平成 13 年度から発刊しております本冊子の歴代所長の巻頭言を読み返しますと、平成 16 年度の法人化前後において、研究所のミッションや組織のあり方について議論が重ねられ、試行錯誤が繰り返された経緯が読み取れます。それから 10 年が経過した今日、様々な問題と直面する日本の社会構造そのものが大きく変わりつつあります。そのような中、経済と教育の再生を最優先課題と位置づけた現政権は、「教育再生実行会議」において、平成 25 年 5 月に「これからの大学教育の在り方について」という提言を出しました。これを受けて同年 11 月に文部科学省から「国立大学改革プラン」が発表されました。その中の重要なポイントは、強み・特色の重点化、グローバル化、イノベーション創出、人材養成機能の強化の 4 つです。私たち附置研究所は、これらのポイントをどのように咀嚼し実行に移すかが問われている最中です。

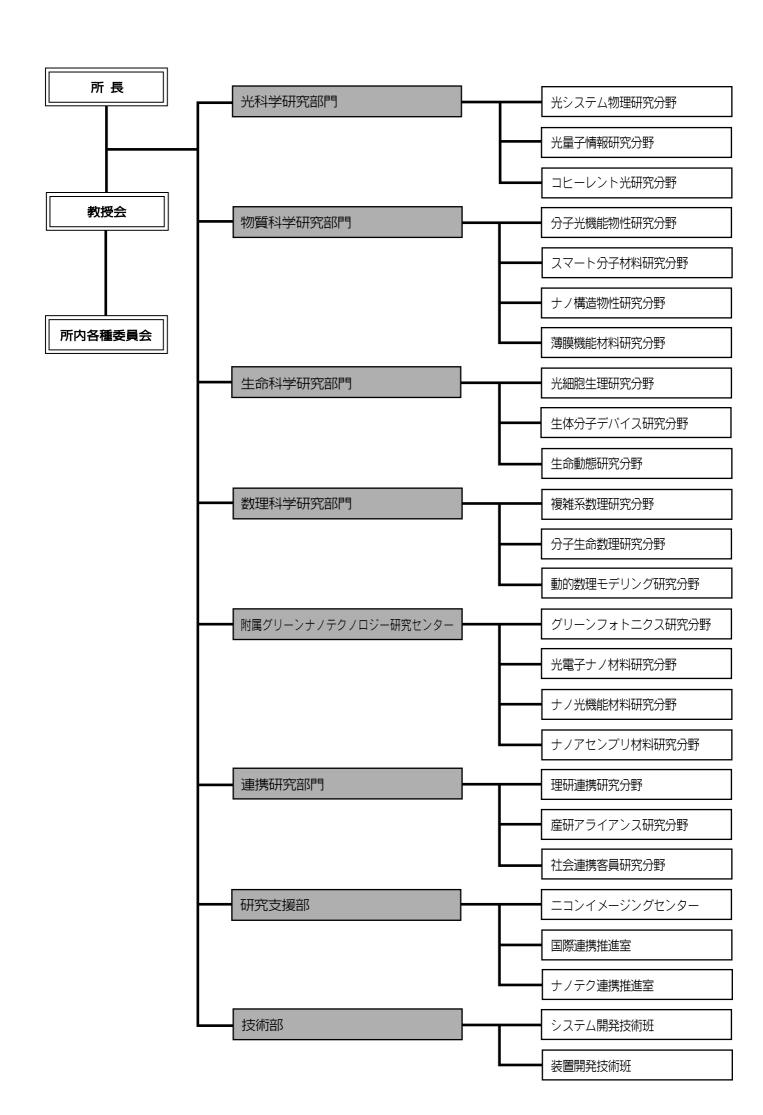
分野融合による新しい学際領域の開拓をミッションとする電子科学研究所は、17 研究分野で構成され、それぞれが高いアクティビティーを維持してきました。その一方で、平成22 年から「物質・デバイス領域ネットワーク型共同研究拠点(文科省)」に参画し、多元物質科学研究所(東北大学)、資源化学研究所(東京工業大学)、産業科学研究所(大阪大学)、先導物質化学研究所(九州大学)と共に、拠点事業全体で毎年400件以上の共同研究を推進しています。このような日本縦断型の骨太な研究ネットワークへの参画は、電子科学研究所のミッションの遂行を加速する上で極めて重要な強み・特色となっています。また、電子科学研究所は、米国、台湾、中国、欧州の複数の大学との学術交流協定を独自に締結しているところではありますが、今後は、このネットワーク型共同研究拠点をベースとした国際ネットワークの構築を視野に入れた活動を開始しようとしています。このような動きは産業界との連携においても効果を発揮することが期待されます。すなわち、附置研究所同士が有機的なアライアンスを締結することで、一研究所だけでは対応できない多様で難解な研究課題にも迅速に対応できると考えています。

電子科学研究所が発足して 22 年が経過しました。その当時と比較すると、研究組織も研究内容も様変わりしましたが、国家・国民から求められている研究所のあるべき姿との間には、依然として隔たりがあることは否めません。そのことを意識しつつ、研究所の自己点検評価と共に、外部の第三者による評価を受けることを目的として、平成 25 年度の電子科学研究所の研究活動をまとめました。

関係各位の皆様には、忌憚のないご批判をお寄せ下さるようお願い申し上げます。

平成26年6月

北海道大学 電子科学研究所長 西井進治



## 目 次

## 組織図

	. 研究成果・活動 光科学研究部門	
	光システム物理研究分野····································	. 4
	光量子情報研究分野	
	ル単于情報が元ガ野····································	19
	コピーレンドル朝九万野・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	18
	物質科学研究部門	
	分子光機能物性研究分野 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	26
	スマート分子材料研究分野・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	31
	ナノ構造物性研究分野	34
	薄膜機能材料研究分野	40
	生命科学研究部門	
	光細胞生理研究分野 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	46
	生体分子デバイス研究分野・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	53
	生命動態研究分野	59
	数理科学研究部門	
	複雑系数理研究分野 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	66
	分子生命数理研究分野	73
	動的数理モデリング研究分野・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	84
	附属グリーンナノテクノロジー研究センター	
	グリーンフォトニクス研究分野	90
	光電子ナノ材料研究分野・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	98
	ナノ光機能材料研究分野・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	105
	ナノアセンブリ材料研究分野・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	112
	連携研究部門	
	理研連携研究分野 · · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	120
	研究支援部	
	ニコンイメージングセンター・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	124
	国際連携推進室	126
	ナノテク連携推進室	128
Π	. 予算	
		132
	Ⅱ-2. 予算	133
	II-3. 外国人研究者の受入状況	135
	Ⅱ-4 修十学位及び博十学位の取得状況	136

Ⅲ. 研究支援体制								
	技術部							
III - 2.	学術情報	141						
Ⅳ. 資料								
	沿革							
IV-2.	建物	147						
	現員							
IV-4.	教員の異動状況	148						
IV-5.	構成員	149						

# I. 研究成果·活動

## 光科学研究部門

## 研究目的

本研究部門では、光や電子の波動性を利用した並列・高速・精密計測技術をベースとして、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計測・光制御・光情報処理、光子を自在に制御・検出するための光量子デバイスや単一光子源、コヒーレントX線を用いた新しい計測技術の開発に取り組んでいます。このような研究は、新しい世代の光科学・光技術として、量子工学や生物学などの分野に応用されます。

## 光システム物理研究分野

教 授 笹木敬司 (阪大院、工博、1997.11~) 准教授 藤原英樹 (北大院、工博、2008.6~) 助 教 酒井恭輔 (京大院、工博、2010.12~) 特任助教 石田周太郎 (名大院、工博、2012.12~) 研究員 田中嘉人 (阪大院、工博、2008.10~) 院 生

院 生 博士課程 任 芳

修士課程 長尾優樹、煮雪亮、野村健介、竹井涼、 安田有輝、山本岳明

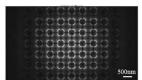
## 1. 研究目標

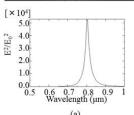
本研究分野では、光テクノロジーの究極を目指して、光の量子性・波動性をフルに活用した新しい概念に基づく光情報処理、光計測制御など、新しい世代の光科学の研究に取り組んでいる。具体的には、単一光子制御デバイスや高効率レーザーの開発を目指して、微小球やトロイド、ランダム構造、金属ナノ構造等の微細構造体における光子閉じ込めの解析や発光ダイナミクス制御の研究を進めている。さらに、ナノ空間の光計測技術や光マニピュレーションを利用した極微弱な力の解析、単一光子源の開発に向けた単一分子・単一ナノ微粒子の分光計測システムの開発、光の偏光・位相による電子状態制御に関する物理の深化を行っている。

## 2. 研究成果

## (a) 多重極子プラズモンモードのアレイ状デバイス

金属ナノ粒子に形成するプラズモンモードには、双極子 モードに加え多重極子モードが存在する。多重極子モード は、双極子モードに比べて放射損失が小さく、光と物質の より強い反応を実現することが期待される。センシング等 の応用を考えると、多重極子モードが多数生成するアレイ 状デバイスが、実用的には強く求められる。本研究では、 四重極子モードを強く形成するアレイ状構造の探求を行っ た。検討の結果、四重極子モードの対称性に合致した正方 格子構造が適切であることが明らかとなった。図 1(a) に、 波長800nmに共鳴をもつ構造での電界分布と中心のディス ク近傍での近接場スペクトルを示す。複数周期に渡り四重 極子モードが形成され、増強度は3桁以上と非常に大きくな ることが分かった。比較のために、図 1(b)に単一のディス クに対する結果を示す。入射ビームの内側の一部のみが、 プラズモンモードへ結合し、増強度は2桁程度と小さいこと が分かる。これより、アレイ状構造は、入射ビームを効率 的にプラズモンモードへ結合させることができ、かつ広範 囲に高強度な多重極子モードを形成するために適切な構造 であることが確認された。今後は、実験的検証を進める。







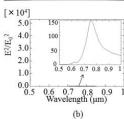


図 1 電界(|E|)分布(上図)と近接場スペクトル(下図). 金ナノディスクの (a) 正方格子状構造. および(b) 単一構造の結果. スペクトルの縦軸は、金属ナノディスクのない場合で規格化した値.

## (b) 局在プラズモン場によるキラル光学活性増幅

物質の光学特性がナノプラズモン場を介して大きく変化 することを利用した高感度センシングが期待されている。 本研究ではキラル分子の立体異性体を高感度にセンシング するプラズモニック構造の検討を行った。局在場の電場べ クトルと遠方場の消滅スペクトルを高精度に数値解析する 手法を開発し、2次元ナノギャップ金属構造体における円偏 光場の局在特性(ナノ局在場におけるスピン角運動量)を 解析すると共に、ナノギャップに疑似キラル分子(金属不 斉ナノ構造体)を配置することによる円偏光二色性 (CD) の増強効果について定量的に明らかにした。本研究では、 ギャップ直径16nmという極微小領域に円偏光場を集中さ せ得ることが示された (図2)。またナノ局在場が疑似キラ ル分子のCDを増幅する効果を生じさせ、310倍という大き な増幅値が得られた(図3)本解析は、キラル分子を単一分 子レベルでセンシングや選択的合成を行う、新手法の提案 に繋がる可能性を有している。



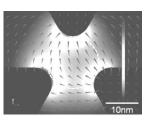
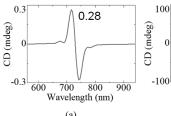


図2 (a) 2 次元ナノギャップ構造体の構造図と (b) ギャップ 領域に生成された電場分布および電場ベクトル.



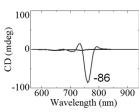


図3 (a) 疑似キラル分子からの CD スペクトルと (b) ナノ局在場による増幅 CD スペクトル.

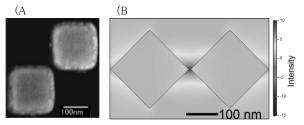


図4 (A) ナノギャップ構造の SEM 像と (B) ナノギャップ構造に誘起される電場強度分布 (共鳴波長: 1060 nm)

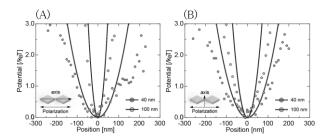


図5 ナノ粒子に作用する捕捉ポテンシャル(A)長軸, (B)短軸.

## (c) 局在プラズモン場を用いた超解像トラッピング

レンズを用いて集光したレーザー光によって集光点付近 の誘起される勾配力を用いた光捕捉は, ミクロな粒子の操 作において,柔軟かつ強力なツールとなっている.この光 捕捉で捕えることのできる粒子のサイズと捕捉領域は, 光 の回折限界によって制限される. 局在表面プラズモン (LSP)は,回折限界を超えるナノメートルの領域に光を閉 じ込め,入射光に対する増強効果を有する.特に,ギャッ プモードLSPは、極めて高強度な局在場をギャップ領域に 形成でき,この局在場によって誘起される勾配力を用いて 回折限界以下の領域にナノ粒子を光捕捉する研究が近年注 目を集めている. 本研究では、金属ナノギャップ構造に誘 起されるLSPの空間分布と同程度サイズを有する粒径40 nmの蛍光粒子に働く捕捉ポテンシャルを計測し、より大 きな粒子に誘起されるポテンシャルと比較・検証した. 図4 に金ナノギャップ構造のSEM像と有限要素法に基づく数値 解析によって求めた金属ナノダイマー構造周囲に誘起され る電場強度分布を示す.数値解析より,ギャップ周囲に数 十nmに渡って広がるとともにデバイスの長軸と短軸方向 に異なる電場強度分布を確認した.

本構造を用いて、単一ナノ粒子(粒径40 nm, 100 nm)の光捕捉実験を行い、2次元位置座標分布から各粒子に働く捕捉ポテンシャルを解析した. 粒径40 nmと100 nmの粒子に働く捕捉ポテンシャルの解析結果を図5に示す. それぞれ長軸(図5(A))と短軸(図5(B))とで粒径によって異なる形状のポテンシャルを確認した. この結果は、局在場分布と同程度小さな粒子の光捕捉の実証を示すとともに、局在場分布よりも小さい粒子をナノメートル領域において位置制御するためには、局在場と粒子とを含めた電場によって形成される捕捉ポテンシャルの解析が重要であることを示唆している.

## (d) テーパファイバを介した金ナノ構造体のプラズモン 励起による2光子励起蛍光

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、伝搬光を金属ナノ構造に効率よく結合させる事は困難である。この問題を解決するため、これまでに我々はファイバ結合微小球共振器を介した方法を提案し、金属ナノ構造体への高効率光結合を実現してきたが、高効率光結合を達成するためには複雑な装置構成や緻密なテーパファイバ、微小球、金コートチップ間の位置制御が必要となる。そこで本年度は、より簡便な方法による高効率プラズモン励起を目指し、テーパファイバに直接結合した金コートチップからの2光子励起蛍光について研究を行った。

光源として波長可変半導体レーザー(発振波長~780 nm) を用い、テーパファイバ (直径 300 nm) に入射した。PIC 分子を修飾した金薄膜コート AFM チップ(金膜厚~50 nm) をテーパファイバに近接させ、テーパファイバ端からの透 過率をモニターしながら、対物レンズおよびテーパファイ バを介してチップからの蛍光スペクトルの測定を行った。 図6(a)にテーパファイバに金コートチップが接触した際に 得られた PIC 分子からの蛍光スペクトルを示す。それぞれ のスペクトルは、テーパファイバ端 (赤線) および対物レ ンズ(黒線)を介して測定した結果である。また、得られ たスペクトルの励起光強度依存性を調べたところ(図6(b))、 二光子吸収を示す傾き約2の強度依存性が得られた(緑丸: テーパファイバ端、黒四角:対物レンズ)。これらの結果は、 テーパファイバを介した金コートチップ先端の高効率プラ ズモン励起により、微弱な CW 光励起によって 2 光子励起 蛍光を誘起できたと考えられ、これまで必須であった高 Q

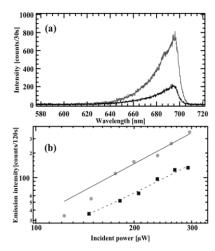


図 6 (a) テーパファイバを介した金コートチップ先端でのプラズモン励起による PIC 分子からの2光子励起蛍光スペクトルと(b) その蛍光強度の励起光強度依存性.

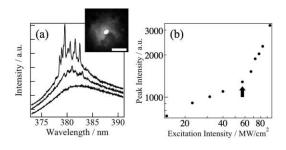


図 7 ダイヤモンドナノ粒子フィルムにおけるランダムレーザー 発振. (a) レーザー発振スペクトルと(b) 発光強度の励起光強度 依存性.

