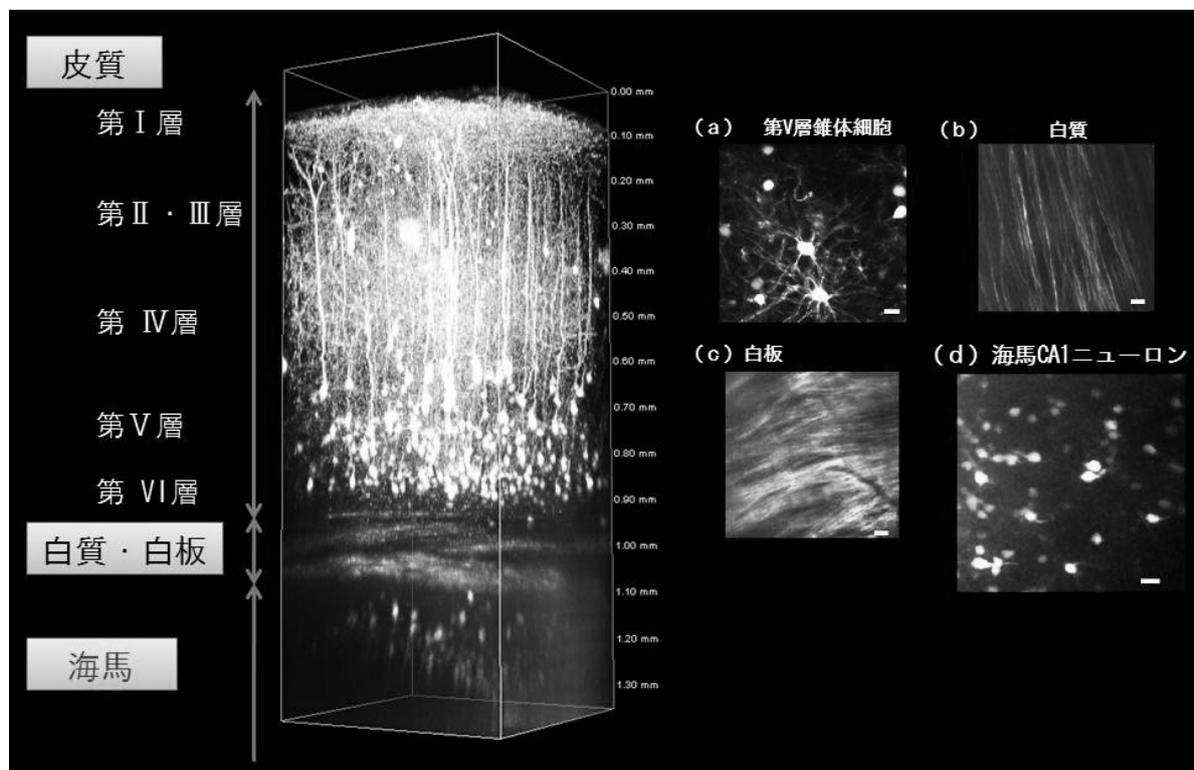


図1. “*in vivo*”2光子顕微鏡は生体内の組織の深部を高分解能で長期間観察が可能である。麻醉下のマウス大脳新皮質の神経細胞及び海馬CA1ニューロン。

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。今までの大脳新皮質の“*in vivo*” 2光子イメージングにおける研究成果に基づき、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 1.4 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、白板、海馬 CA1 領域の神経も蛍光 *in vivo* 観察することを可能とした(図1)。これは新型蛍光検出器の採用による高感度化や外科手術法の改良などが重要な要因であった。

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、無染色の脳硬膜の *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など様々な繊維性の生体組織の断層イメージングに有効であり、コラーゲン線維、軟骨、骨組織のイメージングにも適用できた。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タログにも採用された。

さらに、マウス生体脳の *in vivo* 観察の高度化と他の臓器応用を目的とし、レーザー照射条件、特に有効 NA と補正缶効果の検索を行った。その結果、深部イメージングにおいて最適な照射条件は浅層とは異なっていることが判明した。また、固定脳における深部イメージングの改善のため、透徹剤として有力な試薬の候補を発見することに成功した。前者は工学部情報エレクトロニクス学科生体情報コースの澤田和明君の、後者は同、青柳祐佳君の卒業研究となった。

さらに、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) において、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。

私たちの大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。この機能の非対称性の問題を解明すべく、“*in vivo*”多光子顕微鏡によるイメージングに加え、“*in vivo*”光刺激やパッチクランプ法と言った電気生理学や子宮内遺伝子導入法といった遺伝子工学技術を融合させるべく実験を進めている。

(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」において、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タ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 PCT 出願を行った。また本超解像イメージング技術を実際の生物サンプルへの応用を推進し、日本バイオイメージング学会において筆頭発表者である情

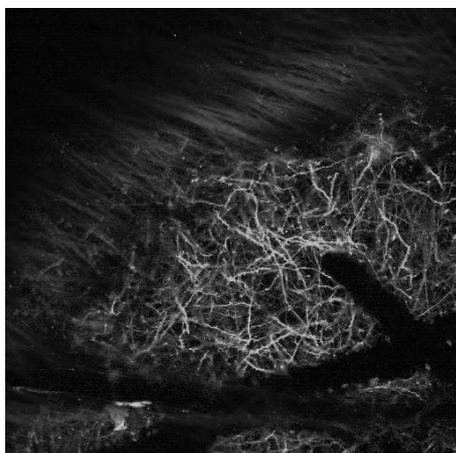


図2. 第2次高調波発生 (SHG) イメージングによるマウス脳硬膜の *in vivo* 可視化(紫色)。神経細胞を EYFP の 2光子励起蛍光(緑色)により同時観察が可能である。

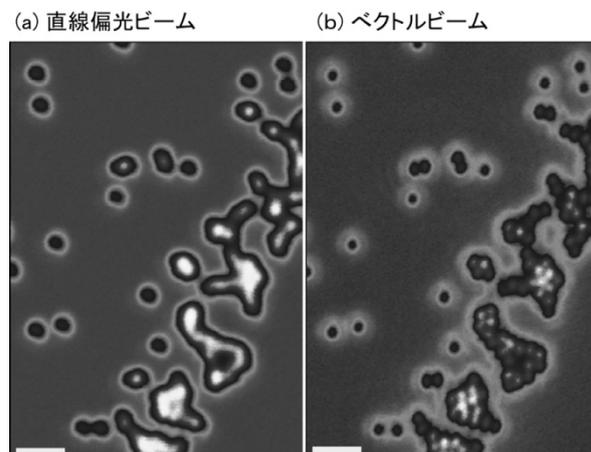


図3. 直径 173 nm の蛍光ビーズの共焦点顕微鏡像。ベクトルビームを用いることで個々のビーズが識別可能となった

報科学研究科生命人間科学専攻修士課程1年の一本嶋佐理君が「ベストイメージング賞」を受賞した。

一方、ベクトルビームによる“*in vivo*”2光子イメージングの向上を目指して、東北大学NiChe横山研究室から新型の近赤外ピコ秒パルスレーザーの提供を受け、その可能性を検討した。その結果、この新型光源を用いても、1.4mmを越える深部到達性が実現出来ることを、マウス生体脳において確認することができた。

(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（旧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の可視化を進めた。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。また、大阪大学大学院医学系研究科原田彰宏教授との共同研究により、SNARE分子を条件的ノックアウトしたトランスジェニックマウスを用い、膵臓外分泌腺におけるCa²⁺依存性開口放出におけるSNARE分子の生理機能の検討を行った。

また、自然科学研究機構基礎生物学研究所との共同研究として、以下の実験を実施した。同研究所の野中茂紀准教授が、旧ナノシステム生理学研究分野永井健治教授の開発した新規蛍光タンパク質型Ca²⁺プローブ“カメレオン・ナノ”を発現するトランスジェニックマウスを確立した。そこで、これを用いて膵臓外分泌腺のCa²⁺依存性開口放出の定量的な可視化解析を実施した。その結果、生理的に正常な逐次開口放出と同時に、生理的な一方向性Ca²⁺波動のイメージングに成功した。これらの結果は、“カメレオン・ナノ”が生体内での生理的なCa²⁺依存性の細胞機能を阻害することなく、高感度で、生理機能の可視化解析を可能とする方法論であるということが示唆された。

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、株化細胞の脂肪細胞モデルを確立した。

(d) 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についても引き続き検討した。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。共同研究拠点においては、生理学研究所鍋倉淳一教授グループと、原書論文を発表した。

その他、奈良先端大・杉浦忠男准教授と、生体脳深部のニューロン形態の自動解析に関する研究を開始した。また、北海道大学医学系研究科や人獣共通感染症センター等から“*in vivo*”2光子イメージングについての相談を受け、いくつかは共同研究をスタートさせた。

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、破綻として病理的理解にある。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的理解を推進し、広く国民の福祉へと還元していきたいと考える。

4. 資料

4.1 原著論文

- 1) Y. Kozawa†, T. Hibi†, A. Sato, H. Horanai, M. Kurihara, N. Hashimoto, H. Yokoyama, T. Nemoto and S. Sato: “Lateral resolution enhancement of laser scanning microscopy by higher-order radially polarized mode beam”, *Opt. Express*, 19(17): 15947–15954 (2011) (†: equally contributed)
- 2) H. Inada, M. Watanabe, T. Uchida, H. Ishibashi, Hiroaki Wake, T. Nemoto, Y. Yanagawa, A. Fukuda, J. Nabekura “GABA regulates the multidirectional tangential migration of GABAergic interneurons in living neonatal mice”, *PLoS ONE*, 6(12): e27048 (2011)
- 3) M. Sawada, N. Kaneko, H. Inada, H. Wake, Y. Kato, Y. Yanagawa, K. Kobayashi, T. Nemoto, J. Nabekura, and K. Sawamoto: “Sensory input regulates spatial and subtype-specific patterns of neuronal turnover in the adult olfactory bulb”, *J. Neurosci.*, 31:11587–11596 (2011)
- 4) A. Tanabe, Yuka Saito, Makoto Kurihara, Nobuyuki Hashimoto, Yuichi Kozawa, Shunichi Sato, Terumasa Hibi, Tomomi Nemoto, “Observation of PDLCS by SHG laser scanning microscopy using a liquid crystal vector beam generator”, *Proc SPIE*, 8279–20 (2012)

4.2 総説・解説・評論等

- 1) 根本知己: 「多光子励起レーザー顕微鏡を用いた生理機能の非侵襲的生体深部イメージング」、*ファルマシア*、47(8): 724–728 (2011)
- 2) 根本知己: 「細胞生物学における超解像イメージング技術の展開」、*パリティ*、26(6): 44–49 (2011)

4.4 著書

- 1) 根本知己、第4章3–4「多光子励起生体イメージング」pp.411–414「トランポソームの世界」(金井他編) 京都廣川書店 (2011)
- 2) 根本知己、日比輝正、川上良介「2光子蛍光イメージング」、「発光の事典」(木下、太田、永井、南(共編)) 第6.3.2節、朝倉書店 (印刷中)

4.5 受賞

- 1) 一本嶋佐理、日比輝正、小澤祐市、洞内響、佐藤綾耶、栗原誠、橋本信之、横山弘之、佐藤俊一、根本知己: ベストイメージング賞「高次径偏光ビームによる超解像イメージング」(第20回日本バイオイメージング学会学術集会) 2011年9月

4.6 特許

ii) 国際特許

- 1) MICROSCOPE DEVICE, OPTICAL PICKUP DEVICE,

AND LIGHT IRRADIATION DEVICE”, Investigator: SATO, Shunichi; (JP)KOZAWA, Yuichi; (JP).YOKOYAMA, Hiroyuki; (JP).NEMOTO, Tomomi; (JP).HIBI, Terumasa; (JP).HASHIMOTO, Nobuyuki; (JP).KURIHARA, Makoto; (JP), 2011 Sep. 1,

4.7 講演

a. 招待講演

i) 学会

- 1) 根本知己*: 「生理機能イメージングの深層化と超解像化を目指す新規多光子レーザー顕微鏡」、日本薬学会第132年会、北海道大学 (2012-03)
- 2) 野中茂紀、今村健志、大嶋佑介、佐瀬一郎、根本知己*: 「生体深部 in vivo イメージングのための多光子顕微鏡の新規開発と無染色イメージング技術の新展開」、画像科学シンポジウム・バイオイメージングフォーラム、自然科学研究機構 (2012-03)
- 3) 日比輝正*、根本知己: 「新規超解像顕微鏡の開発と医学研究への応用」、第34回日本分子生物学会年会、パシフィコ横浜 (2011-12)
- 4) 根本知己*、川上良介、日比輝正、佐藤綾耶、佐藤俊一、横山弘之: 「ベクトルビームによるレーザー走査型顕微鏡の超解像化」、第4回文部科学省「最先端の光の創成を目指したネットワーク研究拠点プログラム」シンポジウム、名古屋キャッスルプラザホテル (2011-11)
- 5) R. Kawakami, T. Hibi and T. Nemoto*: “Development of “in vivo” multi-photon and super-resolution microscopy for elucidation of neural activity”, the Institut Européen de Chimie et Biologie (IECB), Bordeaux, France (2011-10)
- 6) T. Nemoto*: “Development in laser scanning microscopy using two-photon excitation process and vector beam”, International Symposium on Photonic Bioimaging 2011, Niseko (2011-02)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 根本知己*、日比輝正、川上良介、一本嶋佐理、青柳佑佳、澤田和明: 「2光子顕微鏡によるイメージング技術の高度化」、第1回伊香保BSの会、群馬大学医学部 (2012-03)
- 2) 根本知己*: 「多光子励起過程を用いた生体機能のイメージング」、平成23年度 物質・デバイス領域共同研究拠点特定研究[A-1] 公開ワークショップ「量子もつれ光を用いた、新しい物質・材料・生命研究の創成」、大阪大学産業科学研究所 (2012-02)
- 3) 根本知己*: 「多光子顕微鏡の原理とその深部解像と超解像化」、第18回細胞生物学ワークショップ、北海道大学 (2011-11)
- 4) 根本知己*: 「2光子励起法による組織内イメージング」、第20回 浜松医科大学 メディカルホトニクス・コースシンポジウム「光はどこまで見えるか」、浜松医科大学 (2011-08)

- 5) 根本知己*:「非線形光学過程による生体深部イメージングとその超解像化への試み」、第15回NMRマイクロイメージング研究会、自然科学研究機構岡崎コンファレンスセンター (2011-08)
- 6) 根本知己*:「2光子顕微鏡の原理と応用」、平成23年度新学術「生体蛍光イメージング」、平成23年度新学術「生体蛍光イメージング」講習会(愛媛大学医学部)、愛媛大学 (2011-07)

iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 根本知己*:「二光子顕微鏡を用いた生体イメージングの基礎と応用」、第11回再生医学分野公開セミナー(第17回分子研セミナー)、名古屋市立大学医学部 (2012-03)
- 2) T. Nemoto*: “Development of “in vivo” multi-photon and super-resolution microscopy for elucidation of neural and secretory activities”, 理研ASI 細胞システムコロキウム、理化学研究所(和光市) (2012-01)
- 3) 根本知己*:「2光子励起法を用いた組織内イメージング」、早稲田大学生命医科学科講演会、早稲田大学先端生命医科学センター (2011-09) 4)
- 4) 根本知己*:「多光子顕微鏡による生体“in vivo”イメージングの高度化と超解像化」、第3回 BioOpto Japan コンファレンス、パシフィコ横浜、横浜市 (2011-09)
- 5) T. Nemoto*: ““in vivo” functional imaging of cell physiology by using multi-photon excitation process”, ETH seminar, Eidgenössische Technische Hochschule, Zürich, Switzerland (2011-04)

b. 一般講演

i) 学会

- 1) 日比輝正*、小澤祐市、一本嶋佐理、洞内響、佐藤綾耶、栗原誠、橋本信之、横山弘之、佐藤俊一、根本知己:「高次径偏光ビームによるレーザー顕微鏡の分解能の向上」日本薬学会第132回年会 (2012-3)
- 2) 日比輝正*、小澤祐市、一本嶋佐理、洞内響、佐藤綾耶、栗原誠、橋本信之、横山弘之、佐藤俊一、根本知己:「ベクトルビームの利用によるレーザー走査型顕微鏡の分解能の向上」、「定量生物の会」第4回年会、名古屋大学野依記念学術交流館 (2012-01)
- 3) 一本嶋佐理*、日比輝正、小澤祐市、洞内響、佐藤綾耶、栗原誠、橋本信之、横山弘之、佐藤俊一、根本知己:「高次径偏光ビームによる超解像イメージング」、第20回日本バイオイメージング学会学術集会、千歳科学技術大学 (2011-09)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 川上良介*:「生体マウス脳における皮質全層および海馬錐体細胞の超深部 in vivo イメージング」第1回伊香保BSの会、群馬大学医学部 (2012-3)
- 2) 飯島光一朗*:「小脳顆粒細胞におけるNR2サブユニット転換機構の解析」第1回伊香保BSの会、群馬大学医学部 (2012-3)

- 3) 川上良介*:「生体マウス脳における皮質全層および海馬錐体細胞の超深部 in vivo イメージング」第2回 vivid workshop、石川県加賀市瑠璃光 (2012-3)
- 4) 日比輝正*:「液晶位相変調素子を利用したレーザー走査型顕微鏡の改良」第2回 vivid workshop、石川県加賀市瑠璃光 (2012-3)
- 5) 飯島光一朗*:「小脳顆粒細胞におけるNR2サブユニットの転換機構について」第2回 vivid workshop、石川県加賀市瑠璃光 (2012-3)
- 6) 川上良介、日比輝正、佐藤綾耶、佐藤俊一、横山弘之、根本知己*:「生体脳組織イメージングに適した in vivo 多光子顕微鏡の開発」第4回文部科学省「最先端の光の創成を目指したネットワーク研究拠点プログラム」シンポジウム、名古屋キャッスルプラザホテル (2011-11)
- 7) 一本嶋佐理、日比輝正、小澤祐市、洞内響、佐藤綾耶、栗原誠、橋本信幸、横山弘之、佐藤俊一、根本知己*:「ベクトルビームによるレーザー走査型顕微鏡の超解像化」第4回文部科学省「最先端の光の創成を目指したネットワーク研究拠点プログラム」シンポジウム、名古屋キャッスルプラザホテル (2011-11)

- 8) R. Kawakami and T. Hibi and T. Nemoto*: “Development of in vivo multi-photon microscopy for elucidation of neural activity with morphological changes in living mouse brain”, 12th RIES-Hokudai International Symposium, Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (2011-11)
- 9) 小澤祐市*、日比輝正、佐藤綾耶、洞内響、栗原誠、橋本信幸、横山弘之、根本知己、佐藤俊一:「高次径偏光モードビームを用いたレーザー走査型顕微鏡の分解能向上」第4回東北大学光科学技術フォーラム、東北大学電気通信研究所 (2011-11)

iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 小澤祐市*、日比輝正、佐藤綾耶、洞内響、栗原誠、橋本信幸、横山弘之、根本知己、佐藤俊一:「高次径偏光モードビームを用いたレーザー走査型顕微鏡の分解能向上」科学技術振興機構CREST光展開領域報告会大田区産業プラザPiO (2011-10)

4.8 シンポジウムの開催

- 1) 根本知己、今村健志:「第34回日本分子生物学会年会・ワークショップ「今村新規光源を駆使した生体光イメージングと光操作の新展開」、パシフィコ横浜(横浜) (2011年12月13日～2011年12月16日)
- 2) T. Nemoto: “北海道大学電子科学研究所国際シンポジウム運営委員”、ガトーキングダムホテル(札幌) (2011年11月21日～2011年11月22日)
- 3) 松田道行、根本知己:「第63回日本細胞生物学会・新学術領「蛍光生体イメージ」公開サテライトシンポジウム」、北海道大学(札幌市) (2011年6月29日)

4.9 共同研究

d. 受託研究

- 1) 根本知己 (科学技術振興機構) : 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 (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」

i. その他

- 1) 根本知己、川上良介、日比輝正 (北海道大学人獣共通感染症リサーチセンター) : 「免疫細胞の食作用における in vivo イメージング法の確立」、2011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、野中茂紀、日比輝正、川上良介、武田 和樹 (自然科学研究機構基礎生物学研究所) : 「「カメレオン・ナノ」トランスジェニックマウスを用いた Ca^{2+} 依存性分泌機能の 2光子可視化解析」、2011年度、基礎生物学研究所個別共同研究

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) 日比輝正、若手研究 B、超解像多光子顕微鏡による機能特化細胞の膜動態イメージング、2011～2012年度
- 2) 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
- 3) 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)

4.12 社会教育活動

b. 国内外の学会の役職

- 1) 根本知己 : 日本分光学会・生細胞分光部会、幹事 (2006年1月1日～現在)
- 2) 根本知己 : 日本ナノメデイシン交流協会・理事、運営委員 (2006年4月1日～現在)

c. 併任・兼業

- 1) 根本知己 : 科学技術振興機構 専門委員 (2010年～現在)

g. 北大での担当授業科目

- 1) 全学共通、2030年エレクトロニクスの旅、根本知己、2012年1月31日
- 2) 工学部、生体工学概論、根本知己、2012年1月10日
- 3) 全学共通、生体医工学基礎、根本知己、2012年1月10日
- 4) 工学部、応用物性工学、根本知己、2011年10月1日～

2012年3月31日

- 5) 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) 集中講義、根本知己、2011年7月6日～2011年7月8日
- 6) 全学共通、環境と人間 : 量子から生命まで、光とナノテクで切り拓く最先端科学、根本知己、2011年6月17日
- 7) 全学共通、生物学 I、根本知己、2011年4月1日～2011年9月30日
- 8) 情報科学研究科、脳機能工学特論、根本知己、2011年4月1日～2011年9月30日

i. ポスドク・客員研究員など

- ・ポスドク (1名)
- 1) 飯島光一朗 (博士研究員)

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~)
特任助教 河合信之輔 (京大院、理博、2011.4~)
博士研究員 伊藤正寛 (2009.6~2011.9)
学 生

博士課程後期

Tahmina Sultana (生命科学院生命融合科学コース)
永幡 裕 (生命科学院 生命融合科学コース)
宮川尚紀 (理学院数学専攻)
Preetom Nag (生命科学院 生命融合科学コース)

博士課程前期

柳 舟 (生命科学院生命融合科学コース)
菊池正浩 (生命科学院生命融合科学コース)
千葉勇太 (生命科学院生命融合科学コース)

1. 研究目標

生体分子、細胞、組織、そして個体に至る生命システムは常に外界に晒(さら)されながら、マイクロレベルでの“刺激”がマクロレベルまで伝達し頑健な機能を作り出している。生体系の反応現象の多くは、複雑な中に特異性、すなわち、選択性・機能性を保有していて、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) 一分子酵素反応の動態解析における虚実:我々は何を
観ているのか?

酵素反応は、生体内代謝、活性調節、分子認識の仕組みを理解するうえで中心的な役割を果たすことが知られています。近年の観察技術の進歩は、反応が起っている最中に個々の酵素をリアルタイムに一分子レベルで観察することを可能にしました。近年、一分子レベルで実際に生起する酵素反応では、各素過程の反応速度定数は酵素分子がもつ多様な構造毎に異なり、酵素反応はゆっくりと変化する酵素分子の多型構造に由来して多様な時間スケールの揺らぎを持つと解釈されています (Dynamic disorder と呼ばれています) (Nature Chem. Bio. 2, 87 (2006))。

一分子蛍光分光法では、酵素反応における反応過程は、基質分子が酵素分子に結合する「オン」状態、基質分子が酵素分子から離れる「オフ」状態の2つの状態間の遷移の時系列データから評価されます(図1)。もっともよく使われている状態同定法は、時間軸に沿ったフォトン列をある一定の時間幅でビンニング処理を行って蛍光強度の時系列に変換したのち、適当な閾(しきい)値を設定し、その閾値よりも高い(低い)蛍光強度をもつ時間領域をオン(オフ)状態と同定します。そして、そのオン・オフ状態の時系列データが有する(多様な時間スケールをもつ)キネティックスから酵素の構造多型性の重要性が提唱されてきました。

本研究では、計算機シミュレーションならびα-キモトリブシンの一分子観察データに対して、この従来法と(情報理論に依拠する)変化点解析を適用し、それらの結果を系統的に比較しました。その結果、シグナル/ノイズ比が無視できない場合ならびにバックグラウンドノイズが一定でない場合は、従来法は誤った解釈を導く可能性が極めて高い

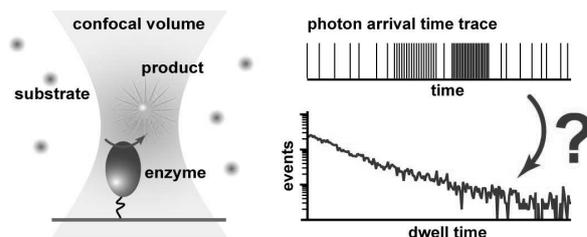
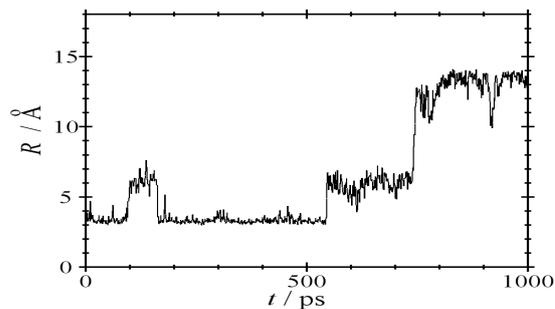
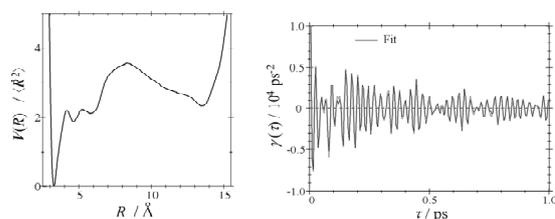


図1. (左) 蛍光基質を伴う単一酵素反応のターンオーバーを検知する1分子酵素実験。
(右) 光子到着時間を時系列で収集したデータ。一つの光子バーストが触媒サイクルの終了と次のサイクルの始まりを示している。

例えば生体高分子は1個の分子が千〜万単位の数の原子から成っており、それをアヴォガドロ数オーダーの溶媒分子が取り囲んでいる。本研究では、大規模の全原子レベルMDシミュレーションの結果の解析を通じて、系の本質部分を記述するに必要十分な自由度が何かという問いを追究した。生体分子Met-enkephalinの構造転移反応を対象とし、常温水中での分子動力学シミュレーションを行い、その結果からMet-enkephalinの末端間距離 R の時系列を得て、統計的解析によってその変数の従う運動方程式を導き出した。 R の従う運動方程式として、仮定無しに一般的に成立する事が証明されている一般化ランジュバン方程式(GLE)という記述を用いた。これは選んだ変数の運動に対する周囲の自由度からの影響を摩擦力やランダム力として記述する手法である。シミュレーションから得られた R の時系列(のごく一部)と、 R が従うGLEに現れる平均力ポテンシャルと摩擦核を図2に示す。抽出された摩擦核は、 R と周囲の環境との間の動的な相互作用をあらわしており、その関数形から R と強く相互作用している周囲の自由度の情報を取り出す事が可能である。ここでは、摩擦核の働きをいくつかの実効的な変数で表現し、この変数を環境自由度と解釈した。このようにして現象を記述する上で十分と考えられる数の環境自由度を抽出した後、それらと元の原子の座標との関係を明らかにするためにシミュレーションで得られた全原子データと本手法で得た環境自由度の時系列との相関の大きさを調べた。この解析により、どの原子のどのような動きが「環境」としてMet-enkephalin分子の構造転移運動に関与しているのかが明らかとなった。



$$\ddot{R}(t) = -\frac{\partial V(R)}{\partial R} - \int_0^t \gamma(t-t')\dot{R}(t')dt' + \xi(t)$$



$$\frac{d^2}{dt^2} R = -\frac{\partial V(R)}{\partial R} - \sum_n \zeta_n + \xi(t)$$

$$\frac{d}{dt} \zeta_n = -\mu_n \zeta_n + A_n \dot{R}$$

(3) 生体分子の構造転移を水はどう妨げ/助けるか? 生体分子と水の協同運動モードの抽出

生体分子、特にタンパク質が機能を発現するためには、周辺の水の存在が欠かせない。タンパク質の機能は、タンパク質に与えられる外的な刺激、および、それに応答して引き起こされる一連の構造転移及び化学反応によって構成されていると考えられている。その見地に立ち、ここでは、タンパク質と類似の物性を持つMet-enkephalin分子の構造転移運動に周辺の水の運動がどのように参与しているのかを明らかにした。具体的には、まず、Met-enkephalin分子と水分子の協同運動モードを抽出するための方法論を構築した。それらの分子の運動は、Hamiltonの運動方程式に従っており、その運動方程式の時間推進演算子であるKoopman演算子と呼ばれる演算子の固有値、固有モードに反映される。本研究では、その演算子の離散固有値及び離散固有モードを抽出するための方法論を開発した。従来法との差異は、Hamiltonの運動方程式が時間反転可能であることを用い、早い減衰モードも安定に抽出することを可能とした点、従来の固有値決定アルゴリズムを、L¹最適化を用いて、改良することで、数値誤差等に対し安定になったという点にある。図3に、この提案法によって抽出したMet-enkephalinと水の協同モードを示す。構造転移モード

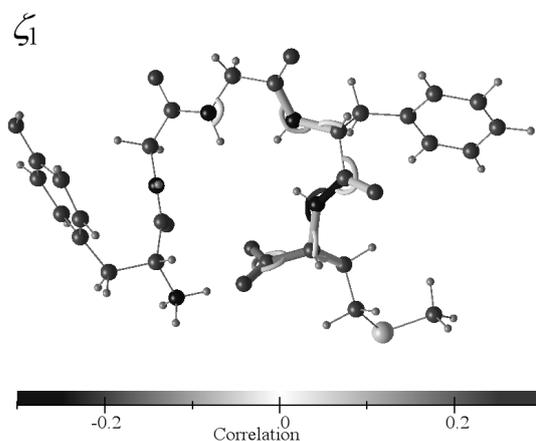


図2: MDシミュレーションで得られた、生体分子Met-enkephalinの末端間距離の時間変化の例と、それが従う一般化ランジュバン方程式。この方程式は、いくつかの実効的自由度を含む方程式と等価である。この変形によって得られた実効的環境自由度(の1つ)と分子座標(結合距離・角度)との相関を示す。

はMet-enkephalinだけに局在しているのではなく、周辺の水もそれに参与していることが明らかになった。

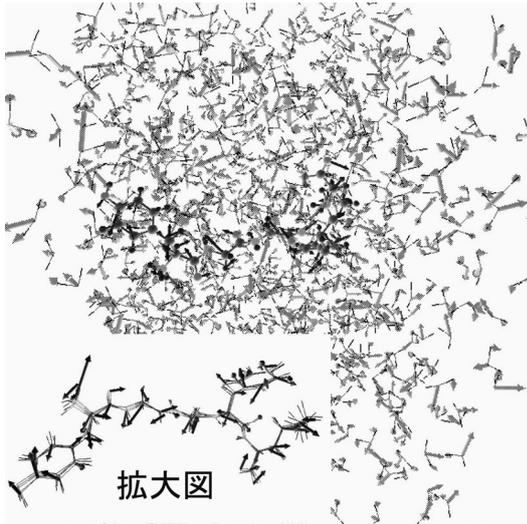


図3. 提案法によって抽出された水とMet-enkephalinの協同転移モード（比較のために、Met-enkephalinのみ取り出したものをmagnified figureとして同図左下に示す。）。Met-enkephalinの運動は周辺の水と強く動的に相関していることがわかる。

- (4) 生体組織分光技術を用いた食品の評価への応用—食肉からの自家発光を応用した劣化および異物検出技術の研究

本年度は、組織分光イメージング手法の応用の一つとして自家発光による生体組織評価を肉類の保存による劣化の評価に応用する研究を受託事業の一環として行った。紫外あるいは青色の光を肉類に照射した場合、それぞれNAH(P)H, コラーゲンおよびフラビンからの発光（自家発光）を観測することができる。この発光は組織に含まれる主としてミオグロビンのヘムによる強い吸収により吸収され、本来発光物質の持つ発光スペクトルがその吸収により大きく歪む。このことを応用すると、ミオグロビンの酸化状態の変化に応じたスペクトル変化を発光スペクトルから読み取ることができる。肉類の劣化はミオグロビンの吸収変化と相関していると考えられるので、分光的に画像を取得することにより、劣化を画像として得ることができるものと考えられる。また、食肉の現場で問題となる獣毛などの異物についてもその発光スペクトル特性の違いにより同様の方法により区別し得ることが可能であると予測される。

まず本研究では肉表面からの発光スペクトルを計測するシステムと特定の波長を選択的に取得し発光のイメージングが可能となるシステムとを試作した。前者を用い、例えば牛肉などの表面の各部位の発光スペクトルを詳細に測定し、それと保存時間との相関を調べた。豚モモ肉のスペクトルのうちミオグロビンに由来する吸収によるスペクトルの減少している波長557 nm、580 nm、およびスペクトルのピークの波長515 nmについて自家発光の強度を測定し、ピークの値に対する強度比の経時変化を調べた。この比の値は557 nm、580 nmともにほぼ単調に上昇しており、冷蔵庫保存5日以降の値は有意であった。この結果はスペクトル強度を評価することにより経過時間を見積もることができ

ると考えられる。牛肉などでも同様な結果を得た。

上の結果に近い波長である510–530 nmと548–568 nmの波長域を選択するフィルターを用い自家発光画像を取得し、その比を計算し保存時間との相関を調べた。図4は豚バラ肉での一例を示す。a) 初日、b) 4日後、c) 7日後、d) 10日後の比画像である。脂身部分と同様に全体の比の値は保存時間が長くなるにつれて、大きくなった。さらに、部位によっては顕著に値が減少する部分と、顕著に値が大きくなる部位が存在した。初日の赤身の部分の値は、脂身部分と比べると顕著に値が小さい。赤身部分は、ミオグロビンの吸収が強いため558 nmの強度が大きく減少しているためであると考えられる。