値の微小球共振器構造の共鳴特性を利用せずに高効率にプラズモン場を励起できる簡便な構造が実現出来ている事を示している。

## (e) ダイヤモンドナノ粒子フィルム中におけるランダム レーザー発振

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では、光の多重散乱とその干渉効果により光局在現象が誘起され、これに起因したレーザー発振等の非線形現象や、その制御に関する研究が近年盛んに報告されている。このランダム構造は、従来の周期性や対称性を持つ共振器構造とは異なり、ナノ粒子の凝集や表面のラフネスを利用することで簡単に作製できるという利点を持つ。本年度は、殺菌・浄水、医療分野、高密度記録、高演色性白色光源など幅広い分野での応用が期待されている深紫外レーザー光源の材料としてダイヤモンドナノ粒子に着目し、ダイヤモンドナノ粒子フィルム中の発光特性について研究を行った。

ダイヤモンドナノ粒子(中心粒径 25 nm)は、ダイヤモンド表面のアモルファス層を除去するため、高温炉において、425 ℃、5時間、空気中で焼成した。その結果、黒色のナノ粒子が薄黄色に変化し、表面アモルファス層が除去されたものと判断した。このナノ粒子をヘキサン溶液中に分散させた後、ガラス基板上に滴下・乾燥させたものを試料として用いた。励起光として、LDパルスレーザー(355 nm、1 kHz、100 ps)を顕微鏡に導入した後、対物レンズ(×100、NA = 0.9)で顕微鏡ステージに固定した試料上に集光し、任意の位置における発光スペクトルと発光強度の励起光強度依存性を測定した。

図7(a)は作製したダイヤモンドナノ粒子フィルムにおける発光スペクトルを示している。励起光強度の増大に伴い、離散的なピークが現れているのが確認できる。また、図7(b)は励起光強度の変化に対する図7(a)の発光強度をプロットしたものであり、しきい値が約60 Mw/cm²において発光強度が急激に増加する振る舞いが確認できる。この結果は、今まで報告のない紫外域での非線形な発光挙動を確認したものであり、ダイヤモンドナノ粒子フィルムを用いたランダムレーザー発振の可能性を示唆している。

## 3. 今後の研究の展望

本研究分野では現在、科学研究費課題として、「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」、「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)トップダウン的手法によるグラフェン量子ドットの作製、(d)もつれ合い光子を用いた2光子反応プロセスの解析、(e)高空間分解分光イメージングシステムによる光局在場解析、(f)単一光子制御デバイスの作製と特性解析、(g)金属ナノ構造体による光制御技術の開発、(h)光の偏光・位相制御によるプラズモンモード制御、(i)光ナノ計測を用いた微粒子間相互作用力測定、等の研究テーマを遂行する予定である。

## 4. 資料

#### 4.1 学術論文等

- 1) H. Kawagoe, S. Ishida, M. Aramaki, Y. Sakakibara, E. Omoda, H. Kataura and N. Nishizwa: "Development of a high power supercontinuum source in the 1.7  $\mu$  m wavelength region for highly penetrative ultrahigh-resolution optical coherence tomography", Biomedical Optics Express, 5(3): 632-643 (2014)
- 2) H. Takashima, K. Kitajima, Y. Tanaka, H. Fujiwara and K. Sasaki: "Efficient optical coupling into a single plasmonic nanostructure using a fiber-coupled microspherical cavity", Phys. Rev. A, 89(2): 021801/1-02180/5 (2014)
- 3) 藤原 英樹、煮雪 亮、笹木 敬司、辻 剛志、石川 善恵、 越崎 直人: 「酸化亜鉛サブマイクロメートル球状粒 子を用いた新規ランダムレーザーの開発」、レーザー加 工学会誌、21(1) (2014)
- 4) R. Fang, H. Takashima, Y. Tanaka, H. Fujiwara and K. Sasaki: "Two-photon excited fluorescence from a pseudoisocyanine-attached gold-coated tip via a thin tapered fiber under a weak CW excitation", the Virtual Journal for Biomedical Optics, 9(1): 27759-27769 (2013)
- 5) R. Fang, H. Takashima, Y. Tanaka, H. Fujiwara and K. Sasaki: "Two-photon excited fluorescence from a pseudoisocyanine-attached gold-coated tip via a thin tapered fiber under a weak CW excitation", Opt. Exp., 21(23): 27759-27769 (2013)
- 6) M. Okano, R. Okamoto, A. Tanaka, S. Ishida, N. Nishizwa and S. Takeuchi: "Dispersion cancellation in

- high-resolution two-photon interference", Phys. Rev. A, 88:043845/1-043845/5 (2013)
- 7) R. Fang, H. Takashima, Y. Tanaka, H. Fujiwara and K. Sasaki: "Nonlinear phenomena from a PIC attached gold tip using a plasmonic-whispering gallery mode hybrid system", Proc. SPIE-Int., 8816: 881612 (2013)
- 8) T. Tsuji, Y. Higashi, M. Tsuji, H. Fujiwara, N. Koshizaki and Y. Ishikawa: "Fabrication of Spherical Particles Using Laser-induced Melting of Submicron-sized Materials", Proceedings of The 14th International Symposium on Laser Precision Microfabrication, 14: 205 (2013)
- 9) K. Sakai, K. Nomura, Y. Tanaka and K. Sasaki: "Near-field optical response of periodically arrayed plasmonic nanogap antennas", J. Appl. Phys., 114(8): 024306/1-024306/4 (2013)
- 10) Y. Higashi, T. Tsuji, M. Tsuji, H. Fujiwara, N. Koshizaki and Y. Ishikawa: "Fabrication of Spherical-Shaped Submicron Particles of ZnO Using Laser-induced Melting of Submicron-sized Source Materials", Proceedings of The 10th Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific Rim (CLEO-PR 2013), 10(WPE): 12 (2013)
- 11) H. Fujiwara: "Fabrication of Spherical-Shaped Submicron Particles of ZnO Using Laser-induced Melting of Submicron-sized Source Materials", Journal of Laser Micro/Nanoengineering, 8(3): 292-295 (2013)
- 12) Y. Nishijima, J. B. Khurgin, L. Rosa, H. Fujiwara and S. Juodkazis: "Randomization of gold nano-brick arrays: a tool for SERS enhancement", the Virtual Journal for Biomedical Optics, 8(7): 13502-13514 (2013)
- 13) Y. Nishijima, J. B. Khurgin, L. Rosa, H. Fujiwara and S. Juodkazis: "Randomization of gold nano-brick arrays: a tool for SERS enhancement", Opt. Exp, 21(11): 13502-13514 (2013)
- 14) Y. Tanaka, S. Kaneda and K. Sasaki:

  "Nanostructured potential of optical trapping using a plasmonic potential of optical trapping using a plasmonic nanoblock pair", Nano Lett., 13(5): 2146-2150 (2013)

## 4.2 講演

## a. 招待講演

- 1) 笹木 敬司\*: 「超解像光ピンセットとナノ物質運動制 御」、日本化学会第94春季年会(2014)、名古屋大学 東 山キャンパス(2014-03)
- 2) 笹木 敬司\*: 「局在プラズモンにおける多重極子励起

- ダイナミクス制御」、日本分光学会北海道支部シンポジウム、北海道大学 (2014-01)
- 3) 藤原 英樹\*: 「酸化亜鉛サブミクロン球状粒子で光を 操る~新奇ランダムレーザーの実現」、サブミクロン球 状粒子シンポジウム(東京工業大学 応用セラミックス 研究所 共同利用研究 ワークショップ サブミクロン 球状粒子の合成とその応用)、東京工業大学田町キャン パス (2013-12)
- 4) H. Fujiwara\*: "Manipulation of photon localized fields within a random medium: realization of low-threshold and quasi-single-mode random laser", The 14th RIES-RIES-Hokudai International Symposium 網 [mou], Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (2013-12)
- 5) 笹木 敬司\*: 「光共鳴トラッピングと物質マニピュレーション」、日本光学会年次学術講演会 Optics & Photonics Japan 2013、奈良県新公会堂 (2013-11)
- 6) 笹木 敬司\*: 「プラズモン局在場制御による光ナノマニピュレーション」、新しい光化学の創成とナノ情報デバイスへの展開、東北大学(2013-10)
- 7) 笹木 敬司\*: 「プラズモン局在場制御による超解像光トラッピング」、日本物理学会2013年秋季大会、徳島大学三島キャンパス (2013-09)
- 8) K. Sasaki\*: "Interference of Whispering Gallery Modes in Photonic and Plasmonic Microcavities", Progress in Electromagnetics Research Symposium (PIERS)2013 Stockholm, Kistamassan, Stockholm, SWEDEN (2013-08)
- K. Sasaki\*: "Photon Manipulation with Plasmonic Nanostructures", ICP 2013 (Pre-conference: Conference on Plasmonics), University of KU Leuven, Leuven, Belgium (2013-07)
- 10) K. Sasaki\*: "Laser Physics Micro and Nano Cavities", 14th Chitose International Form on Photonics Science & Techniligy, 千歳科学技術大学 (2013-07)
- 11) H. Fujiwara\*, R. Niyuki, T. Tsuji, Y. Ishikawa, N. Koshizaki and K. Sasaki: "Quasi-single mode random laser", Collaborative Conference on Materials Research (CCMR) 2013, Ramada Plaza Jeju Hotel, Korea (2013-06)
- 12) K. Sasaki\* and Y. Tanaka: "Nanoscale Photon Shaping with Engineered Plasmonic Materials", Collaborative Conference on Materials Research (CCMR) 2013, Ramada Plaza Jeju Hotel, Korea (2013-06)
- 13) K. Sasaki\*: "Photpn Localization with Plasmonic WGM Cavities", The Third International Workshop on Microcavities and Their Applications, Peking University, Beijing, China (2013-05)
- 14) 笹木 敬司\*: 「光科学技術が拓くナノイメージングと 光マニピュレーション」、第42回分子病態医学セミナー & TRCセミナー合同セミナー、愛媛大学医学部 (2013-04)

#### b. 一般講演

- 1) 煮雪 亮\*、石川 善恵、越崎 直人、辻 剛志、藤原 英 樹、笹木 敬司: 「酸化亜鉛サブミクロン球状粒子フ ィルムにおけるランダムレーザー発振波長制御」、2014 年 第61回 応用物理学会春季学術講演会、青山学院大 学相模原キャンパス (2014-03)
- 2) 竹井 涼\*、酒井 恭輔、笹木 敬司: 「2次元ナノギャッププラズモン場によるキラル分子の光学活性増幅」、 2014年 第61回 応用物理学会春季学術講演会、青山学院大学相模原キャンパス (2014-03)
- 3) 石田 周太郎\*、和田 崇、笹木 敬司: 「プラズモント ラップを用いたナノ粒子トラッピングとポテンシャル 解析」、2014年 第61回 応用物理学会春季学術講演会、 青山学院大学相模原キャンパス (2014-03)
- 4) 野村 健介\*、酒井 恭輔、山本 岳明、竹内 雄哉、笹木 敬司: 「金ナノディスク周期構造の光学特性 II ー共 鳴条件- 」、2014年 第61回 応用物理学会春季学術講 演会、青山学院大学相模原キャンパス (2014-03)
- 5) 藤原 英樹\*、任 芳、高島 秀聡、田中 嘉人、笹木 敬 司:「テーパファイバを介した金ナノ構造体のプラズ モン励起による2光子励起蛍光」、2014年 第61回 応用 物理学会春季学術講演会、青山学院大学相模原キャンパス (2014-03)
- 6) R. Fang\*, H. Takashima, Y. Tanaka, H. Fujiwara and K. Sasaki: "Two-photon excited fluorescence from a PIC-attached Au-coated tip via a thin tapered fiber under a weak CW excitation", THE 14th RIES-Hokudai International Symposium 網 [mou], Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (2013-12)
- 7) K. Sakai\*, K. Nomura, T. Yamamoto, Y. Tanaka and K. Sasaki: "Multipole Plasmons Excited by Optical Vortex Beams", THE 14th RIES-Hokudai International Symposium 網 [mou], Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (2013-12)
- 8) 長尾 優樹\*、藤原 英樹、笹木 敬司:「NbドープTiO2 基板上の単一CdSe/ZnS量子ドット発光特性解析」、 2013年 第49回応用物理学会北海道支部 第10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 (2013-12)
- 9) 石田 周太郎\*、和田 崇、笹木 敬司:「プラズモントラップを用いた蛍光ナノ粒子トラッピング」、2013年第49回応用物理学会北海道支部 第10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 (2013-12)
- 10) 野村 健介\*、酒井 恭輔、山本 岳明、笹木 敬司:「金 ナノディスク周期構造におけるプラズモンモード」、 2013年 第49回応用物理学会北海道支部 第10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 (2013-12)
- 11) 山本 岳明\*、酒井 恭輔、野村 健介、笹木 敬司:「金

- ナノディスク周期構造における多重極プラズモンモード」、2013年 第49回応用物理学会北海道支部 第10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 (2013-12)
- 12) 煮雪 亮\*、藤原 英樹、笹木 敬司:「ダイヤモンドナ ノ粒子を用いた紫外ランダムレーザー発振」、2013年 第49回応用物理学会北海道支部 第10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 (2013-12)
- 13) 煮雪 亮\*、藤原 英樹、笹木 敬司:「ダイヤモンドナ ノ粒子フィルムにおけるランダムレーザ発振」、2013 年 第74回応用物理学会秋季学術講演会、同志社大学京 田辺キャンパス (2013-09)
- 14) 長尾 優樹\*、藤原 英樹、笹木 敬司:「TiO2基板上の 単一 CdSe/ZnS 量子ドットの発光特性解析」、2013年 第74回応用物理学会秋季学術講演会、同志社大学京田 辺キャンパス (2013-09)
- 15) 中村 俊博\*、安達 定雄、藤原 英樹、煮雪 亮、笹木 敬司、辻 剛志、石川 善惠、越崎 直人: 「酸化亜鉛ナノ粒子フィルムからの擬似単一モードランダムレーザー発振の温度依存特性」、2013年 第74回応用物理学会秋季学術講演会、同志社大学京田辺キャンパス(2013-09)
- 16) 野村 健介\*、酒井 恭輔、山本 岳明、笹木 敬司:「金ナノディスク周期構造の光学特性」、2013年 第74回応用物理学会秋季学術講演会、同志社大学京田辺キャンパス (2013-09)
- 17) 山本 岳明\*、酒井 恭輔、野村 健介、笹木 敬司:「金ナノディスク周期構造における多重極プラズモンモード」、2013年 第74回応用物理学会秋季学術講演会、同志社大学京田辺キャンパス (2013-09)
- 18) 藤原 英樹\*、煮雪 亮、笹木 敬司: 「ダイヤモンドナ ノ粒子を用いた紫外ランダムレーザー発振」、光化学討 論会、愛媛大学 城北地区 (2013-09)
- 19) 笹木 敬司\*、酒井 恭輔、野村 健介、山本 岳明:「多 重極プラズモンモードの選択励起と光増強効果の解 析」、光化学討論会、愛媛大学 城北地区 (2013-09)
- 20) R. Fang\*, H. Takashima, Y. Tanaka, H. Fujiwara and K. Sasaki: "Nonlinear phenomena from a PIC-attached gold tip using a plasmonic-whispering gallery mode hybrid system", SPIE Optics & Photonics 2013, San Diego Convention Center, USA (2013-08)
- 21) K. Sakai\*, T. Yamamoto, K. Nomura, Y. Tanaka and K. Sasaki: "Multipole Nanodisk Plasmons Excited by Cylindrical Vector Beams", Progress in Electromagnetics Research Symposium (PIERS)2013 Stockholm, Kistamassan, Stockholm, SWEDEN (2013-08)
- 22) Y. Higashi\*, T. Tsuji, M. Tsuji, H. Fujiwara, Y. Ishikawa and N. Koshizaki: "Fabrication of Spherical-Shaped Submicron Particles of ZnO Using Laser-induced Melting

- of Submicron-sized Source Materials ", The 6th International Congress on Laser Advanced Materials Processing (LAMP2013), TOKI MESSE Niigata Convention Center (2013–07)
- 23) K. Sasaki\*: "Multipolar Dark-Mode Plasmon Excitation with Laguerre-Gaussian Beams", the 26th International Conference on Photochemistry (ICP 2013), University of KU Leuven, Leuven, Belgium (2013-07)
- 24) H. Fujiwara\*, Y. Tanaka and K. Sasaki: "Direct imaging of localized fields in a gold nanostructure using a scattering-type near-field microscope", CLEO-PR & OECC/PS 2013, Kyoto International Conference Center (2013-06 ~ 2013-07)
- 25) Y. Higashi\*, T. Tsuji, M. Tsuji, H. Fujiwara, Y. Ishikawa and N. Koshizaki: "Fabrication of Spherical-Shaped Submicron Particles of ZnO Using Laser-induced Melting of Submicron-sized Source Materials", CLEO-PR & OECC/PS 2013, Kyoto International Conference Center (2013-06 ~ 2013-07)
- 26) R. Niyuki\*, Y. Ishikawa, N. Koshizaki, T. Tsuji, H. Fujiwara, and K. Sasaki: "Realization of Single–Mode Random Lasing Within a Zinc Oxide Nanoparticle Film", CLEO–PR & OECC/PS 2013, Kyoto International Conference Center (2013–06  $\sim$  2013–07)
- 27) 高島 秀聡\*、任 芳、田中 嘉人、藤原 英樹、笹木 敬 司: 「ファイバー微小球共振器に結合した金属ナノ構 造体からの二光子発光」、第28回量子情報技術研究会 (QIT28)、北海道大学 創成科学研究棟 (2013-05)
- 28) K. Sasaki, H. Fujiwara\*, R. Niyuki and T. Tsuji: "Random Lasing at a Defect Particle Intentionally Embedded in a ZnO Nanoparticle Film", The Third International Workshop on Microcavities and Their Applications, Peking University, Beijing, China (2013–05)
- 29) H. Kawagoe\*, S. Ishida, M. Aramaki, Y. Sakakibara, E. Omoda, H. Kataura and N. Nishizwa: "Highly sensitive ultrahigh resolution OCT using high power supercontinuum at 1.7 um wavelength region based on single wall carbon nanotube fiber laser", Advanced Lasers and Photon Sources (ALPS) '13, PACIFICO Yokohama (2013–04)
- 30) N. Nishizwa\* and S. Ishida: "Dynamics of Er-doped soliton-similariton fiber laser and application for ultrahigh resolution optical coherence tomography", Advanced Lasers and Photon Sources (ALPS) '13, PACIFICO Yokohama (2013-04)
- 31) 笹木 敬司\*、田中 嘉人、兼田 翔吾: 「デザインされたプラズモン場によるナノマニピュレーション Nanomanipulation using designed plasmonic fields」、第3回光マニピュレーション研究会、北海道大学 札幌キャンパス 学術交流会館 (2013-04)

### 4.4 共同研究

- 1) 辻剛志 (九大先導研)「均一化ナノ粒子を用いたランダムレーザー発振制御に関する研究」(2012 年 9 月~現在)
- 2) 越崎直人、石川善恵 (産総研)「サブミクロン球状粒子 のランダムレーザー応用に関する研究」(2012 年 10 月 ~現在)
- 3) 中村俊博(群馬大)「局在モード制御されたランダムレーザー発振の状態解析に関する研究」(2013 年 4 月~現在)

## 4.5 予算獲得状況 (研究代表者、分類、研究課題、期間)

- 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) 藤原英樹: 萌芽研究「不規則構造を利用した高効率光 捕集構造の開発 | 2012~2013年度
- 3) 田中嘉人: 科研費 特別研究員奨励費「プラズモニックアレイによるナノ空間光マニピュレーション」2012 ~2014年度

### 4.6 社会教育活動

## a. 公的機関の委員

- 1) 藤原 英樹:公益社団法人応用物理学会北海道支部 第52期支部庶務幹事(2013年04月01日~2014年03月31 日)
- 2) 藤原 英樹:科学研究費委員会専門委員 (2012年12 月01日~2013年11月30日)
- 3) 笹木 敬司: 科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業 (CREST)領域アドバイザー (2008年05月26日~2014年03月31日)
- 4) 笹木 敬司:日本学術振興会産学協力研究委員会「フォトニクス情報システム第179委員会」委員 (2006年 04月01日~2016年03月31日)
- 5) 笹木 敬司: ノーステック財団「研究開発助成事業」 審査委員会 専門委員 (2013年06月20日~2014年03月 31日)

## b. 国内外の学会の役職

- 藤原英樹:応用物理学会 北海道支部幹事(2012年4月 ~2014年3月)
- 2. 藤原英樹:光科学異分野横断萌芽研究会 組織委員 (2013年4月~2015年3月)

#### c. 兼任•兼業

笹木 敬司: 電気通信大学 レーザー次世代研究センター 共同研究員 (2008年04月01日~2014年03月31日)

## d. 新聞・テレビ等の報道

1) 藤原 英樹: Laser Focus World Japan 2013年09月20日 「ランダムレーザで良好な発振を実現」 2) 笹木 敬司:日経産業新聞 2013年05月08日 「ナノ粒 子で紫外線捕集」

## e. 北大での担当授業科目(対象、講義名、担当者、期間)

- 1) 情報科学研究科、光情報システム学特論、笹木 敬司、 2013年10月01日~2014年03月31日
- 2) 全学共通、平成25年度全学教育科目ナノって何なの?最先端光・ナノテク概論、笹木敬司、2013年08月02日
- 3) 情報科学研究科、情報エレクトロニクス特別演習、笹木 敬司、2013年04月01日~2014年03月31日
- 4) 情報科学研究科、情報エレクトロニクス特別研究第二、 笹木 敬司、2013年04月01日~2014年03月31日
- 5) 工学部、光エレクトロニクス、笹木 敬司、2013年04 月01日~2013年09月30日
- 6) 情報科学研究科、情報エレクトロニクス特別演習、笹木 敬司、2013年04月01日~2014年03月31日
- 7) 情報科学研究科、情報エレクトロニクス特別研究第一、 笹木 敬司、2013年04月01日~2014年03月31日
- 8) 全学共通 物理学I、藤原英樹、2013年04月01日~2013 年09月30日
- 9) 工学部、電磁気学、藤原 英樹、2013 年 10 月 01 日~ 2014 年 03 月 31 日
- 10) 情報科学研究科、電子情報工学実験 Ⅲ、酒井 恭輔、 2013 年 4 月 1 日~2013 年 9 月 30 日
- 11) 情報科学研究科、電子情報工学実験IV、酒井 恭輔、2013 年10月1日~2014年3月31日
- 12) 情報科学研究科、電子情報工学実験VI、藤原 英樹、2013 年10月1日~2014年3月31日

## f. ポスドク・客員研究員など

- ポスドク(1名):
- 1. 田中嘉人(電子科学研究所博士研究員)

## g. 修士学位及び博士学位の取得状況

博士学位(1名):

1) 任 芳:「Study on plasmonic-photonic hybrid systems for efficient excitation of nonlinear phenomena」

#### 修士学位 (3名):

- 1) 長尾優樹:「TiO<sub>2</sub>基板上単一CdSe/ZnS量子ドットの発 光特性解析」
- 2) 煮雪 亮:「ZnOナノ粒子フィルムにおけるランダム レーザー発振モード制御に関する研究」
- 3) 野村健介:「金ナノディスク周期構造における多重極 子プラズモンモードと光渦励振の研究」

## 光量子情報研究分野

教授 竹內繁樹(京大院、理博、2007.6~2014.2) 客員教授 竹內繁樹(京大院、理博、2014.3~) 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 岡野真之(京大院、理博、2010.4~) 博士研究員 小野貴史(広大院、理博、2010.8~) 博士研究員 高島秀聡(北大院、工博、2013.4~) 外国人客員研究員 Mohamed Almokhtar(2012.11.1~ 2013.8.31)

院生

博士課程

田中 陽、柳澤朋李

修士課程

江藤 祐、大山悟史、上岡俊也、佐川達郎、吉田一馬、 最上 超、中村翔太

## 1. 研究目標

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

微分干渉顕微鏡は、対象物を染色等することなく、そのまま非侵襲で観察・計測する手段として、生物学や医学などで広く用いられている。しかし、その顕微鏡の深さ方向分解能や計測精度は、標準量子限界によって決まる信号雑音比で決まっていた。一方、これまでに当研究室では、量子力学的な相関を持った光子を用いることで、標準量子限界を超えた位相測定が可能であることを示してきた。今回、

我々は量子力学的にもつれ合った光を顕微鏡のプローブ光 として使用することで、世界で初めて、標準量子限界を超 える感度を持つ「量子もつれ顕微鏡」を実現した(Nat.

Commun. 4, 2426 (2013))。その顕微鏡を用い、ガラス基板の表面に厚さ約17nmの厚みで浮き彫りされた「Q」という文字の観察を行った結果、通常の光を用いた観察に比べ、1.35倍の信号雑音比を達成することに成功した。本研究の成果により、生体細胞などをより高い精度で観測することが可能になり、生物学、医学などをはじめ幅広い分野への応用が期待できる。また、並行して、多数の量子状態の中に含まれる量子状態の異常箇所検知にデータマイニングの手法を適用し、従来よりも高い精度で量子状態の異常箇所を特定する方法も提案および実証した (Phys. Rev. A 89, 022104 (2014))。

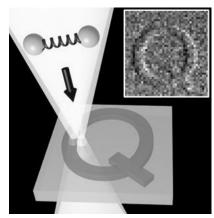


図1:もつれ顕微鏡を使って得られた画像

## (b) 超高分解能量子光断層撮影に向けた高分解能域での 分散耐性実証実験

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、生物学や医学、特に 眼科医療において広く応用されている。しかし眼球などサ 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 となっており、通常の光源では空間分解能が数十ミクロン に留まっている。一方、量子力学的なもつれ合いを持つ光 子対の二光子量子干渉を基礎とする量子光断層撮影(QOCT)

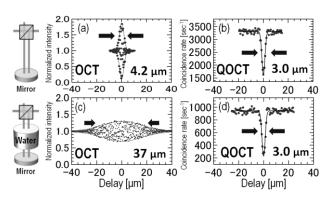


図 2: 高分解能 OCT 干渉信号 (a) および QOCT 干渉信号 (b)。分散媒質 (25 mm 厚の水) 挿入後の OCT (c) および QOCT (d) 干渉信号

では、群速度分散耐性により、分解能の向上が可能となる。 我々は今回、3  $\mu$ mという高い分解能を持つQOCTが分散耐性を示すことを、眼球をモデル化した25 mm厚の水に対して実証した (M. Okano et~al., Phys. Rev. A 88, 043845 (2013))。 まずそれぞれ分解能4.2  $\mu$ mと3.0  $\mu$ mという高分解能なOCTおよびQOCTに対応する干渉信号を、同一の帯域を持つ光源、同一のサンプルに対して取得した(図2(a) (b))。次に分散媒質として25 mm厚の水を経路中に挿入し、分散耐性を検証した。その結果、OCTでは37  $\mu$ mと大幅に分解能が低下したのに対して、QOCTでは全く分解能低下がなく、完全な分散耐性を実証することに成功した。この分散耐性により、サンプル中の深い位置での高分解能イメージングが可能になると期待される。今後はサブミクロンという超高分解能域での分散耐性の実証を目指す。

## (c) ファブリペロー干渉計を用いたダイヤモンドナノク リスタル中の窒素欠陥中心のゼロフォノン線の高分 解能測定

単一発光体と結合したマイクロ・ナノ光デバイスは、単 一光子源、もつれ合い光子対源、量子位相ゲート、量子メ モリーといった光量子デバイスを実現するシステムとして 注目されている。原子やイオン、分子、半導体量子ドット など様々な単一発光体が開発されているが、その中でもダ イヤモンド結晶中の窒素欠陥中心(NVセンター)は、極めて 安定であり、かつ、発光効率が高く、また、コヒーレンス が問題となる光量子デバイスにとって重要な発光線幅が極 めて狭いという優れた特徴を持つ。さらに、このダイヤモ ンドをナノクリスタル化することで、テーパファイバ、微 小球共振器、そして、フォトニック結晶といった既存の光 デバイスへ容易に結合させることが可能になる。しかし、 これまで、ナノクリスタル中のNVセンターの発光線幅を詳 細に測定した例はほとんど無かった。そこで、今回我々は、 ファブリペロー干渉計を用いて極低温下でダイヤモンドナ ノクリスタル中のNVセンターのゼロフォノン線の高分解能 測定を行った。

図3(a)は分光器を用いて測定したダイヤモンドナノクリスタル中のNVセンターの発光スペクトルである。637 nm付近でNVセンターの鋭いゼロフォノン線が観測された。また、図3(b)は得られたNVセンターの光子相関測定結果である。g(2)(0)は0.29となり単一のNVセンターからの発光であることがわかった。さらに、図3(c)はファブリペロー干渉計を用いたゼロフォノン線の高分解能測定結果である。この測定からゼロフォノン線の線幅が1.26Hzと見積もられた。

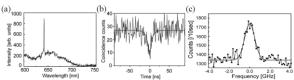


図 3: (a) 発光スペクトル、(b) 光子相関測定結果、

(c)ファブリペロー干渉計を用いた高分解能測定結果

この線幅はバルクダイヤモンド中のNVセンターにおいて観測されている値と同程度であり、ダイヤモンドナノクリスタルを既存の光デバイスへ結合させた場合でもNVセンターの長いコヒーレンス時間が維持できうることが示された。

#### (d) SrTiO<sub>3</sub>のブロード・ダブレットの物理的起源

SrTiO3の約40 K以下では、量子揺らぎのため電気分極が 揃えない状態 (量子常誘電状態) が実現されている。そし て、この状態だけにブロード・ダブレット (BD) という特 異な光散乱ピークが観測される。しかし、その物理的起源 については議論が尽きない。我々は、SrTiO3の[010]c方向 に一軸性圧力を印可することにより強誘電的転移を引き 起こし、この転移に伴うBDの挙動から「BDの起源は第二 音波ではない」ことを明らかにしている。さらに、BDの偏 光特性はP1モード(転移圧力以上でだけで、180°散乱スペ クトルに現れる特異なピーク)のものとよく似ていること を発見した。この発見から、P1モードの正体がわかればBD の物理的起源も明らかになると考えた。図4は180°光散乱 で得られたP1、c33モード等の周波数、90°光散乱で得られ たc44、c33モード等の補正周波数の一軸性圧力依存性である。 この図からP1モードはc4であることがすぐ分る。c44は横波 音響波であるから、P1モードとほぼ同じ偏光特性を持つBD はやはり横波音響波と考えるのが妥当である。結局、BD は「局所強誘電性領域(100nmのスケール)を伝搬する横波c44 音響モードと縮退しているc55モード」であると結論づけた。

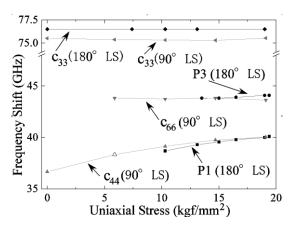


図 4: 90° 光散乱で観測した横波  $\mathbf{c}_{44}$ 、 $\mathbf{c}_{66}$ モードの周波数は  $0.93\sqrt{2}$  倍、縦波  $\mathbf{c}_{33}$ モードの周波数は  $\sqrt{2}$  倍している

## 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入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

- T. Ono, R. Okamoto and S. Takeuchi: "An Entangle-ment-Enhanced Microscope", Nature Communications, 4 (2426) 3426/1-7 (2013).
- S. Subashchandran, R. Okamoto, L. Zhang, A. Tanaka, M. Okano, L. Kang, J. Chen, P. Wu and S. Takeuchi: "Investigation of the Performance of an Ultralow-Dark-Count Superconducting Nanowire Single-Photon Detector", Jpn. J. Appl. Phys., 52 (10) 102801/1-5 (2013).
- M. Okano, R. Okamoto, A. Tanaka, S. Ishida, N. Nishizawa and S. Takeuchi: "Dispersion cancellation in high-resolution two-photon interference", Phys. Rev. A., 88, 043845/1-5 (2013).
- 4) H.Q. Zhao, M. Fujiwara, M. Okano and S. Takeuchi: "Observation of 1.2-GHz linewidth of zero-photon-line in photoluminescense spectra of nitrogen vacancy centers in nanodiamonds using a Fabry-Perot interferometer", Opt. Exp., 21 (24) 29679-29686 (2013).
- S. Hara, T. Ono, R. Okamoto, T. Washio and S. Takeuchi: "Anomaly detection in reconstructed quantum states using a machine-learning technique", Phys. Rev. A., 89 (2) 022104/1-5 (2014).
- S. Takeuchi: "Recent progress in single-photon and entangled-photon generation and applications", Jpn. J. Appl. Phys., 53, 30101/1-11 (2014).
- 7) S. Takeuchi: "Quantum Information Science Using Photons", AAPPS BULLETIN, 24 (1) 19-25 (2014).
- Y. Tsujimi, T. Yanagisawa and T. Mogami: "Low-Frequency Optical Phonons in SrTiO<sub>3</sub> under Uniaxial Stress" Journal of the Korean Physical Society 62, 1014–1018 (2013).

#### 4.2 総説・解説・評論等

1) 岡本亮、竹内繁樹:「量子もつれ光子を用いた光位相計 測技術」、光学、42 (10):500-505 (2013).

### 4.3 講演

## a. 招待講演

#### i )学会

- S. Takeuchi\*: "Nano optical fibers for photonic quantum information", Optical Nanofiber Applications: From Quantum to Bio Technologies ONNA 2013, Okinawa Institute of Science and Technology Graduate University, Okinawa, Japan (2013-06).
- S. Takeuchi\*: "Quantum measurements and sensings", SPIE Optics + Photonics, San Diego Convention Center, California, USA (2013-08).
- S. Takeuchi\*: "Photonic quantum circuits and quantum metrologies", OSA'S97th Annual meeting Frontiers in Optics 2013, Hilton Bonnet Creek, Florida, USA (2013-10).
- S. Takeuchi\*: "An entanglement-enhanced microscope", Photonics West (SPIE), The Moscone Center San Francisco, USA (2014-02).