肉類の劣化に伴う自家発光の分光画像を評価した。その結果、個々の肉の劣化は発光強度比をもちいることによりその変化をとらえることが可能であった。これにより保存された肉をモニターする簡便な手段になり得ると考えられる。さらに、極度に劣化した部分に関しては、非常に発光強度が増加することなどの結果も得られ、それらから何らかの異常のある肉を判別することも可能であると期待できる。生体組織の分光法を他に応用する一例であり、今後もこれまでの生体組織の計測技術を広く応用することを行っていく予定である。

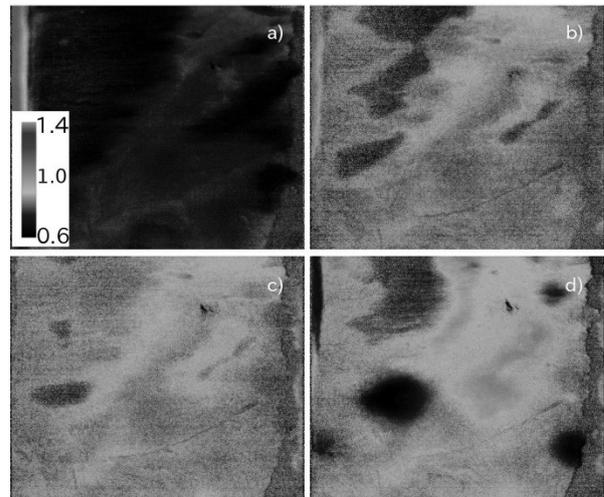


図4. 豚バラ肉の比画像の保存時間依存性

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。またそれにとどまらず幅広い応用も進めて行く。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) 寺本央、戸田幹人、小松崎民樹：「高次元力学系における輸送現象の理解の広がり：法双曲不変多様体、安定多様体、不安定多様体とその崩壊」、物性研究、97(3)：547-559 (2011)
- 2) T. Terentyeva, H. Engelkamp, A. Rowan, T. Komatsuzaki, J. Hofkens, C. Li and K. Blank: “Dynamic Disorder in Single Enzyme Experiments: Facts and Artifacts”, *ACS Nano*, 6(1): 346-354 (2011)
- 3) S. Kawai and T. Komatsuzaki: “Why and how do systems react in thermally fluctuating environments?”, *Physical Chemistry Chemical Physics*, 48: 21217-21229 (2011)
- 4) A. Baba and T. Komatsuzaki: “Multidimensional Energy Landscapes in Single Molecule Biophysics”, *Advances in Chemical Physics*, 146: 299-328 (2011)
- 5) N. Miyagawa, H. Teramoto, C. Li and T. Komatsuzaki: “Decomposability of Multivariate Interactions”, *Complex Systems*, 20: 165-179 (2011)

4.2 総説・解説・評論等

- 1) 小松崎民樹：「My memory of Prof. Shuichi Tasaki」、物性研究、97(3)：286-290 (2011)
- 2) T. Komatsuzaki, A. Baba, S. Kawai, M. Toda, J. E. Straub and R. S. Berry: “Ergodic Problems for Real Complex Systems in Chemical Physics”, *Advances in Chemical Physics*, John-Wiley & Sons, Inc. (2011)
- 3) S. Kawai, H. Teramoto, C. Li, T. Komatsuzaki and M. Toda: “Dynamical Reaction Theory based on Geometric Structures of Phase Space”, *Advances in Chemical Physics*,

John-Wiley & Sons, Inc. (2011)

- 4) D. M. Leitner, Y. Matsunaga, A. Shojiguchi, C. Li, T. Komatsuzaki and M. Toda: “Non-Brownian Phase Space Dynamics of Molecules, the Nature of their Vibrational States, and non-RRKM Kinetics”, *Advances in Chemical Physics*, John-Wiley & Sons, Inc. (2011)
- 5) T. Komatsuzaki, S. Takahashi, S. Kawai, H. Yang and R. Silbey: “Single Molecule Biophysics: Experiment and Theory”, *Advances in Chemical Physics*, John-Wiley & Sons, 146 ed (2011)

4.3 国際会議議事録等に掲載された論文

- 1) N. Miyagawa, H. Teramoto, C. Li and T. Komatsuzaki: “Spatial Heterogeneity of Multivariate Dependence”, *AIP Conference Proceedings International Conference of Numerical Analysis and Applied Mathematics 2011*, 1389: 991-994 (2011)

4.7 講演

a. 招待講演

i) 学会

- 1) 小松崎民樹*、戸田幹人：「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」、日本物理学会第67回年次大会、関西学院大学西宮上ヶ原キャンパス(兵庫県) (2012-03)
- 2) 小松崎民樹*：「1分子実験を読み解くための新しい実践型分子理論を目指して」、日本化学会第92春季年会“第2次先端ウォッチング 高次分子システムのための分子科学：実験と理論の挑戦”、慶応大学(神奈川県) (2012-03)
- 3) T. Komatsuzaki*: “The dynamical origin of reactions: why and how does a system change its state?”, Dynamics of complex systems, Hokkaido University (2012-03)
- 4) C. Li*: “An information theoretic approach to dynamical irreversibility from time series”, Dynamics of complex systems, Hokkaido University (札幌市) (2012-03)
- 5) H. Teramoto*: “Analysis of dynamical systems with large degrees of freedom in terms of hyperbolic invariant manifolds and their breakdown”, NEXT2012Nara “Generalized entropies, and information geometry”, 奈良女子大学記念会議室(奈良県) (2012-03)
- 6) 小松崎民樹*：「化学反応から生命動態システムへ」、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、高等研究所(京都府) (2012-01)
- 7) N. Miyagawa, H. Teramoto, C. Li and T. Komatsuzaki*: “Spatial Heterogeneity of Multivariate Dependence”, International Conference of Numerical Analysis and Applied Mathematics, Rodos Palace Resort Hotel, Greece (2011-09)

- 8) S. Kawai*, H. Teramoto and T. Komatsuzaki: “Low-dimensional Description of Complex Many-Body Molecular Systems by Extracting Important Dynamical Modes”, 14th Asian Chemical Congress, Bangkok, Thailand (2011-09)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 河合信之輔*: 「ランジュバン方程式による凝縮相化学反応の低次元解析と相空間構造」、ワークショップ「力学的決定性と統計性の中間領域を探るIV」、関西セミナーハウス (京都市) (2012-03)
- 2) 寺本央*: 「法双曲不変多様体崩壊のシナリオ」、ワークショップ「力学的決定性と統計性の中間領域を探るIV」、関西セミナーハウス (京都市) (2012-03)
- 3) T. Komatsuzaki*: “Theories Should Meet Measurements: What Can We Extract from Time Series Data?”, The 2012 WPI-AIMR Annual Workshop, Sendai International Center (仙台市) (2012-02)
- 4) 小松崎民樹*: 「階層的な相関関係を定量化する情報理論について」、「理論と実験」研究会2011、広島大学 (2011-10)
- 5) 河合信之輔*: 「化学反応の成否を決める鞍点近傍のダイナミクス」、化学反応経路探索のニューフロンティア2011、北海道大学 (札幌市) (2011-09)
- 6) T. Komatsuzaki*: “Mining” an effective Energy landscape of a protein from single molecule time series”, Telluride Workshop on Protein Dynamics, Telluride, CO, USA (2011-08)
- 7) T. Komatsuzaki*: “How can we “mine” effective energy landscapes of proteins from single molecule time series in the violation of local equilibrium and detailed balance?”, Telluride Workshop on Exploring energy landscapes, from single molecules to mesoscopic models, Telluride, CO, USA (2011-07)
- 8) T. Komatsuzaki*: “Digging” single molecule time series to “mine” the underlying effective energy landscape”, Telluride Workshop on Single Molecule Dynamics, Telluride, CO, USA (2011-06 ~ 2011-07)
- 9) C. Li*: “Multiscale Time Series Analysis of Supermolecular Motor Proteins on the Single Molecule Level”, Telluride Workshop on Single Molecule Dynamics, Telluride, CO, USA (2011-06)
- 10) T. Komatsuzaki*: “Mining Energy Landscapes from Single-Molecule Time Series”, Telluride Workshop on The Complexity of Dynamics and Kinetics in Many Dimensions, Telluride, CO, USA (2011-06)
- 11) C. Li*: “Either construction of KS from dwell-time time series, or modeling of QD blinking”, Telluride Workshop on The Complexity of Dynamics and Kinetics in Many Dimensions, Telluride, CO, USA (2011-06)
- 12) S. Kawai*, H. Teramoto and T. Komatsuzaki: “Reaction dynamics of complex systems analyzed by Langevin type

framework”, Telluride Workshop on The Complexity of Dynamics and Kinetics in Many Dimensions, Telluride, CO, USA (2011-06)

iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 小松崎民樹*: 「非平衡定常ネットワークから再構成する自由エネルギー地形」東北大学木下賢吾研究室セミナー (2012年2月24日)
- 2) G. Nishimura*: “Time-domain fluorescence-assisted diffuse optical tomography”, Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Institut Berlin, Berlin, Germany (2011-11).
- 3) T. Komatsuzaki*: “Mining the underlying free energy landscapes of biomolecules from single molecule time series” Muenster University, Department of Biology, , Germany (2011-9)
- 4) C.B. Li*, T. Komatsuzaki, “Data-driven Modeling of Single Molecule Experiments from Time Series Analysis”, invited talk, Department of Chemistry, Rice Univ., USA (2011-6)
- 5) T. Komatsuzaki*: “A Construction of an Effective Free Energy Landscape from Single-Molecule Time Series”, The University of Maryland, Institute for Physical Science and Technology, USA (2011-6)

b. 一般講演

i) 学会

- 1) 河合信之輔*, 寺本央, 小松崎民樹: 「多原子分子の構造転移反応に対する少数の変数による実効的記述」、日本化学会 第92春季年会、慶応大学 (神奈川県) (2012-03)
- 2) 宮川尚紀*, 寺本央, 李振風, 小松崎民樹: 「大域的パターンの連結情報量とその分解可能性」、日本物理学会 第67回年次大会、関西学院大学西宮上ヶ原キャンパス (兵庫県) (2012-03)
- 3) 菊地正浩*, 河合信之輔, 寺本央, 李振風, 小松崎民樹: 「非リボソームペプチド合成酵素の多次元挙動解析理論の開発」、日本物理学会第67回年次大会、関西学院大学西宮上ヶ原キャンパス (兵庫県) (2012-03)
- 4) 千葉勇太*, 河合信之輔, 馬場昭典, 寺本央, 李振風, 小松崎民樹: 「一分子時系列から“掘り起こす”多次元自由エネルギー地形の情報理論的構成法の開発」、日本物理学会第67回年次大会、関西学院大学西宮上ヶ原キャンパス (兵庫県) (2012-03)
- 5) 川口敏史*, 鎌形清人, 小井川浩之, 三本木至宏, 馬場昭典, 小松崎民樹, 高橋聡: 「長時間一分子蛍光測定による緑膿菌由来シトクロムCのフォールディング機構の研究」、日本化学会 第92春季年会、慶応大学(神奈川県) (2012-03)
- 6) N. Miyagawa* and T. Komatsuzaki: “Many-body Correlation in Pattern Formation and its Decomposability”, Quantitative Developmental Biology, IKEN Center for Developmental Biology (CDB) (神戸市) (2012-03)
- 7) C. Li*: “Data-Driven Modeling of the Complex Kinetics

- and Dynamics from Single Protein Motor Rotation Experiments”, Quantitative Developmental Biology, RIKEN Center for Developmental Biology (CDB) (神戸市) (2012-03)
- 8) 永幡裕*, 河合信之輔, 寺本央, 李振風, 小松崎民樹: 「2つの反応方向をもつ鞍点での、反応の「過去・未来」を一義的に分ける相空間構造」、日本物理学会第67回年次大会、関西学院大学西宮上ヶ原キャンパス (兵庫県) (2012-03)
 - 9) 河合信之輔*, 寺本央, 小松崎民樹: 「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67回年次大会、関西学院大学西宮上ヶ原キャンパス (兵庫県) (2012-03)
 - 10) 寺本央*, 戸田幹人, 小松崎民樹: 「局所スペクトルを用いた大自由度力学系の解析」、日本物理学会第67回年次大会、関西学院大学西宮上ヶ原キャンパス (兵庫県) (2012-03)
 - 11) 西村吾朗*: 「蛍光を用いた蛍光物質の吸収の拡散光イメージング – その考え方と実験データの考察」、日本光学会年次学術講演会 OPJ2011、大阪大学コンベンションセンター (2011-11)
 - 12) 西村吾朗*: 「自家蛍光による肉類の劣化の評価と異物混入検出」、日本光学会年次学術講演会 OPJ2011、大阪大学コンベンションセンター (2011-11)
 - 13) G. Nishimura*: “Autofluorescence Spectral Technique for Monitoring Meat Degradation and Detection of Contaminants”, 5th International Symposium on Recent Advances in Food Analysis (RAFA2011), Prague, Czech Republic (2011-11)
 - 14) Z. Liu*, H. Teramoto, C. Li and T. Komatsuzaki: “Extracting Protein Dynamics from Single Molecular Time Series”, 分子科学討論会 (札幌) 2011, 札幌コンベンションセンター (2011-09)
 - 15) 河合信之輔*, 寺本央, 小松崎民樹: 「大自由度分子系のダイナミクスを記述する低次元力学系の抽出」、分子科学討論会 (札幌) 2011, 札幌コンベンションセンター (2011-09)
 - 16) T. Sultana*, H. Teramoto, C. Li and T. Komatsuzaki: “Extracting the reaction network buried in single Molecule Time Series of Epidermal Growth Factor Receptor and Grb2”, 分子科学討論会 (札幌) 2011, 札幌コンベンションセンター (2011-09)
 - 17) 宮川尚紀*, 寺本央, 李振風, 小松崎民樹: 「階層構造をつくる多変数確率過程の数理」、分子科学討論会 (札幌) 2011, 札幌コンベンションセンター (2011-09)
 - 18) 永幡裕*, 河合信之輔, 寺本央, 李振風, 小松崎民樹: 「二つの反応方向をもつ鞍点における反応の決定性」、分子科学討論会 (札幌) 2011, 札幌コンベンションセンター (2011-09)
 - 19) G. Nishimura* and K. Awasthi: “Complex formation of some near-infrared cyanine dyes in serum albumin – serum albumin induces a new reaction”, 第49回日本生物物理学会年会、兵庫県立大学書写キャンパス、姫路市 (2011-09)
 - 20) 寺本央*, 戸田幹人, 小松崎民樹: 「反応座標スイッチング機構の量子力学的兆候」、第14回理論化学討論会、岡山大学 (岡山市) (2011-05)
 - 21) 小松崎民樹*: 「生体分子の構造転移に関する次元低減解析と本質的ダイナミクスの抽出」、第14回理論化学討論会、岡山大学 (岡山市) (2011-05)
 - 22) 河合信之輔*, 寺本央, 小松崎民樹: 「生体分子の構造転移に関する次元低減解析と本質的ダイナミクスの抽出」、第14回理論化学討論会、岡山大学創立五十周年記念館 (2011-05)
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) 永幡裕*, 河合信之輔, 寺本央, 李振風, 小松崎民樹: 「ランク 2 サドルとその周辺に於ける遷移ダイナミクス」、ワークショップ「力学的決定性と統計性の中間領域を探るIV」、関西セミナーハウス (京都市) (2012-03)
 - 2) T. Sultana*, H. Teramoto, C. Li and T. Komatsuzaki: “Extracting the Reaction Network Buried in Single Molecule Time Series of Epidermal Growth Factor Receptor (EGFR) and Growth Factor Receptor-Bound Protein 2 (Grb2) in Cytoplasm”, IGP International Symposium, 2012, Hokkaido University (札幌市) (2012-03)
- #### 4.8 シンポジウムの開催
- 1) 小松崎民樹, Chun Biu Li: Telluride Workshop on The Complexity of Dynamics and Kinetics in Many Dimensions, Telluride CO 6月20-24日
 - 2) 小松崎民樹: 第5回分子科学討論会 札幌コンベンションセンター (2011年9月20-23日)
 - 3) 小松崎民樹: 水とATP サテライトミーティング「蛋白質折り畳みの理解に向けた一分子基礎科学を目指して」仙台作並 (2012年3月10-12日)
 - 4) 小松崎民樹: 日本物理学会春季年会 領域11と12の合同シンポジウム「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」(2012年3月27日)
 - 5) 小松崎民樹: ワークショップ「力学的決定性と統計性の中間領域を探るIV」、関西セミナーハウス (京都市) (2012年3月29日)
 - 6) 西村吾朗: 日本光学会年次学術講演会 (OPJ2011)、日韓生体医用光学シンポジウム (2011年11月29日)
 - 7) 西村吾朗: 第9回生体医用光学研究会シンポジウム「近赤外分光法と拡散光イメージングの現在から未来への展望」、島津製作所東京支社 (東京都) (2011年12月3日)
- #### 4.9 共同研究
- a. 海外機関との共同研究

- 1) 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。
- 2) 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。

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取得システムの開発と、近赤外反射画像を用いた劣化評価システムの開発
- 2) 西村吾朗(独立行政法人科学技術振興機構):産学共創基礎基盤研究「ヒト組織深部のイメージングを可能とする定量的蛍光分子イメージング基盤技術の確立(代表)」、2011~2017年度、組織中の蛍光物質の位置濃度の定量手法の確立。

4.10 予算獲得状況

a. 科学研究費補助金

- 1) 李振風、基盤研究 C、単一ドットのプリンキング機構の解明・制御に向けた新しい解析理論の開発、2009~2011年度
- 2) 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
- 3) 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
- 4) 小松崎民樹、新学術領域「少数性生物学」計画班分担、少数分子反応ネットワーク理論の構築—少数性と階層性の観点からのモデリング—2011~2016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

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)

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)

f. 外国人研究者の招聘(氏名、国名、期間)

- 1) Berry Stephen, USA、(2012年2月12日~2012年2月16日)
- 2) Alim Karen, USA、(2012年1月30日~2012年2月9日)
- 3) Taylor Nicholas, USA、(2012年1月10日~2012年1月26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、2011年10月1日~2012年3月31日
- 2) 全学共通、一般教育演習(フレッシュマンセミナー)解析力学基礎、寺本央、2011年10月1日~2012年3月31日
- 3) 生命科学学院、生命科学特別研究、小松崎民樹、2011年10月1日~2012年3月31日
- 4) 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、2011年7月6日~2011年7月8日
- 5) 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)、寺本央、2011年7月6日~2011年7月8日
- 6) 生命科学学院、生命科学実習、小松崎民樹、2011年4月1日~2011年9月30日
- 7) 生命科学学院、生命科学研究、小松崎民樹、2011年4月1日~2011年9月30日
- 8) 全学共通、環境と人間、小松崎民樹、2011年4月1日~2011年9月30日
- 9) 生命科学学院、生命情報分子科学特論、小松崎民樹、2011年4月1日~2011年9月30日
- 10) 生命科学学院、生命分子科学概論、小松崎民樹、2011年4月1日~2011年9月30日
- 11) 生命科学学院、分子情報解析学特論、小松崎民樹、2011年4月1日~2011年9月30日
- 12) 生命科学学院、生命科学論文購読、小松崎民樹、2011年4

月1日～2011年9月30日

13) 数学基礎研究III、李振風、2011年4月1日～2011年9月30日

14) 数学基礎研究IV、李振風、2011年10月1日～2012年3月31日

15) 数学研究、李振風、2011年4月1日～2012年3月31日

i. **ポスドク・客員研究員など**

1) 博士研究員 伊藤正寛 (2009.6～2011.9)

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 Dharmendra K. Tiwari

博士研究員 Vadim Perez Koldenkova

DC3 張 郁芬

DC1 馬 元卿

MC1 福田憲隆

BC4 堀内浩水

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) 青、緑、赤の蛍光を発するカルシウムイオンセンサータンパク質の開発

緑色蛍光タンパク質 GFP に代表される蛍光タンパク質は、近年では遺伝子工学的な改変を施すことにより、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蛍光分子センサーとして利用されている。これまでに、様々な細胞機能を制御する Ca^{2+} センサーが開発され、世界中の研究者によって利用されているが、それらの計測波長域は青緑色から緑色域に限定され、また Ca^{2+} 結合に伴う蛍光シグナル変化は小さく、僅かな Ca^{2+} の濃度変動を捉えることはできなかった。

研究グループは、高性能の Ca^{2+} センサーの遺伝子を単離するために、GFP を利用した緑色蛍光 Ca^{2+} センサーである GCaMP3 をランダムに遺伝子変異を導入し、それを大腸菌のペリプラズムと呼ばれる細胞膜の外側の部分に発現させた。プレート上の多数の大腸菌コロニーの中から、菌体外の Ca^{2+} の有無での蛍光シグナル変化の最も大きい大腸菌株を選択する操作を何度か繰り返すことで、2,600% のシグナル変化率を有する緑色のセンサーを得ることに成功し G-GECO と命名した。この G-GECO の蛍光団を構成するアミノ酸の1つであるチロシンをヒスチジンに置換することで青色の蛍光を発する Ca^{2+} センサー B-GECO を、また

mApple という赤色蛍光タンパク質をもとに赤色の蛍光を発する Ca^{2+} センサー R-GECO を開発することにも成功した(図1)。さらに、ランダムに遺伝子変異導入において B-GECO, G-GECO, flash-pericam の遺伝子混合物を鋳型に利用することで、 Ca^{2+} の結合により蛍光色が緑から青色に変化する GEM-GECO を開発することに成功した。 Ca^{2+} の結合により GEM-GECO の蛍光シグナル(青の蛍光強度/緑の蛍光強度)は、既存のタンパク質性の蛍光センサーでは達成されたことのない11,000% の変化率を示した。これら GECO シリーズを用いて細胞質、核、ミトコンドリアの3つのコンパートメントにおける Ca^{2+} の動態の同一細胞内での測定や Ca^{2+} と ATP の同時計測にも成功しました(図1)。また、ラットの海馬神経細胞や線虫 *C. elegans* の嗅覚応答に関わる神経細胞の活動を GEM-GECO を用いて従来のセンサーよりも鋭敏に神経活動を捉えることに成功した。

GECO シリーズを他の各種蛍光センサーと組み合わせて神経を含む多くの細胞の働きを多面的かつ同時に測定することが可能になる。また、励起・蛍光波長が多様な GECO シリーズは、光照射により細胞の活動やタンパク質の機能を制御することができる光遺伝学的技術と組み合わせることによって、例えば神経回路の人為的な活性制御と測定を同時に行うことができるようになり、行動、思考、記憶などの過程における神経回路の動作メカニズムの解明が一層進むものと期待される。

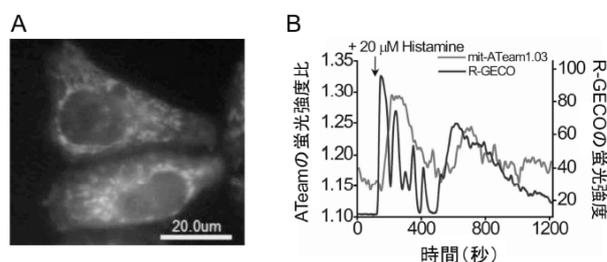


図1. R-GECO と mtATeam1.03 による HeLa 細胞内の Ca^{2+} と ATP の同時可視化。A. R-GECO を細胞質に蛍光 ATP センサー ATeam1.03 をミトコンドリアに発現する HeLa 細胞の蛍光顕微鏡写真。B. ヒスタミン刺激に伴う細胞質 Ca^{2+} 濃度とミトコンドリア内 ATP 濃度の経時変化。細胞質の Ca^{2+} 濃度が上昇した後にミトコンドリア内の ATP 濃度が上昇することが分かる。

(b) インコヒーレント白色光を光源とする多点走査型共焦点顕微鏡の励起光利用効率の改善

当研究室では以前に水銀アーク灯などのインコヒーレント白色光をマルチモードファイバーに導入してスクランブル化することで得られる均一な面光源を利用するスピニングディスク型共焦点顕微鏡を開発した(Saito K. et al Cell Struct. Funct 33: 133-141, 2008)。しかしながら光源が面発光のインコヒーレント光であるが故に、スピニングディスク上のピンホールを僅かな光しか通過できない結果、励起光強度が著しく低下してしまうという問題に直面し、特にビデオレート以上の高速イメージングでは S/N 比の低下を余儀なくされていた。そこで、マルチモードファイバ端

から発せられる光を効率よく利用するために新規の光学系を考案・作製し、スピニングディスク型共焦点顕微鏡(横河電機CSU10)に導入した。本光学系はピンホールに焦点を結ぶマイクロレンズに対して平行に進む光線だけでなく斜めに進む光線もピンホールを通過できるように設計され、これにより励起光の利用効率を飛躍的に向上させることに成功した。また、光源として電氣的なスイッチングにより μ 秒オーダーで励起波長を切り替えることが可能なLED光源を用い、90%減光NDフィルターをCSU10のダイクロイックミラー部と置換することでミラー切り替えなしに、多波長観察をすることが可能になった。本共焦点光学系により、高速FRETイメージング(図2)、多色イメージング、三次元共焦点イメージングなどで高精細なイメージをレーザー光源を用いない安価な顕微鏡システムで取得できるようになった。

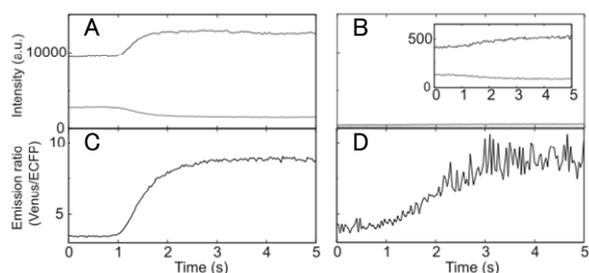


図2. Yellow Cameleon3.60を用いた Ca^{2+} 濃度変化の高速イメージング。ヒスタミン刺激後 Ca^{2+} 濃度変化を従来のシステム(右)と新しいシステム(左)で比較した。(A)新しいシステムと、(B)従来のシステムのVenusおよびCFP蛍光強度の経時変化(緑線はCFP、赤線はVenus)。内装図は図Bの拡大図。(C)新しいシステムおよび(D)従来のシステムのレシオ値の経時変化。

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. Saito, Y. Arai, J. Zhang, K. Kobayashi, T. Tani, and T. Nagai: “Conjugation of both on-axis and off-axis light in Nipkow disk confocal microscope to increase availability of incoherent light source.”, *Cell Struct. Func.*, 36: 237-246. (2011)
- 2) Y. Yamada, T. Michikawa, M. Hashimoto, K. Horikawa, T. Nagai, A. Miyawaki, M. Haussler and K. Mikoshiba: “Quantitative comparison of genetically encoded Ca^{2+} indicators in cortical pyramidal cells and cerebellar Purkinje cells.”, *Frontiers in Cellular Neuroscience*, 5: 18. (2011)
- 3) Y. Zhao, S. Araki, J. Wu, T. Teramoto, Y. Chang, M. Nakano, AS. Abdelfattah, M. Fujiwara, T. Ishihara, T. Nagai, RE. Campbell: “An Expanded Palette of Genetically Encoded Ca^{2+} Indicators.” *Science*, 333: 1888-1891 (2011)
- 4) M. Nakano, H. Imamura, T. Nagai and H. Noji: “ Ca^{2+} regulation of mitochondrial ATP synthesis visualized at the single cell level.” *ACS Chemical Biology*, 6: 709-715 (2011)
- 5) M. Nomura, T. Nagai, Y. Harada, and T. Tani. “Facilitated intracellular transport of TrkA by an interaction with nerve growth factor.” *Developmental Neurobiology*, 71: 634-49. (2011)
- 6) K. Takemoto, T. Matsuda, M. McDougall, DH. Klaubert, A. Hasegawa, GV. Los, KV. Wood, A. Miyawaki and T. Nagai: “Chromophore-assisted light inactivation of HaloTag fusion proteins labeled with eosin in living cells.” *ACS Chemical Biology*, 6: 401-406. (2011)
- 7) L. Yang, T. Matsuda, V. Raviraj, YW. Ching, F. Braet, T. Nagai, LL. Soon: “Imaging the Dynamics of Intracellular Protein Translocation by Photoconversion of Phamret-Cybr/ROM.” *Journal of Microscopy*, 242: 250-261. (2011)

4.2 総説、解説、評論等

- 1) 齋藤健太、永井健治:「生物発光を利用した細胞内カルシウムイメージング」、*生物物理*: 52: 30-31 (2011)
- 2) 永井健治、堀川一樹:「機能イメージングにおける指示薬感度の重要性—蛍光タンパク質間FRETを用いた Ca^{2+} 指示薬開発からの考察—」、*蛍光イメージング/MRIプローブの開発*、菊地和也監修(分担執筆)、シーエムシー出版、第5章 (2011)
- 3) 堀川一樹、永井健治:「細胞性粘菌の集合流形成における細胞間シグナル伝達」、*生物の科学、遺伝*: 65, 87-91

(2011)

- 4) 齋藤健太、永井健治:「化学発光を利用した生命機能の可視化」、化学と生物、49:555-559 (2011)

4.5 講演

a. 招待講演

i) 学会

- 1) T. Nagai: “What should we learn from light emitting organisms? Efficient energy transfer and its application for bioimaging.”, The 49th Annual Meeting of the Biophysical Society of Japan, University of Hyogo, Hyogo, Japan (2011-09)
- 2) Nagai T: “Auto-luminescent genetically-encoded ratiometric indicator for real-time Ca^{2+} imaging at the single cell level.”, IUPAC international congress on analytical science 2011, Kyoto international conference center, Kyoto, Japan (2011-5)
- 3) T. Nagai: “Auto-luminescent imaging tools for combination use with optogenetic technology.”, 44th Annual meeting of the Japanese Society of Developmental Biology, Okinawa Convention Center, Okinawa, Japan (2011-05)

ii) 研究会

- 1) T. Nagai: “Engineering green fluorescent proteins to visualize and manipulate biological functions”, 5th COE symposium, 14th MPC, Hamamatsu University School of Medicine, Shizuoka, Japan (2011-08)
- 2) T. Nagai: “Toward invention of high performance genetically-encoded luminescent indicators for functional imaging in living organisms.”, Mirai CAN Hall, Tokyo, Japan (2011-07)
- 3) T. Nagai: “Toward deciphering biological phenomena by genetically-encoded molecular spies.”, Immunology Frontier Research Center, Osaka University, Japan (2011-07)
- 4) T. Nagai: “Toward deciphering biological phenomena by genetically-encoded molecular spies.”, Immunology Frontier Research Center, Osaka University, Japan (2011-07)
- 5) T. Nagai: “Invention of high performance bright luminescent proteins used as a nanolight source.”, AS-JST joint workshop on innovative use of light and nano/bio materials, Academia Sinica, Taipei, Taiwan (2011-05)
- 6) T. Nagai: “Towards Understanding Biological Phenomena by Genetically-Encoded Molecular Spies”, NCCR CHEMICAL BIOLOGY MINI-SYMPOSIUM, SV1717a, École polytechnique fédérale de Lausanne (2011-04)

iii) コロキウム・セミナー・その他

- 1) T. Nagai: “Imaging Probes for Neuronal Cell Biology”, Developmental Neurobiology Course, OIST, Okinawa, Japan (2011-07)

4.6 特許

・国内特許

- 1) 永井健治、齋藤健太:共焦点スキャナーユニット、北海道大学、特願2011-123041

4.7 予算獲得状況

a. 科学研究費補助金 (研究代表者、分類名、研究課題、期間)

- 1) 永井健治、新学術領域 総括班、少数性生物学-個と多数の狭間が織りなす生命現象の探求-,2011~2015年度
- 2) 永井健治、新学術領域 計画班、分子プローブと光摂動ツールの開発-少数生体分子の可視化・操作技術-,2011~2015年度
- 3) 新井由之、若手研究B、金属増強効果による超安定1分子計測法の確立、2011~2012年度
- 4) 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
- 5) 松田知己、新学術領域 公募班、個体・組織での1細胞機能イメージングを可能にする光活性化機能センサータンパク質、2011~2012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、寿原記念財団助成、発光タンパク質ルシフェラーゼの発光基質を整合性する酵素遺伝子群の単離、2011年度
- 5) 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、2011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、2011年5

月12日

- 2) 理学部、生物高分子科学、永井健治、2011年6月22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7日
- 4) 理学部、実験生物科学、永井健治、2011年10月14日～2011年2月10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、2011年10月5日～2011年10月26日
- 6) 全学総合科目、環境と人間、永井健治、2011年11月9日
- 7) 全学総合科目、環境と人間、新井由之、2011年6月1日

i. **ポスドク・客員研究員など**

・ポスドク（2名）

- 1) Dhermendra K. Tiwari（博士研究員）
- 2) Vadim Perez Koldenkova（博士研究員）

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、1995.4~2012.1)

助教 柳田達雄 (総研大、学術博、1995.6~2011.9)

飯間 信 (京大理院、理博、1999.4~2011.4)

事務補佐員

辻田由香 (2009.4~2012.1)

博士研究員

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、寺田知幸、高 志軍
- ・研究生 齋藤宗孝

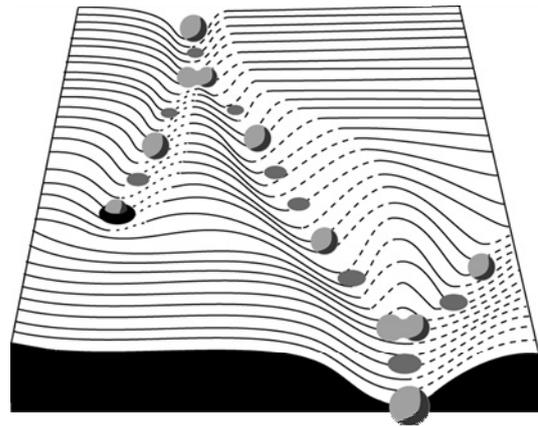


図1. 水玉はぶつかったり、分裂したり、しみこんだりと様々な変形を行うが、それらは地形の凹凸が生み出していると見なせる。個々の水玉の変形は多彩であるが、地形ははるかに捉えやすい。

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23年度は散逸系の大変形衝突問題と相互作用の解明、機能的ネットワーク力学系の設計、細胞性粘菌内輸送の流体力学的モデル等を主目標においた。