## ii )研究会・シンポジウム・ワークショップ

- S. Takeuchi\*, R. Okamoto, M. Iefuji, S. Oyama, K. Yamagata, H. Imai and A. Fujiwara: "Experimental demonstration of adaptive quantum state estimation", 20th Central European Workshop on Quantum Optics, The Royal Institute of Technology(KTH), Sweden (2013-06).
- S. Takeuchi\*: "Toward the realization of monocycle entangled photons", New science and technologies using entangled photons (NSTEP), Osaka University, Japan (2013-07).
- 3) M. Okano\*, R. Okamoto, A. Tanaka, S. Ishida, N. Nishizawa and S. Takeuchi: "High resolution quantum optical coherence tomography by broadband entangled photon pairs", New science and technologies using entangled photons (NSTEP), Osaka University, Japan (2013-07).
- T. Ono\*, R. Okamoto and S. Takeuchi: "Application of quantum metrology using photons", 22nd International Laser Physics Workshop, Hotel Krystal Prague, Czech Republic (2013-08).
- S. Takeuchi\*: "Photonic quantum circuits and quantum metrologies", Quantum Science Symposium Asia-2013, Sanjo Conference Hall, University of Tokyo (2013-11).
- 6) 岡本亮\*:「光量子回路の大規模化に向けて」、基礎物理学研究所研究会量子情報の新展開、京都大学基礎物理学研究所(2014-03).

## iii) コロキュウム・セミナー・その他

 S. Takeuchi\*: "Photonic quantum circuits and single photon sources", The 11th US-Japan Joint Seminar on

- Quantum Electronics and Laser Spectroscopy "Ultimate Quantum Systems of Light and Matter-Control and Applications", Nara Prefectual New Public Hall, Japan (2013–04).
- 2) 岡本亮\*、家藤美奈子、大山悟史、山形浩一、今井寛、藤原彰夫、竹内繁樹:「光子を用いた適応量子状態推定」、 第1回アライアンス若手研究交流会、東北大学、宮城県 (2013-11).

## b. 一般講演

#### i ) 学会

- S. Takeuchi\*, R. Okamoto, M. Iefuji, S. Oyama, K. Yamagata, H. Imai and A. Fujiwara: "Experimental demonstration of adaptive quantum state estimation", CLEO/EUROPE-IQEC 2013, ICM Center of the New Munich Trade Fair Center, Munich (2013-05).
- M. Okano\*, R. Okamoto, A. Tanaka, S. Ishida, N. Nishizawa and S. Takeuchi: "Dispersion-tolerant quantum optical coherence tomography by broadband parametric fluorescence", The 21st International Conference on Laser Spectroscopy (ICOLS2013), The Claremont Hotel, CA, USA (2013-06).
- 3) M. Fujiwara\*, T. Schroder, H.Q Zhao, T. Noda, S. Kamioka, O. Benson and S. Takeuchi: "Coupling diamond nitrogen vacancy centers to tapered fibers: Toward generation of indistinguishable single photons", CLEO-PR & OECC/PS 2013, Kyoto International Conference Center, Japan (2013-06).
- 4) A. Tanaka\*, R. Okamoto, H. H.Lim, S. Subashchandran, M. Okano, L. Zang, L. Kang, J. Chen, P. Wu, T. Hirohata, S. Kurimura and S. Takeuchi: "Broadband Frequency Correlated Photon Pairs Using a Chirped-QPM Device", CLEO-PR & OECC/PS 2013, Kyoto International Conference Center, Japan (2013-06).
- 5) M. Okano\*, R. Okamoto, A. Tanaka, S. Ishida, N. Nishizawa and S. Takeuchi: "High-resolution quantum optical coherence tomography by broadband parametric fluorescence", CLEO-PR & OECC/PS 2013, Kyoto International Conference Center, Japan (2013–06).
- 6) S. Oyama\*, M. Iefuji, R. Okamoto, K. Yamagata, A. Fu-jiwara and S. Takeuchi: "Adaptive quantum state estimation of mixed states using photons", CLEO-PR & OECC/PS 2013, Kyoto International Conference Center, Japan (2013-06).
- 7) Y. Eto\*, M. Okano, A. Tanaka, S. Subashchandran, R. Okamoto, H H. Lim, S. Kurimura and S. Takeuchi: "Sum-frequency-photon generation from an entangled photon pair", CLEO-PR & OECC/PS 2013, Kyoto International Conference Center, Japan (2013-06).

- 8) M. Fujiwara\*, H.Q Zhao, M. Okano, T. Noda, K. Ikeda, H. Sumiya and S. Takeuchi: "Coupling diamond nitrogen vacancy centers with ultrathin optical tapered fibers at cryogenic temperatures toward efficient indistinguishable single photon sources", International Conference on Diamond and Carbon Materials, Riva del Garda-Fierecongressi S.p.A, Riva del Garda, Italy (2013-09).
- 9) 岡野真之\*、横井宇慧、田中陽、岡本亮、竹内繁樹:「量子もつれ光子対生成レートの2光子量子干渉への影響」、日本物理学会2013年秋季大会、徳島大学(2013-09).
- 10) 小野貴史\*、岡本亮、竹内繁樹、原聡、鷲尾隆:「量子 状態データマイニング」、日本物理学会2013年秋季大 会、徳島大学(2013-09).
- 11)藤原正澄\*、趙洪泉、岡野真之、野田哲矢、池田和寛、 角谷均、竹内繁樹:「狭帯域単一光子源へ向けたダイヤ モンド窒素欠陥中心とテーパ光ファイバの結合」、日本物 理学会2013年秋季大会、徳島大学(2013-09).
- 12) Almokhtar Mohamed,藤原正澄\*、竹内繁樹:「ダイヤモンドナノ結晶とテーパ光ファイバの結合に関する数値解析」、日本物理学会2013年秋季大会、徳島大学(2013-09).
- 13) 田中陽\*、岡本亮、 岡野真之、S. Subashchandran, 江藤祐、L. Zang, L. Kang, J. Chen, P. Wu, 廣畑徹、H.H Lim, 栗村直、竹内繁樹:「チャープPPSLT素子から発生する 広帯域パラメトリック蛍光対の周波数相関測定II」、日本物理学会2013年秋季大会、徳島大学 徳島県 (2013-09).
- 14) 江藤祐\*、岡野真之、田中陽、岡本亮、H. H Lim, 栗村 直、竹内繁樹:「パラメトリック蛍光光子対からの和周 波光子発生実験」、日本物理学会2013年秋季大会、徳 島大学、徳島県(2013-09).
- 15) M. Fujiwara\*, M. Almokhtar, H. Takashima and S. Takeuchi: "Nanodiamond nitrogen vacancy centers coupled with tapered optical fibers as hybrid quantum nanophotonic devices", 78th Annual Meeting of the DPG and DPG Spring Meeting, Humboldt University, Berlin, Germany (2014-03).
- 16) 大山悟史\*、岡本亮、小野貴史、竹内繁樹、山形浩一、藤原彰夫:「光子量子ビットの適応的量子状態推定」、 日本物理学会第69回年次大会、東海大学、神奈川県 (2014-03).
- 17) 上岡俊也\*、藤原正澄、高島秀聡、竹内繁樹:「光量子 デバイスへの応用を目指したナノ微細加工テーパ-光 ファイバの作製とその評価」、日本物理学会第69回年次 大会、東海大学、神奈川県(2014-03).
- 18) 中村翔太\*、辻見裕史:「一軸性圧力下における量子常 誘電体のブロードダブレット光散乱スペクトル」、日 本物理学会 2013 年秋季大会、横浜徳島大学 (2013-09).

19) 中村翔太\*、辻見裕史:「一軸性圧力下における量子常 誘電体のブロードダブレット光散乱スペクトル II」、 日本物理学会第69回年次大会、東海大学(2014-03).

#### ii ) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 岡野真之\*:「量子情報フォトニクスの展開と光断層撮影への応用」、日本学術会議主催公開シンポジウム第3 回先端フォトニクスシンポジウム、日本学術会議、東京都(2013-04).
- 2) 田中陽\*、岡本亮、H.H. Lim, 岡野真之、江藤祐、S. Subashchandran, 栗村直、L. Zang, L. Kang, J. Chen, P. Wu, 廣畑徹、竹内繁樹:「近赤外波長帯における超広帯域周波数相関光子対の実現と観測」、第28回量子情報技術研究会(QIT28)、北海道大学、北海道(2013-05).
- 3) M. Almokhtar\*, M. Fujiwara and S. Takeuchi: "The effect of diamond nanocrystal structures to the coupling of single nitrogen vacancy centers with tapered nanofibers", 第28 回量子情報技術研究会 (QIT28)、北海道大学、北海道 (2013-05).
- 4) H. Takashima\*, H.Q. Zhao, M. Okano, M. Fujiwara and S. Takeuchi: "Photoluminescence measurement of zero-phonon line from NV center in diamond nanocrystals at cryogenic temperatures", New science and technologies using entangled photons (NSTEP), Osaka University, Japan (2013-07).
- 5) A. Tanaka\*, R. Okamoto, H H. Lim, S. Subashchandran, M. Okano, Y. Eto, L. Zhang, L. Chen, P. Wu, T. Hirohata, S. Kurimura and S. Takeuchi: "Direct Observation of 150 THz-Frequency Correlation of Photon Pairs Generated from Chirped Quasi-Phase Matched Crystal", New science and technologies using entangled photons (NSTEP), Osaka University, Japan (2013-07).
- 6) M. Fujiwara\*, H Q. Zhao, M. Okano, T. Noda and S. Takeuchi: "Coupling diamond nitrogen vacancy centers with optical tapered fibers for single photon sources", New science and technologies using entangled photons (NSTEP), Osaka University, Japan (2013–07).
- S. Oyama\*, M. Iefuji, R. Okamoto, K. Yamagata, A. Fujiwara and S. Takeuchi: "Adaptive quantum state estimation of mixed states using photons", New science and technologies using entangled photons (NSTEP), Osaka University, Japan (2013-07).
- 8) M. Almokhtar\*, M. Fujiwara and S. Takeuchi: "The effect of diamond nanocrystal structures on the coupling of single nitrogen vacancy centers with tapered nanofibers", New science and technologies using entangled photons (NSTEP), Osaka University, Japan (2013-07).
- Y. Eto\*, M. Okano, A. Tanaka, R. Okamoto, H H. Lim, S. Kurimura and S. Takeuchi: "Sum-frequency-photon generation from an entangled photon pair", New science

- and technologies using entangled photons (NSTEP), Osaka University, Japan (2013–07).
- 10) T. Ono\*, R. Okamoto and S. Takeuchi: "Experimental demonstration of an entanglement-enhanced microscope", New science and technologies using entangled photons (NSTEP), Osaka University, Japan (2013-07).
- 11) S. Kamioka\*, M. Fujiwara and S. Takeuchi: "Fabrication of nanostructured tapered fibers for highly efficient single photon sources", New science and technologies using entangled photons (NSTEP), Osaka University, Japan (2013-07).
- 12) M. Fujiwara\*, H-Q. Zhao, M. Okano, T. Noda, K. Ikeda, H. Sumiya and S. Takeuchi: "Coupling diamond nitrogen vacancy centers with ultrathin optical tapered fibers at cryogenic temperatures toward efficient indistinguishable single photon sources", The 2013 JSAP-MRS Joint Symposia, Doshisha University, Japan (2013-09).
- 13) 竹内繁樹\*:「光量子情報科学の現在とその未来」、大阪 大学産業科学研究所第69回学術講演会シンポジウム 「産業科学の未来戦略」、大阪大学、大阪 (2013-11).
- 14) 高島秀聡\*:「ダイヤモンドナノ結晶中の単一窒素欠陥 (NV)中心を用いたナノフォトニクスデバイスの実現 に向けて」、大阪大学産業科学研究所第69回学術講演会 シンポジウム「産業科学の未来戦略」、大阪大学、大阪 (2013-11).
- 15) 小野貴史\*、岡本亮、竹内繁樹、原聡、鷲尾隆:「量子情報データマイニング」、第29回量子情報技術研究会 (QIT29)、早稲田大学、東京(2013-11).
- 16) 上岡俊也\*、藤原正澄、竹内繁樹:「高効率単一光子源への応用を目指したナノ微細加工テーパ光ファイバの作成」、大阪大学産業科学研究所第69回学術講演会シンポジウム「産業科学の未来戦略」、大阪大学、大阪(2013-11).
- 17) R. Okamoto\* and S. Takeuchi: "A quantum shutter closing N slits", 北大電子研国際シンポジウム「綱」、シャトレーゼガトーキングダムサッポロ、北海道(2013-12).
- 18) S. Oyama\*, R. Okamoto, K. Yamagata, A. Fujiwara and S. Takeuchi: "Adaptive quantum state estimation for single quantum bit", 北大電子研国際シンポジウム「網」、シャトレーゼガトーキングダムサッポロ、北海道(2013-12).
- 19) 岡本亮\*、竹内繁樹:「量子的なシャッターで複数スリットを同時に閉じる」、第3回QUATUO研究会、高知工科大学、高知県(2014-01).
- 20) T.Ono\*, R. Okamoto and S. Takeuchi: "Experimental demonstration of An Entanglement-Enhanced Microscope", The 17th SANKEN International Symposium, Osaka University, Japan (2014-01).
- 21) M. Okano\*, R. Okamoto, A. Tanaka, S.Ishida, N.

- Nishizawa and S. Takeuchi: "High-resolution quantum optical coherence tomography by broadband entangled photon pairs", The 17th SANKEN International Symposium, Osaka University, Japan (2014–01).
- 22) 竹内繁樹\*、岡本亮、藤原正澄:「量子のふしぎな性質 を追求し、まったく新しい科学・技術の芽を育てます」、 大阪大学未来戦略機構シンポジウム Opt OSAKA 2014 in Tokyo、サンケイプラザ、東京都 (2014-03).
- 23) 岡野真之\*:「量子もつれ光子対による超高分解能量子 光コヒーレンストモグラフィに向けて」、基礎物理学研 究所研究会 量子情報の新展開、京都大学、京都府 (2014-03).
- 24) 田中陽\*、岡本亮、H.H. Lim, 岡野真之、江藤祐、S. Subashchandran, 栗村直、L. Zang, L. Kang, J. Chen, P. Wu, 廣畑徹、竹内繁樹:「二色量子干渉による超広帯域エネルギー量子もつれ光子対検出」、基礎物理学研究所研究会 量子情報の新展開、京都大学、京都府(2014-03).

#### iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 竹内繁樹\*:「光子量子回路による量子サイバネティクスの実現」、第9回科研費量子サイバネティクス総括班会議、WTCコンファレンスセンター、東京都(2013-07).
- 2) 藤原正澄、趙洪泉、岡野真之、竹内繁樹\*: "Diamond nitrogen vacancy centers coupled with tapered optical fibers for applications in quantum information and sensing", 第9回科研費量子サイバネティクス総括班会議、WTC コンファレンスセンター、東京都 (2013-07).
- 3) 小野貴史、岡本亮、竹内繁樹\*:「光子を用いた量子状態データマイニング」、第9回科研費量子サイバネティクス総括班会議、WTCコンファレンスセンター、東京都(2013-07).
- 4) 高島秀聡\*、趙洪泉、岡野真之、藤原正澄、竹内繁樹:「極低温下でのダイヤモンドナノクリスタルにおける NVセンターの超高分解能蛍光測定」、第9回科研費量子 サイバネティクス総括班会議、WTCコンファレンスセ ンター、東京都(2013-07).
- 5) 竹内繁樹\*:「量子情報科学とナノフォトニクス」、5附 置間アライアンスG1分科会、山形大学、山形県 (2013-08).
- 6) 竹内繁樹\*:「光子を用いた量子計測」、量子ICTフォーラム・第2回会合、(独) 情報通信研究機構、東京都 (2013-10).
- 7) 小野貴史\*、岡本亮、竹内繁樹:「量子もつれ顕微鏡の性能評価」、FIRST「量子情報処理プロジェクト」全体会議2013、東京大学、東京都(2013-12).
- 8) S. Takeuchi\*: "Realization of quantum cybanetics using photonic quantum circuits", 科研費量子サイバネティクス2013冬の全体会議、ハイアットリージェンシー京都、

- 京都府 (2013-12).
- 9) R. Okamoto\* and S. Takeuchi: "Adaptive quantum state estimation for single quantum bit", FIRST「量子情報処理プロジェクト」全体会議2013、東京大学、東京都(2013-12).
- 10) H. Takashima\*, H.Q. Zhao, M. Okano, M. Fujiwara and S. Takeuchi: "Photoluminescence spectroscopy of nitrogen vacancy center in nanodiamond at cryogenic temperatures", FIRST「量子情報処理プロジェクト」全体会議2013、東京大学、東京都(2013-12).