2. 研究成果

(a) 散逸系の大変形衝突問題と相互作用の解明

本研究は真に平衡から遠い合体・消滅・分裂を含む散逸系の局在パターン間の強い相互作用を統一的に理解する数理的枠組みを与えるもので、不安定解ネットワークという実験やシミュレーションにかからない隠れた数理構造が大変形の道筋を統御していることを明らかにした。不安定解ネットワークといういわば見えないものが、全体ダイナミクスを統御しているというコペルニクスの視点の転換がもたらされた。これは図1に示すように、水玉の変形を追うのではなく、それを生み出す地形の形状を探索することに似ている。さらに構造探索型数値計算法によりブラックボックスとされてきた遷移的変形過程を明確に捉えることが可能となった。この成果は散逸系の大変形衝突問題という数学的に極めて困難な問題に全く新たな視点と具体的方法論を提供したのみならず、内部ダイナミクスをもつ個体が強く相互作用する問題に今後広く応用されるであろう。

(b) 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解明する。

モデルとして数理的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”ネットワークを設計することができる。同一な自然振動子集団が外部ノイズに晒されている場合に、ノイズにたいして堅牢に同期するネットワークを設計した。これにより、異なる自然振動数を持つ場合とは異なるネットワーク構造が同期最適である事が分かった。特にリンク数が少ない場合にはコアと周辺の振動子に分離した構造がノイズに耐性を持ち、各素子に共通なノイズによる同期現象と強い関連があると予想され理論的発展が期待される。

(c) 細胞性粘菌内輸送の流体力学的モデル

生物の体内における物質の輸送では境界振動が表面の蠕動運動を引き起こす。真性粘菌の場合、これまでの実験で細胞体全体が波の伝播のような収縮パターンを示すことによって粘菌内部の栄養分や情報を担う化学物質を輸送することが知られている。この振動パターンの形成には力学的相互作用以外に内部の流体を介した流体的相互作用、また化学物質による振動状態の変化などが複雑に絡み合っていると考えられる。本研究では細胞性粘菌に見られる物質の輸送と、境界運動の関係を理論的に考察した。対象とするのは100 μm オーダーの大きさの粘菌であり、おたまじゃくし型をしている。その尾部には特徴的な境界運動の時空

間パターンが見られる。このパターンを実験データからモデル化し、化学物質の輸送特性をしらべた。その結果尾部の振動パターンが非一様であることが輸送の効率にとって重要であり、実験で観測されたパターンは輸送効率の観点から見て適していることがわかった。

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) 不安定解ネットワークという視点は散逸系の大変形衝突問題という極めて困難な問題に全く新たな視点と具体的方法論を提供したが、これは内部ダイナミクスをもち、かつ自由に動き回り、他と相互作用する系に広く適用できる可能性をもつ。実際、個というものが認識され、それらが強く相互作用する系は物理、化学から生命、社会系に至るまで普遍的に現れる。本研究の開発した視点と方法論は今後広く応用され、それらのダイナミクスの解明に寄与することが期待される。

(b) 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求し、その数理構造を明らかにできると考える。

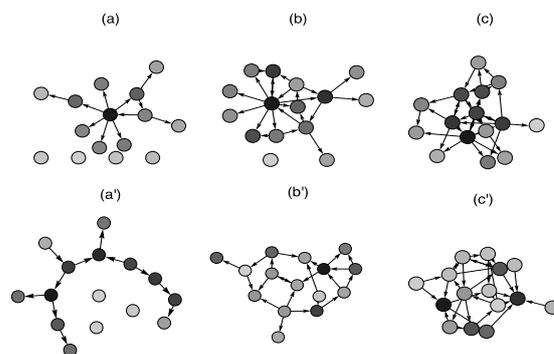


図2. 同一振動子が外部ノイズに抗して同期するときのネットワーク構造。上段がマルコフ連鎖モンテカルロ法により設計されたネットワーク。下段はランダム結合ネットワーク。同期最適ネットワークは星形構造をもつ。

(c) 生物は階層的な機能を持ち、下位の機能は物理的・化学的な系の挙動により説明できると考えられる。こういった機能がどのようにデザインされているのかを理解することによって自律的な制御機構の設計など実生活に有効なデバイスの開発に役立てられる可能性がある。本年度の研究では主に与えられた境界運動のもとでの化学物質輸送を考え、その効率を考えた。今後は境界運動がどう発現しているかを考えることが重要である。すでに萌芽的な結果を得ているが更にモデルを改良し自発的な機能発現の解明を目指す。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) Y. Nishiura, T. Teramoto and X. Yuan: “Heterogeneity-induced spot dynamics for a three-component reaction-diffusion system”, *Communications on Pure and Applied Analysis, American Institute of Mathematical Sciences*, 11(1): 307-338 (2012, January)
- 2) K. Ueda and Y. Nishiura: “A mathematical mechanism for instabilities in stripe formation on growing domains”, *Physica D: Nonlinear Phenomena, Elsevier*, 241: 37-59 (2011)
- 3) 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)
- 4) Y. Nishiura and T. Teramoto: “Collision dynamics in Dissipative Systems”, *Theoretical and Applied Mechanics Japan*, 59: 13-25 (2011)
- 5) K. Ueda, S. Takagi, Y. Nishiura and T. Nakagaki: “Mathematical model for contemplative amoeboid locomotion”, *Physical Review E*, 83(2) (2011)
- 6) M. Iima, Y. Iijima, Y. Sato and Y. Tasaka: “A time-series analysis of the free-surface motion of rotational flow”,

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」領域さきがけ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)

4.4 著書

- 1) 西浦廉政、寺本敬:「砂漠化問題のバスタブモデル」、臨時別冊・数理科学『現象から方程式を創り出す』、サイエンス社: 114-121 (2012)

4.7 講演

i) 学会

- 1) Y. Nishiura*: “Collision dynamics in dissipative systems”, Pattern Formation: The inspiration of Alan Turing, St. John’s College, Oxford, UK (2012-03). March 15.
- 2) Y. Nishiura*: “Collision Dynamics”, Mathematics for Innovation: Large and Complex Systems, フォーシーズンズホテル椿山荘(東京)(2012-02 ~ 2012-03) Feb.28.
- 3) Y. Nishiura*: “Aiming for Connective Knowledge- on the activities of JST mathematics program -”, Emerging Topics on Differential Equations and their Applications --Sino-Japan Conference of Young Mathematicians, Nankai University, Tianjin, China (2011-12)
- 4) Y. Nishiura*: “Is codim 2 singularity imbedded in the dynamics of contemplative amoeboid locomotion?”, “Mathematical Models of Biological Phenomena and their Analysis”, 仙台国際センター(仙台市青山)(2011-11)
- 5) Y. Nishiura*: “Dynamics of localized patterns in dissipative systems”, Conference “Geometric Methods for Infinite - Dimensional Dynamical Systems”, Brown University, Providence, RI, USA (2011-11)
- 6) Y. Nishiura*: “Deformations, Internal Dynamics and Network of Unstable Patterns”, ICIAM2011, Vancouver, Canada (2011-07)
- 7) Y. Nishiura*, T. Watanabe and M. Iima: “Spatially localized traveling structures and the asymptotic behavior in binary fluid convection”, EASIAM 2011, Kitakyushu Campus, Waseda University (2011-06)
- 8) Y. Nishiura*, T. Teramoto and M. Yadome: “Heterogeneity-induced pulse generators.”, ICCN2011(The 3rd International Conference on Cognitive Neurodynamics), Hilton Niseko Village, Hokkaido (2011-06)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 西浦廉政*:「格子戸から見る原子の世界—モワレの数

学入門」、共生する数学～社会と数理科学の接点～(第3回JST数学キャラバン)、金沢(香林房プラザホール)(2011-10)

- 2) Y. Nishiura*, K. Ueda, S. Takagi and T. Nakagaki: “Waves in heterogeneous media and their application to adaptive behavior of *Physarum plasmodium*”, Engineering of Chemical Complexity, Berlin, Germany (2011-07)
- 3) 西浦廉政*:「「読み・書き・数学」入門」、拡がりゆく数学 in 神戸～数学はどんな形で社会で役立つか～、神戸大学百年記念館六甲ホール(2011-05)

iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 西浦廉政*:「数学化する現代—新たな世界観を求めて—」、金沢大学数学コース 理学座談会、金沢大学(2012-03)
- 2) 西浦廉政*:「散逸系における分裂・崩壊・消滅の数理」、東北大多元研講演会、東北大学(2011-10)

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) Y. Nishiura, T. Ogawa and M. Kotani: “Mathematical approach to emerging topics in material science 2012”, WPI-AIMR, Tohoku University (Sendai) (2012年2月18日 ~ 2012年2月19日)
- 2) Y. Nishiura, H. Chen and Y. Long: “Emerging Topics on Differential Equations and their Applications --Sino-Japan Conference of Young Mathematicians”, 65人, Nankai University (Tianjin China) (2011年1205日 ~ 2011年12月9日)
- 3) Y. Nishiura: “Mathematical Models of Biological Phenomena and their Analysis”, 仙台国際センター(仙台市)(2011年11月21日 ~ 2011年11月24日)
- 4) 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)(2011年11月4日 ~ 2011年11月5日)
- 5) 西浦廉政:「第2回領域シンポジウム 越境する数学」、アキバホール(アキバプラザ5階)(東京)(2011年9月7日)
- 6) Y. Nishiura, M. Ward, B. Sandstede, B. Deconinck, E. Knobloch and A. Doelman: “Localized Multi-Dimensional Patterns in Dissipative Systems: Theory, Modeling, and Experiments”, The Banff Centre (Banff Canada) (2011年07月24日 ~ 2011年7月29日)
- 7) Y. Nishiura: “ICIAM2011 Minisymposium “Collision Dynamics and Adaptability of Active Localized Patterns””, Vancouver Convention Centre (Vancouver Canada) (2011年7月18日)
- 8) Y. Nishiura, B. Fiedler and I. G. Kevrekidis: “Engineering of Chemical Complexity”, Harnack-House (Berlin Germany) (2011年7月4日 ~ 2011年7月8日)
- 9) 西浦廉政、齋木吉隆、小林幹:「Emergent Dynamics in Nonlinear Science」、東京大学生産技術研究所(東京)

(2011年5月25日～2011年5月26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-触運動間コミュニケーションの解明、2010年度～2011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相互作用の数理的解明とその生命科学への展開、2009～2013年度
 - 3) 西浦廉政、基盤研究 B 一般、散逸系孤立波の相互作用理論の新展開、2009～2012年度
 - 4) 柳田達雄、基盤研究 C 一般 (1)、ネットワーク結合力学系の機能的設計とその普遍性、2009～2011年度

4.12 社会教育活動

- a. 公的機関の委員
- 1) 西浦廉政：科学技術・学術審議会専門委員 (2011年6月27日～2013年1月31日)
 - 2) 西浦廉政：日本学術会議連携委員 (2006年8月20日～現在)
 - 3) 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) 西浦廉政：SIADS (SIAM Journal on Applied Dynamical Systems), Editor (2010年1月1日～現在)
 - 2) 柳田達雄：雑誌「物性研究」編集委員 (2009年4月1日～現在)
 - 3) 西浦廉政：Chaos, Associate Editor (2009年1月1日～現在)
 - 4) 西浦廉政：日本応用数学会評議員 (2006年4月1日～現在)
 - 5) 西浦廉政：日本数学会評議員 (2006年3月1日～現在)
 - 6) 西浦廉政：European Journal of Applied Mathematics, Associate Editor (2005年1月1日～現在)
 - 7) 西浦廉政：Physica D, Editor (2002年4月1日～現在)
 - 8) 西浦廉政：Japan Journal of Industrial and Applied Mathematics, Associate Editor (1997年4月1日～現在)
 - 9) 西浦廉政：Hokkaido Mathematical Journal, Editor (1995年4月1日～現在)
- c. 併任・兼業
- 1) 西浦廉政：京都大学数理解析研究所 専門委員会 (2011年9月1日～2013年8月31日)
 - 2) 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～2013年3月31日)
 - 3) 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) 理学院、数理解析学統論 (非線形数学2)、西浦廉政、2011年10月1日～2012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、西浦廉政、2011年4月1日～2011年9月30日
 - 3) 理学部、数学卒業研究、柳田達雄、2011年4月1日～2011年9月15日
 - 4) 理学院、数学基礎研究 I、柳田達雄、2011年4月1日～2011年9月15日
- i. ポスドク・客員研究員など
- ・ポスドク (2名)
渡辺毅 (電子科学研究所)、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 (3名)
飯島悠宇
川上剛広
中筋真生
 - ・修士論文
1) 飯島悠宇：回転流体系における自由表面の不規則スライディング現象の決定論性の推定
2) 川上剛広：ネットワーク結合した位相振動子の同期特性
3) 中筋真生：流体を介した相互作用によるバネ円柱同期の解析

神経情報研究分野

准教授 青沼仁志（北大院、理博、2001.1～）
助教 西野浩史（岡山大院、理博、2000.10～）
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動的に変化する無限定環境である。ヒトを含め動物は、そのような無限定環境のなかでも状況に応じて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信号を受容し、そのなかから必要な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の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、記憶や経験と照合し、運動系を制御する信号を実時間で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を対象として、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、外界の環境変化に応じて適応的な行動を実時間で決定し発現する。動物が曝される動的な環境には、動物自身が複数集まって相互作用することで形成される社会も含まれる。他者が存在する複雑で動的な社会環境は、個々の個体行動の制御や発現を拘束する。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。

生物に普遍的にみられる現象のひとつに競争がある。動物では、競争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、闘争行動を理解することは他者が存在する社会環境への実時間適応のメカニズムや、動物が長い進化の過程で獲得した適応行動の制御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することで、適応的な行動発現の実時制御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の高次行動制御の神経生理学的な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、生理学及び分子生物学実験で調べ、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。

行動発現と行動修飾の神経機構には、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された。

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回避行動を発現するようになる。この現象を対象に、薬理的に

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。

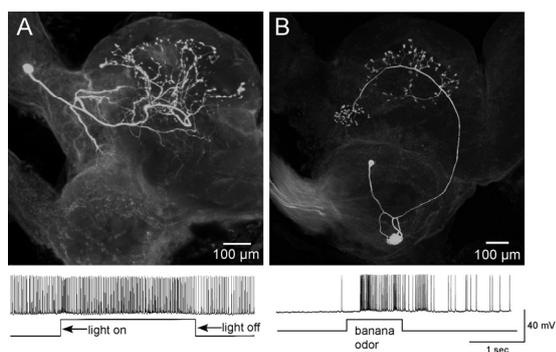


図1. ゴキブリの高次中枢(キノコ体)を支配する視覚応答性および嗅覚応答性介在ニューロンとその活動。

昆虫では、化学感覚情報は行動の決定や発現に重要である。高次中枢において化学感覚情報が処理・統合される神経メカニズムについては、ワモンゴキブリを材料に研究を進めた。ゴキブリの触角表面に分布する嗅感覚子はその形状によって5つのタイプに大別される。個々の嗅感覚子の中には1個～4個の嗅受容細胞が存在する。各受容細胞は特定の匂いを処理していることが知られている。まず、触角感覚子の先端を切断して、そこに色素を充填した微小ガラス電極をかぶせることで、感覚子のタイプ依存的な軸索投射パターンを明らかにした。5つの感覚子タイプはそれぞれ一次嗅覚中枢(触角葉)中の異なる糸球体グループに投射し、グループ間のオーバーラップはみられなかった。同一タイプの感覚子からの入力を受ける糸球体同士は近接する傾向がみられた。また、糸球体内の軸索終末が触角の基部/末梢の細胞体の位置に応じて組織化されていることを単一求心繊維の投射領域の比較により、再確認した。

昆虫の前大脳中のキノコ体は多種感覚連合中枢として学習などの高次機能を司ることが知られる。まず、一次視覚中枢(視葉)への色素注入により視葉に樹状突起を持ち、キノコ体の入力部位である傘部に軸索終末を持つ視覚投射ニューロンが3本程度しか存在しないことを明らかにした。このことは触角葉からキノコ体の傘部へ入力する嗅覚投射ニューロンが数百本存在することと対照的であった。次に細胞内記録・染色法により、視覚性投射ニューロンが視覚刺激に対して特異的な興奮性応答を示す(図1A)、嗅覚投射ニューロンが特定の匂い刺激に対して興奮性応答を示すことを明らかにした(図1B)。視覚投射ニューロンの軸索終末はキノコ体の傘部の外層領域のみに局在しており、嗅

覚投射ニューロンの軸索終末がみられる内層領域とは明瞭に隔てられていた。以上より、原始的な昆虫であるゴキブリのキノコ体においても処理する感覚モダリティの違いに応じた精緻な組織化が存在することが明らかとなった。

一方、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について分子生物学的側面からの解明も目指してきた。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)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した。また、コオロギ脳で発現するNO/環状ヌクレオチドシグナル伝達系関連因子の遺伝子の同定、神経細胞特異的に発現する遺伝子と予想される *elav* ホモログ *found in neurons (fne)* 遺伝子の同定と発現解析、*piggyBac transposase* を利用した遺伝子導入コオロギ系統の作出などを行った。NO/環状ヌクレオチドシグナル伝達系関連因子として、NO受容体として機能する可溶性グアニル酸シクラーゼや、その下流で働くタンパク質リジン酸化酵素、環状ヌクレオチド依存性陽イオンチャンネルなどの遺伝子を同定した。また、これらについてコオロギの組織特異的な発現パターンを調査し、これらの遺伝子群がコオロギ脳だけでなく広範な組織にわたって遺伝子特異的なパターンで発現していることを明らかにした。また、神経細胞特異的に発現すると考えられるコオロギ *fne* 遺伝子について、異なる転写調節領域により発現制御を受けると考えられる2つのアイソフォーム (*fne-A*, *fne-B*) が存在することを明らかにした。さらにこれらの *fne* アイソフォームは、アイソフォーム特異的なパターンでコオロギ組織で発現しており、特に *fne-A* については神経系選択的に発現することが明らかになった。現在、この *fne-A* アイソフォームについて、転写調節領域の同定作業を行なっている。*piggyBac transposase* を利用した遺伝子導入コオロギ系統の作出実験では、*3xP3-EYFP* 遺伝子と *phiC31 integrase* 組換えサイトをもつ遺伝子導入ベクターを *piggyBac mRNA* とともにコオロギ受精卵に顕微微量注入し、成虫まで育成した後、戻し交雑し、次世代(F1世代)の卵を回収した。*3xP3-EYFP* 遺伝子は主に複眼で発現することが予想されるが、このF1世代の胚において複眼で *EYFP* 由来の緑色蛍光が観察されることを確認した(図2)。

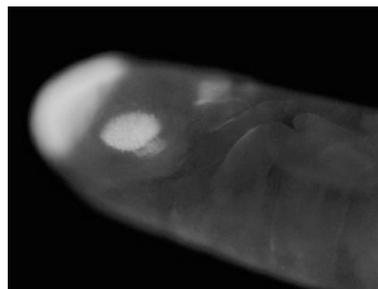


図2. 遺伝子導入コオロギ。蛍光タンパク質EYFPを複眼特異的に発現させたコオロギの胚。

現在、この遺伝子組み換え系統において phiC31 integrase による配列特異的組み替え反応を利用した新規な遺伝子導入技術を開発している。

これら昆虫を使った行動生理学、神経遺伝学の実験結果で得られた知見をもとに、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。

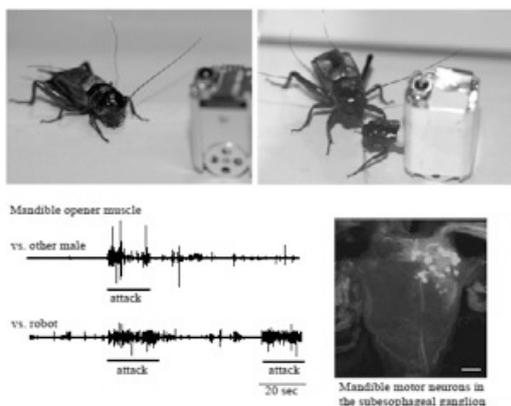


図3. 小型移動ロボットを使った昆虫の行動誘導。ロボットを使い任意に行動を誘導し神経生理機能の解析。

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。

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、実時間で適応的な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、研究で得られた分子・細胞・ネットワーク・個体行動の各階層における知見は詳細ではあるが断片的で、それぞれの階層の間には大きなギャップあり、そ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、適応行動の発生メカニズム、社会構築の設計原理、社会適応の神経機能の設計原理を解明することをめざしている。

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間相互作用、コミュニケーションなど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設計や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) T. Mizuno, M. Sakura, M. Ashikaga, H. Aonuma, R. Chiba and J. Ota: "Model of a sensory-behavioral relation mechanism for aggressive behavior of crickets", *Robotics and Autonomous Systems*, 60: 700-706 (2012)
- 2) K. Kawabata, T. Fujii, H. Aonuma, T. Suzuki, M. Ashikaga, J. Ota and H. Asama: "A Neuro-modulation Model of Behavior Selection in the Fighting Behavior of Male Crickets", *Robotics and Autonomous Systems*, 60: 707-713 (2012)
- 3) M. Sakura, R. Okada and H. Aonuma: "Evidence for instantaneous e-vector detection in the honeybee using an associative learning paradigm", *Proceedings of Royal Society B*, 279(1728): 535-542 (2012)
- 4) C. Matsumoto, Y. Matsumoto, H. Watanabe, H. Nishino and M. Mizunami: "Context-dependent olfactory learning monitored by activities of salivary neurons in cockroaches", *Neurobiology of Learning and Memory*, Elsevier, 97: 30-36 (2012)
- 5) H. Nishino, M. Iwasaki, K. Yasuyama, H. Watanabe and M. Mizunami: "Visual and olfactory input segregation in the mushroom body calyces in a basal neopteran, the American cockroach", *Arthropod Structure & Development*, Elsevier, 41: 3-16 (2012)
- 6) H. Pflüger, L. H. Field, H. Nishino and M. J. Currie: "Neuromodulatory unpaired median neurons in the New Zealand tree weta, *Hemideina femorata*", *Journal of Insect Physiology*, 52: 1420-1430 (2011)
- 7) T. Watanabe, H. Sadamoto and H. Aonuma: "Identification and expression analysis of the genes involved in serotonin biosynthesis and transduction in the field cricket *Gryllus bimaculatus*", *Insect Molecular Biology*, 20(5) : 619-635 (2011)
- 8) T. Funato, M. Nara, D. Kurabayashi, M. Ashikaga and H. Aonuma: "A model for group size-dependent behaviour

decision in insect using an oscillator network”, *J. Exp. Biol.*, 214: 2426–2434 (2011)

- 9) A. Katsumata, R. Yamaoka and H. Aonuma: “Social interactions influence dopamine and octopamine homeostasis in the brain of the ant, *Formica japonica*”, *J. Exp. Biol.*, 214(10): 1707–1713 (2011)

4.2 総説、解説、評論等

- 1) 青沼仁志:「コオロギの世界から発達障害・社交障害をみる (Learning from cricket fighting - how crickets recover from depressive status?)」、*Psychiatry 精神科、科学評論社*, 18(5): 535–541 (2011)

4.7 講演

i) 学会

- 1) H. Aonuma (2012 Mar) Aminergic control of aggressive behavior in the cricket, The 2nd International Conference on the Cricket/RNAi Symposium for Medicine–Agriculture–Engineering Collaboration Project (Joint Meeting), Tokushima, Japan
- 2) T. Watanabe and H. Aonuma (2012 Mar) Molecular basis of cricket aggression: Gene identification and development of tools for establishing “neurogenetics” in the cricket, The 2nd International Conference on the Cricket/ RNAi Symposium for Medicine–Agriculture–Engineering Collaboration Project (Joint Meeting), Tokushima, Japan
- 3) 西野浩史:「自己受容から振動受容へ—昆虫の擬死行動のメカニズム—」、第56回日本応用動物昆虫学会大会小集会: 昆虫音響学への招待—振動感覚と行動、奈良市・近畿大学農学部 (2012-03)
- 4) 渡邊崇之、青沼仁志:「クロコオロギにおける環状ヌクレオチドシグナル伝達系関連遺伝子の解析」、日本動物学会第82回大会、旭川市大雪クリスタルホール (2011-09)
- 5) 佐倉緑、渡邊崇之、青沼仁志:「クロコオロギの闘争行動における視覚情報の効果」、日本動物学会第82回大会、旭川市大雪クリスタルホール (2011-09)
- 6) 石川由希、青沼仁志、佐々木謙、三浦徹:「兵隊シロアリの攻撃性はチラミンによってもたらされる」、日本動物学会第82回大会、旭川市大雪クリスタルホール (2011-09)
- 7) 青沼仁志:「クロヤマアリの異種昆虫に対する攻撃動機づけを制御するオクトパミンの働き」、日本動物学会第82回大会、旭川市大雪クリスタルホール (2011-09)
- 8) 岡田龍一、池野英利、木村敏文、大橋瑞江、青沼仁志、伊藤悦朗:「コンピューター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82回大会、旭川市大雪クリスタルホール (2011-09)
- 9) 西野浩史、岩崎正純、上村逸郎:「ゴキブリ性フェロモ

ン情報処理における高次中枢の役割」、日本動物学会第82回大会、旭川市大雪クリスタルホール (2011-09)

- 10) 泰山浩司、松村龍成、夏秋友香、西川道子、横張文男、西野浩史:「ゴキブリの口器付属肢感覚神経が投射する後大脳糸球体の微細構造の解析」、日本動物学会第82回大会、旭川市大雪クリスタルホール (2011-09)
 - 11) 岩崎正純、水波誠、西野浩史:「ワモンゴキブリのキノコ体における視覚と嗅覚情報の入力部位の比較」、日本動物学会第82回大会、旭川市大雪クリスタルホール (2011-09)
 - 12) Y. Ishikawa, H. Aonuma, K. Sasaki and T. Miura: “Molecular underpinnings of the defensive division of labor in termites”, *Society for Molecular Biology and Evolution (SMBE2011)*, Kyoto (Kyoto Univ.) (2011-07)
 - 13) H. Aonuma, M. Sakura, K. Kawabata, J. Ota and H. Asama: “Synthetic approach for understanding internal state changes in subordinate cricket in fighting”, *The 8th International Congress of Comparative Physiology and Biochemistry*, Nagoya (2011-05 ~ 2011-06)
 - 14) M. Sakura, R. Okada and H. Aonuma: “Evidence for instantaneous e-vector detection in the honeybee using an associative learning paradigm”, *The 8th International Congress of Comparative Physiology and Biochemistry*, Nagoya (2011-05 ~ 2011-06)
 - 15) R. Okada, H. Ikeno, M. Ohashi, T. Kimura, H. Aonuma and E. Ito: “Computational Analysis of the foraging strategy in the honeybees, *Apis mellifera*”, *The 8th International Congress of Comparative Physiology and Biochemistry*, Nagoya (2011-05 ~ 2011-06)
 - 16) T. Watanabe, H. Sadamoto and H. Aonuma: “Identification and expression analysis of the biogenic amine-related genes in the field cricket *Gryllus bimaculatus*”, *The 8th International Congress of Comparative Physiology and Biochemistry*, Nagoya (2011-05 ~ 2011-06)
 - 17) H. Nishino, M. Iwasaki and M. Mizunami: “Detection of female sex pheromone by male and female cockroaches: a comparative study”, *ICCPB2011*, Nagoya Congress Center (2011-05 ~ 2011-06)
 - 18) 泰山浩司、松村龍成、有井達夫、村田和義、夏秋友香、西川道子、横張文男、西野浩史:「ゴキブリ口器付属肢の感覚神経が形成する後大脳糸球体の構造解析」、日本動物学会中国四国支部大会2011、香川大学幸町北キャンパス (2011-05)
- ##### ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ等
- 1) H. Aonuma, R. D. Guerra, M. Asada and K. Hosoda: “Manipulation of aggressive behavior of the cricket using a small robot”, *The 5th International Symposium on Adaptive Motion of Animals and Machines (AMAM2011)*, The Awaji Yumebutai International Conference Center (2011-10)

- 2) T. Watanabe and H. Aonuma: "Molecular aspects of the serotonergic system in the cricket CNS: implication in the adaptive modulation of behavior", The 5th International Symposium on Adaptive Motion of Animals and Machines (AMAM2011), The Awaji Yumebutai International Conference Center (2011-10)
- 3) 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)
- 4) H. Aonuma and T. Watanabe: "Octopaminergic control of task dependent aggression in the ant, *Formica japonica*", 12th ISIN Symposium on the Neurobiology of Invertebrates, Tihany, Hungary (2011-08 ~ 2011-09)
- 5) R. Okada, H. Ikeno, T. Kimura, M. Ohashi, H. Aonuma and E. Ito: "Mathematical analysis of honeybee waggle dance", 12th ISIN Symposium on the Neurobiology of Invertebrates, Tihany, Hungary (2011-08 ~ 2011-09)
- 6) M. Sakura, T. Watanabe and H. Aonuma: "Fighting behavior of white-eye mutants in the cricket *Gryllus bimaculatus*", 12th ISIN Symposium on the Neurobiology of Invertebrates, Tihany, Hungary (2011-08 ~ 2011-09)
- 7) T. Watanabe, H. Sadamoto and H. Aonuma: "Identification and expression analysis of the genes involved in the biogenic amine systems in the field cricket *Gryllus bimaculatus*", 12th ISIN Symposium on the Neurobiology of Invertebrates, Tihany, Hungary (2011-08 ~ 2011-09)
- 8) 青沼仁志:「クロヤマアリ *Formica japonica* の攻撃性を制御する脳内オクトパミンの働き—異種昆虫に対する攻撃性は社会的隔離によってリセットされる」、第16回北陸社会性昆虫勉強会、富山大学 (2011-07)
- 9) 西野浩史:「化学生態学への神経行動学的アプローチ: ゴキブリの性フェロモンコミュニケーション」、第6回化学生態学研究会、湯の川プリンスホテル渚亭 (函館) (2011-06)
- 10) 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)

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) 青沼仁志、基盤研究 B、昆虫脳における適応的な行動制御信号の生成メカニズムの解明、2011~2013年度
 - 2) 西野浩史、基盤研究 C、匂い受容野の形成に寄与する神経基盤の解明、2011~2013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)

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、2011年7月8日
- 2) 生命科学院、生命システム科学基礎論、青沼仁志、2011年4月1日~2010年9月30日
- 3) 生命科学院、生命科学論文講読、青沼仁志、2011年4月1日~2011年3月31日
- 5) 高等機能推進機構、一般教育演習 (フレッシュマンセミナー)、西野浩史、2011年4月1日~9月30日

i. ポスドク・客員研究員など

・ポスドク (1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 Thomas Reji (2009.4～2012.3)

技術補助員 館山絵美

事務補助員 平出ありさ、大木真理子

1. 研究目標

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

キラリティー (分子の形をその鏡像と重ね合わせることができない性質)は、生命を構成する分子を特徴付けている。それゆえ、キラリティーの生成や制御は、パストゥール以来の化学者の興味の対象となっている。特に、自然界の分子が如何に単一鏡像異性体分子系を達成したかという基本的な問題を考えたとき、キラリティーが様々な刺激に対してどのように生成、消失するかを明らかにすることは重要である。

キラリティーは、分子中に中心不斉、軸不斉、面性不斉、ヘリカル不斉のいずれかの非対称性が存在するときに備わる。そのうち、中心不斉は、一つの炭素に4つの異なる置換基を有するときに見られる不斉であり、アミノ酸の不斉要素でもある。これまで、中心不斉を動的に発生、消失させるためには、炭素と置換基の間の結合を切ったり、繋げたりするしかなかった。われわれは、アゾベンゼンという置換基を2つ導入したメタンの誘導体をデザインし、化学結合を切ったり、繋げたりするのではなく、アゾベンゼンの幾何異性を光で制御することで、中心不斉の発生と消失を自由に制御することができると考えた (図1)。

図2に上記の考えに基づいて合成した不斉を持たない化合物EE-1の構造と、光によって生成する幾何異性体EZ-1の構造を示す。EZ-1の2つの鏡像異性体は、キラルカラム

を用いた高速液体クロマトグラフィーによって分割、単離することができた。得られた各鏡像異性体は、お互いに鏡像となる円二色性スペクトルや核磁気共鳴スペクトルなどで、その構造を確認することができた。また、中心不斉を有するEZ-1から不斉を持たないEE-1への熱異性化反応も、円二色性スペクトルの消失や高速液体クロマトグラフィーなどにより確認できた。すなわち、これまで全く別の分子構造要素と考えられていた中心不斉と幾何異性を直接結びつけることで、分子キラリティーの発生と消失を光と熱で繰り返し制御することに成功したことになる。今後は、今回合成された化合物や関連化合物に、キラルな場としても働く円偏光を照射することで、中心不斉の発生だけでなく、一方の鏡像異性体を選択的に発生させることも可能であると考えられる。

本研究は、分子の基本的な性質であるキラリティーの制御に関して新しい方法論を提示すると同時に、自然界の有機化合物の単一鏡像異性体分子系の生成機構の新しい可能性を示すものとして期待される。

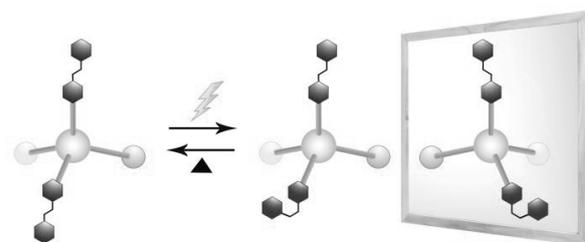


図1. 本研究の分子を模式的に表したものの。2つの六角形が連結された部分は、トランスまたはシス-アゾベンゼンを表す。

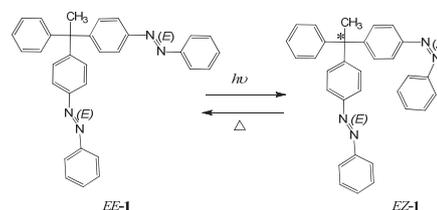


図2. 合成した化合物。光と熱による反応で不斉中心の発生を制御可能。EZ-1の鏡像異性体は光学分割できる。

2. 新規なフォトクロミックヌクレオチドアナログによる生体ナノモーターの駆動と運動の光制御

ATP (アデノシン三リン酸) は生命活動に必須の分子であり、エネルギー代謝に深く関与している。モータータンパク質の一つであるキネシンは、ATPの加水分解エネルギーを用いてレールフィラメント・微小管上を一方方向に滑走することが知られている。このキネシン/微小管の運動系は基板上で再構築できることから、生体分子を利用するアクチュエーター開発のモデル材料として注目を集めている。本研究において、非侵襲性と時間空間分解能に優れた光を用いて、キネシン/微小管系の運動を制御する光応答性ATPアナログ分子の開発を試みた。