## 4.4 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、:「The International Workshop on New Science and Technologies using Entangled Photons (NSTEP)」、60 名、大阪大学産業科学研究所、2013年7月8-9日
- 2) 竹内繁樹、:「平成25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」、20 名、大阪大学産業科学研究所、2013年2月26日

#### 4.5 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. P.H. Wu, 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

## 4.6 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 -2014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 A 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-2014年度
- 3) 岡本亮、若手研究A、光子を用いたボゾンサンプリン

グの実現、2013年度-2015年度

4) 岡本亮、挑戦的萌芽研究、量子光を用いた1分子光吸収 スペクトル測定の実現、2013年度-2015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

#### c. 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

#### d. 奨学寄付金

1) 竹内繁樹:光科学技術研究振興財団

### 4.7 社会教育活動

#### a. 公的機関の委員

 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-現 在)

#### b. 国内外の学会の役職

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

## c. 併任•兼業

- 1) 竹内繁樹:大阪大学産業科学研究所 招聘教授 (2007 年10月1日-現在)
- 2) 竹内繁樹:東京大学 ナノ量子情報エレクトロニクス研 究機構 委嘱教授(2007年4月1日 - 現在)
- 3) 国立情報学研究所 最先端研究開発プログラム 客員教 授(2010年3月1日-現在)
- 4) 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、小野貴史、日経エレクトロニクス 2013年9 月14日「北海道大学が「量子もつれ顕微鏡」を実現、 従来の顕微鏡の測定限界を超える」
- 2) 竹内繁樹、小野貴史、SJN 2013年9月13日「北大、光学顕 微鏡の測定限界を超えた「量子もつれ顕微鏡」を開発。 生物・医学への応用期待」
- 3) 竹内繁樹、小野貴史、エキサイトニュース 2013年9

- 月18日「北大、古典理論限界を超えた感度を有する「量 子もつれ顕微鏡」を実現
- 4) 竹内繁樹、小野貴史、マイナビニュース 2013年9月18 日「北大、古典理論限界を超えた感度を有する「量子 もつれ顕微鏡」を実現」
- 5) 竹内繁樹、小野貴史、OPTRONICS ONLINE、2013年9 月30日「北大、古典理論限界を超えた感度をもつ光学 顕微鏡を実現
- 6) S. Takeuchi, T. Ono, MIT Technology Review, 2014年2月 10日 "World's First Entanglement-Enhanced Microscope"
- 7) S. Takeuchi, T. Ono, POPULAR SCIENCE, 2014年2月 10日 "Quantum Microscope Uses Spooky Entangled Photons To See Better
- 8) S. Takeuchi, T. Ono, PHYS ORG, 2014年2月11日 "Researchers use quantum entanglement to improve differential interference contrast microscopy"
- 9) S. Takeuchi, Physicsworld.com, 2014年2月19日"Microscope exploits spooky action at a distance"
- 10) S. Takeuchi, T. Ono, livescience, 2014年3月3日 "Weird "Entangled" Light Gives Microscope Sharper Images"

#### f. 外国人研究者の招聘

- 1) Abdel-Mola Mohamed Almokthar, Physics Department Assiut University (2012年11月1日-2013年8月31日)
- 2) Kevin J. Resch, University of Waterloo (2013年7月7-10日)
- 3) Malvin C. Teich, University of Boston (2013年7月7-11日)
- 4) Jian Chen, University of Nanjing (2013年7月7-9日)
- 5) Carlota Canalias, Department of Applied Physics, RoyalInstitute of Technology (2013年7月7-10日)
- 6) Yoon-Ho Kim, Pohang University of Science and Technology (POSTECH) (2013年7月4-9日)
- 7) Lin Kang, University of Nanjing (2013年7月5-12日)
- 8) Lorenzo Maccone, University of Pavia (2013年7月8-10日)
- 9) Schell, Andreas Wolfgang, Humboldt-Universitä t (2013年11月29日-2014年1月30日)
- 10) Jonathan Matthews, University of Bristol (2014年1月14日)

#### g. 北大での担当授業科目

- 1) 情報科学研究科、情報エレクトロニクス特別研究第一、 竹内繁樹、2013年4月1日-2014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、2013年4月1日-2014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、2013年4月1日-2014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、 2013年4月1日-2014年3月31日
- 5) 理学部物理学科、外国語文献講読、辻見裕史、2012年4 月1日-2012年9月31日

- 6) 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)、辻見裕史、2012年前期集中講義
- 7) 全学教育、物理学Ⅱ、辻見裕史、2013年4月1日-2013 年9月31日
- 8) 理学部物理学科、誘電体物理学(群論と格子振動)、辻 見裕史、2013年4月1日-2013年9月31日
- 9) 理学部物理学科、外国語文献講読Ⅱ、辻見裕史、2013 年4月1日-2013年9月31日
- 10) 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、2013年前期集中講義

## j. 修士学位及び博士学位の取得状況

- ・博士課程(1名)
- 1) 田中陽(大阪大学基礎工学研究科)
- 修士課程(3名)
- 1) 江藤祐 (大阪大学基礎工学研究科)
- 2) 大山悟史(大阪大学基礎工学研究科)
- 3) 上岡俊也(大阪大学基礎工学研究科)
- 4) 最上透 (北海道大学理学院研究科)

## コヒーレント光研究分野

教 授 西野吉則 (阪大院、理博、2010.4~)

助 教 Marcus Newton (University College London, Ph.D., 2011.1~2013.8)

木村隆志 (阪大院、工博、2011.4~)

技術補助員 倉本真弓 (2012.10~)

事務補助員 齋藤優希 (2013.1~)

院生 Krishna Khakurel (DM1) 、添田慧 (MC2) 、 川村 仁志 (MC1) 、佐尾 真侑 (MC1) 、 藤澤 勇太 (MC1)

## 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) X線自由電子レーザーを用いた複雑系生体分子の構造可視化に向けた研究

新世代のX線であるX線自由電子レーザー(XFEL)を用いた複雑系生体分子の構造可視化を目指して、我々の研究グループでは、パルス状コヒーレントX線溶液散乱(PCXSS)法を独自に提案し、その構築を進めている。XFELがフェムト秒オーダーのパルス幅をもつことを利用して、X線照射による試料の損傷プロセスの時間スケールよりも短い露光で、溶液中で自然な状態にある生物試料をスナップショットイメージングすることを目標にする。

PCXSS法では、生物試料を溶液中で自然な状態保つことのできる環境セルチップを用いる。環境セルチップは、窒化ケイ素薄膜をX線の入出射窓とするシリコン基板を2枚貼り合わせて、その間の微小ギャップに溶液試料を封じ込める構造をもつ。環境セルチップに大強度の集光XFE

Lビームを照射すると、シングルショットで窒化ケイ素薄膜の窓が破壊される。このため、高いデータ取得効率で測定を行うためには、1枚のチップに多数の環境セルを集積した環境セルアレイが必要と



図 1 開発した環境セル アレイチップ

なる。図1に作製した環境セルアレイチップを示す。環境 セルアレイチップの作製には、北海道大学のクリーンルー ム内のナノ加工装置類を利用した。

細胞をPCXSS法で観察する場合、環境セル中で細胞を生きた状態を保つことが理想である。そこで、作製した環境セルアレイにバクテリア生細胞を封入する実験を行った。実験にはマイクロバクテリア (Microbacterium lacticum)を使用した。バクテリアの生死の判定には、Invitrogen 社製の LIVE/DEAD BacLight Bacterial Viability Kit 蛍光試薬を用いた。この蛍光試薬により調製したバクテリア細胞を環境セルアレイに封入し、蛍光顕微鏡観察を行った結果を図2に示す。緑に発色しているものが生存バクテリア、赤色に発色しているものが死滅バクテリアである。環境セル中において、生存バクテリアの割合が99.5%以上の状態を、一時間以上にわたって維持可能であることを確認した。これは、SACLAにおいて測定までに要する時間を考慮に入れても十分なものである。



細胞を環境セルに 封入直後



真空中に置いて 1時間後

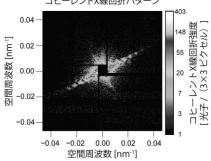


## 図 2 マイクロバクテリア生細胞の 環境セルアレイチップへの封入実験

次に、環境セルからの寄生散乱の大きさを評価するため、環境セルに生理食塩水を封入し散乱 X線パターンを計測した。比較対象として、環境セルを設置せず X線が真空を通過した場合の散乱 X線パターンも計測した。比較の結果、環境セルがない場合と比べて、環境セルを用いた方が、寄生散乱がより減少していることが確認された。これは、約20 μm 角の環境セルのシリコンの窓枠が、ガードスリットの役割を果たし、上流の KBミラーなどからの寄生散乱を効率的に除去できたためと考える。今回確かめられた環境セルの寄生散乱低減効果は、将来的に生体分子などの散乱能の低い試料を計測する際に、大きな利点になると考える。

本年度の大きな成果として、PCXSS法による生きた 細胞のXFELシングルショットでのスナップショットイメージングが挙げられる。PCXSS法では、電子顕微鏡





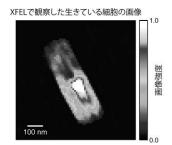


図3 マイクロバクテリア生細胞に対する PCXSS 測定の結果

法で行われる固定や染色の必要がなく、生細胞の高分解能 観察も行える。測定に用いたマイクロバクテリアは、サイ ズが 1 µm 以下と小さく、通常の光学顕微鏡では内部構造の 観察は難しい。また、乳製品中に発見されたものであり、 農業的にも重要である。図3にマイクロバクテリアからの シングルショット XFEL 回折パターンおよび再構成された 試料像を示す。シングルショット XFEL 回折パターンには、 試料の幅に起因する一方向に伸びた明瞭な干渉縞が観察さ れた。この干渉縞方向に対する再構成試料像の分解能を、 位相回復伝達関数により評価したところ 37 nm と見積もら れた。再構成試料像では電子密度分布が高い領域が試料下 部に存在しており、リン等の原子番号の大きな元素を含む DNAが偏在していると考えられる。この研究成果を論文 にまとめ、Nature Communications 誌に掲載された (T. Kimura et al., Nat. Commun. 5, 3052 (2014))。また、この成 果に関してプレス発表を行い、新聞、テレビ、雑誌など多 くのメディアで取り上げられた。

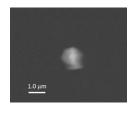
## (b) コヒーレント X 線を用いた走査透過 X 線顕微鏡システムの構築

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

本年度より、試料ユニットの開発を始めた。試料ユニットは、試料計測と X 線集光ビーム評価をシームレスに実施可能な設計とした。コヒーレント X 線イメージング実験では照射 X 線の波面状態が重要になるが、この設計により、最適な集光条件を保って実験を行うことができる。試料ユニットには粗調節用の光学顕微鏡が併置されており、数 μmの分解能で試料位置を確認可能である。また、試料ユニッ

ト背面には回折 X 線通過用の真空配管を設置し、回折 X 線の大気による散乱・吸収の低減を図った。この際、実験ハッチ外から真空ポンプからのパスを伸ばし、試料ユニットに対する振動の影響を低減させた。

この試料ユニットと、既に開発が完了しているアダプティブ KB 光学系を用いたコヒーレント X 線イメージング実験を SPring-8 BL29XU にて行った。試料として、 $1 \sim 2 \, \mu m$  サイズの白金微粒子(図 4 (左))を用いた。光子エネルギー10 keV の X 線を、1 組のアダプティブ KB ミラーを用いておよそ  $2 \, \mu m \times 2 \, \mu m$  に集光したのち試料に照射し、図 4 (右)に示すコヒーレント X 線回折パターンの取得に成功した。 RAAR(Relaxed averaged alternating reflections)+ Shrink-wrap アルゴリズムを適用し、コヒーレント X 線回折パターンからの試料像再構成を行った。



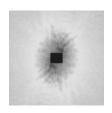


図 4 SPring-8 BL29XUでのコヒーレント X 線イメージング 測定の結果。(左) 測定に使用した白金微粒子の走査 型電子顕微鏡像例 (右) 取得したコヒーレント X 線 回折パターン

また、2 段のアダプティブ KB 光学系により実現される 集光ビームを用いた、コヒーレント X線回折イメージング の新規アルゴリズムの開発を、前年度に引き続き行った。 前年度までに、第一焦点の空間フィルターを制御し、X線 集光ビームの照射関数をコヒーレント X線回折イメージン グに適するようアポダイズ可能なことを、波動光学シミュ レータにより確認している。アポダイズ照明を利用するこ とにより、細胞のような非一様な電子密度分布がある試料 に対しても、試料像の再構成が可能であることをシミュレ ーションにより示した。これら新規アルゴリズムに関する 研究内容を論文にまとめ、Optics Express 誌に掲載された (T. Kimura et al., Opt. Express 21, 9267-9276 (2013))。

## (c) 超高速光誘起構造変化の動画イメージング

新規X線源であるXFELは、フェムト秒オーダーのパルス幅をもつため、これまで困難であった原子レベルの位置敏感性をもった超高速測定が可能となる。XFELのこの特徴を活かし、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ている。研究では、サブミクロンサイズの結晶材料中の格子歪み分布をイメージングできるブラッグ反射配置X線回折顕微法と、超高速時間分解測定法であるポンプープローブ法を組み合わせた手法を用いる。

本年度は昨年度に引き続き、二酸化バナジウムナノワイヤー試料に対する時間分解コヒーレントX線回折実験を、XFEL施設SACLAを用いて行った。二酸化バナジウムは、Tc = 67.8℃において金属--絶縁体相転移と構造相転移を起こす物質として知られているが、そのダイナミクスは未知な部分が多い。相転移前後での、電気抵抗の変化に着目するとスイッチング素子・記憶素子への応用が、また体積変化に着目するとマイクロアチュエータへの利用が期待される。試料の二酸化バナジウムナノワイヤーは、北海道大学において、蒸気輸送法を用いて合成した。本年度は、SACLA実験のデータ解析を進め、ピコ秒の時間分解能で、コヒーレントX線回折パターンの変化を評価した。この結果を論文にまとめ、投稿した。

## 3. 今後の研究の展望

XFELは現在、日本とアメリカの2カ所でのみ利用可能な先端的光源である。日本のXFEL施設SACLAは、平成24年3月に供用運転が開始され、当研究分野ではこの新規光源を利用した研究を推進している。具体的には、溶液中で自然な状態にある生物試料をイメージングする研究や、原子レベルの位置敏感性とフェムト秒の時間分解能を併せ持つ未踏のイメージングを行う研究を行った。研究は順調に進んでおり、データ解析を進め、これらの研究でのさらなる論文発表を目指す。

放射光を用いた研究では、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開発と、生物学や医療をター ゲットにしたイメージング研究を引き続き推し進める。

## 4. 資料

## 4.1 学術論文等

- T. Kimura, Y. Joti, A. Shibuya, C. Song, K. Sangsoo, K. Tono, M. Yabashi, M. Tamakoshi, T. Masatada, T. Oshima, T. Ishikawa, Y. Bessho and Y. Nishino: "Imaging live cell in micro-liquid enclosure by X-ray laser diffraction", *Nat. Commun.*, 5: 3052 (2014)
- T. Koyama, H. Yumoto, Y. Senba, K. Tono, T. Sato, T. Togashi, Y. Inubushi, J. Kim, T. Kimura, S. Matsuyama, H. Mimura, M. Yabashi, K. Yamauchi, H. Ohashi and T.

- Ishikawa: "Damage study of optical substrates using 1-um-focusing beam of hard X-ray free-electron laser", *Journal of Physics: Conference Series*, 463: 012043-(2013)
- 3) R. Fukui, J. Kim, S. Matsuyama, H. Yumoto, Y. Inubushi, K. Tono, T. Koyama, T. Kimura, H. Mimura, H. Ohashi, M. Yabashi, T. Ishikawa and K. Yamauchi: "A Precision Grazing-incidence Angle Error Measurement of a Hard X-ray Condenser Mirror Using Single-grating Interferometry", Synchrotron Radiation News, 26(5): 13-16 (2013)
- T. Kimura, S. Matsuyama, K. Yamauchi and Y. Nishino: "Coherent x-ray zoom condenser lens for diffractive and scanning microscopy", Opt. Express, 21: 9267-9276 (2013)

#### 4.2 総説・解説・評論等

 西野 吉則: 「コヒーレントX線回折が拓く新境地」、 光学、応用物理学会分科会日本光学会、42(6):309-313 (2013)

#### 4.3 講演

#### a. 招待講演

#### i ) 学会

- 1) 西野 吉則\*、木村 隆志、城地 保昌、別所 義隆:「X 線自由電子レーザーによる生きた試料のイメージン グ」、第62回高分子討論会、金沢大学角間キャンパス (2013-09)
- 2) 西野 吉則\*: 「X 線自由電子レーザーによる先端的イメージング」、日本顕微鏡学会第 69 回学術講演会、ホテル阪急エキスポパーク、大阪 (2013-05)
- ii )研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) 西野 吉則\*: 「X線自由電子レーザーを用いた生きた 細胞のイメージング」、大阪大学蛋白質研究所セミナー 「量子ビームの連携利用に向けた新しいタンパク質結 晶学」、大阪大学蛋白質研究所 (2013-12)
- Y. Nishino\*: "Coherent Imaging with X-ray Free-electron Lasers", 2013 RIES-CIS Symposium, National Chiao Tung University, Taiwan (2013-12)
- 3) 木村 隆志\*、川村 仁志、城地 保昌、別所 義隆、西野吉則: 「超短パルス X 線レーザーによる 溶液中試料 イメージング法の開発」、第1回アライアンス若手研究 交流会 ~計算・計測・合成の融合~、東北大学片平キャンパス (2013-11)
- Y. Nishino\*: "Coherent imaging using X-ray free-electron laser", The 12th Symposium on X-ray Imaging Optics, Oasaka (2013-11)
- 5) 木村 隆志\*、川村 仁志、城地 保昌、別所 義隆、西野吉則: 「XFEL 集光ビームを用いた溶液中試料構造解析法の開発」、X線ナノ集光技術研究会 2013、大阪大

- 学中之島センター (2013-11)
- Y. Nishino\*: "Bioimaging Using X-ray Free-Electron Lasers", Technologies for Medical Diagnosis and Therapy Symposium, Academia Sinica, Taiwan (2013-10)
- Y. Nishino\*: "Coherent imaging with X-ray free-electron lasers", Light and Particle Beams in Materials Science 2013 (LPBMS2013), Tsukuba (2013-08)
- 8) 西野 吉則\*: 「X線レーザーによる生細胞のナノイメ ージング」、第5回「レーザーバイオ医療」技術専門委 員会、北海道大学 (2013-06)
- Y. Nishino\*: "Coherent imaging with X-ray free-electron lasers", 4th International Symposium on Diffraction Structural Biology (ISDSB2013), Nagoya (2013-05)
- 10) Y. Nishino\*: "Coherent X-ray Zoom Condenser Lens for Diffractive and Scanning Microscopy", International workshop on the state and the future of ptychography (Ptycho 2013), Hohenkammer Castle, Bavaria, Germany (2013-05)

## iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 西野 吉則\*: 「科学者という職業」、札幌市立琴似中 央小学校出張講義、札幌 (2014-03)
- 2) 西野 吉則\*: 「異分野の対話で築く科学 〜物理、生物、化学の垣根を越えたX線科学〜」、北海道小樽潮陵高等学校出張講義、札幌 (2014-01)
- 3) 西野 吉則\*: 「X線自由電子レーザーによる環境制御 ナノイメージング」、先導物質化学研究所講演会、九州 大学先導物質化学研究所(2014-01)
- 4) 西野 吉則\*: 「異分野の対話で築く科学 〜物理、生物、化学の垣根を越えたX線科学〜」、北海道札幌西高等学校出張講義、札幌 (2013-12)
- 5) 西野 吉則\*:「X線レーザーで観た、生きた細胞」、 生物物理若手の会北海道支部セミナー、北海道大学 (2013-12)
- 6) 西野 吉則\*: 「X線自由電子レーザーによる液中ナノ イメージング」、第6回 CIMoS セミナー、分子科学研 究所、岡崎、愛知 (2013-10)

## b. 一般講演

## i )学会

- 1) 木村 隆志\*、川村 仁志、城地 保昌、別所 義隆、西野吉則: 「パルス状コヒーレント X 線溶液散乱法による SACLA での溶液試料イメージング実験」、第27回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、広島国際会議(2014-01)
- 2) 藤澤 勇太\*、マーカス クリスチャン ニュートン、田中 義人、西野 吉則:  $\lceil VO_2$ ナノワイヤにおける超高速相転移の X 線レーザー回折イメージングに向けた検討」、第 27 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、広島国際会議場 (2014-01)
- 3) 佐尾 真侑\*、マーカス クリスチャン ニュートン、田 中 義人、西野 吉則: 「金ナノ結晶中の制御されたひ

- ずみのコヒーレントX線回折イメージングに向けた検討」、第27回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、広島国際会議場 (2014-01)
- 4) 川村 仁志\*、木村 隆志、城地 保昌、別所 義隆、西野吉則:「溶液試料の構造解析のための環境セルアレイの開発」、第27回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、広島国際会議場(2014-01)
- 5) K. P. Khakurel\* and Y. Nishino: "Lensless Imaging of Non-isolated Objects by Apodized Coherent Diffraction Imaging", 2013 年北大情報系若手連携シンポジウム, 北海道大学 (2013-11)
- 6) 木村 隆志\*、松山 智至、中森 紘基、後藤 拓実、佐野泰久、石川 哲也、西野 吉則、山内 和人:「Development of coherent x-ray zoom condenser lens for diffractive and scanning imaging」、SPIE Optics + Photonics、San Diego Convention Centre、USA (2013-08)

## ii )研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) H. Kawamura\*, Y. Bessho, T. Kimura, K. Niikura, Y. Joti, K. Ijiro and Y. Nishino: "Observing gold nanoparticles in solution for drug delivery with X-ray free-electron laser", International Life-Science Symposium (ILSS), 北海道大学 (2014-03)
- T. Kimura\*, H. Kawamura, Y. Bessho, Y. Joti and Y. Nishino: "Development of Pulsed Coherent X-ray Solution Scattering for Measurement of Specimens in Solution", 17th SANKEN International Symposium, Icho-kaikan Osaka (2014-01)
- 3) 木村 隆志\*:「超短パルス X 線レーザーによる溶液中 試料イメージング法の開発」、北海道大学電子科学研究 所 平成 2 5 年度 研究 交流 会、電子科学研究所 (2014-01)
- 4) T. Kimura\*, H. Kawamura, Y. Bessho, Y. Joti and Y. Nishino: "Development of Structure Analysis Method for Non-crystallized Sample using Focused X-ray Free Electron Laser", 14th RIES-Hokudai International Symposium, CHÂTERAISÉ Gateaux Kingdom Sapporo (2013-12)
- 5) K. P. Khakurel\*, T. Kimura and Y. Nishino: "Single Particle Three-Dimensional Structural Modeling by Pulsed Coherent X-ray Solution Scattering", The 14th RIES-Hokudai International Symposium, CHÂTERAISÉ Gateaux Kingdom Sapporo (2013-12)
- 6) 西野 吉則\*: 「パルス状コヒーレントX線溶液散乱に よる 複雑系生体分子の可視化」、XFEL 重点戦略研究 課題平成 25 年度実施計画報告会、理化学研究所 (2013-07)

## iii)コロキウム・セミナー等・その他

 Y. Nishino\*: "Imaging live cell by X-ray laser diffraction", Paul Scherrer Institute Seminar, Paul Scherrer Institute, Switzerland (2014-03)

## 4.4 共同研究

### a. 受託研究

- 1) 西野吉則(文部科学省、X線自由電子レーザー重点戦略研究課題):「パルス状コヒーレントX線溶液散乱による複雑系生体分子の可視化」、2012年~2016年度
- 2) 西野吉則(科学技術振興機構、戦略的創造研究推進事業 CREST):「コヒーレントX線による走査透過X線顕微鏡システムの構築と分析科学への応用」(代表:山内和人)、2010~2015年度

## 4.5 予算獲得状況

#### a. 科学研究費補助金

M. C. Newton、若手研究 A、コヒーレントX線回折を用いた時間分解イメージング (TRICXD)、2012 年~2015 年度

#### 4.6 受賞

1) 木村 隆志: 第 43 回松本・羽鳥奨学賞 (電子科学研 究所) 2014 年 03 月

## 4.7 社会教育活動

### a. 公的機関の委員

- 1) 西野 吉則: SACLA ユーザー協同体 評議員 (2013 年 05 月 01 日~2015 年 04 月 30 日)
- 2) 西野 吉則: SPRUC 企画委員会「放射光科学将来ビジョン」作業部会部員 (2013 年 04 月 01 日~2014 年 03 月 31 日)

## b. 併任•兼業

- 1) 西野 吉則: 理化学研究所客員研究員 (2010年04月 01日~現在)
- 2) 木村 隆志: 理化学研究所客員研究員 (2010 年 06 月 ~現在)
- 3) M. C. Newton: 理化学研究所客員研究員 (2010年06月~2013年8月)

## c. 新聞・テレビ等の報道

- 1) 西野 吉則: 小学館 ジャパンナレッジ 2014 年 03 月 24 日 「JK Who's Who: 西野教授の紹介」
- 2) 西野 吉則: 北海道新聞 2014年02月12日「【朝刊2 面】ひと2014 西野 吉則(にしのよしのり)さん -生きた細胞の観察に成功した北大教授-」
- 3) 西野 吉則: TBS「情報 7days ニュースキャスター」 2014年02月01日 「研究成果の図がテレビ放映。」
- 4) 西野 吉則: 時評 2014 年 2 月号 ((株)時評社) 2014 年 02 月 01 日 「X線レーザーを工夫、細胞内部の画像 化に成功 - 北海道大学 電子科学研究所教授 西野吉 則氏-」
- 5) 西野 吉則: 北海道新聞 小樽・後志版 2014 年 01 月 24 日 「【朝刊 30 面】三面鏡-ナノ単位の計測紹介-」
- 6) 西野 吉則: 科学新聞 2014年01月17日 「【4面】X 線レーザーで生きた細胞をナノレベルで観察-北大な

- ど 高コントラスト可視化に成功-」
- 7) 西野 吉則: ナノテクジャパン 2014年01月16日「X線レーザーで生きた細胞をナノレベルで観察することに成功〜生きた細胞を,ナノメートルの分解能で定量的に観察できる手法を世界で初めて確立〜」
- 8) 西野 吉則: QLifePro 医療ニュース 2014年01月16日 「北大らの研究グループ 生きた細胞のナノレベルで の観察に成功」
- 9) 西野 吉則: 日経産業新聞 2014年01月15日「【6面】 生きた細胞の内部ナノレベルで観察-北大など X 線レ ーザーで-」
- 10) 西野 吉則: 北海道テレビ「イチオシ!モーニング」 2014年01月08日 「研究成果の紹介」
- 11) 西野 吉則: 日刊工業新聞 2014 年 01 月 08 日 「【19 面】生きた細胞ナノ観察 X 線自由電子レーザーで-北 大・理研・JASRI-」
- 12) 西野 吉則: 北海道新聞 2014年01月08日「【朝刊1 面】生きた細胞の微細構造観察、【29面】生きた細胞 細 部「撮影」-北大などグループ 新薬開発へ応用期待-」
- 13) 西野 吉則: 朝日新聞 2014 年 01 月 08 日 「【朝刊 7 面】生きた細胞の内部、初めて見た北大、最先端エックス線装置で成功」
- 14) 西野 吉則: OPTRONICS 2014 年 01 月 08 日 「北大な ど, X 線レーザで生きた細胞をナノレベルで観察する ことに成功」
- 15) 西野 吉則: マイナビニュース 2014年01月08日「北 大など、XFEL を用いて生きた細胞のナノレベルでの 観察に成功」
- 16) 西野 吉則: 時事通信社 2014年01月07日 「生きた 細胞の微細構造観察=X線レーザーで「撮影」-世界 初、応用期待・北大や理研」
- d. 北大での担当授業科目(対象、講義名、担当者、期間)
- 1) 工学部、生体工学概論、西野 吉則、2014 年 01 月 15 日
- 2) 工学部、ナノ工学基礎、西野 吉則、2013 年 10 月 01 日~2014 年 03 月 31 日
- 3) 情報科学研究科、バイオナノ工学特論、西野 吉則、2013 年10月01日~2014年03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)、西野 吉則、2013 年 08 月 07 日~2013 年 08 月 09 日
- 5) 全学共通、環境と人間「ナノって何なの? 最先端 光・ナノテク概論」、西野 吉則、2013 年 04 月 19 日~2014 年 04 月 19 日
- 6) 工学部、科学技術英語演習、西野 吉則、2013年04月 01日~2014年03月31日
- 7) 工学部、情報エレクトロニクス演習、木村 隆志、2013 年 04 月 01 日~2014 年 03 月 31 日
- 8) 工学部、生体情報工学実験 1、木村 隆志、2013 年 04 月 01 日~2013 年 09 月 30 日

- 9) 全学共通、フレッシュマンセミナー、木村 隆志、2013 年 04 月 01 日~2013 年 09 月 30 日
- e. 修士学位及び博士学位の取得状況
- 1) 添田 慧: コヒーレント X 線回折イメージングに向けた  $VO_2$ ナノ結晶の合成と評価

## 物質科学研究部門

## 研究目的

本研究部門では、電子科学や生命科学を支える物質創製と物性評価技術をベースとして、光励起ダイナミクスと分子構造および光機能物性との相関解明、生体情報機能を理解するための分子機能材料の創製、トップダウンとボトムアップの両系を繋ぐヘテロ構造を活用したナノーマクロ融合デバイスの創製、低次元電子・イオン輸送現象を解明するための薄膜機能材料・デバイスの創製に取り組んでいます。このような研究は、分子集合体や細胞内のダイナミクスの解明、新規なナノデバイスの創製に貢献します。

## 分子光機能物性研究分野

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、2002.7~2014.3) 特任助教 Awasthi Kamlesh (北大院、理博、2013.4~)

院生

博士課程

Hung-Chu Chiang, Salma Begom

修士課程

遠藤方、大越謙児、向井樹

## 1. 研究目標

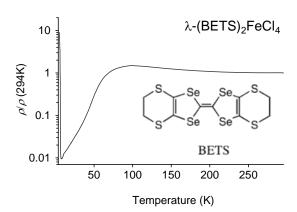
分子や分子集合体に光を照射した時に起こるダイナミクスが外部からの電場や磁場の作用に対してどのような変化を示すのか、光励起に伴う電子構造や準位構造の変化はどうか、また光導電性、電界発光の出現など電気、磁気特性や光電変換特性と光学特性の関係はどうなっているか、等を調べる。これらの結果に基づいて、『光励起ダイナミクス』、『光励起分子の構造』、『光機能物性』がお互いにどのように関係するかを明らかにすると共に、「光誘起超伝導」といった光に関係する全く新しい機能物性の発現を探索する。生体内のダイナミクスと機能およびそれらの電場効果についても、生体内の「場」に着目しながら主に蛍光寿命顕微分光法(FLIM)により調べる。

## 2. 研究成果

### a) 有機物質の電気伝導特性への光照射効果

光および電場を作用させることにより、分子の配向や配列のみならず化学反応や緩和過程を変化させることができる。例えば、電界発光の効率や安定性と密接に関係する発光状態からの無輻射緩和過程を電場によって変化させることができる。このように個々の分子のダイナミクスに変化を与える光と電場は、バルク物質の物性や機能にも大きな影響を与えることが期待される。そこで我々は固体の電気伝導特性に着目し、光と電場を用いた新奇の光機能物性の創出、具体的には金属、半導体、超伝導体間の転移を調べている。今回は、8~Kにおいて金属一絶縁体転移を示す分子性導体であり、強磁場をかけることにより絶縁体状態から超伝導状態へ相転移することが知られている私-(BETS) $_2$ FeCl $_4$ ( $\lambda$ -Fe)を対象として、電気伝導度への光照射効果および電場効果を調べた。

本研究では、 $\lambda$ -Feにパルスレーザー光を照射し、電気 伝導度変化の時間分解測定を行うことで、電気伝導特性に 対する光照射効果を調べた。試料としては電気分解法を用 いて合成した単結晶を用いた。光源にはナノ秒パルス Nd:YAGレーザー(Quanta-Ray, LAB-150)の第3高調波で励 起したOPOレーザー光(GWU versa-scan、波長470 nm、パ



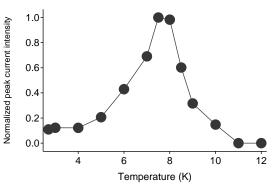


図 1. 294 K で規格化したλ-Fe の抵抗値の温度依存性(上) と 7.5 K で規格化した光電流値の温度依存性(下)

ルス時間幅10 ns)を用いた。単結晶表面に金ペーストと金 線を用いて電極を作成しており、電極間の間隔は0.4-0.5 mmである。定電圧パルスを試料に加え、光照射による電流 値の変化をデジタルオシロスコープ(LeCroy)により測定し ている。試料の温度制御には、液体ヘリウムを利用したク ライオスタット(Oxford Instruments, Optistat-CF)を用いて いる。λ-Feの抵抗値は図1に示すように、室温からの冷却 に伴い抵抗値がやや増加し、約100 Kで極大を示した後減少 に転ずる。そして、約8 K以下で再び急激な増加を示し、金 属相から絶縁相への相転移が確認される。磁場を印加する と超伝導に転ずることが知られているが、磁場のない条件 下では単なる金属である。これらの低温領域において試料 に電圧パルスを加え、光照射を行うと、マイクロ秒からミ リ秒の寿命をもつ光電流が見られ、光照射により電気伝導 度が増加することがわかる。光電流のピーク値を温度に対 してプロットしたものを図1に示すが、金属-絶縁体転移温 度付近で光電流強度が極大値を示し、金属-絶縁体相転移 と光応答とが強い相関を示している。低温側の絶縁相にお いて光電流ピーク強度のレーザー光強度依存性を調べたと ころ、レーザー光強度があるしきい値を超えると光電流強 度が急激に増加する。このような挙動は、私達がこれまで 調べてきた他物質の光誘起相転移において観測される結果 と同様であり、絶縁相のλ-Feに光照射を行うと光誘起相転 移を起こして金属となることを示している。光吸収による 結晶の温度変化の影響についても検討したところ、温度上