光応答性ATPアナログとして、ATPのリボース部位に、

紫外・可視光照射によって可逆的なトランス-シス異性化反応を示すフォトクロミック分子、アゾベンゼン誘導体を組み込んだATP-Azo (図3) を合成した。ATP-Azoがキネシンの駆動能を持つことを、基板に吸着されたキネシン上で蛍光標識微小管が滑走する様子を観察する、インビトロモーターリテーアッセイ法によって確認した。

さらに、上記のアッセイにおいて、*cis*-ATP-Azoを誘起する紫外光 ($\lambda = 365 \text{ nm}$) を照射すると、キネシンに駆動された微小管の滑走速度が上昇し、続いて、*trans*-ATP-Azoへの逆反応を誘起する可視光 ($\lambda = 436 \text{ nm}$) 照射によって速度が低下する、可逆的な変化が観察された (図3)。また、高濃度ATP-Azo (1 mM) 条件では、*cis*-ATP-Azo存在下でのキネシン/微小管系における結合・滑走と*trans*-ATP-Azo存在下での解離というユニークな現象を見出した (図3)。以上により、ATP-Azoがキネシンの運動特性を可逆的に光制御できることを示した。

ナノバイオテクノロジー分野において、生体分子モーターを利用したデバイスの成否は、そのアクチュエーター機能のスマートな制御の開発にかかっている。ATP-Azoは生体モーターの光モジュレーターとして有望な分子である。

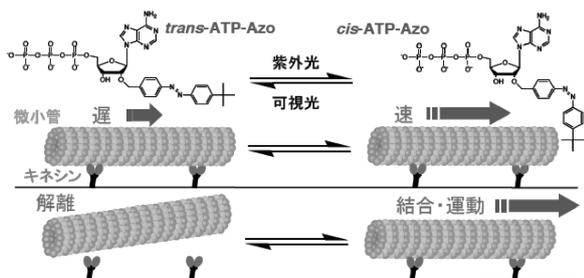


図3. ATP-Azoによるキネシン-微小管系の運動の光制御

3. 光誘起ラセミ化反応を示すアゾベンゼン誘導体におけるキラリット溶媒からのキラリティー情報の移動と固定

キラリット情報の誘起、移動、増幅、記憶は、化学、生物学、薬学、および材料科学など科学の様々な分野で活発に取り上げられてきた重要な話題である。これらの領域での具体的な研究としては、基礎的には、自然界のホモキラリティーの起源の解明があり、実用的には、不斉合成、キラリティーセンサー、分子デバイス構築などがある。われわれは、すでに、*EZ*光異性化反応を示す化合物の中で、図4に示した環状アゾベンゼンが、トランス体の時にはラセミ化反応を示さず、シス体においてのみラセミ化反応を起こすことを見出していた。もし、キラリット溶媒中でシス体からトランス体への光異性化反応を行えば、シス体において一方のトランス鏡像異性体の前駆体となる構造が溶媒のキラリット場によって安定化され、安定な鏡像異性体の構造として一方のトランス体が過剰となるのではないかと考えた。実際にキラリット溶媒としてR-(+)-1-フェネチルアルコールを用いてシストランス光異性化反応を行ったところ、トランス体の一方の鏡像異性体が過剰となっていることが、円二色性

スペクトルによって確認された。このアゾベンゼンの吸収領域に現れた円二色性スペクトルは、S-(+)-1-フェネチルアルコールをR溶媒と同量足して溶媒をラセミ体としても消えなかった。このことから、溶媒から環状アゾベンゼンへ移動したキラリット情報は、安定な分子構造として固定されていることが確認された。本成果は、キラリット情報の単なる一時的な移動ではなく、単一分子の安定な分子構造として固定されている点が従来にない特徴である。

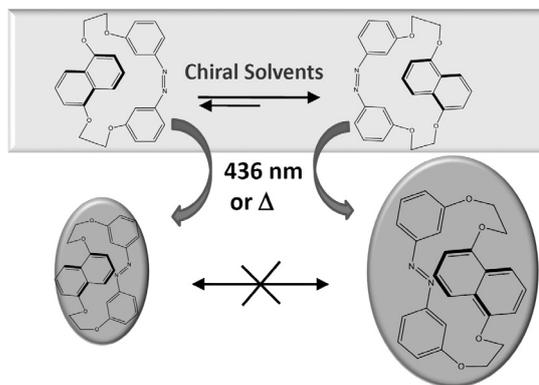


図4. 用いた環状アゾベンゼンの構造と溶媒からキラリティーが移動して単一分子にメモリーされる挙動を表した模式図。

3. 今後の研究の展望

今年度の研究で、中心不斉と*EZ*幾何異性を関連付けることに成功し、結果的に*EZ*光異性化反応によって動的に中心不斉の発生と消失を起こすことに成功した。今後は、この結果を利用して、円偏光照射により、*EZ*異性体の一方の鏡像異性体を過剰とすることを目指したい。しかし、これまでの予備的な実験結果では、*EZ*異性体の鏡像異性体の円二色性から計算される円偏光下での鏡像異性体過剰率は、円二色性スペクトルによる鏡像異性体過剰率の検出限界を下回っている。従ってより大きな円二色性を有する鏡像異性体を用いることが望まれる。そこで、*EZ*異性化反応によって分子全体の非対称化を誘起するという概念を中心不斉生成に限定せずに、面性不斉や軸不斉にも拡張していきたい。

フォトクロミック化合物によるキネシン-微小管系の駆動と光動的制御に関しては、光照射によるより大きな滑走速度の変化が必要である。そのために、ATPへのアゾベンゼン部位の導入位置を変化させる方法や、ATPの構造を全く使わない方法を試みる。それによって、光による完全ON-OFFスイッチングを目指したい。また、当初の目的である加水分解ではなく、光異性化反応自身で、キネシン-微小管系の駆動を誘起する研究にも取り組んでいきたい。

完全合成系による「仕事をする分子機械」の構築にも取り組む予定である。液晶とキラリットフォトクロミック添加剤の系により、その混合物の膜上に載せた数十ミクロンの物質の回転運動を一方に連続で起こすことを実現したい。そのために、分子構造変化レベルでは、単なるピストン運動をする時に、分子集合体レベルでは非対称変化を生む仕

組みを構築する必要がある。そのような仕組みを、キラルフोटクロミック添加剤を新たに設計することにより実現したい。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) M. Funahashi, F. Zhang and N. Tamaoki: "Temperature-Independent Hple Mobility in Field-Effect Transistors Based on Liquid-Crystalline Semiconductors", *IEICE Trans. Electron.*, E94-C, 1720-1726(2011)
- 2) P.K.Hashim and N. Tamaoki: "Induction of Central Chirality by E/Z Photoisomerization", *Angewandte Chemie International Edition*, 50: 11729-11730 (2011)
- 3) S. Hatano, K. Fujita, N. Tamaoki, T. Kaneko, T. Nakashima, M. Naito, T. Kawai and J. Abe: "Reversible Photogeneration of a Stable Chiral Radical-Pair from a Fast Photochromic Molecule", *Journal of Physical Chemistry Letters*, 2: 2680-2682 (2011)
- 4) M. K. Abdul Rahim, T. Fukaminato, T. Kamei and N. Tamaoki: "Dynamic photo-control of the gliding motility of a microtubule driven by kinesin on a photoisomerizable monolayer surface", *Langmuir*, 27(17): 10347-10350 (2011)
- 5) P.K.Hashim, R. Thomas and N. Tamaoki: "Induction of Molecular Chirality by Circularly Polarized Light in Cyclic Azobenzene with a Photoswitchable Benzene Rotor", *Chem.-Eur.J.*, 17(26): 7304-7312 (2011)
- 6) R. Thomas and N. Tamaoki: "Chirality Transfer from Chiral Solvents and its Memory in Azobenzene Derivatives Exhibiting Photo-switchable Racemization", *European Journal of Organic Chemistry* (2011)

4.2 総説、解説、評論等

- 1) 玉置信之:「フォトクロミズムの新展開と光メカニカル機能材料- 第3章 第4項 アゾベンゼンを用いる分子運動の光可逆的制御」、シーエムシー出版: 236-248(2011)

4.7 講演

b. 一般講演

i) 学会

- 1) 赤坂岳人, Thomas Reji, 玉置信之:「面性不斉型アゾベンゼン誘導体を添加したコレステリック液晶上におけるガラス小片の光駆動一方向連続回転」、日本化学会第92春季年会、慶応義塾大学日吉キャンパス(2012-03)
- 2) 深港豪:「単一分子蛍光計測で探るキラリティーの本質」、さきがけ「光の利用と物質材料・生命機能」領域一期生報告会、東京大学・本郷キャンパス 山上会館(2012-03)

- 3) 深港豪、亀井敬、玉置信之:「光スイッチング機能を有する微小管重合阻害剤: 重合阻害に及ぼす置換基依存性」、日本化学会大92春季年会、慶応義塾大学・矢上キャンパス(2012-03)
- 4) 亀井敬、深港豪、玉置信之:「フォトクロミックスクレオチドアナログによる生体ナノモーターの駆動と運動の制御」、日本化学会大92春季年会、慶応義塾大学・矢上キャンパス(2012-03)
- 5) 大原裕樹、森本正和、深港豪、玉置信之、入江正浩:「アントラセン基を有するジチアゾリルエテン誘導体のフォトクロミズムと蛍光特性」、2011年光化学討論会、宮崎市河畔コンベンションエリア (2011-09)
- 6) 深港豪:「フォトクロミック分子を用いた単一分子蛍光の光制御」、第1回光科学異分野横断萌芽研究会、かんぼの宿(奈良)(2011-08)

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」、第8回 最終公開シンポジウム「フォトクロミズムの新たな飛躍を目指して」、東京大学本郷キャンパス 山上会館 (2011-11)
- 2) 深港豪*:「単一分子蛍光計測で探るキラリティーの本質」、第4回文部科学省「最先端の光の創成を目指したネットワーク研究拠点プログラム」、名古屋キャッスルプラザホテル(2011-11)
- 3) 玉置信之: The Third RIES-CIS Symposium、台湾国立交通大学、(2011-10)
- 4) T. Fukaminato: "Probing the chiral nature by single molecule fluorescence detection", *Innovative Use of Light and Nano/Bio Materials*, Academia Sinica(2011-05)
- 5) 深港豪:「単一分子蛍光計測で探るキラリティーの本質」、光の利用と物質材料・生命機能領域会議、台湾国立交通大学 (2011-05)

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、萌芽研究、生体マイクロチューブの重合ダイナミクスの可逆的光制御と擬似細胞マシン創製への応用、2011～2012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～2013年2月28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）
- 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12月7日～2011年12月9日
 - 2) 全学共通、環境と人間-ナノって何なの？最先端 光・ナノテク概論、玉置信之、2012年1月18日
 - 3) 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7月20日
 - 4) 理学部、生物高分子科学、玉置信之、2011年6月22日
 - 5) 理学院、生命融合科学概論、玉置信之、2011年5月26日
 - 6) 理学部、基礎物理化学、玉置信之、2011年4月1日～2011年9月30日
 - 7) 生命科学院、生命物質科学特論（分子組織科学）、玉置信之、2011年4月1日～2011年9月30日

i. ポスドク・客員研究員など

- ・ポスドク（1名）
- 1) 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～)
前田真秀 (大阪府立大学、修士、2011.4～)
渡部大志 (北海道大学、修士、2011.4～)
研究生 玉井信也 (東京大学、修士(学術)、
2006.4～)
事務補佐員 平 厚子 (2003.9～)
三浦由貴 (2011.3.～)
院 生 黒田 拓(D3)、塚田啓道(D3)、三上丈晴(M2)、
松永伸夫(M1)、高橋政憲(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。このことを数的にモデル化するために、典型的なカオス力学系の結合系においてヘテロ結合の効果を調べている。具体的には、二つのRoessler modelのヘテロ相互作用系を採用した。昨年度、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。今年度は差 r にこの研究を進め、もとの力学系のカオス成分をノイズとして繰り返す2次元位相モデルを計算データから抽出した。(山口他)

2. 異種連想記憶間のコミュニケーション可能性

数学モデルに関して、Novelty-induced learningの成立する条件を明らかにした。(李、津田)

3. 迷いの神経機構

人や動物が複数の中から一つを選択する学習過程で、しばしば判断に迷っている行動を起こすことがある。この神

経機構を研究している。Wangモデルを改変した生理学的なモデルを用いてシミュレーションを行っている。(李、津田他)

4. 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

大脳皮質6層構造の典型的なネットワークのスケルトンネットワークを作って次のことを確認した。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、デコードも可能になることが分かった。(塚田、津田、山口)

5. 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自己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、ミラーニューロンの計算論的モデルとして提案した。模倣が完成するまでにホップ分岐を基本とした複雑な分岐を経験することが分かった(津田、Kang)

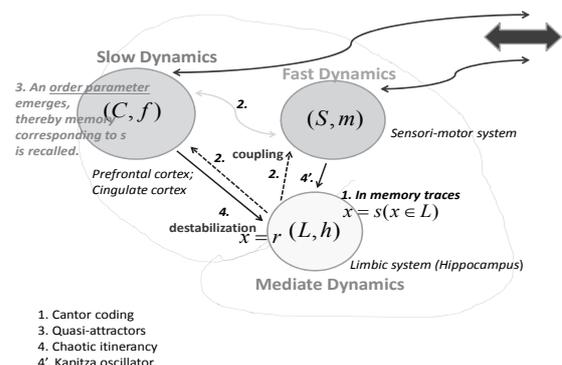
6. カオスの遍歴の機構に関する数学的な理論

昨年に引き続き、研究を行った。次のシナリオ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の遍歴になる。(津田)

7. ランダム力学系の研究

雑音が引火されたカオス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。さらに、企業研究者や国の内外の多数の研究者と共同研究を成立させた。(佐藤)



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海外共同研究を通して解決したい。さらに、コミュニケーションの脳内機構に関して、ヘテロ複雑系理論を新たに構築することでその解明を目指す。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する。さらには、相空間の次元が変化するような新しい力学系一発展型力学系一の基礎理論の構築を目指したい。さらに、数学理論の応用を医療にも拡大していきたい。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) 津田一郎:「無意味化されたコミュニケーションの意味 - 「想定外」は想定外」、科学研究費補助金新学術領域研究「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」、News Letter, Vol.3:2-4 (2012)
- 2) H. Fujii, T. Kanamaru, K. Aihara and I. Tsuda: “A New Role for Attentional Corticopetal Acetylcholine in Cortical Memory Dynamics”, *AIP Conference Proceedings Vol. 1389 “International Conference on Numerical Analysis and Applied Mathematics 2011”*, eds T. E. Simos et al., American Institute of Physics (2011): 1340-1343 (2011)
- 3) 津田一郎:「「コミュニケーション神経情報学」からの眺め」、日本神経回路学会誌 2011年9月号 (2011)
- 4) Y. Yamaguchi, I. Tsuda and Y. Takahashi: “Information Theoretic Approach to Dynamical Systems of Heterogeneously Interacting Chaotic Oscillators”, *AIP Conference Proceedings “International Conference on Numerical Analysis and Applied Mathematics 2011”*, American Institute of Physics, Vol. 1389 : 1361-1364 (2011)
- 5) H. Fujii, T. Kanamaru, K. Aihara and I. Tsuda: “A New Role for Attentional Corticopetal Acetylcholine in Cortical Memory Dynamics”, *AIP Conference Proceedings Vol. 1389 “International Conference on Numerical Analysis and Applied Mathematics 2011”*, American Institute of Physics, Vol. 1389 : 1340-1343 (2011)
- 6) A. Takao and I. Tsuda: 「脳はいかにして心を創るのか - 神経回路網のカオスが生み出す志向性・意味・自由意志」ウォルター・J・フリーマン著、産業図書 (2011)

- 7) H. Fujii, K. Aihara, and I. Tsuda: Top-down Mechanism of Perception: A Scenario on the Role for Layer 1 and 2/3 Projections Viewed from Dynamical Systems Theory in *Advances in Cognitive Neurodynamics(II): Proceedings of the Second International Conference on Cognitive Neurodynamics - 2009*, eds. R. Wang and F. Gu, Springer (2011) pp. 79-84
 - 8) I. Tsuda: “Chaotic Dynamics, Episodic Memory, and Self-identity in Advances” in *Cognitive Neurodynamics(II): Proceedings of the Second International Conference on Cognitive Neurodynamics - 2009*, eds. R. Wang and F. Gu, Springer (2011) pp. 11-18
 - 9) S. Kuroda, Y. Fukushima, Y. Yamaguti, M. Tsukada and I. Tsuda: “Emergence of Iterated Function Systems in the Hippocampal CA1 in *Advances in Cognitive Neurodynamics(II): Proceedings of the Second International Conference on Cognitive Neurodynamics - 2009*, eds. R. Wang and F. Gu, Springer (2011) pp. 103-106
 - 10) M. Fuentes, Y. Sato and C. Tsallis: “Sensitivity to initial conditions, entropy production and escape rate at the onset of chaos”, *Physics Letters A*, 375:33, p2988-2991, (2011)
 - 11) Y. Lu, Y. Sato, S. Amari: “Traveling Bumps and Their Collisions in Two Dimensional Neural Field” *Neural Computation*, 23:5, p1248-1260 (2011)
 - 12) S. Tadokoro, Y. Yamaguti, H. Fujii, and I. Tsuda: “Transitory Behaviors in Diffusively Coupled Nonlinear Oscillators”, *Cognitive Neurodynamics* 5, 1-12 (2011) DOI: 10.1007/s11571-010-9130-0
 - 13) Y. Yamaguti, S. Kuroda, Y. Fukushima, M. Tsukada, and I. Tsuda: “A Mathematical Model for Cantor Coding in the Hippocampus”, *Neural Networks* 24, 43-53 (2011)
 - 14) Yuzuru Sato, Makoto Iima and Yuji Tasaka, “Random dynamics from time-series of rotating fluid,” *Hokkaido University Preprint Series in Mathematics*, #979 (2011)
- #### 4.7 講演
- i) 学会
- 1) 山口裕、津田一郎、高橋陽一郎: 「ヘテロ結合カオス振動子における情報伝達方向の間欠的遷移」: 日本物理学会 第67回年次大会、関西学院大学 西宮上ヶ原キャンパス、(2012-03)
 - 2) Yuzuru Sato: “Random dynamics from time-series and its applications”, *NOLTA2011*, Kobe, Japan, (2011-09).
 - 3) Yutaka Yamaguti, Ichiro Tsuda, and Yoichiro Takahashi: “Information Theoretic Approach to Dynamical Systems of Heterogeneously Interacting Chaotic Oscillators”, 9th International Conference on Numerical Analysis and Applied Mathematics, Halkidiki, Greece (2011-09)
 - 4) 藤井宏*, 金丸隆志, 合原一幸, 津田一郎: “A New Role

- for Attentional Corticopetal Acetylcholine in Cortical Memory Dynamics”, 9th International Conference on Numerical Analysis and Applied Mathematics, Halkidiki, Greece (2011-09)
- 5) Yutaka Yamaguti and Ichiro Tsuda: “Switching of directions of information flows as a model of hetero-interactions in the neocortex”, (poster), The 34th Annual Meeting of the Japan Neuroscience Society, Pacifico Yokohama, Japan, (2011-09)
 - 6) Ichiro Tsuda and Hunseok Kang: “Dynamical analysis on copying-and-identifying process: toward the understanding of mirrorneuron systems”, The 34th Annual Meeting of the Japan Neuroscience Society, Pacifico Yokohama (2011-09)
 - 7) Hiromichi Tsukada, Yutaka Yamaguti, Hiroshi Fujii, and Ichiro Tsuda: “Chaotic itinerancy-like memory retrieval in the neural networks of Pinsky-Rinzel type of neurons”, (poster), The 34th Annual Meeting of the Japan Neuroscience Society, Pacifico Yokohama, Japan, (2011-09)
 - 8) Yuzuru Sato, and Shun-ichi Amari: “Robust computation in two-dimensional neural field”, invited talk, The 3rd International Conference on Cognitive Neurodynamics (ICCN’11), Niseko, Hokkaido, Japan (2011-06)
 - 9) Yutaka Yamaguti, Ichiro Tsuda, and Yoichiro Takahashi: “Spontaneous switching of the direction of information flow”, The 3rd International Conference on Cognitive Neurodynamics (ICCN’11), Niseko, Hokkaido, Japan (2011-06)
 - 10) Y. Sato: “Noise-induced phenomena in one dimensional maps,” invited talk, SIAM Conference on Applications of Dynamical systems, Snowbird, USA (2011-05)
 - 11) 1) H. Tsukada*, Y. Yamaguchi, H. Fujii, I. Tsuda: “Transitory memory retrieval in the neural networks composed of Pinsky-Rinzel model neurons.”, The 3rd International Conference on Cognitive Neurodynamics (ICCN’11), Niseko, Hokkaido (2011-06)
 - 12) H. Fujii*, T. Kanamaru, K. Aihara and I. Tsuda: “Attentional Cholinergic Projections May Induce Transitions of Attractor Landscape via Presynaptic Modulations of Connectivity,”, The 3rd International Conference on Cognitive Neurodynamics (ICCN’11), Niseko, Hokkaido (2011-06)
 - 13) Yongtao Li* and I. Tsuda: “A Communicative Model: Can We Interpret Neural Dynamics of Understanding?”, The 3rd International Conference on Cognitive Neurodynamics (ICCN’11), Niseko, Hokkaido (2011-06)
 - 14) I. Tsuda*: “Towards understanding of neural dynamics in communicating brains”, The 3rd International Conference on Cognitive Neurodynamics (ICCN’11), Niseko, Hokkaido (2011-06)
 - 15) Y. Fukushima, Y. Isomura, Y. Yamaguti, S. Kuroda I. Tsuda and M. Tsukada: “Inhibitory network dependency in Cantor coding”, The 3rd International Conference on Cognitive Neurodynamics (ICCN’11), Niseko, Hokkaido (2011-06)
 - 16) Yuzuru Sato, “Noise-induced statistical periodicity in one dimensional maps,” contributed talk, JPS meeting, Hyogo, Japan (2012-03)
 - 17) Yuko Aoki, Sho Iwamoto, “Dynamics of McIntyre-Schumacher-Woodhouse model” contributed talk, JPS meeting, Hyogo, Japan (2012-03)
 - 18) Yuzuru Sato, “Noise-induced phenomena in one dimensional maps,” contributed talk, ECCS2011, Vienna, Austria, (2011-09).
 - 19) Yuzuru Sato, “Noise-induced phenomena in one dimensional maps,” contributed talk, WCHAOS2011, Dresden, Germany, (2011-07).
- ii) **研究会・シンポジウム・ワークショップ**
- 1) Yuzuru Sato: “Noise-induced phenomena and their applications: interaction between deterministic chaos and stochastic randomness”, International workshop on Anomalous Statistics, Generalized Entropies, and Information Geometry, Nara Women’s University, Nara, Japan, (2012-03).
 - 2) 津田一郎*: 「脳における伝達創成機構解明のための数理的アプローチ」、ダイナミック・ブレイン研究会－New Trends of Dynamic Brain Research－、伊豆 (2011-04)
 - 3) 津田一郎*: 「コミュニケーションにおける意味創造：記憶、学習、ミラーシステム、判断の素過程」、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」2011年度第1回研究会、国際高等研究所 (2011-07)
 - 4) 山口裕*、津田一郎、高橋陽一郎: 「ヘテロ相互作用系における情報伝達構造」、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」2011年度第2回研究会、国際高等研究所 (2011-10)
 - 5) I. Tsuda*: “Cantor sets meet the brain”, Chaos in the brain, Universite de Cergy-Pontoise, France (2011-11)
 - 6) I. Tsuda*: “Communicating brains: the origin of mind”, Dynamics of Complex Systems 2012, Hokkaido University (2012-03)
 - 7) Ichiro Tsuda: “Communicating brains: the origin of mind”, Dynamics of Complex Systems 2012, Faculty of Science, Hokkaido University, (2012-03)
 - 8) Ichiro Tsuda: “Cantor sets meet the brain”, “Chaos in the brain”, Laboratoire ETIS – Equipe NeuroCybernetique – UMR CNRS 8051, Universite de Cergy-Pontoise, Cergy-Pontoise, France (2011-09)

- 9) 山口裕、津田一郎、高橋陽一郎：「ヘテロ相互作用系における情報伝達構造」、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学への展開」2011年度第2回研究会、国際高等研究所（京都府）（2011-10）
- 10) Yuzuru Sato: “Random nonlinear phenomena and its applications”, Yakushima workshop, Kagoshima, Japan, (2011-10)
- 11) 津田一郎:「コミュニケーションにおける意味創造：記憶、学習、ミラーシステム、判断の素過程」、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学への展開」2011年度第1回研究会、（2011-07）
- 12) Yuzuru Sato: “Noise-induced phenomena in one-dimensional maps”, invited talk, Queen Mary University of London, London, UK, (2011-07).
- 13) 津田一郎:「脳における伝達創成機構解明のための数理的アプローチ」、招待講演、ダイナミック・ブレイン研究会—New Trends of Dynamic Brain Research—、伊豆（2011-04）

iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) Yuzuru Sato: “Noise-induced phenomena and their applications: interaction between deterministic chaos and stochastic randomness”, Nonlinear Science Colloquium, Waseda University, Japan, (2012-01).
- 2) 津田一郎*:「コミュニケーションする脳？—そのヘテロ複雑システムの理解—」、非線形科学コロキウム、早稲田大学（2011-05）
- 3) Yuzuru Sato: “Noise-induced phenomena in one dimensional maps”, KiDS seminar, Kyoto, Japan, (2011-07)

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

- 1) 津田一郎：ICCN2011 The3rd International Conference on Cognitive Neurodynamics、150人、北海道倶知安町ニセコ（2011年6月9-13日）
- 2) 津田一郎：文部科学省「数学・数理学と諸科学・産業との連携研究ワークショップ 広がっていく数学～期待される「見えない力」～数理連携10の根本問題の発掘、理化学研究所（2011年12月26-29日）
- 3) 津田一郎：Dynamics of Complex Systems 2012、70人、北海道大学理学部（2012年3月6-8日）
- 4) Yuzuru Sato, Organizer, Summer Workshop “Control and Noise in Dynamical Systems,” Sapporo, Japan（2011年8月15-26日）。
- 5) Yuzuru Sato, Organizer, SIAM Applications of Dynamical Systems 2011 minisymposium “Fluctuation and Noise in Living Organisms,” Snowbird, Utah, USA.（2011年5月21-26日）

- 5) Yuzuru Sato, Organizer, International Workshop on “Anomalous Statistics, Generalized Entropies, and Information Geometry,” Nara, Japan. (2012年3月6-10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) 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
 - 2) 津田一郎、新学術領域研究 研究領域提案型、動的脳の情報創成とカオスの遍歴の役割、2009～2013年度
 - 3) 津田一郎、HFSP AWARDS 2010、“Deliberative decision-making in rats”、2010～2012年度
 - 4) 佐藤謙、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) Best Poster Awards : Hiromichi Tsukada, Yutaka Yamaguti, Hiroshi Fujii, Ichiro Tsuda, “Transitory memory retrieval in the neural networks composed of Pinsky-Rinzel model neurons”, The 3rd International Conference on Cognitive Neurodynamics (ICCN’11), Niseko, Hokkaido, Japan (2011-06)

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（2011年4月1日～2012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术応用」国際アドバイザー（2011年4月1日～2012年3月31日）
- 3) 津田一郎、文部科学省、科学研究費補助金における評価に関する委員会の評価者、2011年4月1日～2011年11月30日）
- 4) 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（2011年4月1日～2012年3月31日）
- 5) 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、脳数理研究チーム、客員研究員（2011年4月1日～2012年3月31日）
- 6) 津田一郎、独立行政法人日本学術振興会、博士課程教育リーディングプログラム委員（2011年9月2日～2011年10月31日）
- 7) 津田一郎、独立行政法人日本学術振興会、「産業応用をめざした新物質機能の設計と実証」に関する研究開発専門委員会委員（2011年12月1日～2012年3月31日）
- 8) 津田一郎、科学技術動向研究センター、専門調査員

- (2011年4月1日～2012年3月31日)
- 9) 津田一郎、京都大学数理解析研究所、運営委員会委員 (2011年4月1日～2012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 (2011年10月1日～2012年3月31日)
 - 11) 津田一郎、東北大学原子分子材料科学高等研究機構、連携教授 (2011年4月5日～2012年3月31日)
 - 12) 津田一郎、玉川大学術研究所、非常勤特別研究員客員教授 (2011年4月1日～2012年3月31日)
 - 13) 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学への展開」研究プロジェクトメンバー (2011年4月1日～2012年3月31日)
 - 14) 津田一郎、北海道大学数学連携研究センター、センター長、運営委員、兼務教員 (2011年4月1日～2012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、脳数理研究チーム、客員研究員 (2011年4月1日～2012年3月31日)
 - 16) 佐藤譲、東京大学、生産技術研究所、協力研究員 (2011年4月～2012年3月)
 - 17) 佐藤譲、北海道大学数学連携研究センター兼務教員 (2011年4月1日～2012年3月31日)
 - 18) 山口裕、北海道大学数学連携研究センター兼務教員 (2011年4月1日～2012年3月31日)
 - 19) 佐藤譲、日本応用数学会 JSIAM Letters 編集委員 (2011年4月1日～2012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 (2011年4月1日～2012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 (2011年4月1日～2012年3月31日)
 - 3) 佐藤譲、ヤマハ発動機株式会社 技術コンサルタント (2011年4月1日～2012年3月31日)
- f. 外国人研究者の招聘 (氏名、国名、期間)**
- 1) Liljenstrom Hans、Sweden (2011年6月9日～2011年6月12日)
 - 2) Donald Katz、アメリカ (2011年6月9日～2011年6月12日)
 - 3) Peter Erdi、アメリカ (2011年6月9日～2011年6月12日)
 - 4) Jorge Ojalvo、スペイン (2011年6月9日～2011年6月12日)
 - 5) Keyan Ghazi-Zahedi、ドイツ (2011年6月9日～2011年6月12日)
 - 6) Andre Fenton、アメリカ (2011年6月9日～2011年6月12日)
 - 7) Jose Moria Delgado-Garcia、スペイン (2011年6月9日～2011年6月12日)
 - 8) Robert Kozma、アメリカ (2011年6月9日～2011年6月12日)
 - 9) Alessandro Treves、イタリア (2011年6月9日～2011年6

- 月12日)
- 10) Jeffery Wickens、OIST (沖縄) (2011年6月9日～2011年6月12日)
 - 11) Alessandro Villa、スイス (2011年6月9日～2011年6月12日)
 - 12) Kang Hunseok、韓国 (2011年9月14日～2011年9月18日、2012年3月8日～2012年3月17日)
 - 13) Vitary Bergelson、アメリカ (2012年3月1日～2012年3月9日)
 - 14) Denker Manfred、アメリカ (2012年3月6日～2012年3月9日)
- g. 北大での担当授業科目 (対象、講義名、担当者、期間)**
- 1) 理学部、数理学基礎、津田一郎、2011年4月1日～2011年9月30日
 - 2) 全学共通、一般教育演習 (フレッシュマンセミナー) 数式の効用-複雑現象から秩序構造を抜き出す方法-、津田一郎、2011年10月1日～2012年3月31日
 - 3) 津田一郎、理学部、数理解析学統論「複雑系脳理論」、2011年10月1日～2012年3月31日
 - 4) 津田一郎、理学研究科、脳科学入門V：神経回路の情報数理、2011年4月1日～2011年9月30日
 - 5) 津田一郎、理学研究科、数理解析学講義 (複雑系脳理論)、2011年9月30日～2012年3月31日
 - 6) 佐藤譲、数理解析学講義 (カオスとランダムネス)、理学部、2011年9月30日～2012年3月31日
 - 7) 佐藤譲、数理解析学統論 (カオスとランダムネス)、理学研究科、2011年10月1日～2012年3月31日
 - 8) 山口裕、コンピュータ、理学部、2011年10月1日～2012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、2011年4月1日～2012年3月31日
- i. ポスドク・客員研究員など**
- ・ポスドク
 - 李 永涛 (数学連携研究センター)
 - ・学術研究員
 - 田所 智 (電子科学研究所)
 - 渡部大志 (電子科学研究所)
 - 前田真秀 (数学連携研究センター)
 - ・研究生
 - 玉井信也 (電子科学研究所)
- j. 修士学位及び博士学位の取得状況**
- ・修士論文
 - 三上丈晴：大容量データへの影響伝搬モデルの適用

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 高尾正敏 (大阪大学大学院基礎工学研究科)
- 教授 黒川 卓 (㈱日本経済新聞社)

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～)
博士研究員 横田幸恵(北大院、博士(情報科学)、
2011.4～)

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して物質の光学特性を人工的に制御し、これが生み出す新しい光学現象を利用することで、光を自由自在に制御することを目的としている。このメタマテリアルの面白さは、その光学特性が人工的にデザインした金属の形・構造によって制御できる点で、その構造をうまく設計することで、「負の屈折率」を持つ物質や数百万という巨大な屈折率を持つ物質、光の磁場に応答する物質など自然界の材料ではあり得ないような物質を人工的に作り出す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。

理研のチームは、これまで立体的なナノ金属構造と光波との相互作用を正確に記述する理論的解析技術を元に、主に赤外～可視光で動作するプラズモニック・メタマテリアルに最適な材料選定や構造設計方法を世界に先駆けて明らかにし、さらにこれを用いた新奇光機能デバイスの提案を行ってきた。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

本研究では、プラズモニック・メタマテリアル技術を用いて、金のみから構成される光捕捉素子の実現を目指し、そのプロトタイプを試作を行った。このような素子を実現するには、人工的にデザインしたナノメートルスケールの形状を正確に加工することが必要である。そこで本研究では、半導体微細加工技術を用いて金属ナノ周期構造体の形状を制御する作製手法を詳細に検討した。

電子線リソグラフィ/リフトオフ技術を用いて、図1に示すような、屈曲したロッド形状を持つ金ナノロッド構

造体を固体基板上に作製する手法について、その加工条件の最適化を行った。特に、ナノ構造を数mm四方の大きなエリアに均質に加工するための条件出しを行い、再現性良く作製することに成功した。また、試料の形状とその光学特性の関係を検討するために、試料の分光特性を計測した。

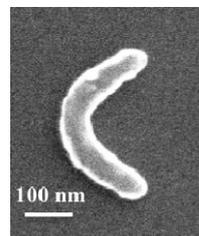


図1. 作製した金ナノ構造の電子顕微鏡像

3. 今後の研究の展望

今後は、電子線リソグラフィ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、作製した金ナノ構造体の赤外～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、高いQ値を持ったプラズモニック共振器を利用して効率良く光子を補足し、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) A. Ishikawa and T. Tanaka, “Two-Photon Fabrication of Three-Dimensional Metallic Nanostructures for Plasmonic Metamaterials”, *Journal of Laser Micro / Nanoengineering (JLMN)* **7**, 1, 11-15 (2012).
- 2) K. Furusawa, N. Hayazawa, T. Okamoto, T. Tanaka, and S. Kawata, “Generation of broadband longitudinal fields for applications to ultrafast tip-enhanced near-field microscopy”, *Opt. Express*, **19**, 25, 25328-25336 (2011).
- 3) T. Tanaka, “Two-photon Recording and Plasmon-Enhanced Read-Out of Three-Dimensional Optical Disk with Ten Recording Layers”, *JJAP*, **50**, 9, 902 (2011).

4.2 総説・解説・評論等

- 1) T. Tanaka, “Plasmonic metamaterials”, *IEICE Electronics Express (ELEX)* **9**, 2, 34-50 (2012).
- 2) 田中拓男、“総説 メタマテリアル”、*オプトロニクス*、**30**, 12, 56-58 (2011).
- 3) 田中拓男、“メタマテリアルとは”、*映像情報メディア学会誌*、**65**, 10, 1395-1397 (2011).

- 4) 田中拓男、“共振型3次元光メタマテリアル”、マテリアルインテグレーション、24, 9, 3-7 (2011).
- 5) 田中拓男、“プラズモニック・メタマテリアルによる新しい光材料の開拓”、応用物理、80, 11, 794-798 (2011).
- 6) 田中拓男、“国立研究所は今一メタマテリアルで新しい光の世界を開く”、OplusE, 33, 8, 869-873 (2011).

4.7 講演

a. 招請講演

i) 学会

- 1) 田中拓男、“共振型3次元メタマテリアルの作製”、第59回応用物理学関係連合講演会(早稲田大学、東京)(2012).
- 2) 田中拓男、“メタマテリアル”、第72回応用物学会秋期(山形大学)(2011).
- 3) K. Aoki and T. Tanaka, “Magnetic Assembly of Gold Ring Resonators for Metamaterials”, ICTON2011 (Kungliga Tekniska Hogskolan(KTH), Stockholm, Sweden) (2011).
- 4) T. Tanaka and K. Aoki, “Magnetic assembly of three-dimensional metamaterials”, MORIS 2011 (Nijmegen, The Netherlands) (2011).
- 5) T. Tanaka, “Towards three-dimensional metamaterials”, (Visby, Sweden) (2011).
- 6) A. Ishikawa and T. Tanaka, “Two-Photon Fabrication of Three-Dimensional Metallic Nanostructures for Plasmonic Metamaterials”, LPM2011 (Takamatsu) (2011).

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 概要、加工技術と応用”、第2回電磁メタマテリアル講演会(東京大学)(2012).
- 2) T. Tanaka, “Self-organized assembly of metal nanostructures for three-dimensional metamaterials”, 2012 Taiwan-Japan Nanophotonics and Plasmonic Metamaterials Workshop (National Taiwan Univ., Taipei, Taiwan) (2012).
- 3) 田中拓男、“メタマテリアル—かたちが創る光科学—”、バイオテンプレート研究会 発足記念講演会(百年記念会館、東工大)(2011).
- 4) 田中拓男、“プラズモニック・メタマテリアル”、理研—京大 GCOE 合同シンポジウム(京都大学)(2011).
- 5) T. Tanaka, “Plasmonic Metamaterials”, RIKEN-Kazan Federal University Joint Symposium (RIKEN) (2011).

iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 田中拓男、“プラズモニック・メタマテリアル—基礎・応用・作り方”、高分子学会東北支部若手セミナー(小原温泉)(2012).
- 2) 田中拓男、“プラズモニック・メタマテリアル”、日本オプトエレクトロニクス協会セミナー(機会振興会館)(2012).
- 3) T. Tanaka, “Plasmonic metamaterials and related techniques”, McGill Univ. Seminar (McGill Univ, Montreal, Canada) (2012).

- 4) 田中拓男、“プラズモニック・メタマテリアル”、マイクロナンセンタ—先端技術交流会(秋葉原)(2011).
- 5) 田中拓男、“メタマテリアル”、理研 基幹研サイエンス道場(理研和光)(2011).
- 6) T. Tanaka, “Plasmonic metamaterials”, 2011 KOREA-JAPAN International Seminar (Jeju National University, Jeju, Korea) (2011).
- 7) 田中拓男、“メタマテリアルの基礎と応用”、日本オプトエレクトロニクス協会光部品生産技術部会(機会振興会館)(2011).
- 8) 田中拓男、“メタマテリアル”、化学工学会 エレクトロニクス部会(京都大学桂キャンパス)(2011).
- 9) 田中拓男、“メタマテリアルの概要と、低消費電力化応用について”、電子情報技術産業協会(大手センタービル、) (2011).

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)、紫外プラズモニック・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~)

寄附研究部門

研究目的

バイオイメージング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)、2005.10～2011.9)

教授 上田哲男(北大院、博士(薬学)、2005.10～2011.9)

特任准教授 齊藤健太(北大院、博士(理学)、2011.01～2011.9)

特任助教 中野雅裕(東工大院、博士(理学)、2011.01～2011.9)

技術職員 小林健太郎(北大院、博士(理学)、2005.10～2011.9)

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、その需要に呼応して遺伝子導入技術、蛍光タンパク質をはじめとする分子マーキング技術や機能指示薬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23年4月～平成23年9月)

平成23年度(4月～9月)の延べ利用人数・利用時間は、337人・2132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、医学部・工学部・生命科学院などが挙げられる(図1)。学外からの利用に関しては、札幌医科大学・東京大学・大阪市立大学など、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(折れ線グラフ)・利用時間(棒グラフ)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23年度は利用者による4報の論文が学術雑誌に掲載された。

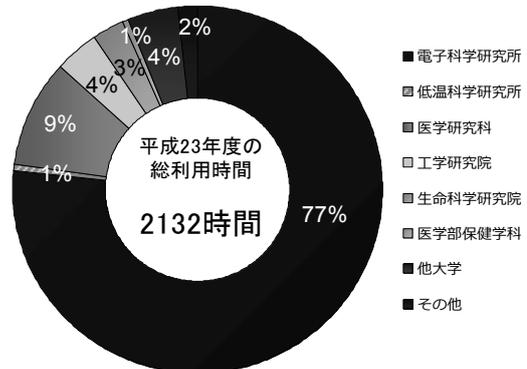


図1. 平成23年度イメージングセンター利用者の主な所属内訳

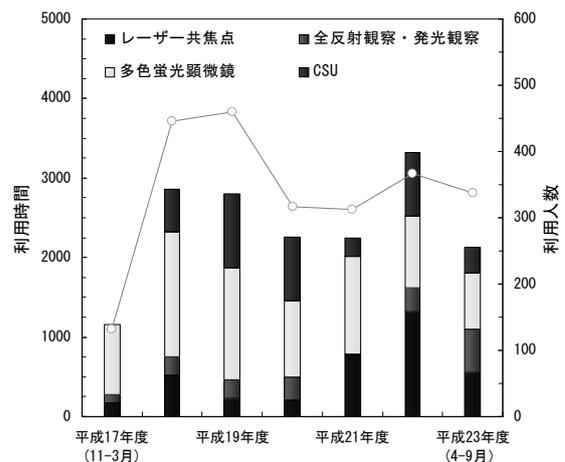


図2. 年度別イメージングセンター利用状況

(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。

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名以上の参加があった。

(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、バイオイメージング分野における今後の利用が期待される。さらに、水銀ランプに変えてLEDを利用した新型光源の利用、白色光源に特化した光学系の設計により励起光強度の改善を行った。

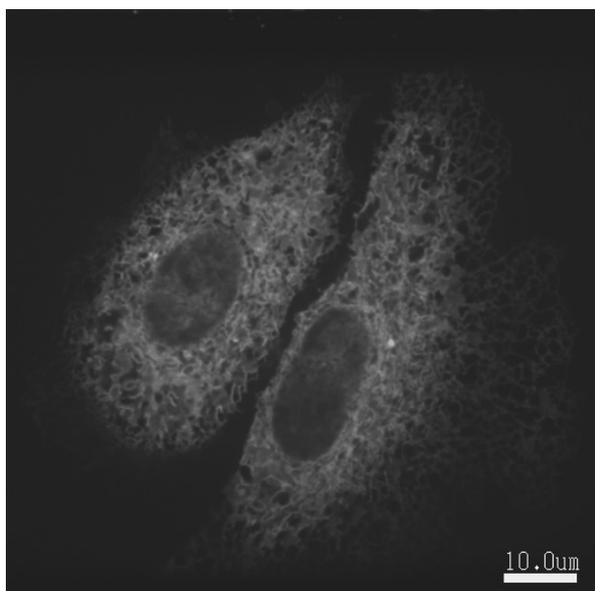


図3. 水銀アークランプを利用したCSU共焦点システムで観察したHeLa細胞小胞体のイメージング。

3. 今後の研究の展望

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

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) H. 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. Saito, Y. Arai, J. Zhang, K. Kobayashi, T. Tani and T. Nagai: "Conjugation of both on-axis and off-axis light in Nipkow disk confocal microscope to increase availability of incoherent light source.", *Cell Struct. Func.*, 36: 237-246 (2011)
- 3) Y. Zhao, S. Araki, J. Wu, T. Teramoto, Y. Chang, M. Nakano, A.S. Abdelfattah, M. Fujiwara, T. Ishihara, T. Nagai and R.E. Campbell: "An Expanded Palette of Genetically Encoded Ca²⁺ Indicators.", *Science*, 333: 1888-1891 (2011)
- 4) M. Nakano, H. Imamura, T. Nagai and H. Noji: "Ca²⁺ regulation of mitochondrial ATP synthesis visualized at the single cell level.", *ACS Chemical Biology*, 6:709-715 (2011)

4.7 講演

b. 一般講演

i) 学会

- 1) K. Saito, Y. Arai, J. Zhang, K. Kobayashi, T. Tani and T. Nagai: "Conjugation of both on-axis and off-axis light in Nipkow disk confocal microscope to increase availability of incoherent light source.", The 49th Annual Meeting of the Biophysical Society Japan, 姫路 (2011-09)
- 2) K. Saito: "Recent and future trends in bioimaging techniques using fluorescent and chemiluminescent proteins", BioOpto Japan 2011, 横浜 (2011-09)

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、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~)
助教 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) 高強度機能性ソフトマターの創製

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きた。

これまでに、有機高分子材料と多孔性無機粒子との複合化において、多孔性無機粒子の孔内にモノマー分子を充分含浸させた後に重合を行い、高分子鎖が多孔性無機粒子を縫い込んだ構造をもつ新規なハイドロゲルを創製した。その結果、多孔性でないシリカ粒子を導入した場合には全く高強度化の効果は得られないのに対し、多孔性無機微粒子を導入した場合には、破断ひずみ(伸び)を損なうことなく、弾性率および破断強度を大きく向上できることを明らかにした(図1)。

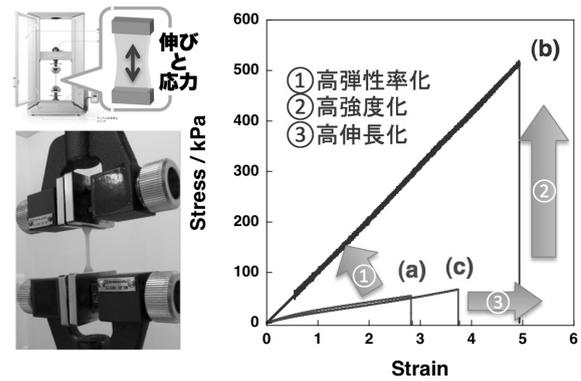


図1. 機械試験の図(左)と応力-ひずみ曲線(右)
ポリアクリルアミドゲル(a)、多孔性シリカを導入したポリアクリルアミドゲル(b)、シリカ粒子を導入したポリアクリルアミドゲル(c)

この多孔性無機粒子による高強度化法を、溶媒を含んで膨潤したゲルとは違うソフトマターであるエラストマーに適用した場合でも、同様に高強度、高弾性率化できることが確認された(図2左)。また、多孔性でないシリカ粒子を導入したエラストマーは白濁したのに対し、多孔性シリカ粒子を導入したエラストマーは高い透明度を維持していた(図2右)。このことは、無機粒子の分散性と相関していると考えられ、多孔性無機粒子を縫い込み型で導入することによって、無機粒子の分散状態を維持しつつ高強度化できることが示唆された。

現在、多くの高分子材料において無機物質との複合化による高強度化、高機能化が取り組まれている。例えば、自動車用のタイヤにおいては、高強度化のみならず、ウェット性能や低燃費性能を向上させるためにゴムにシリカ粒子を導入する方法が検討されているが、シリカ粒子の分散性の問題などの課題がある。本研究で開発された方法では、これらの課題をクリアし、より高性能な材料の創製に貢献できることが期待される。

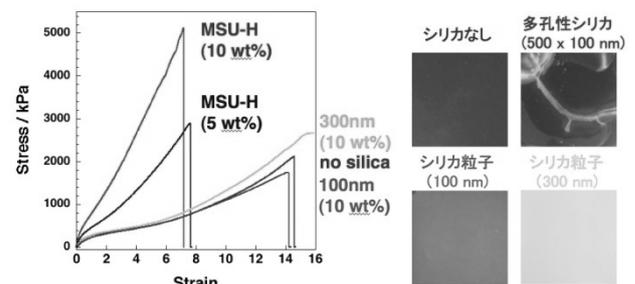


図2. エラストマー (poly-ethylacrylate) および無機粒子を導入したエラストマーの応力-ひずみ曲線(左)とその写真(右)

(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標として設定している。

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、現在の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上げる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転写する、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)。

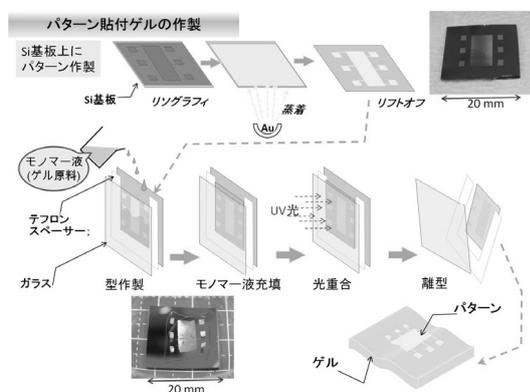


図3. マイクロパターン転写貼付プロセスの概略

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。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を電子顕微鏡にて観察を行うと、Si基板上に作製したパターンが正確にPAAc上に転写されていることが分かる(図4)。このようなライン状のパターンだけでなく、ドット状の

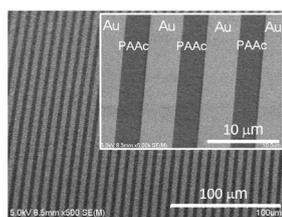


図4. 線幅4 μmのAu薄膜パターン付PAAcのSEM像

パターンでも転写は可能であり、この方法は我々の設計通りの薄膜のパターンを高分子材料表面に再現するのに有効な方法であることが分かる。

図4に示す試料を実際に水中などで膨潤させると、無色透明なPAAcゲルの膨潤・収縮に対応して線幅4 μmの各Auラインの間の距離が変化する。その際の各Auラインの間隔の周期性は保たれていたことから、レーザー光の回折を利用したハイドロゲルの膨潤収縮のリアルタイム計測法を考案した。その模式図を図5に示す。

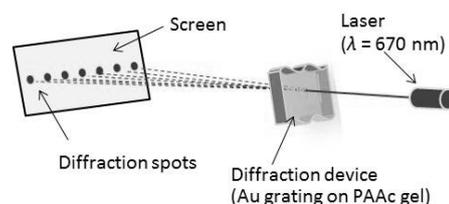


図5. レーザー回折によるハイドロゲル膨潤・収縮計測の概略

コヒーレント光であるレーザーをハイドロゲル表面のAu薄膜のグレーティング構造に照射すると回折が起こり、Auライン間隔に対応した回折スポットをスクリーン上に得ることができる。AuラインパターンはPAAcゲル上に固定されているため、PAAcゲルの膨潤・収縮により回折格子の周期間隔が変化すると、それに応じて回折スポットも変化することになる。つまり、この回折スポットをリアルタイムで計測すれば、その時のゲルの膨潤・収縮の状態を知ることができる。本研究では、スクリーン上の回折スポットをデジタルカメラで記録することにより、PAAcゲルの膨潤・収縮過程の計測を行った。

図6は、この方法によって計測したPAAcゲルの収縮過程の一例である。これは、純水中で膨潤した状態のPAAcゲルが5M NaCl水溶液により収縮して行く様子で、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の伸縮に相当し、横軸は時間である。図6中の挿入図でハイドロゲルが約300秒で指数関数的に収縮していることが分かるが、収縮開始段階では極めて高速の収縮が起きている。本研究により開発した計測法では、この高速な計測を約20 nm、67ミリ秒の分解能で計測することが可能であった。ハイドロゲルの変形についてこのような高精度で計測した例はなく、今後のハイドロゲルの基礎科学と新たなデバイス応用などに貢献できると考えられる。

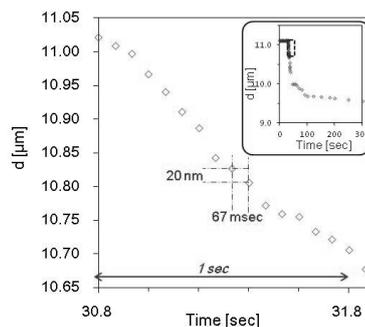


図6. レーザー回折で計測したPAAcゲル収縮過程

3. 今後の研究の展望

連携研究室では、2011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) “高強度機能性ソフトマターの創製”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, N. Oda, K. Ijro, and Y. Osada: “Self-Repairing Filamentous Actin Hydrogel with Hierarchical Structure”, *Biomacromolecules*, 12(12), 4173-4177 (2011)
- 2) T. Tominaga, K-I. Sano, J. Kikuchi, H. Mitomo, K. Ijro, and Y. Osada: “Hydrophilic Double-Network Polymers that Sustain High Mechanical Modulus under 80% Humidity”, *ACS Macro Lett*, 1 (3), 432-4436 (2012)

4.6 特許

- 1) 長田義仁、川村隆三、島本直伸、三友秀之、居城邦治、中村直樹、近藤拓也、藤根学：特願2011-198897、『異種材料が接合した重合体、及びその製造方法』2011年9月12日
- 2) 長田義仁、川村隆三、三友秀之、居城邦治、中村直樹、近藤拓也、藤根学：特願2012-081001、『多孔質無機材料含有エラストマーおよび多孔質無機材料含有エラストマーの製造方法』2012年3月30日
- 3) 長田義仁、三友秀之、重原淳孝、敷中一洋、居城邦治、中村直樹、近藤拓也、藤根学：特願2012-082775、『イモゴライトを含む重合用組成物、及びその利用』2012年3月30日

4.7 講演

b. 一般講演

i) 学会

- 1) N. Shimamoto*, H. Mitomo, R. Kawamura, K. Kawabata, R. Kishi, K. Sano, K. Ijro, and Y. Osada: “Fabrication of

metal thin film patterns on hydro-gels”, 24th International Microprocesses and Nanotechnology Conference, ANA Hotel Kyoto (2011-10)

- 2) 三友秀之*, 佐野健一、居城邦治、長田義仁：「多孔性無機微粒子によるゲルの物性制御」、第60回高分子討論会、岡山大学 (2011-09)
- 3) 島本直伸*, 三友秀之、川村隆三、川端邦明、岸 良一、佐野健一、居城邦治、長田義仁：「ゲル表面への金属マイクロパターンの作製」、第60回高分子討論会、岡山大学 (2011-09)
- 4) 川村隆三*, 佐野健一、富永大輝、小田直子、居城邦治、長田義仁：「微小管のゲル化と巨視的運動の実現」、第60回高分子討論会、岡山大学 (2011-09)
- 5) 佐野健一*, 川村隆三、富永大輝、小田直子、居城邦治、長田義仁：「アクチンゲルのネットワーク構造構築過程の解析」、第60回高分子学会年次大会、大阪国際会議場 (2011-05)
- 6) 佐野健一*, 川村隆三、富永大輝、小田直子、居城邦治、長田義仁：「細胞骨格タンパク質の機能性材料化」、第60回高分子学会年次大会、大阪国際会議場 (2011-05)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) N. Shimamoto, H. Mitomo, R. Kawamura, Y. Osada, and K. Ijro: “Thin film micro grating on hydro-gels for fine measurement”, 12th RIES international Symposium, Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (2011-11)
- 2) 島本直伸：「ハイドロゲル上へのマイクロパターンの作製と応用」、ナノサイエンス研究施設交流会、理化学研究所、和光市、(2011-11)

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) 島本直伸、基盤研究 C、機能集積ハイドロゲル素子作製のためのナノ・マイクロ加工プロセス (2011~2013年度)

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～
2012.1.31)
特任助教(創成) 孫 泉 (北京大院、Ph. D., 2011.1.1～)
院 生
博士課程
李 哲煜、石 旭
修士課程
青陽大輔、旭 秀典、武藤将充、小竹勇己

1. 研究目標

低炭素化社会を実現するためには、再生可能エネルギーである太陽光エネルギーを高効率に光電変換することが可能な未来型太陽電池の研究開発を力強く推進することが必要不可欠である。現在広く利用されているシリコン太陽電池の変換効率の理論限界は単結晶で30%~35%、アモルファスで25%であるが、エネルギー基盤を化石燃料から太陽光に変換するためには、この理論限界を遙かに超える革新的太陽電池を実現しなければならない。言うまでもなく、太陽光は紫外から赤外域に至る幅広いスペクトルを有している。とりわけ、地表に到達する太陽光エネルギーの44%は波長800nm以上の赤外光で占められているが、シリコン太陽電池を含め、赤外光を高効率に光電変換できる太陽電池は存在しない。従来有効に利用する術がなかった赤外光を確実に電気エネルギーに変換できる革新的な太陽電池の開発は、極めて高い光電変換効率を達成するためには不可避である。

このような革新的太陽電池を生み出すためには、従来の太陽電池開発の延長線上にある研究によって実現することは難しく、本研究分野のパラダイムシフトを誘導する新たな学理の確立とその応用への展開を図ることが求められる。三澤は、文部科学省科学研究費補助金「特定領域研究」(平成19年度~平成22年度)の領域代表として、極めて高い効率を有する光化学反応を実現するべく、今注目を集めている「ナノプラズモニクス」の研究を深化させ、「光-分子強結合反応場」の概念を世界に先駆けて提案、実証してきた。従来の光化学反応の研究は、光を吸収し励起された物質に着目する研究が主に行われ、物質の光励起プロセスそのものに注目することはなかった。「光-分子強結合反応場」に関する研究は、金属ナノ構造が示す局在表面プラズモン共鳴を利用して分子が存在するナノ空間に回折限界を打ち破り光を局在させ、その「光電場増強効果」によって照射された光子を逃さず分子系と相互作用させて極めて高い確率で励起する「場」を実現するものである。我々は、独自のナノ構造作製技術と方法論をもとに「光-分子強結合反応場」を具現する金属ナノ構造による「革新的光アンテナ」

を実現し、近赤外光を高効率に捕集する各種光アンテナのプロトタイプを構築した。これらの光アンテナによる光局在を活用し、金属微粒子からの2光子発光、表面増強ラマン散乱、さらにフォトレジスト材料の2光子重合反応をレーザー光ではなくハロゲンランプからの微弱光によって世界で初めて成功するなど、微弱光による非線形光反応への展開を図り、光化学の研究分野において「光の有効利用」という新しい概念を示してきた。さらに、赤外光を高効率に光電変換可能な革新的太陽電池の開発へと繋がる極めて重要な研究成果を見出した。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

酸化チタン単結晶基板上に金ナノブロック構造を配置した金ナノブロック/酸化チタン電極を用いて光電変換特性を検討したところ、可視・近赤外光照射に基づいて水の酸化的分解により酸素が発生することを明らかにした。また、プラズモン共鳴(高次)に基づいて放射モードと結合した散乱成分の光がフォトレジスト膜中を伝播する現象を利用して露光を行う新しいプラズモンリソグラフィ技術を確認した。

(i) 可視・近赤外光照射による水の酸化反応

局在表面プラズモン共鳴を示す金ナノ微粒子を酸化チタン粒子に担持させ、ITO電極上に分散させた場合、電極上への可視光照射に基づいて金ナノ微粒子中において電荷分離が誘起され、酸化チタンへの電子移動に基づき光電流が観測されることが立間らによって明らかにされた。本系においては、 Fe^{2+} が電子ドナーとして働いて安定な光電流が観測されているが、当研究グループでは、酸化チタン単結晶基板上に高精度に金ナノブロック構造を配置した電極基板を実験に用いた場合、 Fe^{2+} などの電子ドナーを含まない電解質水溶液のみで可視・近赤外光照射に基づいて安定に光電流が観測されることを明らかにした。昨年度の研究において、定性的に酸素発生を確認し、水が電子源となって光電流が観測されている可能性を示唆する実験結果が得られたが、本年度は各波長における水の酸化反応を定量し、光電流発生メカニズムを追跡することを目的とした。

水の光分解による酸素発生については、溶媒として $H_2^{18}O$ を10%含有する水を用いて発生する酸素分子に含まれる同位体をガスクロマトグラフ質量分析法により検証した。図1(c)に、450nm~1150nmの各波長の光照射によって観測された光電流に対する酸素発生収量を示す。なお、実験に使用した電極は、既報の金ナノブロック構造を有する

酸化チタン電極である(図1(a)参照)。波長500 nm、および600 nmの照射においては(金のバンド間遷移やプラズモン共鳴(金ナノブロックの横モードを励起(図1(b)参照))、ほぼ化学量論的に酸素が発生していることが明らかである。一方、照射波長を700 nm、800 nm、さらには1000 nmと長波長にすると(プラズモン共鳴(金ナノブロックの縦モードを励起(図1(b)参照))酸素発生収量は徐々に減少するが、それに代わり過酸化水素(H₂O₂)が生成することが確認された。これらの結果は、本光電変換系においては水が電子源となり、多電子変換が金ナノロッド/酸化チタン電極界面上で誘起され、ほぼ化学量論的に酸素および過酸化水素が発生していることを示している。波長1000 nm(1.24 eV)の近赤外照射によっても、水から酸素が発生することが確認できたことは、本系における金ナノ構造/酸化チタン半導体界面では、2個の水分子から電極界面に生成した複数の正孔に同時に4電子移動する過程が、ほぼ過電圧がゼロで進行し、酸素が生成することを示しており、可視・近赤外による人工光合成系への展開も期待される。

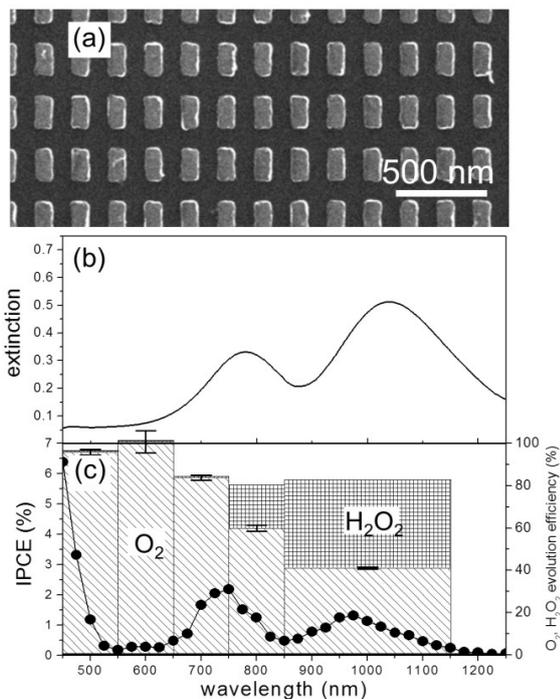


図1. (a)金ナノブロック構造のSEM像、(b)プラズモン共鳴スペクトル、(c)IPCEアクションスペクトルおよび観測された光電流に対する酸素/過酸化水素発生収量

(ii) プラズモンリソグラフィーによるナノ構造の作製

プラズモン共鳴(高次)に基づいて放射モードと結合した散乱成分の光がフォトレジスト膜中を伝播する現象を利用して、シングルナノメートルの加工分解能でレジストパターンを形成する新しいプラズモンリソグラフィー技術を確立した。また、本リソグラフィー技術を用いて、金属スパッタリングおよびリフトオフを組み合わせたことによりプラズモン共鳴を示す金属ナノ構造を簡便に作製する方法論を開発した。ネガ型電子ビームレジスト(XR-1541, Dow

Corning Co.)を成膜したガラス基板に電子ビーム露光により合目的のパターンを形成し、金を10 nm成膜することにより金ナノ構造(サイズは100 nm×100 nm×10 nm)を有するフォトマスクを作製した。作製した金ナノ構造基板をフォトマスクとして、ポジ型フォトレジスト(膜厚~70 nm)をコートしたガラス基板(24 mm×24 mm)に密着させ、基板の上にフェムト秒レーザービーム(波長800 nm、パルス幅100 fs、繰り返し周波数82 MHz)を任意の強度および時間照射することにより密着露光を行った。上記の方法で露光した後に、基板をアルカリ性の現像液に浸漬させて現像を行い、再び金を7 nmスパッタリングにより成膜し、アセトン溶液中で超音波洗浄してリフトオフを行った。図2(a)に、作製した構造のフォトマスクパターンを示す。作製したフォトマスクのプラズモン共鳴波長は870 nmに存在し、波長800 nmのフェムト秒レーザービームを照射した場合、双極子共鳴ピークの短波長側に存在する高次の共鳴モードを励起することになり、四重極子などの多重極子共鳴が誘起される。これにより、プラズモン共鳴に基づいて放射モードと結合した散乱成分の光は、フォトマスクの形状を強く反映し、フォトマスク形状に依存した光がフォトレジスト中を伝播することになる。したがって、図2(b)の形成されたフォトレジストパターンの電子顕微鏡写真(現像後)に示すように、図2(a)のフォトマスク形状を反映して四角い100 nm四方のナノパターンが厚さ70 nmのポジ型フォトレジストに転写露光されていることを確認した。また、形成されたナノパターンのサイズのばらつきは3~4 nm程度であり、電子ビーム露光装置と同程度の分解能でパターンニングが行えることを実証した。また、金を7 nm成膜して、リフトオフを行ったところ、プラズモン共鳴を示す金ナノ構造を照射面積全域に形成することが可能であることを明らかにした。

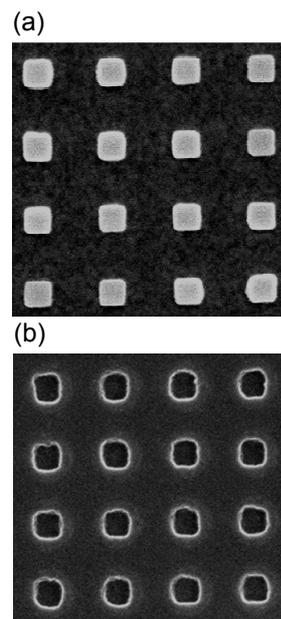


図2. (a)金ナノ構造フォトマスクの電子顕微鏡写真(サイズ: 100 nm×100 nm×10 nm)、(b)ナノリソグラフィーによって形成されたレジストパターンの電子顕微鏡写真

3. 今後の研究の展望

平成23年度の結果から、水が電子源となって光電流が観測されることが明らかになった。しかし、金のバンド間遷移なのか、バンド内遷移なのか、電子移動なのか、あるいはプラズモンにより増強された近接場光が酸化チタン表面準位の電子を励起して電子・正孔対を形成しているのかなどについては明らかになっていない点が多い。今後は、時間分解多光子励起光電子顕微鏡を用いて、金ナノブロック構造における光電場強度分布、電子移動ダイナミクスあるいはプラズモン共鳴の緩和過程を高い空間/時間分解能で追跡し、金ナノ構造のどの部分で空間選択的に電荷分離が誘起されているかを明らかにする予定である。

4. 資料

4.1 学術論文

- 1) Y. Tanaka, H. Ishiguro, H. Fujiwara, Y. Yokota, K. Ueno, H. Misawa and K. Sasaki: "Direct Imaging of Nanogap-mode Plasmon-resonant Fields", *Opt. Exp.*, 19(8): 7726-7733 (2011).
- 2) S. Gao, K. Ueno and H. Misawa: "Plasmon Antenna Effects on Photochemical Reactions", *Accounts of Chemical Research*, 44(4): 251-261 (2011).
- 3) L. Wang, W. Xiong, Y. Nishijima, Y. Yokota, K. Ueno, H. Misawa, G. Bi and J. R. Qiu: "Spectral Properties and Mechanism of Instability of Nanoengineered Silver Blocks", *Opt. Exp.*, 19(11): 10640-10646 (2011).
- 4) L. Wang, Y. Nishijima, K. Ueno, H. Misawa and N. Tamai: "Plasmon Coupling and Coherent Acoustic Phonon Dynamics of Periodic Gold Pair Nanocuboids by Near-IR Transient Absorption Spectroscopy", *J. Photochem. Photobiol. A: Chem.*, 221: 164-168 (2011).
- 5) K. Ueno and H. Misawa: "Photochemical Reaction Fields with Strong Coupling between a Photon and a Molecule", *J. Photochem. Photobiol. A: Chem.*, 221: 130-137 (2011).
- 6) S. Haruta, H. Misawa, K. Ueno, Y. Yokota, H. Uehara, H. Hiratsuka, H. Horiuchi and T. Okutsu: "Protein Crystallization Induced by Strong Photons-molecules Coupling Fields Photochemical Reaction", *J. Photochem. Photobiol. A: Chem.*, 221: 268-272 (2011).
- 7) T. R. Geldhauser, S. Ikegaya, A. Kolloch, N. Murazawa, K. Ueno, J. Boneberg, P. Leiderer, E. Scheer and H. Misawa: "Visualization of Optical Near-field Enhancements of Gold Triangles by Nonlinear Photopolymerization", *Plasmonics*, 6, (2): 207-212 (2011).
- 8) K. Ueno, S. Takabatake, K. Onishi, H. Ito, Y. Nishijima and H. Misawa: "Homogeneous Nano-patterning Using Plasmon Assisted Photolithography", *Appl. Phys. Lett.*, 99(1): 011107 (2011).
- 9) Y. W. Hao, H. Y. Wang, Y. Jiang, Q. D. Chen, K. Ueno, W. Q. Wang, H. Misawa and H. B. Sun: "Hybrid States Dynamics of Gold Nanorods/Dye J-Aggregate under Strong Coupling", *Angew. Chem. Int. Ed.*, 50(34): 7824-7828 (2011).
- 10) L. Wang, W. Xiong, Y. Nishijima, K. Ueno, H. Misawa, G. Bi and J. Qiu: "Modifying Plasmonic Spectral Properties of Engineered Silver Nanoblocks by Using Titanium Coating", *IEEE Photonics Technology Letters*, 23(17): 1216-1218 (2011).
- 11) E. Wu, Y. Chi, B. Wu, K. Xia, Y. Yokota, K. Ueno, H. Misawa and H. Zeng: "Spatial polarization sensitivity of single Au Bowtie nanostructures", *J. Lumin.*, 131(9): 1971-1974 (2011).
- 12) A. Kolloch, T. R. Geldhauser, K. Ueno, H. Misawa, J. Boneberg, A. Plech and P. Leiderer: "Femtosecond and Picosecond Near-field Ablation of Gold Nanotriangles", *Applied Physics A*, 104(3): 793-799 (2011).
- 13) S. Kita, S. Otsuka, S. Hachuda, T. Endo, Y. Imai, Y. Nishijima, H. Misawa, T. Baba: "Super-sensitivity in label-free protein sensing using a nanoslot nanolaser", *Opt. Exp.*, 19(18): 17683-17690 (2011).
- 14) Y. Yoshida, S. Watanabe, Y. Nishijima, K. Ueno, H. Misawa and T. Kato: "Fabrication of Au/Si Nanocomposite Surface Structure Using Nanosecond Pulsed Laser Irradiation", *Nanotechnology*, 22: 375607-1-7- (2011).
- 15) L. Wang, W. Xiong, Y. Nishijima, Y. Yokota, K. Ueno, H. Misawa, J. R. Qiu and G. Bi: "Spectral Properties of Nanoengineered Ag/Au Bilayer Rods Fabrication by Electron Beam Lithography", *Appl. Opt.*, 50(28): 5600-5605 (2011).
- 16) Z. Li, K. Sun, M. Sunayama, R. Araki, K. Ueno, M. Abe and H. Misawa: "A Simultaneous Space Sampling Method for DNA Fraction Collection Using a Comb Structure in Microfluidic Devices", *Electrophoresis*, 32(23): 3392-3398 (2011).
- 17) S. Danworaphong, T. A. Kelf, O. Matsuda, M. Tomoda, Y. Tanaka, N. Nishiguchi, O. B. Wright, Y. Nishijima, K. Ueno, S. Juodkazis and H. Misawa: "Real-time Imaging of Acoustic Rectification", *Appl. Phys. Lett.*, 99: 201910 (2011).
- 18) Y. Harada, K. Imura, H. Okamoto, Y. Nishijima, K. Ueno and H. Misawa: "Plasmon-induced Local Photocurrent Changes in GaAs Photovoltaic Cells Modified with Gold Nanospheres: A Near-field Imaging Study", *J. Appl. Phys.*, 110: 104306 (2011).
- 19) J. Sakai, D. Roldan, K. Ueno, H. Misawa, Y. Hosokawa, T. Iino, S. Wakitani and M. Takagi: "Effect of the Distance Between Adherent Mesenchymal Stem Cell and the Focus

of Irradiation of Femtosecond Laser on Cell Replication Capacity”, Cytotechnology, doi/10.1007/s10616-012-9437-2 (2012).