昇効果では、観測された光電流値を説明することができず、 熱効果とは異なる光励起効果に基づく絶縁体-金属転移で あることがわかった。

#### b) ヨウ化銀結晶のイオン伝導度への光照射効果

圧や温度を変えると様々な相を取ることが知られているョウ化銀(AgI)結晶は、典型的なイオン固体として知られており、電気伝導度は銀イオンの伝導によるものである。室温付近で安定な相は $\beta$ 型であるが、温度上昇に伴い147  $\mathbb C$ で  $\alpha$ 型へと相転移を起こし、それに伴ってイオン伝導度が約1万倍上昇し、電解質溶液並みの超イオン伝導体となることがよく知られている。これまで、イオン伝導度を制御する手法として、物質をガラス状態にすることや温度を変えることが一般的に行われてきた。しかしながら、イオン伝導特性が光照射によりどのような影響を受けるのかに関しては、あまり知られていないように思われる。

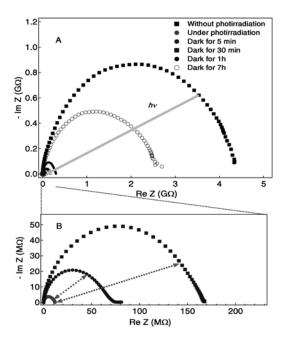


図2. AgI 結晶のコール・コールプロットと光照射効果。 光照射停止後、ある一定時間後に測定したプロットも示す。 温度は77 K。

私達はこれまでに、赤外吸収スペクトル測定に用いる KBrペレット様のAgl多結晶のペレットを作成し、同一表面 上にカーボン電極を付け、両電極間にDC電圧をかけての光電流測定およびAC電圧をかけてのインピーダンススペクトル測定によりイオン伝導度への光照射効果を調べてきた。乳鉢ですりつぶした試料に200kgf/cm²から350kgf/cm²の圧力をかけてペレットを作成した。XRD測定あるいは伝導度測定より、作成当初は・相であるが、経時変化により、あるいはヨウ化カリウム水溶液に浸すことにより安定な・相へと変化することを確認し、各々の相についてコール・コールプロットを測定し、その光照射効果を常温にて、さらには液体窒素温度において測定を行った。図2に示したのは、Agl多結晶に関して77 Kで光を照射する前と光を照射しな

がら測定して得られたコール・コールプロットである。温度の低下と共に抵抗値は増加し、77Kでは光照射前はギガオームのオーダーの抵抗値である。そこに光を照射するとメガオームオーダーと約3桁抵抗値が減少し、イオン伝導度に対する巨大な光照射効果が観測される。光照射を停止すると、図2に示すように抵抗値は徐々に増加する。そこで、途中で再度光照射を行うと、抵抗値は光照射を停止する前の低い抵抗値に戻る。光照射を停止すると、抵抗値は再度増加する。光照射停止後の抵抗値の増加は一定速度で起こることから、停止時間を一定にして、光照射を行うことで、図3に示すようなイオン伝導度の光スイッチング効果を観測することができる。これらの結果は、イオン伝導特性への光照射効果がある条件下では非常に大きなものとなることを示すと共に、かかる光照射効果を利用した光スイッチィング等の光電素子作製への可能性を示すものである。

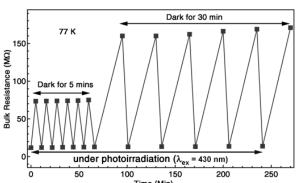


図3. AgI 結晶への光照射で 健時間の光照射停止 (5分および30分) を繰り返して得られる抵抗値のスイッチィング現象。温度は77 K。

## c) 色素増感太陽電池の光電変換効率と電場吸収、電場発光 測定

酸化チタン表面に増感色素を吸着させた試料を用いる 色素増感太陽電池の作製が話題となっている。かかる色素 増感太陽電池においては、光電変換効率の大きさが最も重 要となる。私達は、光電変換効率を調べる手段として電場 吸収および電場発光スペクトル測定が非常に有効である、 と主張している。色素増感太陽電池の初期過程として、増 感色素が光励起後に電荷分離を起こすことが重要であり、 引き続いて分離した正孔と電子の移動度が大きいことが重 要である。そして、これらの情報は電場吸収スペクトルお よび電場発光スペクトルと密接に関係すると思われる。こ のことを実証するために、光電変換効率の異なるポルフィ リン誘導体を用いて、電場吸収および電場発光スペクトル



図4. 電場発光測定に用いた増感色素の分子構造。

を測定し、光電変換効率との関係を調べた。対象とした化 合物は図4に示した3種類のポルフィリン誘導体(YD2、 YD2-oC8、YD30)である。前の二つは構造式からもわかるよ うにポルフィリンに電子供与基と受容基を有するいわゆる プッシュ-プル化合物である。しかも、YD2-oC8を用いて 作製された色素増感太陽電池は、12.3%という世界記録を示 す非常に高い光電変換効率を示すことが報告されている。 これらの化合物を用いた色素増感太陽電池における光電変 換効率はYD2-oC8 > YD2 > YD30の順となっていることが 共同研究者の台湾の国立交通大学のDiau教授により確かめ られている。そこで、これらのポルフィリン誘導体を色素 増感太陽電池作製時と同様に、TiO。ナノ粒子に吸着させた ものを作製し、電場発光スペクトルを測定した結果が図5 に示してある。この図に見られるようにプッシュープル化 合物の場合は、電場による蛍光強度の減少、いわゆる電場 消光が観測されるのに対し。電子受容基を有さないYD30 は逆にわずかに蛍光が増加する。しかもYD2-oC8の方が YD2よりも電場消光の効率が大きい。すなわち、これらの 分子の蛍光の電場消光は太陽電池における光電変換効率の 大きさと強い相関を有することがわかる。 プッシュープル 化合物の場合は、光励起により大きな電気双極子モーメン トを有する電荷分離状態が生成するためにその後のキャリ アー生成も効率が良いと考えられる。一方、電子供与基を 有さないYD30は、TiO2への電荷注入を容易にする電荷分離 状態が生成しないために電場発光の消光が観測されないと 考えている。このように電場発光測定は光励起によって生 じる電荷分離状態からの電子および正孔のキャリアー生成 効率を反映すると考えられることから、光電変換効率の大 きさおよび機構を調べるための有効な手段となると考えら れる。

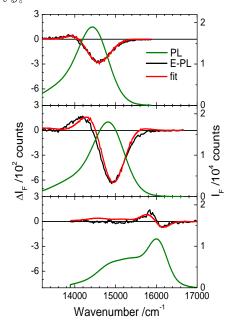


図 5.  $TiO_2$ に吸着させた増感色素の発光スペルトル、 $0.1\,\text{MV/cm}$  の電場の強さで測定された電場発光スペクトルおよびそのシミュレーション(上から YD2、YD2-oC8、YD30)。

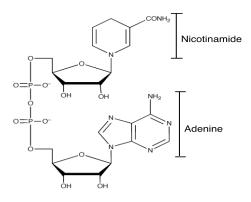


図 6. NADH の分子構造。

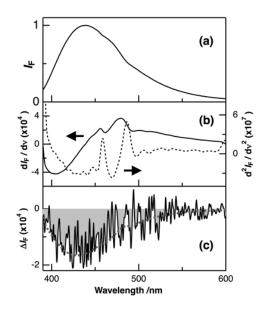


図 7. PVA 中における NADH の発光スペクトル (上) 発光スペクトルの一次微分と二次微分 (中)、電場発光スペクトルとシミュレーション (下)。電場の強さは 0.7 MV/cm。

#### d) NADHの吸収発光への電場効果

ニコチンアミドアデニンジヌクレオチド(NADH、構造は図 6参照)は生体内で酸化還元反応およびエネルギー代謝にお いて重要な役割を果たす補酵素であり、それ自身が発光を 示すいわゆる自家蛍光種として良く知られている。そして、 この自家蛍光の蛍光特性を調べることにより、例えば細胞 内のプロトン濃度(pH)に関する情報を得ることができる。 pHが異なってもNADH蛍光強度イメージングにその違いを 見いだすことは容易ではないが、蛍光寿命はpHに依存して 大きく異なる。pHが大きくなるにつれて蛍光寿命は単調に 減少する。したがって、NADHの蛍光寿命を測定すること により、細胞内pHを知ることができる。しかも細胞内の蛍 光寿命は細胞内で一定ではなく、ばらつきがある。例えば、 NADHが多く含まれるミトコンドリアに比較して、核に含 まれるNADHの蛍光寿命は短い。私達はこの蛍光寿命のpH 依存性および細胞内の不均一性の原因として、細胞内にお ける局所電場の存在、およびそれらの不均一性によるもの ではないかと考えている。そこで、NADHをポリビニルアルコール(PVA)に分散させた試料を作製し、NADHに電場を施した場合に蛍光特性はどのように変化するかを調べた。図7に示したのはPVA中におけるNADHの蛍光スペクトルと電場を印加した際に蛍光特性がどのように変化したかを示す電場発光スペクトルである。この結果からわかることは、電場による蛍光消光が観測される、すなわち無輻射過程が電場により促進される、ということである。実は、NADHの蛍光寿命の溶媒極性依存性も調べたところ、極性が大きくなるにつれて蛍光寿命は減少し、発光収率が減少することも確認され、NADHへの局所場効果は明らかに、蛍光寿命の減少へと導いていることがわかる。これらの結果からNADHの蛍光寿命のpH依存性および細胞内の蛍光寿命のばらつきはNADHの周囲の局所電場効果に基づいていると考えている。

## 3. 今後の研究の展望

光と電場により絶縁体-金属転移を誘起できることは示 すことができた。今後の課題は、光誘起超伝導現象がある かどうかを調べることである。イオン伝導特性に関しても、 光によって誘起される超イオン伝導特性を見つけることが できれば、基礎研究としてだけではなく、応用面でも非常 に重要となる。イオン伝導度の大きな物質の合成等に関す る研究は多々あるけれども、その特性を光により制御、あ るいは促進させるといったことはこれまでほとんど注目さ れていないことも、イオン伝導度への光照射効果の新規性 を確信する。また、生体内の局所電場に着目しながら、蛍 光寿命顕微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研究 は、空間分解能の向上と共にその重要性は増していくもの と考えている。そして、外部からの時間幅の小さなパルス 電場を作用させて、細胞内のダイナミクスや機能を制御す る、といった研究は、正常細胞と癌細胞に対する違いを調 べること等を通して、医療の診断や治療に応用されるよう になると期待している。

## 4. 資料

#### 4.1 学術論文等

- H.-C. Chiang, N. Ohta: "Electric field effects on fluorescence spectra of pyrene in solution", J. Phys. Chem. B, 117(14), 3861-3866 (2013)
- T. Iimori, M. Fujiwara, N. Ohta: "Photoirradiation effect on magnetic susceptibility in organic superconductiors", Molecular Crystals and Liquid Crystals, 578(1), 44-49 (2013)
- Serajul Md. Islam, Masato Honma, Takakazu Nakabayashi, Masataka Kinjo, Nobuhiro Ohta: "pH Dependence of the fluorescence lifetime of FAD in solution and in cells", Int. J.

- Mol. Sci. 14:1952-1963 (2013)
- N. Ohta: "Electric field effects on photoinduced dynamics and function" Pure and Applied Chemistry, 85(7), 1427–1435 (2013)
- T. Iimori, Y. Hatakeyama, K. Nishikawa, M. Kato, N. Ohta: "Visible photoluminescence of gold nanoparticles prepared by sputter deposition technique in a room-temperature ionic liquid", Chemical Physics Letters, 586, 100-103 (2013)
- 6) H.-Y. Hsu, H.-C. Chiang, J.-Y. Hu, K. Awasthi, C.-L. Mai, C.-Y. Yeh, N. Ohta, E. W.-G. Diau: "Field-induced Fluorescence Quenching and Enhancement of Porphyrin Sensitizers on TiO2 films and in PMMA Films", J. Phys. Chem. C, 117(47), 24761-24766 (2013)
- 7) 中林孝和、太田信廣: "蛍光寿命イメージングによる 細胞観察"、生物物理 53(3):166-169 (2013)

#### 4.2 講演

### a. 招待講演

## i ) 学会

- 1) 太田信廣: "Electric Field Effects on Photoinduced Dynamics and function"、第29回化学反応討論会、仙台 (2013-06)
- 2) N. Ohta: "Electric Field Effects on Photoinduced Dynamics and Function of Organic Molecular"、平成 25 年度 化学系学協会東北大会及び日本化学会東北支部 70 周年記念国際会議、仙台(2013-09)
- N. Ohta: "Fluorescence Lifetime Microscopy and Its Application to Biological Science", The Fourth Asian Spectroscopy Conference 2013, Singapore (2013–12)

## ii )研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 太田信廣:「蛍光寿命顕微分光とその応用:細胞内ダイナミクスおよび機能と電場効果」、京都大学ー細胞統合システム拠点センター、京都(2013-11)
- 2) 太田信廣:「蛍光寿命顕微分光とその応用:細胞内ダイナミクスおよび機能と電場効果」、浜松医科大学メディカルフォトニクス研究センター講演会、浜松(2013-12)

#### b. 一般講演

## i )学会

- N. Ohta, Hung-Chu Chiang: "Application of Stark Spectroscopy to Photochemical Reactions of Materials in Solution"、第 29 回化学反応討論会、仙台 (2013-06)
- 2) 中林孝和、Islam Md. Serajul、本間将人、太田信廣: 「自家蛍光寿命イメージングを用いた細胞内 pH のその場測定と機構の解明」、2013 年光化学討論会、松山(2013-09)
- 3) 古川一輝、日野和之、山本典史、中林孝和、太田信廣、関谷博:「4'-N,N-dimethylamino-3-hydroxyflavone

- の蛍光分光によるアセトニトリル固相/固相相転移の 高感度プローブ」、2013 年光化学討論会、松山 (2013-09)
- 4) 飯森俊文、生沼要、太田信廣:「金属-絶縁体相転移 を示す分子性導体 λ-(BETS)<sub>2</sub> FeCl4 の光照射による電 気伝導度変化の時間分解測定」、2013 年光化学討論会、 松山(2013-09)
- 5) 古川一輝、日野和之、山本典史、中林孝和、太田信 廣、関谷博:「アセトニトリルの固相/固相相転移に 伴う環境変化の蛍光プローブ」、第7回分子科学討論 会、京都(2013-09)
- 6) 中林孝和、大島瑠利子、太田信廣:「外部電場の印加 による光機能性材料の光励起ダイナミクス変化:励 起状態電荷分離過程」、第7回分子科学討論会、京都 (2013-09)

#### 4.3 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) 中林孝和、新学術領域研究、三光子励起自家蛍光寿命 イメージングを用いた細胞内環境変化のその場測定 (2012-2013 年度)

#### b. 受託事業等

1) 太田信廣、大学連携研究設備ネットワークによる設備 相互利用と共同研究の促進共同事業 (2013 年度)

### 4.4 社会教育活動

## a. 公的機関の委員

- 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:九州大学非常勤講師(2012年4月1日~2013年3月31日)
- 4) 太田信廣、千歳科学技術大学、修士論文の審査委員

## b. 国内外の学会の役職

- 1) 太田信廣:日本分光学会生細胞分光部会幹事
- 2) 太田信廣:日本分光学会代議員
- 3) 太田信廣:日本化学会北海道支部 支部長
- 4) 太田信廣:分子科学会運営委員会委員
- 5) 中林孝和:日本分光学会編集委員会常務委員
- 6) 中林孝和:日本レーザー医学会編集委員会査読委員
- 7) 中林孝和:日本化学会北海道支部庶務幹事
- 8) 中林孝和:日本化学会北海道支部夏季研究発表会プログラム委員

#### c. 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) 環境科学院、光分子化学特論、太田信廣
- 9) 環境科学院、環境物質科学実習 I 、中林孝和
- 10) 環境科学院、環境物質科学実習Ⅱ、中林孝和
- 11) 環境科学院、環境物質科学論文購読 I 、中林孝和
- 12) 環境科学院、環境物質科学論文購読Ⅱ、中林孝和
- 13) 環境科学院、環境物質科学特別研究 I 、中林孝和
- 14) 環境科学院、環境物質科学特別研究Ⅱ、中林孝和
- 15) 環境科学院、環境物質科学基礎論 I、中林孝和
- 16) 環境科学院、光分子科学特論、中林孝和
- 17) 環境科学院、分子環境学特論Ⅱ、中林孝和