- 20) Q. Sun, K. Ueno and H. Misawa: “In situ investigation of the shrinkage of photopolymerized micro/nanostructures: The effect of the drying process”, Opt. Lett., 37(4): 710-712 (2012).
- 21) T. Geldhauser, A. Kolloch, N. Murazawa, K. Ueno, J. Boneberg, P. Leiderer, E. Scheer, H. Misawa: “Quantitative Measurement of the Near-Field Enhancement of Nanostructures by Two-Photon Polymerization”, Langmuir, 28(24): 9041-9046 (2012).
- 22) S. Kita, S. Otsuka, S. Hachuda, T. Endo, Y. Imai, Y. Nishijima, H. Misawa, T. Baba: “Photonic Crystal Nanolaser Biosensors”, IEICE TRANSACTION ON ELECTRONICS, E95C(2): 188-198 (2012).

4.2 総説・解説・評論等

- 1) 上野貢生、三澤弘明:「プラズモニクスと光化学反応」、応用物理、80(9): 766-771 (2011).
- 2) 上野貢生、三澤弘明、堀田祐治:「ダイナミックマスクレ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」、NanotechJapan Bulletin, 4(5): 32-1-5 (2011).
- 3) K. Ueno, H. Misawa: “Achieving single-nanometer-size dots with photolithography”, SPIE News Room, DOI: 10.1117/2.1201109.003842(2011).

4.3 国際会議議事録等に掲載された論文

- 1) K. Ueno, H. Misawa: “Surface Plasmon-assisted nanolithography with nanometric accuracy”, Proc. SPIE, 8243, 82430F (2012).

4.4 著書

- 1) 上野貢生、三澤弘明:「プラズモニクスの光化学的アプローチ」、プラズモニクス-光・電子デバイス開発最前線、エヌ・ティー・エス: 3-12 (2011).
- 2) 三澤弘明、上野貢生:「光アンテナ搭載光電変換を利用した高効率太陽電池の開発」、プラズモニクス-光・電子デバイス開発最前線、エヌ・ティー・エス: 237-246 (2011).
- 3) 上野貢生、三澤弘明:「高効率な二光子励起を可能にする反応場の設計と作製」、高効率二光子吸収材料の開発と応用、シーエムシー出版: 117-127 (2011).
- 4) K. Ueno and Hiroaki Misawa: “Strong Photon-molecule Coupling Fields for Chemical Reactions”, Photochemistry, Vol. 39, Ed. By Angelo Albini, Royal Society of Chemistry: 228-255(2011).

4.7 講演

i) 学会

- 1) Q. Sun*, N. Murazawa, K. Ueno and H. Misawa: “Femtosecond laser direct writing 3D polymeric square spiral photonic crystals with stop gaps below 1 μ m making use of shrinkage”, E-MRS 2011 SPRING MEETING, Nice, France (2011-05).
- 2) Q. Sun*, N. Murazawa, K. Ueno and H. Misawa: “Feature-size reduction of photopolymerized three dimensional micro/nanostructures taking use of shrinkage”, The Fifth International Conference on Nanophotonics, Fudan University, Shanghai, China (2011-05).
- 3) H. Misawa*, Y. Nishijima, K. Ueno, Y. Yokota and K. Murakoshi: “Plasmon-Assisted Photocurrent Generation System”, The 5th International Conference on Surface Plasmon Photonics, Busan, Korea (2011-05).
- 4) H. Misawa*, Y. Yokota and K. Ueno: “Electromagnetic Field Enhancement Effects on Surface-enhanced Raman Scattering Using Nano-engineered Gold Particles”, IUPAC International Congress on Analytical Sciences 2011, Kyoto (2011-05).
- 5) 三澤弘明*:「プラズモン増強光化学反応」、ナノ学会第9回大会、札幌 (2011-06).
- 6) H. Misawa*, K. Ueno, Y. Nishijima and Y. Yokota: “Plasmon-assisted Photocurrent Generation Using an Au-nanorods/TiO₂ Electrode”, International Conference on Materials for Advanced Technologies, Symposium EE: CGCT-5-Functional Materials Crystallization, Characterization and Devices, Suntec, Singapore (2011-06~2011-07).
- 7) H. Misawa*, Y. Nishijima, Y. Zhang, K. Murakoshi and H. Inoue: “Plasmon-assisted Water Oxidation on Gold Nanostructured TiO₂ Photoelectrodes”, XXV International conference on photochemistry (ICP 2011), Beijing, China (2011-08)
- 8) 上野貢生*、大西広、伊藤弘子、三澤弘明:「プラズモン局在光電場を用いた局所2光子光化学反応」、2011光化学討論会、宮崎 (2011-09) .
- 9) 西島喜明*、上野貢生、小竹勇己、村越敬、井上晴夫、三澤弘明:「金ナノ構造/酸化チタン電極を用いたプラズモン電荷分離に基づく水の酸化反応」、2011光化学討論会、宮崎 (2011-09).
- 10) 青陽大輔*、上野貢生、小竹勇己、三澤弘明:「積層型金ナノ構造体が示す光アンテナ効果の検討と光電変換系への応用」、2011年光化学討論会、宮崎 (2011-09).
- 11) 旭 秀典*、孫 泉、上野貢生、三澤弘明:「フェムト秒レーザービーム照射によってシリカ表面に形成されるナノグレーティング構造形成メカニズムの検討」、2011年光化学討論会、宮崎 (2011-09).
- 12) 武藤将充*、上野貢生、三澤弘明:「J会合体-金ナノ構

- 造ハイブリッドシステムにおけるプラズモン強結合状態の分光特性」
- 13) 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2極式光電変換系の光電変換特性」、2011年光化学討論会、宮崎 (2011-09).
 - 14) 中谷光博, 小竹勇己, 青陽大輔, 上野貢生*, 三澤弘明: 「色素分子存在下における金ナノ構造ハイブリッドシステムにおけるプラズモン強結合状態の分光特性」、2011年光化学討論会、宮崎 (2011-09).
 - 15) 岡崎健一*, 安井淳一, 大木信, 村澤尚樹, 上野貢生, 三澤弘明, 鳥本司: 「金ナノフレーム集積体の電気化学的作製とその光化学特性」、2011年光化学討論会、宮崎 (2011-09).
 - 16) 王 莉*, 西島喜明, 上野貢生, 三澤弘明, 玉井尚登: “Plasmon Coupling and Coherent Acoustic Phonon Dynamics of Periodic Gold Pair Nanocuboids by Near-IR Laser Spectroscopy”, 第5回分子科学討論会2011、札幌 (2011-09).
 - 17) 井村耕平*, 上野貢生, 三澤弘明, 岡本裕巳: 「金薄膜上のナノヴォイドにおける光電場の可視化」、第5回分子科学討論会2011、札幌 (2011-09).
 - 18) 井村耕平*, 上野貢生, 三澤弘明, 岡本裕巳: 「プラズモンによる微小開口からの透過光増強」、第5回分子科学討論会、札幌 (2011-09).
 - 19) Y. Tanaka*, H. Ishiguro, H. Fujiwara, Y. Yokota, K. Ueno, H. Misawa and K. Sasaki: “Direct Observation of Nanogap-Mode Plasmon-Resonant Fields”, Nanoplasmonic Sensors and Spectroscopy 2011, Chalmers Johanneberg Campus, Gothenburg, Sweden (2011-09).
 - 20) K. Ueno*: “Surface Plasmon-Assisted Nanolithography”, BIT'S 1st Annual World, Dalian, China (2011-10).
 - 21) K. Ueno*: “Surface plasmon-assisted nanolithography with nanometric accuracy”, SPIE Photonic West 2012, 8243-15, The Moscone Center San Francisco, USA (2012-01).
 - 22) 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92春季年会、神奈川 (2012-03).
 - 23) 藤 宇*, 石 旭, 青陽大輔, 張佑専, 武藤将充, 上野貢生, 三澤弘明, 邱建榮: 「制御された金属ナノ構造を用いた発光性物質の発光増強」、日本化学会第92春季年会、神奈川 (2012-03).
 - 24) 石 旭*, 上野貢生, 三澤弘明: 「金ナノ粒子/酸化チタン単結晶電極の光電変換特性」、日本化学会第92春季年会、神奈川 (2012-03).
 - 25) 竹田祥平*, 王 莉, 西島喜明, 上野貢生, 三澤弘明, 玉井尚登: 「金ナノ構造体の低温における過渡吸収分光とコヒーレント音響フォノンダイナミクス」、日本化学会第92春季年会、神奈川 (2012-03).
 - 26) 東海林竜也*, 柴田路子, 喜多村昇, 高瀬舞, 村越敬, 西島喜明, 上野貢生, 三澤弘明, 水元義彦, 石原一, 坪井泰之: 「表面プラズモン増強輻射圧を用いたナノ粒子の光捕捉: 捕捉効率の金ナノギャップ構造および励起光源依存性」、日本化学会第92春季年会、神奈川 (2012-03).
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) 上野貢生*: 「プラズモニック光化学」、関東光科学若手研究会、東京 (2011-04).
 - 2) 上野貢生*: 「プラズモン増強場を用いた光ナノ加工技術」、第75回レーザ加工学会講演会、大阪 (2011-05).
 - 3) H. Misawa*, K. Ueno, Y. Nishijima, Y. Yokota and K. Murakoshi: “Plasmon-Assisted Photocurrent Generation”, International Workshop on Nanoplasmonics for Energy and the Environment, Sanxenxo, Spain (2011-06).
 - 4) H. Misawa*, Y. Nishijima, Y. Zhang, K. Ueno, K. Murakoshi and H. Inoue: “Plasmon-assisted Water Oxidation on Gold Nanostructured TiO₂ Photoelectrodes”, CeNS Workshop 2011 Nanosciences: From molecular systems to functional materials, Venice, Italy (2011-09).
 - 5) H. Misawa*: “Plasmon-enhanced Water Oxidation on Gold Nanostructured TiO₂ Photoelectrodes”, International Workshop on Quantum Manipulation of Atoms and Photons, Shanghai, China (2011-10).
 - 6) 上野貢生*: 「プラズモン増強場の創成と化学的応用」、2011年度日本分光学会北海道支部シンポジウム、札幌 (2011-10).
 - 7) 上野貢生*: 「光アンテナを用いた高効率光電変換システムの開発」、ナノマクロ物質・デバイス・システム創製アライアンス 平成23年度新エネルギー・デバイスプロジェクトグループ研究会、札幌 (2011-10).
 - 8) Q. Sun*, K. Ueno and H. Misawa: “Engineering stop gaps of polymeric 3D spiral photonic crystals into visible region by direct laser writing and post-thermal treatment”, 第2回先端フォトニクスシンポジウム、日本学術会議講堂、東京 (2011-10).
 - 9) 田中嘉人*, 石黒裕康, 藤原英樹, 上野貢生, 三澤弘明, 笹木敬司: 「ナノギャッププラズモン光局在場の直接観察」、日本光学会年次学術講演会 Optics & Photonics Japan 2011、大阪 (2011-10).
 - 10) 三澤弘明*: 「局在プラズモンを利用した光化学反応」、第7回励起ナノプロセス研究会、大阪 (2011-11).
 - 11) H. Misawa*, Y. Nishijima, K. Ueno, K. Murakoshi and H. Inoue: “Near-Infrared Plasmon-assisted Water Oxidation on Gold Nanostructured TiO₂ Photoelectrodes”, 2011 RCAS-ANNA 国際検討会, Studies of Nano and Bio-Materials using Laser, X-ray and Single-Molecule Techniques, Taipei, Taiwan (2011-11).
 - 12) 上野貢生*: 「プラズモニック化学反応をもちいた最先端リソグラフィー」、第2回プラズモニック化学シンポジウム、東京 (2011-11).
 - 13) 上野貢生*: 「プラズモンリソグラフィーによるナノパ

ターンの形成」、ナノテクノロジー・ネットワーク 平成23年度成果報告会、東京 (2011-11).

- 14) K. Ueno*: “Plasmon-Enhanced Photocurrent Generation and Its Application to Artificial Photosynthesis system”, 12th RIES-Hokudai International Symposium “観”, Sapporo (2011-11).
- 15) Q. Sun*, K. Ueno and H. Misawa: “Positive aspects of shrinkage in fabrication of micro/nanostructures in resists by direct laser writing”, 12th RIES-Hokudai International Symposium “観”, Sapporo (2011-11).
- 16) X. Shi*, K. Ueno, H. Misawa: “Plasmon resonant enhancement of photocurrent conversion at gold nanoparticles loaded TiO₂”, 12th RIES-Hokudai International Symposium “観”, Sapporo (2011-11).
- 17) H. Misawa*, Y. Nishijima, K. Ueno, K. Murakoshi and H. Inoue: “Plasmon-assisted Water Oxidation on Gold Nanostructured TiO₂ Single Crystal Substrates”, 3rd International Forum on Photoenergy Future (IFPF), Jeju Island, Korea (2011-12).
- 18) 三澤弘明*: 「近赤外プラズモンを用いた光電変換システム・人工光合成系の構築」、第4回フォトニックデバイス・応用技術研究会、神奈川 (2012-01).
- 19) K. Ueno*: “Localized Surface Plasmons for Nano-Fabrication”, 2nd Japan-France Frontiers of Engineering (JFFoE), Kyoto (2012-02).
- 20) 上野貢生*: 「プラズモニクスの応用展開」、平成23年度PWC 第3回光テクノロジー応用懇談会、千歳 (2012-02).
- 21) 上野貢生*、三澤弘明: 「プラズモンナノ光リソグラフィによる高分解能フォトレジストパターンの形成」、第123回微小光学研究会「超精密微小光学」、東京 (2012-03).
- 22) 三澤弘明*: 「プラズモニク太陽光エネルギー変換システムの構築」、日本化学会第92春季年会シンポジウム「プラズモニク化学の新展開」、神奈川 (2012-03).

iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 三澤弘明*: 「プラズモニクス研究の新展開-発光増強や光電変換への応用-」、講演会 (旭硝子(株)中央研究所)、神奈川 (2011-04).
- 2) K. Ueno*: “Chemical applications of metallic nanostructures showing localized surface plasmon”, Extreme Photonics Seminar, Saitama (2011-10).

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: 「第1回プラズモン化学シンポジウム」、東京大学本郷キャンパス (2011年6月1日)
- 2) 三澤弘明: 「第2回プラズモニク化学シンポジウム」、東京大学生産技術研究所 (2011年11月25日)
- 3) 三澤弘明: 「プラズモニク化学の新展開」、日本化学会第92春季年会 中長期テーマシンポジウム、慶應義塾

大学日吉キャンパス (2012年3月26日)

4.9 共同研究

- 1) 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」(2010~2011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。
- 2) 三澤弘明、上野貢生 (株式会社エクス・リサーチ): 「高効率太陽光発電に関する研究」(2012~2013年度) サステナブルエネルギー社会実現の為の技術探求を目的として、プラズモン共鳴を利用した太陽光発電技術について研究をおこなう。

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。
- 3) 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、電子科学研究所、科学技術補助金 (基盤研究S)、「高効率な光捕集・局在化を可能にする光アンテナの開発とその太陽電池への応用」(2011~2015年度)
- 2) 三澤弘明、電子科学研究所、科学技術補助金 (基盤研

- 究A)、「金ナノ構造／酸化チタン電極界面におけるプラズモン励起電子移動プロセスの解明」(2011年度)
- 3) 上野貢生、電子科学研究所、科学研究費補助金(若手研究A)、「10 nm-nodeに向けた非接触光リソグラフィー技術の開発」、(2011～2013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」、2007～2011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～2014年5月30日)
- 3) 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～2014年3月31日)
- 4) 三澤弘明: 電気通信大学共同研究員 (2008年4月1日～2013年3月31日)
- 5) 三澤弘明: NEDO ピアレビューア (2009年3月1日～2012年3月31日)
- 6) 三澤弘明: European Research Council, Peer Reviewer (2010年7月21日～2013年12月31日)
- 7) 三澤弘明: 科学技術振興機構 戦略的創造研究推進事業 研究領域「元素戦略を基軸とする物質・材料の革新的機能の創出」領域アドバイザー (2011年5月1日～2013年3月31日)
- 8) 三澤弘明: 日本学術会議 連携会員 (2011年10月3日～2017年9月30日)
- 9) 三澤弘明: 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委員 (2011年8月1～2012年3月31日)
- 10) 三澤弘明: 新エネルギー・産業技術総合開発機構 NEDO 技術委員 (2011年5月23日～2013年3月31日)
- 11) 三澤弘明: 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」運営会議委員 (2010年7月20～2014年2月28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～2013年2月28日)
- 2) 三澤弘明: ACS Applied Materials & Interfaces, Editorial Advisory Board (2009年1月1日～)
- 3) 三澤弘明: Journal of Physical Chemistry, Advisory Board Member (2010年1月1日～2012年12月31日)
- 4) 三澤弘明: Journal of Photochemistry and Photobiology C: Photochemistry Reviews, Deputy Editor(2010年1月1日～)
- 5) 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～2012年2月29日)
- 6) 上野貢生: 日本分析化学会北海道支部 幹事(2010年4月1日～)
- 7) 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～)
- 8) 上野貢生: 社団法人日本分析化学会「ぶんせき」編集委員 (2012年3月1日～2013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～)
- 2) 三澤弘明: 西安交通大学客員教授(2009年1月3日～2012年2月28日)
- 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

・新聞

- 1) 三澤弘明: 2011.8.29、日刊工業新聞、「数ナノメートルの加工分解能 北大が光リソグラフィー技術」

・雑誌

- 1) Hiroaki Misawa: 2011.09.22, Naturejobs, “Shedding new light on technology for the future”
- 2) Kosei Ueno: 2011.09, Nature Photonics, vol 5, “Exploiting propagation and evanescence”
- 3) 三澤弘明: 2011.10.17、日経エレクトロニクス第1067号、「既存の太陽電池の性能を向上」

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 (2011年4月1日～2011年9月30日)
- 2) 全学教育科目、化学I、上野貢生 (2011年4月1日～2011年9月30日)
- 3) 全学教育科目、環境と人間、上野貢生 (2011年4月1日～2011年9月30日)
- 4) 工学部、生体工学概論・生体医工学基礎、三澤弘明、上野貢生、(2011年10月5日)
- 5) 全学教育科目、2030年エレクトロニクスの旅、三澤弘明 (2012年1月17日)
- 6) 情報科学研究科、バイオオブティクス特論、三澤弘明、上野貢生 (2011年10月1日～2012年3月31日)

i. ポスドク・客員研究員など

- 1) 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、2009.1.1～2010.12.31)
- 2) 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、2010.10.16～2012.5.31)
 - 3) 李光立 (外国人協力研究員、2011.9.30～2011.11.16)

j. 修士学位及び博士学位の取得状況

- ・博士課程 (1名)
- 1) 李哲煜 : Microfluidic Devices for Fraction Collection of single strand DNA Fragments (一本鎖DNA分取用マイクロチップに関する研究) (2011年12月)
- ・修士課程 (3名)
- 1) 青陽大輔 : 積層型金ナノ構造体の光アンテナ効果と光電変換系への応用に関する研究 (Optical antenna effects on stacked gold nanostructures and its application to plasmon-enhanced photocurrent generation system) (2012年3月)
- 2) 旭秀典 : フェムト秒レーザー照射によりシリカガラス表面上に形成するナノグレーティング構造に関する研究 (Fabrication of nanograting structures on a silica glass by the irradiation of femto second laser beam) (2011年3月)
- 3) 武藤将充 : シアニン色素-金属ナノ構造ハイブリッドシステムにおける強結合状態の分光特性 (A spectroscopic study on strong coupling states between cyanine dyes and metallic nanostructures) (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、博(工)、2005.1～）
助教 三友秀之（東工大院、博(工)、2011.4～）
院 生
博士課程
永川桂大、関口翔太、王 国慶
修士課程
武蔵裕介、江口明日美、伊與直希、松永達也
学部生
杉村尚俊、鈴木康修

1. 研究の目的

生物は、タンパク質、核酸、脂質、糖といったすべての生き物に共通する分子（生体分子）をパーツとして、それらの高度な分子認識と自己組織化によって分子集合体システムを構築し、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要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固体基板上にDNA分子を垂直に固定化したDNAブラシを作製し、酵素反応と組み合わせた細胞や金属薄膜の新たなパターン形成方法の開発を目指している。また、分子間の相互作用を制御したナノ粒子の立体集合体の形成、ウイルスのタンパク質だけからなる再構築ウイルスカプセルを使った薬剤の細胞内への高効率導入法の開発、ゲル表面に作製した金属ナノ構造による刺激応答性光学材料の開発など、新規機能性材料の開発を目指している。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) 細胞にダメージを与えない細胞培養・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1)。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。

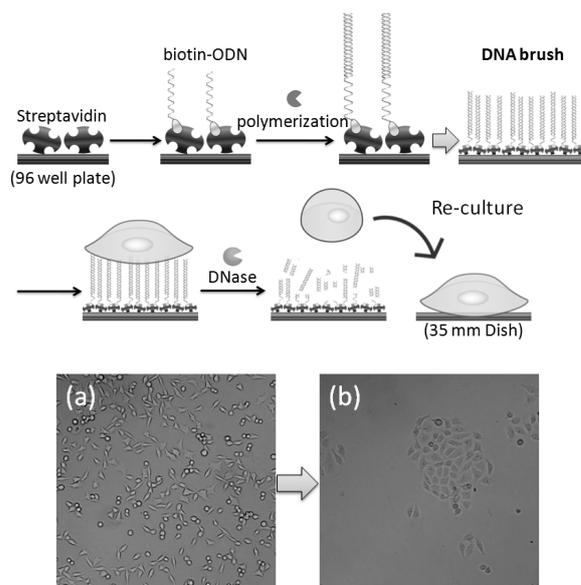


図1. DNAブラシ上の細胞培養と剥離の模式図およびDNAブラシ上で培養したHeLa細胞(a)とDNaseで剥離・再播種後の細胞の顕微鏡写真

(b) フッ素化エチレングリコール被覆金ナノ粒子のカプセル状自己組織化

機能性金属ナノ粒子集合体の作製法としてナノ粒子の自己組織化が、低コスト・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。特に溶液中におけるナノ粒子の自己組織化は、薬剤輸送・光反応場・表面増強ラマン(SERS)など新しい応用につながる手法として期待されている。溶液中で金ナノ粒子を自己組織化によってカプセル状に集合化させる手法は過去にいくつか報告例がある。それらの多くは疎水性高分子と親水性高分子を同時にナノ粒子に提示させることで自己集合を誘起する。この場合カプセル状の集合体のサイズは数百ナノメートルからマイクロスケールのサイズとなる。さらに高分子で粒子を被覆しているため粒子間距離が開いてしまい、プラズモン共鳴などの機能を発揮しにくい。我々はフッ素化エチレングリコールで金ナノ粒子を被覆するとテトラヒドロフラン(THF)中で金ナノ粒子がカプセル状に自己集合することを見いだした(図2)。今までに報告されてきたカプセルとの大きな違いは低分子

貼付を行う方法を開発した(図4)。転写を行うナノ構造パターンの作製には電子線リソグラフィによるレジストパターンを利用してAu薄膜のリフトオフを行っているので、ナノメートルスケールでの微細パターンの設計と作製が容易にできる。

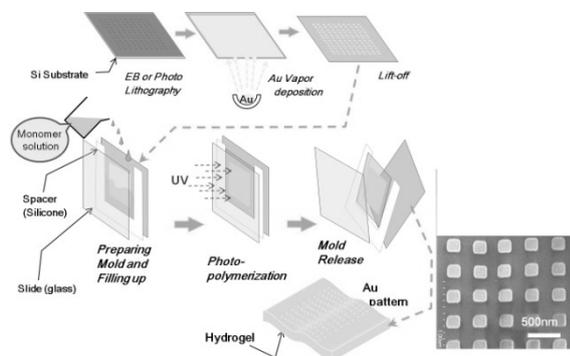


図4. ゲル微細加工のための貼付転写プロセス

実際に、光干渉性のナノ構造素子を作製するために、可視光領域の400~800 nmの周期構造を持たせたAuドット周期配列パターンをハイドロゲル上に作製した。この素子では、ハイドロゲルの膨潤・収縮によりAuドットの周期を連続的に変えることができるので、その結果、構造発色を連続的に変調できる機能を示すことができた(図5)。

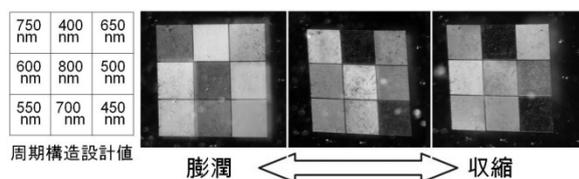


図5. ゲル上のAuドット周期構造の変化による発色の変調

現在は、詳細なナノスケール構造体での光学現象についてハイドロゲルを利用した変調可能素子を使用して検討し、ナノ構造体による新奇光学デバイスの開発を目指して研究を行っている。

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. Nagakawa, K. Niikura, T. Suzuki, Y. Matsuo, M. Igarashi, H. Sawa and K. Ijro: "Virus Capsid Coating of Gold Nanoparticles via Cysteine-Au Interactions and their Effective Cellular Uptakes", *Chem. Lett.*, 41(1): 113-115 (2012)
- 2) T. Tominaga, K-I. Sano, J. Kikuchi, H. Mitomo, K. Ijro, and Y. Osada: "Hydrophilic Double-Network Polymers that Sustain High Mechanical Modulus under 80% Humidity", *ACS Macro Lett*, 1(3): 432-436 (2012)
- 3) S. Sekiguchi, K. Niikura, Y. Matsuo, S. H. Yoshimura and K. Ijro: "Nuclear Transport facilitated by the Interaction Between Nuclear Pores and Carbohydrates", *RSC Advances*, 2: 1656-1662 (2011)
- 4) S. Sekiguchi, K. Niikura, N. Iyo, Y. Matsuo, A. Eguchi, T. Nakabayashi, N. Ohta and K. Ijro: "pH-Dependent Network Formation of Quantum Dots and Fluorescent Quenching by Au Nanoparticle Embedding", *ACS Applied Materials & Interfaces*, 3(11): 4169-4173 (2011)
- 5) G. Wang, T. Nishio, M. Sato, A. Ishikawa, K. Nambara, K. Nagakawa, Y. Matsuo, K. Niikura and K. Ijro: "Inspiration from chemical photography: accelerated photoconversion of AgCl to functional silver nanoparticles mediated by DNA", *Chem. Comm.*, 47: 9426-9428 (2011)
- 6) K. Niikura, K. Nambara, T. Okajima, R. Kamitani, S. Aoki, Y. Matsuo and K. Ijro: "Artificial Polymeric Receptors on the Cell Surface Promote the Efficient Cellular Uptake of Quantum Dots", *Organic and Biomolecular Chemistry*, (9): 5787-5792 (2011)
- 7) H. Akita, T. Masuda, T. Nishio, K. Niikura, K. Ijro and H. Harashima: "Improving in Vivo Hepatic Transfection Activity by Controlling Intracellular Trafficking: The Function of GALA and Maltotriose", *Mol. Pharmaceutics*, 8(4): 1436-1442 (2011)
- 8) K. Sano, R. Kawamura, T. Tominaga, N. Oda, K. Ijro and Y. Osada: "Self-Repairing Filamentous Actin Hydrogel with Hierarchical Structure", *Biomacromolecules*, 12(12), 4173-4177 (2011)

4.2 総説・解説・評論等

- 1) 新倉謙一、居城邦治:「分子を超えたナノ粒子のセルフ-アッセムブリー」、*高分子*, 60: 531-536 (2011)
- 2) 新倉謙一、居城邦治、関口翔太:「糖鎖修飾によるナノ粒子の核移行」、*生体の科学*, 62(5): 496-497 (2011)

4.4 著書

- 1) 居城邦治:「DNA ミメティクス」、次世代バイオミメティクス研究の最前線-生物多様性に学ぶ-、シーエムシ

一出版：第3章13節、226-230 (2011)

- 2) 居城邦治：「DNAの金属化」、ソフトナノテクノロジーにおける材料開発、シーエムシー出版：第1編第2章、151-156 (2011)

4.6 特許

- 1) 長田義仁、川村隆三、居城邦治、島本直伸、三友秀之、中村直樹、近藤拓也、藤根学：特願2011-198897、『異種材料が接合した重合体、及びその製造方法』2011年9月12日
- 2) 長田義仁、川村隆三、三友秀之、居城邦治、中村直樹、近藤拓也、藤根学：特願2012-081001、『多孔質無機材料含有エラストマーおよび多孔質無機材料含有エラストマーの製造方法』2012年3月30日
- 3) 長田義仁、三友秀之、重原淳孝、敷中一洋、居城邦治、中村直樹、近藤拓也、藤根学：特願2012-082775、『イモゴライトを含む重合用組成物、及びその利用』2012年3月30日

4.7 講演

a. 招待講演

i) 学会

- 1) K. Ijro*, G. Wang, K. Nambara, T. Nishio, Y. Matsuo and K. Niikura: "DNA-assisted fabrication of luminescent and Raman active silver nanoparticles for dual-modal bioimaging", SPIE Optics + Photonics 2011, San Diego, USA (2011-08)
- 2) K. Ijro*: "DNA-conjugated silver nanoparticles for fluorescence and Raman scattering dual-modal imaging", 12th Chitose International Forum on Photonic Science & Technology (CIF'12), Chitose, Hokkaido (2011-10)

ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) K. Ijro*: "DNA-templated bottom-up fabrication of conductive nanowires", 2011 Taiwan-Japan Bilateral Polymer Symposium (TJBPS'11), National Chiao Tung University, Hsinchu, Taiwan (2011-09)
- 2) K. Niikura: "Virus Capsules Enabling Controlled Release of Drug Molecules", International Symposium on Innovative Nano-biodesigns (ISIN 2012), TOYODA AUDITORIUM, Nagoya University (2012-03)

iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 新倉謙一*: 「分子を超えたナノ粒子のセルフアセンブリー」、平成23年岐阜大学公開セミナー、岐阜大学 (2011-09)
- 2) 居城邦治*: 「生体分子の分子認識を利用した機能性金属ナノ構造の自己組織化的作製」、第114回KARCコロキウム、未来ICT研究所 (2012-03)

b. 一般公演

i) 学会

- 1) 鈴木康修*、江口明日美、松尾保孝、新倉謙一、居城邦治：「DNAブラシの光マイクロパターンニングとデバイスへの応用」、日本化学会第92春季年会、慶應義塾大学 (2012-03)
- 2) 杉村尚俊*、新倉謙一、永川桂大、澤洋文、齊藤健太、永井健治、居城邦治：「細胞内での高感度検出を目指した化学発光タンパク質内包ウイルスカプセルの作製」、日本化学会第92春季年会、慶應義塾大学 (2012-03)
- 3) N. Iyo*, K. Niikura, T. Nishio, K. Ijro: "Self-assembly of gold nanoparticles in solution and their plasmonic application", 243rd ACS National Meeting & Exposition, San Diego, California, USA (2012-03)
- 4) T. Matsunaga*, K. Niikura, T. Suzuki, S. Kobayashi, H. Yamaguchi, H. Sawa, K. Ijro: "Shape dependent immunogenicity of antigen-coated gold nanomaterials", 243rd ACS National Meeting & Exposition, San Diego, California, USA (2012-03)
- 5) G. Wang*, Y. Matsuo, K. Niikura, K. Ijro: "DNA-mediated photoconversion of AgCl to functional nanocrystals", 243rd ACS National Meeting & Exposition, San Diego, California, USA (2012-03)
- 6) K. Niikura*, K. Nagakawa, Y. Musashi, H. Sawa, M. Kinjo, K. Ijro: "Glutathione-triggered drug release from virus capsules in cells", 243rd ACS National Meeting & Exposition, San Diego, California, USA (2012-03)
- 7) 鈴木康修*、江口明日美、松尾保孝、新倉謙一、居城邦治：「光でパターンニングしたDNAブラシの作製」、第46回(2011年度)高分子学会北海道支部研究発表会、北海道大学 (2012-01)
- 8) 杉村尚俊*、新倉謙一、永川桂大、澤洋文、齊藤健太、永井健治、居城邦治：「光反応場としてのルシフェラーゼ内包ウイルスカプセルの作製」、第46回(2011年度)高分子学会北海道支部研究発表会、北海道大学 (2012-01)
- 9) N. Shimamoto*, H. Mitomo, R. Kawamura, K. Kawabata, R. Kishi, K. Sano, K. Ijro, Y. Osada: "Fabrication of metal thin film patterns on hydro-gels", 24th International Microprocesses and Nanotechnology Conference, ANA Hotel Kyoto (2011-10)
- 10) 江口明日美*、松尾保孝、新倉謙一、居城邦治：「スクレーパーゼによる細胞剥離を可能にするDNAブラシ細胞培養基材の開発」、第60回高分子討論会、岡山大学 (2011-09)
- 11) 島本直伸*、三友秀之、川村隆三、川端邦明、岸良一、佐野健一、居城邦治、長田義仁：「ゲル表面への金属マイクロパターンの作製」、第60回高分子討論会、岡山大学 (2011-09)

- 12) 新倉謙一*, 関口翔太, 吉村成弘, 居城邦治: 「オリゴ糖鎖提示ナノ粒子の高速核移行とメカニズムの解明」、第60回高分子討論会、岡山大学 (2011-09)
- 13) 新倉謙一*, 伊与直希, 西尾崇, 居城邦治: 「フッ素系チオールで保護されたナノ粒子の自己組織化」、第60回高分子討論会、岡山大学 (2011-09)
- 14) G. Wang*, K. Niikura and K. Ijro: “DNA-mediated photoconversion of AgCl to functional nanocrystals”, 第60回高分子討論会、岡山大学 (2011-09)
- 15) 三友秀之*, 佐野健一, 居城邦治, 長田義仁: 「多孔性無機粒子によるゲルの物性制御」、第60回高分子討論会、岡山大学 (2011-09)
- 16) 川村隆三*, 佐野健一, 富永大輝, 小田直子, 居城邦治, 長田義仁: 「微小管のゲル化と巨視的運動の実現」、第60回高分子討論会、岡山大学 (2011-09)
- 17) 新倉謙一*, 永川桂大, 武蔵裕介, 鈴木忠樹, 澤洋文, 居城邦治: 「ウイルスタンパクの自己集合を利用したナノ材料の創製」、第60回高分子討論会、岡山大学 (2011-09)
- 18) 新倉謙一*, 伊与直希, 西尾崇, 居城邦治: 「フッ素界面の導入による金ナノ粒子配列構造の高速製作」、第63回コロイドおよび界面化学討論会、京都大学吉田キャンパス (2011-09)
- 19) 伊与直希*, 新倉謙一, 西尾崇, 居城邦治: 「フッ素化分子で修飾した金ナノ粒子の自己集合による三次元球形構造体の作製」、第63回コロイドおよび界面化学討論会、京都大学吉田キャンパス (2011-09)
- 20) 関口翔太*, 新倉謙一, 松尾保孝, 居城邦治: 「量子ドットの3次元ネットワークの作製」、第63回コロイドおよび界面化学討論会、京都大学吉田キャンパス (2011-09)
- 21) 末宗幾夫, 熊野英和, 小田島聡, 中島秀朗, 飯島仁史*, 居城邦治, 松尾保孝, 西尾崇: 「Ag埋め込み半導体ピラー構造を用いた高効率光子発生源の作製と発光特性評価」、第72回応用物理学会学術講演会、山形大学 (2011-08)
- 22) 伊与直希*, 新倉謙一, 西尾崇, 居城邦治: 「有機フッ素化合物提示金ナノ粒子の自己組織化による三次元球形構造体の作製」、2011年度北海道高分子若手研究会、洞爺サンパレス (2011-08)
- 23) 松永達也*, 新倉謙一, 鈴木忠樹, 永川桂大, 小林進太郎, 山口宏樹, 澤洋文, 居城邦治: 「様々な形状の金ナノ粒子ワクチンの作製とワクチン活性の形状依存性」、2011年度北海道高分子若手研究会、洞爺サンパレス (2011-08)
- 24) I. Suemune, H. Iijima*, M. Wada, S. Odashima, T. Nishio, Y. Matsuo, K. Ijro and H. Kumano: “High extraction efficiency of photons emitted from a single quantum dot in a pillar structure embedded in Silver”, The 15th Conference on Modulated Semiconductor Structures (MSS15), タラハシー, USA (2011-07)
- 25) 永川桂大*, 新倉謙一, 鈴木忠樹, 松尾保孝, 澤洋文, 居城邦治: 「ウイルス粒子の再集合における金属ナノ粒子内包条件の検討」、ナノ学会第9回大会、北海道大学 (2011-06)
- 26) G. Wang*, Y. Matsuo, K. Niikura and K. Ijro: “DNA-Mediated Photoconversion of AgCl to Functional Nanoparticles”, ナノ学会第9回大会, 北海道大学 (2011-06)
- 27) 松永達也*, 新倉謙一, 鈴木忠樹, 永川桂大, 小林進太郎, 居城邦治: 「金ナノ粒子を用い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」、第60回高分子学会年次大会、大阪国際会議場 (2011-05)
- 28) 江口明日美*, 松尾保孝, 新倉謙一, 居城邦治: 「DNAブラシを固定化した細胞培養基材の作製」、第60回高分子学会年次大会、大阪国際会議場 (2011-05)
- 29) 伊与直希*, 新倉謙一, 西尾崇, 居城邦治: 「フッ素化金ナノ粒子の自己集合能を用いた三次元球形構造体の作製」、第60回高分子学会年次大会、大阪国際会議場 (2011-05)
- 30) 武蔵裕介*, 新倉謙一, 永川桂大, 野村尚生, 澤洋文, 金城政孝, 居城邦治: 「自己集合によるウイルスカプセルのサイズ制御と薬剤送達への応用」、第60回高分子学会年次大会、大阪国際会議場 (2011-05)
- 31) 佐野健一*, 川村隆三, 富永大輝, 小田直子, 居城邦治, 長田義仁: 「アクチングルのネットワーク構造構築過程の解析」、第60回高分子学会年次大会、大阪国際会議場 (2011-05)
- 32) 佐野健一*, 川村隆三, 富永大輝, 小田直子, 居城邦治, 長田義仁: 「細胞骨格タンパク質の機能性材料化」、第60回高分子学会年次大会、大阪国際会議場 (2011-05)
- ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) G. Wang*, Y. Matsuo, K. Niikura and K. Ijro: “DNA-Mediated Photoconversion of AgCl to Functional Nanostructures for Bioimaging and Photocatalysis”, The 5th GCOE International Symposium, Hokkaido University (2012-02)
- 2) G. Wang*, A. Tanaka, Y. Matsuo, K. Niikura and K. Ijro: “DNA-Templated Self-Assembly of Conductive Nanowires”, EcoDesign 2011, Kyoto (2011-11 ~ 2011-12)
- 3) T. Matsunaga*, K. Niikura, T. Suzuki, K. Nagakawa, S. Kobayashi, H. Yamaguchi, H. Sawa and K. Ijro: “Shape Dependence of Antigen-coated Gold Nanomaterials on the Vaccine Activity”, 12th RIES-Hokudai International Symposium “観” [KAN], Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (2011-11)
- 4) A. Eguchi*, Y. Matsuo, K. Niikura and K. Ijro: “Preparation of DNA brush-immobilized tissue culture substrate that enables cell ablation by DNase”, 12th RIES-Hokudai

International Symposium “観” [KAN], Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (2011-11)

- 5) N. Iyo*, K. Niikura and K. Ijro: “SERS Active Hollow Assembly of Gold Nanoparticles in Solutions”, 12th RIES-Hokudai International Symposium “観” [KAN], Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (2011-11)
- 6) N. Shimamoto*, H. Mitomo, R. Kawamura, Y. Osada, K. Ijro: “Thin film micro grating on hydro-gels for fine measurement”, 12th RIES-Hokudai International Symposium “観” [KAN], Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (2011-11)
- 7) G. Wang*, Y. Matsuo, K. Niikura and K. Ijro: “DNA-Mediated Photoconversion of AgCl to Functional Nanocrystals”, The 38th International Symposium on Nucleic Acid Chemistry (ISNAC2011), Hokkaid University (2011-11)
- 8) K. Ijro*: “DNA-templated bottom-up fabrication of conductive nanowires”, 2011 Taiwan-Japan Bilateral Polymer Symposium (TJBPS'11), National Chia Tung University, Hsinchu, Taiwan (2011-09)
- 9) 松永達也*, 新倉謙一, 鈴木忠樹, 永川桂大, 小林進太郎, 山口宏樹, 澤洋文, 居城邦治: 「様々な形状の金ナノ粒子をコアとした擬似ウイルス粒子の作製とワクチン活性の評価」、第5回バイオ関連化学シンポジウム、つくば国際会議場 (2011-09)
- 10) S. Sekiguchi*, K. Niikura, Y. Matsuo, S. H. Yoshimura and K. Ijro: “The Nuclear Import of Nanoparticles by Displaying Glycoside Cluster on the Surface”, 21st international symposium on glycoconjugates (Glyco 21), University of Vienna, Australia (2011-08)
- 11) 永川桂大*, 新倉謙一, 野村尚生, 鈴木忠樹, 松尾保孝, 澤洋文, 居城邦治: 「糖鎖認識を利用した金属ナノ粒子の集合化によるウイルス検出」、第21回バイオ・高分子シンポジウム、関西大学千里山キャンパス (2011-07)
- 12) 江口明日美*, 松尾保孝, 新倉謙一, 居城邦治: 「DNA ブラシ上での細胞培養とDNaseによる細胞剥離」、第21回バイオ・高分子シンポジウム、関西大学千里山キャンパス (2011-07)

4.9 共同研究

a. 海外機関との共同研究

- 1) 居城邦治, Newcastle University, UK: 「Development of Conducting DNA」(2007年-)

b. 民間等との共同研究

- 1) 居城邦治, 大阪大学産業科学研究所: 「金属化DNAの導電性測定」(2007年-)
- 2) 長田義仁(理化学研究所), 居城邦治, 上田哲男: 「分子情報生命科学に関する研究」(2008.4.1~2012.11.30)
- 3) 居城邦治, 情報通信研究機構: 「走査型ナノプローブ顕微鏡によるバイオナノ構造の溶液中観察」(2008-2011)

- 4) 居城邦治, 松尾保孝, 伊藤晃壽 (富士フィルム(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)

- 5) 居城邦治, 千歳科学技術大学「同位体顕微鏡を用いた骨ミネラル代謝に関する研究」(2010-2013年)

- 6) 居城邦治, 大阪大学大学院「DNAを用いたトンネル接合形成」(2010年-)

- 7) 居城邦治, 理化学研究所「金属ナノ構造体を表面実装した自己支持性ナノ膜の微視的電気特性評価」(2011-2012年)

- 8) 居城邦治, 千歳科学技術大学「甘草(生薬)のトレーサビリティーに関する研究」(2011年-)

- 9) 居城邦治, 北九州市立大学「DNA ブラシ上でのiPS細胞やES細胞の培養と無傷剥離技術の開発」(2011年-)

- 10) 居城邦治, 富士フィルム(株)「金属微細構造による光制御に関する基礎検討」(2011年)

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メテック・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) 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)

- 5) 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) 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) 伊與直希: 「有機フッ素化合物提示金ナノ粒子の自己組

- 織化による三次元球形構造体の作製」、2011年度北海道高分子若手研究会「最優秀ポスター賞」(2011.8.27)
- 2) 杉村尚俊:「光反応場としてのルシフェラーゼ内包ウイルスカプセルの作製」、第46回高分子学会北海道支部研究発表会「優秀講演賞」(2012.2.13)

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) 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)
- 4) 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)
- 5) 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) 総合化学院、物理化学Ⅲ (分子組織化学)、新倉謙一、2011年12月06日～2012年2月6日
- 2) 全学共通、化学Ⅱ、居城邦治、2011年10月1日～2012年3月31日
- 3) 総合化学院、物質化学Ⅲ (分子組織化学)、居城邦治、2011年10月1日～2012年3月31日
- 4) 全学共通、環境と人間 (量子から生命まで、光とナノテクで切り拓く最先端科学)、居城邦治、2011年4月1日～2011年09月30日
- 5) 全学共通、環境と人間 (先端の化学)、居城邦治、2011年4月1日～2011年09月30日
- 6) 総合化学院、特別研究Ⅰ、居城邦治、2011年4月1日～2012年3月31日

- 7) 総合化学院、特別研究Ⅳ、居城邦治、2011年4月1日～2012年3月31日
- 8) 総合化学院、特別研究Ⅱ、居城邦治、2011年4月1日～2012年3月31日
- 9) 総合化学院、論文購読Ⅱ、居城邦治、2011年4月1日～2012年3月31日
- 10) 総合化学院、論文購読Ⅳ、居城邦治、2011年4月1日～2012年3月31日
- 11) 総合化学院、先端総合化学特論Ⅰ(総合化学特論Ⅰ)、新倉謙一、2011年4月1日～2011年9月30日
- 12) 理学院、特別研究Ⅴ、居城邦治、2011年4月1日～2012年3月31日
- 13) 総合化学院、論文購読Ⅰ、居城邦治、2011年4月1日～2012年3月31日
- 14) 理学院、論文購読Ⅴ、居城邦治、2011年4月1日～2012年3月31日
- 15) 理学部、超分子化学、居城邦治、2011年4月1日～2011年9月30日

j. 修士学位及び博士学位の取得状況

- ・修士課程 (4名)
 - 武蔵裕介、江口明日美、伊與直希、松永達也
- ・博士課程 (3名)
 - 永川桂大、関口翔太、王 国慶
- ・修士論文
 - 1) 武蔵裕介: グルタチオンに反応して薬剤放出するウイルスカプセルの作製
 - 2) 江口明日美: DNA を固定化した細胞培養基の作製とその応用
- ・博士論文
 - 1) 永川桂大: Conjugation of gold nanoparticle with viral capsid proteins for biomedical applications (生物医学的応用を目指したウイルスキャプシドタンパク質と金ナノ粒子のコンジュゲーション)

ナノ光高機能材料研究分野

教授 末宗幾夫 (東工大、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 Hermannstädter

院 生

中島秀朗、Nahid Akhter Jahan、飯島仁史、桜井誠也、
浅野智也、松田恒祐

1. 研究目標

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

2. 研究成果

(a) 超伝導発光ダイオードにおける光子生成過程の増強効果

次世代の量子情報処理技術の実用化に向けて、超伝導体は優れた量子系の安定性を有する量子ビット・高効率な単一光子検出器の有力な候補と考えられ、研究開発が盛んに行われている。しかしながらこれまで情報伝送媒体としての光子と超伝導をつなぐ境界領域の学術的な基盤はほとんど構築されていなかった。BCS理論によれば、超伝導状態での電子は電子-格子相互作用を介して電子対(クーパー対)を作ってボゾン化し、最低エネルギー状態に凝縮した状態となる。この状態ではクーパー対は空間的に広がったコヒーレントな状態になっていると考えられ、超伝導体に半導体などの常伝導体を接合すると、近接効果によってクーパー対が半導体中にしみ出す。このクーパー対が半導体におけるバンド間発光に関与すれば、従来とは異なる光子生成プロセスが実現できるはずであり、超伝導効果の主役である電子クーパー対とフォトニクスの主役である光子とを密接に関連させることが期待される。

超伝導体であるニオブニウム(Nb)電極を付加した p-InP/n-InGaAs 発光ダイオード(LED)構造 (図1(a))からのエレクトロルミネッセンス(EL)の過渡的変化を測定するため、図1(b)挿入図に示したようにLEDが定常状態となるまで一定の電流を注入し続けてから(ON-state)、急激に電流を止め(OFF-state)、ELの減衰の様子を測定した。LEDを300 mKまで冷却可能なクライオスタット(Oxford: Heriox ACV)に設置し、ELはNb電極上に作製した幅110 nmのスリットの直上に配置したマルチモードファイバーを通してストリークカメラ(Hamamatsu:C9510-NIR)に導かれている。内部電界の変化による再結合寿命の変化を抑制するため、電流量が1 nA以下の電流量に相当するオフセットバイアスを印加し続けている。図1(b)はニオブニウム(Nb)電極の超伝導転移前後でELの減衰を比較したものである。3 K(図(b)●)では10 K(○)よりもELが早く減衰していることが確認できる。図2(a)にELの減衰定数の温度依存性を測定した結果を示す。7.5 K-14 Kの温度域では2.25 nsで温度依存性は認められない。しかしながら0.8 K-7 Kの温度域では、温度の低下と共に減衰定数が急激に短縮している。この2つの温度領域は、Nb電極の抵抗測定により求められた超伝導転移温度7.3 K(図2(b)●)を境界にして変化しており、電子クーパー対の寄与が示唆されている。更に、比較用に作製したNb電極をAu電極で置き換えた発光ダイオードでは、減衰定数は温度変化に対してほぼ一定であり(△)、Nbを付加した超伝導LED構造において観測された減衰定数の短縮はn-InGaAs発光層自体の温度依存性によるものではなく、電子クーパー対がn-InGaAs発光層に侵入したことによって、光子生成過程が増強されたことを示している。

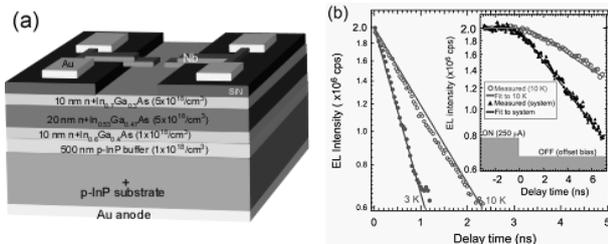


図1. (a)作製した超伝導LED構造。“H”型Nb電極に110nmのスリット構造を作製し、EL観測している。(b)ELの過渡的変化を測定した結果。Nbの超伝導転移に対応して減衰定数が減少している:10 K(○)→3 K(●)。挿入図は内部電界の変化を抑制するため印加したオフセットバイアスの効果を確認したものである(○:オフセットバイアスあり、●:なし)。

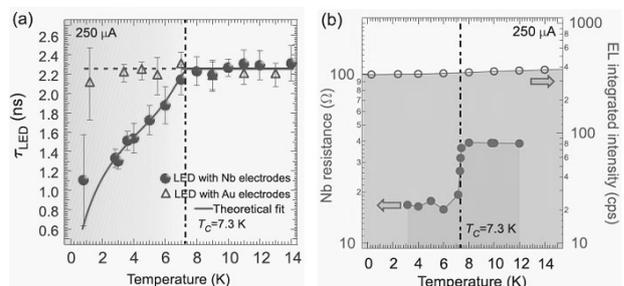


図2. (a)減衰定数の温度依存性。Nb電極を付加した超伝導LED(●)は超伝導転移温度以下で急激に減少している。一方Au電極に置き換えたLED(△)では、ほぼ一定の値を示している。実線は近接効果による電子クーパー対のn-InGaAs発光層への侵入を取り込んだ解析式でフィットした結果である。(b)Nb電極の抵抗(●)と定常状態におけるELの積分強度(○)を示している。Nbの超伝導転移温度は蒸着条件により変化するため測定試料では7.3 Kとなっている。

(b) 信号/背景光における異なる時間相関性を利用した偏光量子もつれ光子対評価に関する研究

固体光子対源の実現が期待されているが、一般に量子もつれ光子対と古典相関を持つ光子の重ね合わせ状態になることが多い。偏光量子もつれ光子対と完全混合(TM)光の重ね合わせ状態は一般に Werner 状態と呼ばれ、ベル状態 $|\Psi^-\rangle = 1/\sqrt{2}(|HV\rangle - |VH\rangle)$ に対して $\rho_w = p\rho_{Bell} + (1-p)\rho_{TM}$ で記述される。ここで p はベル状態光の重み (singlet weight) であり、理想的なベル状態 ($p = 1$) から変移した状態として量子もつれ光源の特性を評価する際に重要な量である。信号光と背景光に起因する光子対が共に時間相関を持つ場合には、entanglement witness に基づく 8 通りの検出偏光配置下での同時計数測定により評価される。応用上特に有用である固体量子光源の評価に適用する場合には、異なる時間相関特性を利用してより簡便に評価することが可能と考えられる。ここでは、固体量子光源への適用を念頭に、実用的な量子光源における信号光/背景光について時間相関の違いを利用した Werner 状態としての評価法について述べる。

図 3 に測定系を示す。Type-II BBO 結晶のパラメトリック下方変換 (PDC) によって発生する偏光量子もつれ光子対と熱輻射光源由来の無相関な古典光子対を空間的に重ね合わせ、時間相関の無い背景光を伴う固体量子光源を模した。Alice と Bob の同時計数ヒストグラムはガウス関数型のピークを持ち (図 4)、このピークをほぼカバーするように積算の時間窓を 4σ (σ : 標準偏差) と取った。

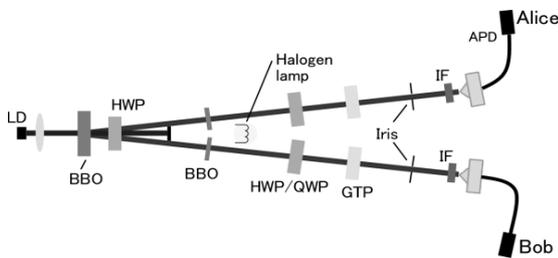


図 3. 時間相関の無い背景光を伴う固体量子光源に対するモデル光源構成。

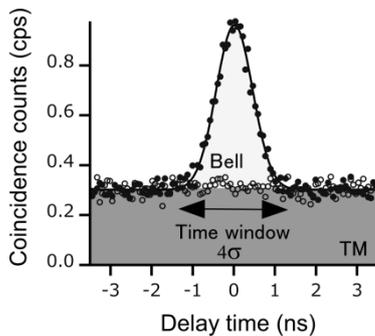


図 4. モデル光源に対する強度相関関数。時間相関を持つ Bell 状態の領域 (水色) と無相関な混合状態の領域 (灰色) が明確に分離可能。

今回行った実験の条件で最大の同時計数を与える HV 検出偏光基底の場合のこの時間窓におけるベル状態および TM 光の同時計数 $C^{(Bell)}$ および $C^{(TM)}$ から Werner 状態の singlet weight p を $p = C^{(Bell)} / (C^{(Bell)} + 2C^{(TM)})$ により算出し、これを量子トモグラフィにより独立に求めた p 値と比較検討した。

図 4 で、ベル状態起源の同時計数が 2 光子間の遅れ時間に対してガウス関数である一方、TM 光は均一分布である。これは各光源の光子対間の相関について、ベル状態が特定の時間相関を持つのにに対して TM 光はランダムで相関を持たないことに起因する。このため各同時計数 $C^{(Bell)}$ および $C^{(TM)}$ を独立に算定可能で、ヒストグラムから直接に singlet weight p が求められる。これを BBO 出力光強度一定の下で古典光の強度を変えた場合についてプロットしたものが図 5 丸印である。一方、これとは独立に量子トモグラフィにより 2 光子状態の密度行列を構成して linear entropy: S_L を求め、Werner 状態を仮定して $S_L = 1 - p^2$ により p を求めることができ、図 5 実線と与えられる。両者の間には非常に良い一致が見られ、時間相関の無い背景光を伴う固体量子光源からの偏光もつれあひ光子対状態を評価してその特性を向上する上で非常に有用である。

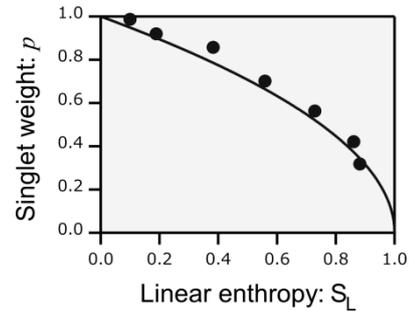


図 5. Werner 状態に対する理論曲線 (実線) と単一の同時計数ヒストグラムから得られた singlet weight p の比較。

(c) InAsP/InP ナノワイヤ量子ドットにおける局在励起子のスピン緩和に関する研究

直径 100 nm の InP ナノワイヤ中に厚さ 10 nm の InAsP 量子ドットが挟み込まれた構造 (NW-QD) では、ナノワイヤ (NW) と量子ドット (QD) 間のキャリア輸送により、QD 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 グループと共同で、光子生成を担う局在励起子スピンの緩和特性について研究を進めている。量子情報通信では光子の位相もしくは偏光に情報をエンコードするため、擬 0 次元系である半導体 QD 構造体では光子を発生する局在励起子スピンの横 (位相) 緩和時間と縦 (偏光) 緩和時間がビットレートを律速する。

試料は、InP(111)A 基板表面にスパッタ法で SiO_2 膜を形成し、電子ビーム露光を用いて $1 \mu\text{m}$ 間隔で直径 60-80 nm 程度の開口を形成し、選択 MOVPE (有機金属気相成長) したものである (図 6 左上挿入図)。

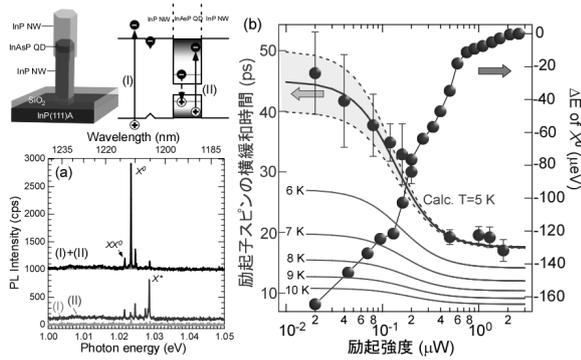


図6. (a) QD内励起(920 nm)と非共鳴励起(532 nm)過程(二色励起)による発光スペクトルの変化。これは励起光により誘起された内部電界の効果を示している。 X^0 , X^{\uparrow} , X^{\downarrow} は中性励起子、励起子分子、荷電励起子からの発光ピークを示している。左上挿入図はNW-QDの模式図。右上挿入図は二色励起過程の模式図。(b)非共鳴励起(632 nm)条件下での一次の光子相関測定により求められた励起子スピンの横緩和時間(●)。励起強度を上げると励起されたキャリアにより内部電界がスクリーニングされ、発光ピークエネルギーがブルーシフトしている(●)。

光子放出源である局在励起子状態の横緩和時間を非共鳴励起条件下における一次の光子相関測定により評価した結果が図6(b)である。励起光強度の減少に伴う横緩和時間(●)の延長を確認した。また発光ピークエネルギーのブルーシフト(●)も観測された。二色励起法による発光スペクトルの変化(図6(a))も考慮すると、これはNWとQDの界面近傍に分布する転位・欠陥等に捕獲される点電荷の存在と励起が示唆されている。図中実線は点電荷との散乱に起因する発光線幅の先鋭化(unconventional motional narrowing)に基づいたシミュレーションの結果であり、実験結果(●)をよく再現している。

次に放出された単一光子に対して全偏光測定(図7右上挿入図)を行い、励起子スピンの縦緩和時間を評価した。励起光強度の両波長板の角度依存性を観測した結果が図7(a)である。推定されたストークスパラメータは $\{I, M, C, S\} = \{1, 0.32, -0.6, 0.14\}$ であり、発光が楕円偏光となっていること

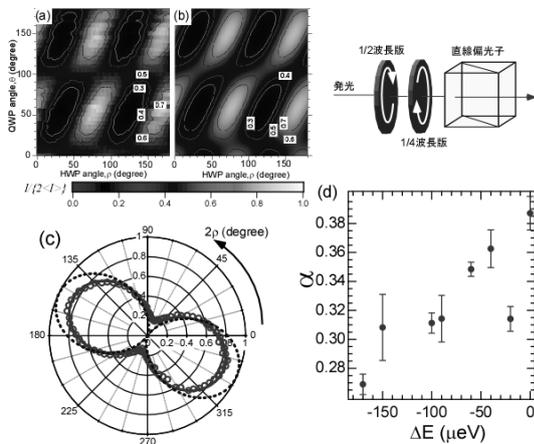


図7. (a)発光強度の偏光角度依存性。(b)ストークスパラメータを用いた測定結果のシミュレーション。(c)1/4波長板を59°に固定した場合の1/2波長板角度依存性。破線はランダム偏光成分が無い場合のシミュレーション。(d)ランダム偏光度の発光ピークエネルギー依存性。

を示している(図7(c))。解析結果からランダム偏光成分を $[0.3 = (1 - (M^2 + C^2 + S^2)^{1/2})]$ と求めることができ、縦緩和時間は発光寿命よりも短く1.4 ns $(= (1 - 0.3) \times 2 \text{ ns})$ と見積もることができた。更にランダム偏光度 a が発光ピークエネルギーシフトに依存しており(図7(d))、内部電界の増加によって励起子スピンの縦緩和が抑制されていることが示された。これは励起子を形成している電子と正孔の波動関数包絡線の重なり積分 $|\langle \phi_e | \phi_h \rangle|^2$ の減少に起因しているものと考えられ、いわゆるMAS(Maialle-Andrada-Sham)タイプの緩和機構 $\alpha \propto 1 - |\langle \phi_e | \phi_h \rangle|^2$ が支配的であることが示唆された。

3. 今後の研究の展望

超伝導効果によって発光ダイオードの発光増強効果が見いだされたが、理論的には電子クーパー対と2個の正孔が再結合することにより光子対が生成していることを示している。今後は光子相関測定によって光子対発生を直接確認し、Werner状態による評価を評価基準として、その量子もつれの特性改善を進め、量子情報応用可能な光源へと展開していく。一方これまで広く検討が進められてきた励起子分子・励起子発光による光子対発生では、励起子のスピン緩和、位相緩和が量子もつれの特性を制限しており、今回明らかになった励起強度依存性などを参考に、特性向上を進める。さらに、これまで検討を進めてきた、発生した光子の外部への取り出し効率改善を進め、「オンデマンド」光子源の性能へ近づけた単一光子源の実現を目指す。

4. 資料

4.1 学術論文等

- 1) H. Sasakura, C. Hermannstädter, S. N. Dorenbos, N. Akopian, M. P. Kouwen, J. Motohisa, Y. Kobayashi, H. Kumano, K. Kondo, K. Tomioka, T. Fukui, I. Suemune and V. Zwiller: "Longitudinal and transverse exciton-spin relaxation in a single InAsP quantum dot embedded inside a standing InP nanowire using photoluminescence spectroscopy", *Phys. Rev. B*, 85 : 075324-1-075324-7 (2012)
- 2) 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* (2011)
- 3) H. Sasakura, S. Kuramitsu, Y. Hayashi, K. Tanaka, T. Akazaki, E. Hanamura, R. Inoue, H. Takayanagi, Y. Asano, C. Hermannstädter, H. Kumano and I. Suemune: "Enhanced photon generation in a Nb/n-InGaAs/p-InP superconductor/semiconductor-diode light emitting device", *Phys. Rev. Lett.*, 107 : 157403/1-157403/5 (2011)
- 4) H. Nakajima, S. Ekuni, H. Kumano, Y. Idutsu, S. Miyamura, D. Kato, S. Ida, H. Sasakura, and I. Suemune: "Charac-

terization of Two-photon Polarization Mixed States Generated from Entangled-classical Hybrid Photon Source”, *Opt. Express* (2011)

- 5) J.-H. Huh, C. Hermannstaedter, K. Akahane, H. Sasakura, N. A. Jahan, M. Sasaki, and I. Suemune: “Fabrication of Metal Embedded Nano-cones for Single Quantum Dot Emission”, *Jpn. J. Appl. Phys* (2011)
- 6) S. Ohno, S. Adachi, R. Kajı, S. Muto and H. Sasakura: “Optical anisotropy and photoluminescence polarization in single InAlAs quantum dots”, *Appl. Phys. Lett.*, AIP, 98 : 161912/1-161912/3 (2011)
- 7) R. Inoue, K. Muranaga, H. Takayanagi, E. Hanamura, M. Jo, T. Akazaki, and I. Suemune: “Transport Properties of Andreev Polarons in Superconductor-Semiconductor-Superconductor Junction with Superlattice Structure”, *Phys. Rev. Lett* (2011)

4.6 特許

- 1) 末宗幾夫: PCT/JP2012/053701、太陽電池セル、2011年9月22日

4.7 講演

a. 招待講演

- 1) I. Suemune: “Control of Photon Emission Processes in Semiconductor Nanostructures,” Villa Conference on Interactions Among Nanostructures, April 21-25, 2011, Las Vegas, USA
- 2) H. Sasakura, C. Hermannstädter, H. Kumano and I. Suemune: “Two-photon emission process with Cooper-pair injection into semiconductors,” SPIE Photonics West 2012, January 21-26, 2012, San Francisco, USA
- 3) I. Suemune: “Control of Photon Generation Processes in Semiconductor Nanostructures” Vth International School on Nanophotonics and Photovoltaics, March 30 to April 5, 2012, Phuket, Thailand

b. 一般講演

i) 学会

- 1) 浅野智也、飯島仁史、小田島聡、末宗幾夫: 「高い光子取り出し効率実現に向けた GaAs コーン構造のテーパー角制御」、第72回応用物理学学会学術講演会 (平成23年8月29日-9月2日、山形大学)
- 2) 熊野英和、松田恒祐、末宗幾夫: 「信号/背景光における異なる時間相関性を利用した偏光もつれあい光子対の状態評価」、第72回応用物理学学会学術講演会 (平成23年8月29日-9月2日、山形大学)
- 3) 中島秀朗、熊野英和、飯島仁史、笹倉弘理、末宗幾夫: 「量子ドットにおける中性-荷電状態間遷移の評価」、第72回応用物理学学会学術講演会 (平成23年8月29日-9月2日、山形大学)

- 4) 桜井誠也、小田島聡、末宗幾夫: 「低速成長による InAs/GaAs 量子ディスクの等方化とその発光特性」、第72回応用物理学学会学術講演会 (平成23年8月29日-9月2日、山形大学)
 - 5) 飯島仁史、中島秀朗、小田島聡、熊野英和、西尾崇、松尾保孝、居城邦治、末宗幾夫: 「Ag 埋め込み半導体ピラー構造を用いた高効率光子発生源の作製と発光特性評価」、第72回応用物理学学会学術講演会 (平成23年8月29日-9月2日、山形大学)
 - 6) 松田恒祐、熊野英和、末宗幾夫: 「パラメトリック下方変換と熱輻射複合光源による Werner 状態の作製と評価」、第72回応用物理学学会学術講演会 (平成23年8月29日-9月2日、山形大学)
 - 7) 笹倉弘理、Dorenbos N Sander、Kouwen P M、Akoipan N、Zwiller V、小林靖典、本久順一、富岡克広、福井孝志、Hermannstädter Claus、熊野英和、末宗幾夫: 「InP/InAsP/InP ナノワイヤー量子ドットの局在励起子発光の偏光状態」、2011年秋季大会日本物理学会 (平成23年9月21日-24日、富山大学)
 - 8) 中島秀朗、熊野英和、石原渚、飯島仁史、小田島聡、末宗幾夫: 「単一 InAs 量子ドット中における状態間遷移に関する考察」、第47回応用物理学会北海道支部学術講演会、(平成24年1月6日-7日、北海道大学)
 - 9) 松田恒祐、熊野英和、末宗幾夫: 「擬似的固体量子光源を用いた Werner 状態仮定の有効性の検討」、第47回応用物理学会北海道支部学術講演会 (平成24年1月6日-7日、北海道大学)
 - 10) 浅野智也、飯島仁史、小田島聡、末宗幾夫: 「光子取り出し効率向上に向けた金属埋め込み GaAs コーン構造の作製」、第47回応用物理学会北海道支部学術講演会、(平成24年1月6日-7日、北海道大学)
 - 11) 小田島聡、末宗幾夫: 「Nb および Ti/Nb 超薄膜における超伝導特性」、第47回応用物理学会北海道支部学術講演会 (平成24年1月6日-7日、北海道大学)
 - 12) 中島秀朗、熊野英和、飯島仁史、小田島聡、末宗幾夫: 「単一量子ドットにおける中性-荷電状態間遷移の評価と考察」、春季第59回応用物理学関係連合講演会 (平成24年3月15日-18日、早稲田大学)
- ##### ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) C. Hermannstädter, J.-H. Huh, N. A. Jahan, H. Sasakura, and I. Suemune: “Long Wavelength Emission from Nanocone Structures with Embedded Single InAs/InGaAlAs Quantum Dots Grown on InP Substrates,” International Conference on InP and Related Materials (IPRM2011), May 22-26, 2011, Berlin, Germany
 - 2) N. A. Jahan, C. Hermannstädter, J.-H. Huh, H. Sasakura, K. Akahane, M. Sasaki, P. Ahirwar, T. J. Rotter, G. Balakrishnan, H. Kumano, and I. Suemune: “Temperature Dependent Photoluminescence of Ensemble and Single InAs/InGaAlAs Quantum Dots,” *Electronic Materials*

- Conference 2011, June 22–24, 2011, Santa Barbara, USA
- 3) N. A. Jahan, H. Iijima, C. Hermannstädter, P. Ahirwar, T. J. Rotter, G. Balakrishnan, H. Kumano, and I. Suemune: “Band Structure and Thermal Escape Processes of Strained InGaSb/AlGaSb Quantum Wells,” Electronic Materials Conference 2011, June 22–24, 2011, Santa Barbara, USA
 - 4) H. Nakajima, H. Kumano, H. Iijima, and I. Suemune: “Highly Pure Single-Photon Emission from a Metal-embedded Single Quantum Dot under Quasi-resonant Excitation,” The 15th Conference on Modulated Semiconductor Structures (MSS15), July 25–29, Tallahassee, USA
 - 5) H. Iijima, M. Wada, H. Nakajima, S. Odashima, T. Nishio, Y. Matsuo, K. Ijro, H. Kumano and I. Suemune: “High extraction efficiency of photons emitted from a single quantum dot in a pillar structure embedded in Silver,” The 15th Conference on Modulated Semiconductor Structures (MSS15), July 25–29, Tallahassee, USA
 - 6) I. Suemune, H. Sasakura, C. Hermannstädter, J.-H. Huh, Y. Asano, K. Tanaka, T. Akazaki, and H. Kumano: “Radiative Recombination Processes based on Electron Cooper Pairs in Doped Semiconductors: Quantitative Evaluation of Roles of Cooper Pairs and Normal Electrons,” The 15th Conference on Modulated Semiconductor Structures (MSS15), July 25–29, Tallahassee, USA
 - 7) C. Hermannstädter, J.-H. Huh, N. A. Jahan, H. Sasakura, K. Akahane, M. Sasaki and I. Suemune: “Single InAs quantum dots in metal embedded nano-cone structures emitting in the telecommunication O and C bands,” 電子情報通信学会機構デバイス／電子部品・材料／光エレクトロニクス／レーザ・量子エレクトロニクス研究会、平成23年8月25–26日、札幌。
 - 8) I. Suemune, H. Sasakura, C. Hermannstädter, J.-H. Huh, Y. Asano, K. Tanaka, T. Akazaki, and H. Kumano: “Drastic Enhancement of Interband Optical Transition Probability with Electron Pairing in Semiconductors,” IQEC/CLEO Pacific Rim 2011, August 28 – September 1, Sydney, Australia
 - 9) K. Matsuda, H. Kumano, S. Ekuni, H. Sasakura, and I. Suemune: “Characterization of Two-photon Mixed States Employed with Polarization Entangled-classical Hybrid Photon Source,” International Conference on Quantum Information Processing and Communication, September 5–9, 2011, Zurich, Switzerland
 - 10) R. Kaji, S. Adachi, H. Sasakura and S. Muto: “Direct estimation of the correlation time of overhauser field in single quantum dots,” Optics of exciton in confined systems (OECS12), September 12–16, Paris, France
 - 11) H. Sasakura, S. N. Dorenbos, M. P. van Kouwen, N. Akopian, V. Zwiller, J. Motohisa, T. Fukui, C. Hermannstädter, H. Kumano, and I. Suemune: “Exciton polarization in a single nanowire quantum dot,” Optics of exciton in confined systems (OECS12), September 12–16, Paris, France
 - 12) H. Iijima, S. Odashima, and I. Suemune: “n-ZnO/InAs QDs/p-GaAs Pillar Structure Prepared as a Single Photon Emitter,” 24th International Microprocesses and Nanotechnology Conference, October 24–27, 2011, Kyoto
 - 13) J.-H. Huh, C. Hermannstädter, K. Akahane, N.A. Jahan, H. Sasakura, M. Sasaki, and I. Suemune: “Size Control of Tapered Cones for High Density Quantum Dots as 1.55 μ m Emitters,” 24th International Microprocesses and Nanotechnology Conference, October 24–27, 2011, Kyoto
 - 14) S. Sakurai, S. Odashima, H. Iijima, and I. Suemune: “Transformation from InAs Quantum Dots to Disks for Reduced Exciton-State Splitting,” 24th International Microprocesses and Nanotechnology Conference, October 24–27, 2011, Kyoto
 - 15) S. Odashima, H. Iijima, H. Nakajima, and I. Suemune: “Photon Emission Control by External Electric Field on n-ZnO/InAs QDs/p-GaAs Pillar Structure,” The 5th International Symposium on Global COE Program of Center for Next-Generation Information Technology based on Knowledge Discovery and Knowledge Federation (GCOE-NGIT 2012), January 21–26, Sapporo
 - 16) H. Nakajima, K. Kumano, H. Iijima, S. Odashima, and I. Suemune: “Investigation of Carrier Dynamics in a Single InAs Quantum Dot,” The 5th International Symposium on Global COE Program of Center for Next-Generation Information Technology based on Knowledge Discovery and Knowledge Federation (GCOE-NGIT 2012), January 21–26, Sapporo
 - 17) N. A. Jahan, C. Hermannstädter, P. Ahirwar, T. J. Rotter, G. Balakrishnan, H. Kumano, and I. Suemune: “Effect of Interfacial Misfit arrays (IMF) on the optical properties of GaSb/AlGaSb multiple quantum wells grown on buffer free GaSb/GaAs heterojunctions,” The 5th International Symposium on Global COE Program of Center for Next-Generation Information Technology based on Knowledge Discovery and Knowledge Federation (GCOE-NGIT 2012), January 21–26, Sapporo
 - 18) I. Suemune, H. Kumano, H. Sasakura, J. Motohisa, Y. Kobayashi, K. Tomioka, T. Fukui, V. Zwiller, S. Dorenbos, M. van Kouwen, N. Akopian: “Single Photon Generation from Semiconductor Nanostructures,” The 5th International Symposium on Global COE Program of Center for Next-Generation Information Technology based on Knowledge Discovery and Knowledge Federation (GCOE-NGIT 2012), January 21–26, Sapporo
 - 19) I. Suemune: “Spontaneous Two-photon Emission from

Semiconductors and Its Prospect,” Photonic West, January 21-26, 2012, San Francisco, USA

- 2) C. Hermannstädter, N. A. Jahan, H.-J. Huh, H. Sasakura, K. Akahane, M. Sasaki, and I. Suemune: “Telecom Band Single Quantum Dots and Dot Ensembles at Elevated Temperature,” Photonic West 2012, January 21-26, 2012, San Francisco, 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)

- 1) 末宗幾夫、赤崎達志、NTT 共同研究: 「電子クーパ対の発光再結合を利用したもつれあい光子対同時発生固体光源の研究」(2011年9月15日～2012年2月29日)
- 2) 末宗幾夫、Balakrishnan Ganesh、二国間交流事業共同研究: 「金属微小光共振器埋め込み光ファイバー波長帯量子ドットによるもつれあい光子対発生」(2010年4月1日～2012年3月31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、研究期間)

- 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子ドット・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

f. その他 (研究担当者、機関名、研究課題、研究期間)

- 1) 末宗幾夫、熊野英和、総務省 SCOPE 「量子情報通信用高効率光ファイバー直接結合半導体量子ドット単一光子源の研究開発」(2011年度～2013年度)

4.11 受賞

- 1) 中島秀朗、熊野英和、石原渚、飯島仁史、小田島聡、末宗幾夫: 発表奨励賞「単一 InAs 量子ドット中における状態間遷移に関する考察」2012年1月6-7日、北海道大学

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)

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～2012年3月31日)
 - 3) 熊野英和: 応用物理学会北海道支部幹事 (2011年4月1日～2012年3月31日)
 - 4) 笹倉弘理: 応用物理学会北海道支部幹事 (2011年4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) 情報科学研究科、光電子物性学特論、末宗幾夫、2011年4月1日～2011年9月30日
 - 2) 工学部、電子デバイス工学、末宗幾夫、2011年4月1日～2011年9月30日
 - 3) 工学部、応用数学Ⅱ演習、末宗幾夫、2011年4月1日～2011年9月30日
 - 4) 情報科学研究科、光電子物性学特論、熊野英和、2011年4月1日～2011年9月30日
 - 5) 工学部、統計力学、熊野英和、2011年10月1日～2012年3月31日
 - 6) 工学部、電子情報工学実験、熊野英和、2011年4月1日～2012年3月31日
 - 7) 工学部、電子情報工学実験、笹倉弘理、2011年4月1日～2012年3月31日

i. ポスドク・客員研究員など

許 載勳
小田島聡
Claus Hermannstädter

j. 修士学位及び博士学位の取得状況

・修士学位

- 1) 桜井誠也: 「InAs 量子ドット形状制御による励起子(準位)微細構造分裂の低減に関する研究」
- 2) 飯島仁史: 「半導体量子ドットからの単一光子発生の高効率化とそのデバイス化に関する研究」

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～）
 学術研究員 小山正孝（2007.11～）
 学術研究員 笠沼由香（2008.1～2011.12）
 学術研究員 高橋平七郎（2007.6～）
 学術研究員 YANG ZHANBING（2011.4～2011.9）
 学術研究員 大西広（2011.4～3）
 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・マテリアル融合領域研究センター、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、プラズマモニックデバイス、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23年4月～平成24年3月）

平成23年度の支援状況として超微細加工に関する利用件数は93件、利用延べ日数は3842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139件、利用延べ日数は897日となっている。全支援課題数232件となり、そのうち委託事業（成果報告書有り）は130件、自主事業（報告書義務無し）は102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。

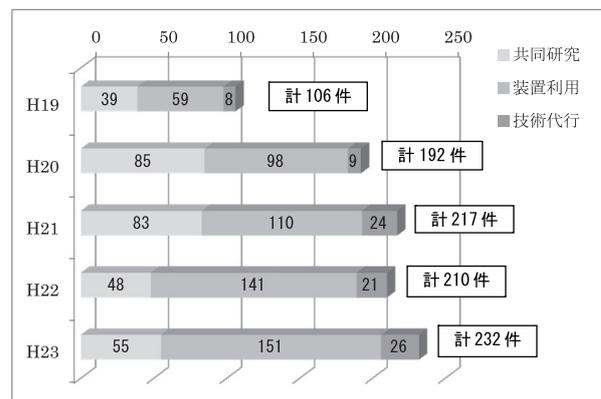


図1. 支援件数推移

支援課題数、支援日数共に昨年からの微増であった。

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
H23	国内	3	8	118	129
	国際	86	0	48	134
	年度計	89	8	166	263
合計		323	21	737	1081

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年々増加している。また、特許については5年間で50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23年度は昨年引き続き技術者交流を行った。北大からは東京工業大学へ技術者を派遣し、本学でも積極的に活用されている電子ビーム描画装置に関する技術取得に努めていただいた。一方で、大阪大学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23年度ナノネット事業5大成果として本学支援成果「レーザー誘起周期ナノドットのその場形成」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(Nanotech20112)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。震災の影響により導入が遅れていた原子層堆積装置(ALD)や時間分解光電子分光装置(TR-PEEM)の整備を行い、学内外からの利用が可能な体制を整えて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。

(d) 創成研究機構 北海道企業群によるナノ加工技術集積拠点の形成 —ナノインプリントによる生産技術の開発—

「創成研究機構」が中核となり、北海道立の研究施設群及び北海道内の各企業との間において産学官連携研究を推進し、「ナノ加工技術を集積した拠点」を形成すると共に、ナノインプリント生産技術を開発し、産業応用や新たな産業の創出を目指すプロジェクトにおいて、主担当部局として事業推進を行っている。道総研や道内企業との共同研究によりナノインプリント技術の開発と技術移転の推進を図った。

3. 今後の研究の展望

本支援室では引き続き、学内外への研究支援活動について、低炭素研究ネットワーク事業あるいは他の共用化促進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23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) 松尾保孝、吉田裕、渡辺精一「レーザー誘起周期ナノドットのその場形成」、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20年	平成21年	平成22年	平成23年
電子材料 物性部門	欧 文		33 (33)	39 (39)	41 (25)	33 (32)
	邦 文		2 (2)	2 (2)	0	0
電子機能 素子部門	欧 文		19 (19)	19 (12)	27 (15)	24 (21)
	邦 文		3 (3)	1 (1)	0	1 (1)
電子計測 制御部門	欧 文		15 (15)	20 (18)	18 (18)	20 (20)
	邦 文		3 (2)	0	1	2 (1)
電子情報 処理部門※	欧 文		56 (54)	26 (25)	22 (21)	(31)
	邦 文		1 (1)	1	1	(3)
ナノテクノロジー 研究センター	欧 文		39 (38)	34 (30)	21 (18)	42 (38)
	邦 文		2 (2)	1 (1)	1 (1)	(0)
計	欧 文		128 (126)	129 (116)	119 (87)	(135)
	邦 文		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20年	平成21年	平成22年	平成23年
電子材料 物性部門	総説等		5	5	4	5
	著 書		1	2 (1)	1	3
電子機能 素子部門	総説等		4 (1)	7 (1)	3 (1)	1
	著 書		1	2 (1)	2 (2)	1
電子計測 制御部門	総説等		6	10	11 (2)	15 (3)
	著 書		0	3 (2)	1	2
電子情報 処理部門※	総説等		16 (1)	10	10 (1)	4
	著 書		6 (2)	7 (3)	3	0
ナノテクノロジー 研究センター	総説等		8 (3)	6 (1)	1	7 (1)
	著 書		3 (1)	10	2	2
計	総説等		33 (4)	38 (2)	28 (4)	32 (4)
	著 書		9 (2)	23 (7)	9 (2)	8

()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20年	平成21年	平成22年	平成23年
電子材料 物性部門	国際学会		47 (14)	28 (8)	15 (8)	34 (15)
	国内学会		44 (1)	45 (5)	30 (3)	63 (6)
電子機能 素子部門	国際学会		25 (6)	6 (1)	20 (3)	16 (4)
	国内学会		24 (1)	17 (4)	25 (3)	31 (4)
電子計測 制御部門	国際学会		19 (9)	33 (16)	30 (15)	15 (10)
	国内学会		35 (5)	39 (14)	59 (31)	31 (4)
電子情報 処理部門※	国際学会		16 (3)	5 (1)	11 (2)	18
	国内学会		57 (10)	40 (1)	28 (4)	33
ナノテクノロジー 研究センター	国際学会		34 (5)	8 (4)	31 (8)	19 (3)
	国内学会		58 (5)	28 (1)	42 (1)	45
計	国際学会		109 (30)	77 (29)	103 (36)	102 (32)
	国内学会		169 (20)	162 (25)	180 (42)	215 (14)

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20年度	平成21年度	平成22年度	平成23年度
業 務 費	169,867	160,255	199,162	237,734
科学研究費補助金	329,741 (72)	319,314 (68)	376,484 (63)	470,802 (80)
その他の補助金	20,460 (7)	6,638 (5)	36,361 (7)	23,696 (4)
寄 附 金	32,012 (12)	37,679 (11)	29,615 (11)	31,640 (14)
受託事業等経費	427,412 (34)	495,891 (38)	896,500 (41)	510,564 (38)
(受託研究費)	393,081 (20)	462,226 (26)	832,207 (28)	471,438 (24)
(共同研究費)	34,331 (14)	33,665 (12)	64,293 (13)	39,126 (14)
合 計	979,492 (125)	1,019,777 (122)	1,538,122 (122)	1,274,436 (136)

() 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22年度	平成23年度
電子材料物性部門	科学研究費補助金	90,163(13)	93,734(18)
	その他の補助金	0	0
	寄 附 金 I	2,000 (1)	3,500 (3)
	寄 附 金 II	0	0
	受託事業等経費	113,662 (8)	108,316 (8)
	(受託研究費)	111,662 (7)	108,316 (8)
	(共同研究費)	2,000 (1)	0
	小 計	205,825(22)	205,550(29)
電子機能素子部門	科学研究費補助金	28,460 (7)	24,310 (8)
	その他の補助金	0	0
	寄 附 金 I	0	1,500 (1)
	寄 附 金 II	2,952 (4)	2,350 (3)
	受託事業等経費	38,984 (4)	24,731 (5)
	(受託研究費)	16,684 (3)	11,245 (2)
	(共同研究費)	22,300 (1)	13,486 (3)
	小 計	70,396(15)	52,891(17)
電子計測制御部門	科学研究費補助金	98,061(15)	166,104(25)
	その他の補助金	30,463 (4)	22,696 (3)
	寄 附 金 I	8,743 (3)	17,290 (2)
	寄 附 金 II	200 (1)	0
	受託事業等経費	62,746 (8)	58,140 (7)
	(受託研究費)	55,926 (7)	52,640 (5)
	(共同研究費)	6,820 (1)	5,500 (2)
	小 計	200,213(31)	264,230(37)

電子情報処理部門	科学研究費補助金	75,219(15)	61,457(14)
	その他の補助金	0	0
	寄附金Ⅰ	1,220(1)	500(1)
	寄附金Ⅱ	0	0
	受託事業等経費	28,133(5)	18,100(3)
	(受託研究費)	19,110(2)	17,550(2)
	(共同研究費)	9,023(3)	550(1)
	小計	104,572(21)	80,057(18)
寄附研究部門 (ニコンバイオイメージングセンター)	科学研究費補助金	3,101(2)	0
	その他の補助金	0	0
	寄附金Ⅰ	0	0
	寄附金Ⅱ	14,500(1)	3,600(1)
	受託事業等経費	0	0
	(受託研究費)	0	0
	(共同研究費)	0	0
	小計	17,601(3)	3,600(1)
附属ナノテクノロジー 研究センター	科学研究費補助金	81,480(11)	125,197(15)
	その他の補助金	5,898(3)	1,000(1)
	寄附金Ⅰ	0	2,500(2)
	寄附金Ⅱ	0	400(1)
	受託事業等経費	652,975(16)	301,277(15)
	(受託研究費)	628,825(9)	281,687(7)
	(共同研究費)	24,150(7)	19,590(8)
	小計	740,353(30)	430,374(34)

()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20年度	平成21年度	平成22年度	平成23年度
電子材料物性部門		6	11	8	5
電子機能素子部門		14	0	1	0
電子計測制御部門		13	4	4	5
電子情報処理部門		1	4	4	1
ナノテクノロジー研究センター		0	9	6	5
計		34	28	23	16

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23年度

● 工学研究科

- 北嶋 千誉：「テーパファイバ結合トロイド共振器を利用した高効率局在プラズモン励起システムの構築」
- 真田 彬央：「ナノギャップ局在プラズモンによるナノ粒子の光捕捉」
- 斉 君：「ITO 基板上的の単一 CdSe/ZnS 量子ドット発光ダイナミクスの解析」

● 理学院

- 飯島 悠宇：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
- 川上 剛広：ネットワーク結合した位相振動子の同期特性
- 中筋 真生：流体を介した相互作用によるバネ円柱同期の解析

● 情報科学科

- 青陽 大輔：積層型金ナノ構造体の光アンテナ効果と光電変換系への応用に関する研究 (Optical antenna effects on stacked gold nanostructures and its application to plasmon-enhanced photocurrent generation system) (2012年3月)
- 旭 秀典：フェムト秒レーザー照射によりシリカガラス表面上に形成するナノグレーティング構造に関する研究 (Fabrication of nanograting structures on a silica glass by the irradiation of femto second laser beam) (2011年3月)
- 武藤 将充：シアニン色素-金属ナノ構造ハイブリッドシステムにおける強結合状態の分光特性 (A spectroscopic study on strong coupling states between cyanine dyes and metallic nanostructures) (2011年3月)
- 桜井 誠也：「InAs 量子ドット形状制御による励起子(準位)微細構造分裂の低減に関する研究」
- 飯島 仁史：「半導体量子ドットからの単一光子発生の高効率化とそのデバイス化に関する研究」

● 総合科学院

- 武蔵 裕介：グルタチオンに応答して薬剤放出するウイルスカプセルの作製
- 江口明日美：DNA を固定化した細胞培養基材の作製とその応用

II-4-2) 博士学位

平成23年度

● 環境科学院

- 遠藤大五郎：動的超分子カチオン構造を有するポリオキソメタレート結晶の構造と物性

● 情報科学院

- Dシャーラル カドリ ビン アヨブ：“Photothermally induced vibration of an optically driven atomic force microscope cantilever”
- 李 哲煜：Microfluidic Devices for Fraction Collection of single strand DNA Fragments (一本鎖DNA分取用マイクロチップに関する研究) (2011年12月)

● 総合科学院

- 永川 桂大：Conjugation of gold nanoparticle with viral capsid proteins for biomedical applications (生物医学的応用を目指したウイルスキャプシドタンパク質と金ナノ粒子のコンジュゲーション)

Ⅱ-4-3) 大学院生在籍数

研究科名	年	修 士		博 士	
		平成22年	平成23年	平成22年	平成23年
理 学 院		22	11	18	5
工 学 研 究 科		5	0	4	0
環 境 科 学 院		6	5	6	8
情 報 科 学 研 究 科		25	22	6	6
生 命 科 学 院		1	5	3	6
総 合 化 学 院		2	6	2	3
計		61	49	40	28

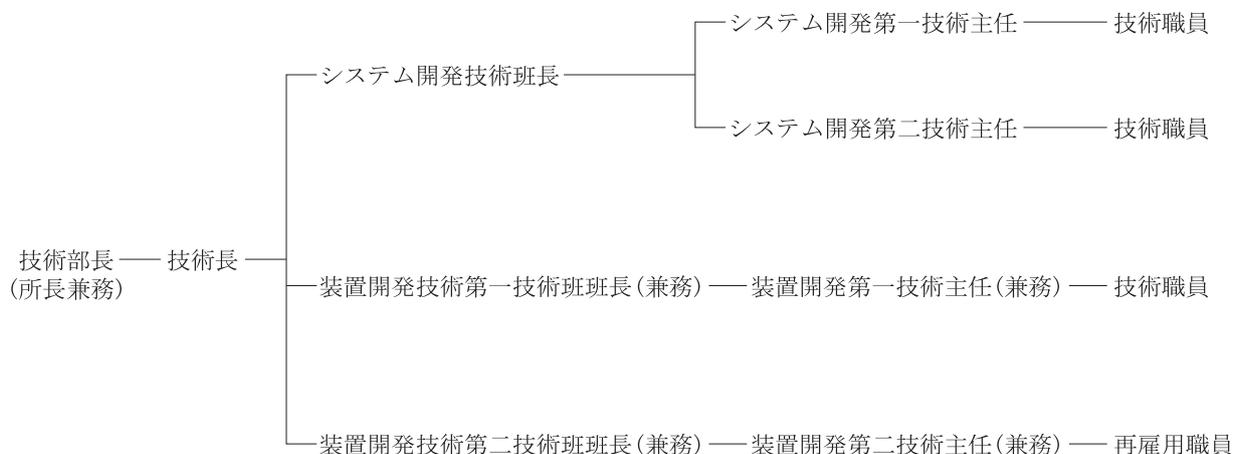
Ⅲ. 研究支援体制

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ー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。

1. 蔵書冊数

年 度	平成20年*	平成21年*	平成22年*	平成23年*
和 書	5,554	5,564	5,591	5,623
洋 書	17,390	17,438	17,477	17,515
計	22,944	23,002	23,068	23,138

2. 所蔵雑誌種類数

年 度	平成20年*	平成21年*	平成22年*	平成23年*
和雑誌	116	135	125	118
洋雑誌	412	413	431	410
計	528	548	556	528

3. 購

入外国語雑誌受入種類数

年 度	平成20年*	平成21年*	平成22年*	平成23年*
和雑誌	41	48	55	46
洋雑誌	29	21	21	9
計	70	69	76	55

4. 学外文献複写数

年 度	平成20年*	平成21年*	平成22年*	平成23年*
依 頼	78	108	57	109
受 付	252	248	179	110

* 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。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、フルテキストを閲覧・購読できる。

また、情報検索端末からはインターネットを通じ、北海道大学で導入している学術文献データベースを利用することができる。利用できるデータベースの種類は豊富で、“Web of Science”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フィ分子ナノデバイス研究分野に名称変更
 寄附研究部門「ニコンバイオイメージングセンター研究部門」開設期間更新（更新期間3年）
22. 3 フランス・リヨン高等師範学校との学術交流協定締結
22. 4 電子材料物性研究部門ナノ光高機能材料研究分野をコヒーレントX線光学研究分野に名称変更
 電子機能素子研究部門分子認識素子研究分野を光波制御材料研究分野に名称変更
 電子計測制御研究部門量子計測研究分野を生体物理研究分野に名称変更
 附属ナノテクノロジー研究センターナノ理論研究分野をナノ光高機能材料研究分野に名称変更
 連携研究部門理研連携研究分野を新設
22. 9 ドイツ・オットー・フォン・ゲーリケ大学マクデブルク自然科学部との学術交流協定締結
23. 1 台湾・国立交通大学理学院との学術交流協定締結
23. 9 寄附研究部門「ニコンバイオイメージングセンター研究部門」開設期間満了
24. 4 改組に伴い研究部門名、研究分野名を全面改称
 附属ナノテクノロジー研究センターを附属グリーンナノテクノロジー研究センターに改組転換
 研究支援部を新設
 支援部構成：ニコンイメージングセンター、国際連携推進室、ナノテク連携推進室

[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
	(故) 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 眞也
平成23年4月	上田 哲男

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23年度）

（7月1日現在）

職名	人数
教授	16 (5)
准教授	11
講師	1
助教	23
特任教授	1
特任准教授	1
特任助教	1
教員小計	54 (5)
技術部	9
合計	63 (5)

（ ）内の数字は客員で外数

IV-4. 教員の異動状況（平成23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	木村隆志	23. 4. 1	大阪大学大学院工学研究科・学生

○転出状況

所属部門	職名	氏名	退職年月日	転出先
電子情報処理研究部門	助教	飯間信	23. 4. 30	広島大学大学院理学研究科・准教授
電子情報処理研究部門	助教	柳田達雄	23. 9. 15	大阪電気通信大学工学部・教授
電子情報処理研究部門	教授	西浦廉政	24. 1. 31	東北大学原子分子材料科学高等研究機構・教授
附属ナノテクノロジー研究センター	助教	村澤尚樹	24. 1. 31	
電子計測制御研究部門	教授	永井健治	24. 2. 29	大阪大学産業科学研究所・教授
電子計測制御研究部門	助教	松田知己	24. 3. 31	大阪大学産業科学研究所・助教
電子計測制御研究部門	助教	新井由之	24. 3. 31	大阪大学産業科学研究所・特任助教

○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
附属ナノテクノロジー研究センター	助教	三友秀之	23. 4. 1	採用・電子科学研究所博士研究員

(24. 3. 31)

IV-5. 構成員 (平成23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
助 教 木 村 隆 志

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

特任教授 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

分子生命数理研究分野

教 授 小松崎 民 樹
准教授 李 振 風
助 教 西 村 吾 朗
助 教 寺 本 央
特任助教 河 合 信之輔

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

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 豪

計算論的生命科学研究分野

教 授 津 田 一 郎
准教授 佐 藤 讓 裕
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 高 尾 正 敏
(大阪大学大学院基礎工学研究科)
教 授 黒 川 卓
(株)日本経済新聞社)

附属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
助 教 三 友 秀 之

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) 永 井 健 治
" 上 田 哲 男
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

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
助教 (兼) 三 友 秀 之

技術部

技術部長（兼）	三澤弘明
技術長	太田隆夫
装置開発第一技術班	
班長（兼）	平田康史
技術職員	武井将志
装置開発第二技術班	
班長（兼）	女池竜二
嘱託職員	大沼英雄
システム開発技術班	
班長	伊勢谷陽一
第一技術主任	今村逸子
第二技術主任	小林健太郎
技術職員	遠藤礼暁
〃	笠晴也
嘱託職員	土田義和

契約職員・短時間勤務職員

理研連携推進員	横田幸恵
〃	孫凡
博士研究員	趙洪泉
〃	岡野真之
〃	小野貴史
〃	池田弘
〃	黒田茂
〃	田中嘉人
〃	飯島光一朗
〃	張佑専
学術研究員	SUBASHCHANDRAN SHANTHI
〃	高島秀聡
〃	岩崎正純
〃	渡邊崇之
〃	渡部大志
〃	田所智
〃	伊藤弘子
〃	高橋平七郎
〃	小山正孝
〃	大西広

非常勤研究員	AWASTHI KAMLESH
〃	THOMAS REJI
研究支援推進員	佐々木喜代
〃	宮窪かおり
〃	本間やちよ
事務補佐員	山田美和
〃	高藤志帆
技術補佐員	平厚子
〃	奥原亜季
〃	菅原侑子
〃	福本愛
事務補助員	大越直美
〃	笠置水美
〃	田頭ひさよ
〃	加藤まり子
〃	笠水穂
〃	大木真理子
〃	辻田由香
〃	三浦由貴
〃	渡邊祐希
〃	畑中律子
技術補助員	濱田辰夫
〃	藤田昌久
〃	伊藤僚子
〃	外園和之
〃	小泉絢花
〃	洞内響
〃	阿部香代
〃	村本麻衣子
〃	館山絵美
〃	青陽大輔
〃	旭秀典
〃	武藤将充
〃	小竹勇己

(平成24年3月末日現在)