## d. 修士学位及び博士学位の取得状況

- ·博士学位(環境学博士)
- Chiang Hung-Chu: "Study on Electroabsorption and Electrophotoluminescence of Optoelectronic Functional Materials in Solution"

## スマート分子材料研究分野

教 授 玉置信之 (千葉大院、工博、2008.10~) 助 教 亀井 敬 (東北大院、工博、2008.10~) 深港 豪 (九州大院、工博、2008.12~)

特任助教 Yuna Kim (Yonsei University、工博、 2011.8~)

博士研究員 越智里香 (2013.4~2014.3) 事務補助員 大木真理子 学 生

博士課程

Nishad Perur, Sunilkumar K R, Rijeesh K, Halley M M, Islam MD. Jahirul, Amrutha A S

修士課程 伊藤誠一郎、中本良之

学部生 古田龍太 研究生 吉田一迅

## 1. 研究目標

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

## 2. 研究成果

われわれのからだの中では、ナノメートル(0.000000001m)サイズの機械、いわゆる分子機械が活躍している。その生体由来の分子機械を生体外に取り出し、その働きを人の手で制御できれば、従来の固く嵩張る機械とは異なる "しなやかでコンパクトな機械"を、新たに人が利用できることにつながる。これまでに、生体の分子機械を取り出してその働きを計測する手法は確立されてきたが、その働きの人工的な制御についての研究は不十分だった。生体由来の分子機械の一つであるキネシンは、微小管という直径 25 ナノメートル、長さ数ミクロンのチューブ状のレールの上をナノサイズの荷物を背負って歩く。その際のエネルギー源は、酵素でもあるキネシンを触媒とする ATP(アデノシン三リン酸)の加水分解反応で得られる化学エネルギーである。歩く速さは、毎秒1ミクロン程度である。本

研究グループは、これまでに、光刺激によって可逆的に分子構造を変化させるアゾベンゼン部位を ATP に導入する 方法またはアゾベンゼン部位を元にした非ヌクレオシド三 リン酸を ATP の代わりのエネルギー化合物として用いることで、その活性を光で可逆的に変化させ、キネシン一微小管の運動速度を最大80%変化させることに成功している。しかし、様々な応用を考えると、運動を完全に ON-OFF 制御できることが望ましい。そこで本年度は、光刺激によってその働きがスイッチされる阻害剤を新たに設計、合成し、それをキネシン一微小管モータータンパク質系に加えることで、キネシンの運動活性が完全に光 ON-OFF 制御できることを見出した。

光応答性阻害剤の分子設計には、キネシン自身が有して いる自己阻害機構を利用した。もともと、キネシンのテー ル部(C末端)は、ベシクルなどの荷物を付ける役割を果 たしているが、荷物がついていない時には、ATPを無駄に 消費しないように、モータドメインの近くのネックリンカ 一部と相互作用して、ATPの加水分解を阻害する働きを有 している。すでにテール部のアミノ酸配列を有するペプチ ドを合成して、モーティリティーアッセイ系に加えること である程度の阻害効果が見られることが報告されていた。 本研究グループではそのテール部由来の20アミノ酸残基 からなるペプチドのアミノ基末端にアゾベンゼンを化学結 合によって導入した化合物を合成し、その運動活性に対す る阻害効果と光照射による阻害効果の変化を調べた。興味 深いことにアゾベンゼンを導入することで、ペプチドだけ の時よりも最大阻害効果は大きくなることがわかった。し かし、運動活性を完全に止めることはできなかった。また、 紫外線を照射してアゾベンゼン部位をトランス構造からシ ス構造にした時に、阻害効果は弱くなるものの、運動速度 の回復は小さかった。様々なアミノ酸配列を検討した結果、 元のテール部のペプチド構造とアミノ酸のメンバーは同一 で配列が完全に逆の11アミノ酸とアゾベンゼンからなる アゾペプチド1(図1)が最も良好な働きを示すことが判明 した。すなわち、本アゾペプチドを添加した場合、光照射 前には、阻害剤の働きにより、ATPが存在しているにもか かわらずキネシンが全く運動しなかった(実際には、キネ シンをガラス基板に固定しているので、キネシンの運動に より細長い微小管が滑走する様子が、蛍光顕微鏡で観察さ れる)。そこに紫外光を照射すると、阻害剤の分子構造が 変化し、十分な速度の微小管の滑走運動が観測された。続 いて、青色光を照射すると阻害剤の分子構造が元に戻り、 微小管の動きが止まった。この変化は何度でも繰り返すこ とが出来た(図2)(図3)。

図1. アゾペプチド1の分子構造

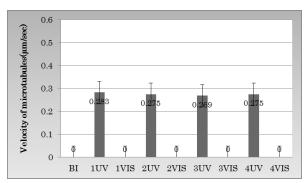


図2. 微小管の滑走運動の速度に対する光照射の効果: アゾペプチド1を含む。BI は光照射前、UV は紫外線照射後、VIS は可視光照射後を示し、その前の数字は、1回目、2回目などのサイクルを示す。紫外線照射後には、微小管は十分な速度で滑走し、可視光照射後には完全に止まった状態であることがわかる。

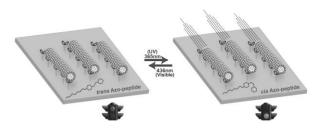


図3. 今回のキネシンー微小管モータータンパク質系の光制御を 表す模式図

## 3. 今後の研究の展望

今回の研究成果は、人が生体内の分子機械を利用するための第一歩であると考えられる。今後は、集光した光を使って一定の場所のキネシンだけを働かせたり、光を走査することで働くキネシンの場所を自由に変化させたりできることを証明し、ナノ物質移動などの実際の応用を示していく必要がある。

## 4. 資料

## 4.1 学術論文等

- P. Nishad, M. Yahara, T. Kamei, N. Tamaoki: "A non-nucleoside triphosphate powering kinesin-microtubule motility with photo-tunable velocity", Chemical Communications, 49: 9935-9937(2013)
- Y. Kim, M. Wada, N. Tamaoki: "Dicholesteryl icosanedioate as a glass-forming cholesteric liquid crystal: properties, additive effects and application in color recording", Journal of Materials Chemistry C, 2: 1921-1926 (2014)
- 3) E. Sunamura, T. Kamei, H. Konno, N. Tamaoki, T. Hisabori: "Reversible control of F1-ATPase rotational motion using a photochromic ATP analog at the single

molecule level", Biochemical and Biophysical Research Communications, 358–363 (2014)

## 4.2 総説、解説、評論等

- Nobuyuki Tamaoki: "Chapter 14 Photo-control of new molecular functions by the Isomerization of Azobenzene", New Frontiers in Photochromism, Springer: 273-293 (2013)
- Nobuyuki Tamaoki: "Molecular Machines Based on Liquid Crystal", Handbook of Liquid Crystals: (8) 865–877 (2014)

#### 4.3 講演

#### a. 招待講演

## ii ) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- T. Fukaminato, T. Kamei, N. Tamaoki: "Photoswitching of biological functions based on the photoisomerization of azobenzenes", Asian International Symposium, Nagoya University, Nagoya (2014-03)
- N. Tamaoki: "Reversible Control of Motility of Motor Proteins by Photoisomerization of Azobenzene", International Symposium on Photochromism 2013, Humboldt-Universität zu Berlin (2013-09)
- 3) 亀井敬:「フォトクロミック化合物を用いたキネシンー 微小管系の運動の可逆的光制御」、第3回分子モータ 一討論会、東京大学農学部(2013-07)
- 4) 深港豪:「光応答性分子材料を用いた微小管ダイナミクスの光制御」、蛋白研セミナー"光の、光による、光のための蛋白質科学"、大阪大学吹田キャンパス(2013-04)

## b. 一般講演

- 1) 越智里香、玉置信之:「リン酸基を有する水溶性アゾベンゼン誘導体の高速cis-trans熱異性化挙動とそのpH・添加物依存性」、日本化学会第94春季年会、名古屋大学東山キャンパス (2014-03)
- 2) 深港豪、Jia Su、Rémi Metivier、中谷圭太郎:「蛍光性ジアリールエテンナノ粒子における非線形蛍光消光現象を利用した蛍光スイッチング」、日本化学会第94春季年会、名古屋大学東山キャンパス (2014-03)
- 3) 深港豪、玉置信之:「両親媒性アゾベンゼン誘導体を用いた微小管機能の光制御」、2013年光化学討論会、愛媛大学 城北地区(2013-09)

## ii )研究会・シンポジウム・ワークショップ

- N. Perur, M. Yahara, T. Kamei, N. Tamaoki: "A non-nucleoside triphosphate for powring kinesin-microtubule motility with photo-tunable velocity", The 14th RIES-Hokudai International Symposium, Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (2013-12)
- 2) Y. Kim, M. Wada, N. Tamaoki: "Rewritable photon-mode color recording based on cholesteric liquid crystal", The

- 14th RIES-Hokudai International Symposium, Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (2013-12)
- Y. Kim, N. Tamaoki: "Novel Liquid-crystalline organic semiconductors based on thieno[3,2-b]thiophene for organic field-effect transistors", ICFPE2013, The Shilla Hotel, Jeju Island (2013-09)
- T. Fukaminato, N. Tamaoki: "Photoswitching of Microtubule Dynamics based on Azobenzene Photoisomerizations", International Symposium on Photochromism 2013, Humboldt-Universität zu Berlin (2013-09)
- 3) T. Kamei, N. Tamaoki: "Driving motor proteins with reversible photo-controlled motilities by a photochromic ATP analogue", International Symposium on Photochromism 2013, Humboldt-Universität zu Berlin (2013-09)

#### 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) 玉置信之、基盤研究(C)、分子のピストン運動から仕事 を生み出す分子機能の創成、2012~2014年度
- 2) 深港豪、若手研究(A)、光スイッチング型RESOLFT超 解像蛍光顕微鏡のための蛍光スイッチング分子の開 発、2012~2014年度
- 3) 亀井敬、若手研究(B)、新規フォトクロミックATPアナログによるキネシンモーター機能の可逆的な光制御、2012~2013年度

## b. 大型プロジェクト・受託研究

1) 玉置信之、川合最先端プロジェクト、ゲーティングナ ノポアによる1分子検出・識別技術の開発、2012~2013 年度

#### 4.5 社会教育活動

#### a. 国内外の学会の役職

- 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. 北大での担当授業科目 (対象、講義名、担当者、期間)
- 1) 全学共通、環境と人間-ナノって何なの? 最先端 光・ ナノテク概論、玉置信之、2013年7月26日
- 2) 全学共通、環境と人間-生体機能高分子が拓く先端生命 科学 I、玉置信之、2013年7月10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Ⅱ、玉置信之、2014年1月15日
- 4) 理学部、生物系の熱力学、玉置信之、2013年4月5日~ 2013年6月4日
- 5) 生命科学院、生命物質科学特論(分子組織科学)、玉置信之、2013年7月8日~2013年7月31日
- 6) 全学教育科目、化学 I、玉置信之、2013年 4 月10日~ 2013年7月24日

- 7) 生命科学院、生命融合科学概論(生体機能を合成する)、 玉置信之、2013年5月16日
- 8) 全学教育科目、国際交流科目「Current Topics in Science and Technology」、キム ユナ、2013年4月10日~2013年7月24日
- 9) 全学教育科目、一般教育演習フレッシュマンセミナー 「物質科学の最前線ー固体電子物性からソフト有機分 子まで一、亀井 敬・深港 豪、2013年4月10日~2013 年7月25日

#### d. ポスドク・客員研究員など

- ・ポスドク (1名)
- 1) 越智里香

#### h. 修士学位及び博士学位の取得状況

- ・博士課程(1名)
- 1) Nishad Perur (北海道大学大学院生命科学院)
  「Driving and Reversible Controlling of Motor Proteins by Photochromic Non-nucleoside Triphosphates

## ナノ構造物性研究分野

教 授 石橋 晃 (東大院、理博、2003.01~) 准教授 近藤憲治 (東北大院、工博、2003.04~) 助 教 海住英生 (慶大院、工博、2004.09~2013.09) 院 生

博士課程

山形整功

修士課程

坂下友規、谷口朝哉

## 1. 研究目標

視点をアトム(Atom)・ビット(Bit)・エネルギー(Energy)/ 環境(Environment)空間「ABE<sup>2</sup>空間]において、今後ナノテ ク・ナノサイエンス分野で得られる新しい効果や機能を既 存のSiベースのITインフラ構造と接続し相乗効果を引出し つつナノとマクロを結合することを目指している。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。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・統合による和集合の)観点から取組んでいる。両者 の構成原理が大きく異なるため、勿論容易ではないが、も しトップダウン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。

スパイラルヘテロ構造を基に、極限高清浄環境を実現す るクリーンユニットシステムプラットフォーム (CUSP)を 利用して、金属薄膜のエッジ同士が対向した量子十字デバ イス、特に次世代超高密度メモリーや、高効率の光電変換 素子創製を目指している。トップダウン系に対するアンチ テーゼとして最近その重要性が認識されてきた一つの流れ は、自律分散型相互作用など内在的ルールにより構造が決 まっていくボトムアップ系である。バイオ系に代表される 自律分散系の他、たとえば半導体量子ドットなど無機物の セルフアセンブル系を含め、広くボトムアップ系に期待が 集まっている。しかしながら、両系は未だに専ら独立で、 トップダウン、ボトムアップ両系の間に橋渡しすることは 極めて重要にも係らず、未だ実現されていない。当研究室 では、このような課題を解決しながら、新しい量子機能を 創出することを目指した研究を実験と理論の両面から進め ている。

## 2. 研究成果

- (a) トップダウン系とボトムアップの接続の基礎、及び、 スパイラルヘテロ構造応用素子
- (a1) 新型光電変換素子と極限高清浄環境 (Clean Unit System Platform: CUSP) の展開

フォトンの進行方向とフォトキャ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 変換素子であるマルチストライプ半導体フォトンフォトキ ャリア直交型太陽電池(MOP3SC)を導波路結合型へと進化 させた。従来型素子は、光の進行方向と生成したフォトキ ャリアの進行方向が平行であるために、光吸収とフォトキ ャリアの捕集の間にトレードオフがあったが、図1右上の 構造図に示すように、光電変換素子の側面からpn接合に沿 って光を導入することで、光の進行方向と生成したフォト キャリアの進行方向を直交させることができ、光吸収とフ オトキャリア捕集の同時最適化が可能となる。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この光電変換素子と、上部に回 折格子を有する導波路と結合させることで、空間伝播光か ら平面導波光と転化したフォトンを以って高効率の集光型 太陽光発電システムとなる。今後、素子の性能向上と共に、 導波路構造の最適化を行う。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であるマルチストラ イプ半導体フォトンフォトキャリア直交型太陽電池 (MOP3SC)を導波路結合型へと進化させてゆく。

また、トップダウン系とボトムアップ系を繋ぐための環境、並びに、上記次世代素子作製のプロセス環境としての超高清浄クリーンユニットシステムプラットフォーム (CUSP) を人が内部に入れるタイプへと進化させ、従来型のクリーンルームでは対応できない一般家庭用の超高清浄部屋を開発した。高齢者や乳幼児など、環境弱者といわれる人々の安寧に資すると期待される。特に、昨今問題として急浮上したPM2.5問題や花粉症対策としても大変有効で

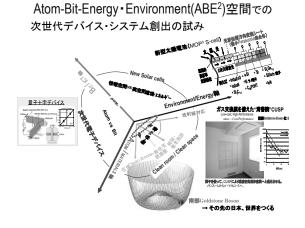


図1. ABE<sup>2</sup> 空間における展開

あると期待される。

## (a2) Co/Alq<sub>3</sub>/Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>接合における電気磁気特性

近年、分子材料を用いた新たなスピントロニクス研究分野が注目を集めている。一般的に分子材料は炭素や水素などの軽元素で構成されるため、スピン軌道相互作用が小さい。したがって、スピンの向きを保持するスピンコヒーレンス長が長くなる。このため、分子材料を用いたスピントロニクスデバイスが新たなスピン輸送素子として期待されている。今回、我々は、Co、及び、Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>強磁性層の間にtris(8-hydroxyquinolinato)aluminium[トリス(8-キノリノラト)アルミニウム](Alq<sub>3</sub>)分子材料を挟んだCo/Alq<sub>3</sub>/Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>接合を作製し、その電気磁気特性を調べた。

 $Co/Alq_3/Ni_{75}Fe_{25}$ 接合の作製には真空蒸着法を用いた。各層のパターニングにはメタルマスクを用いた。図2に作製した素子構造を示す。Co上部電極の磁気異方性は膜の面内長手方向に付与した。 $Ni_{75}Fe_{25}$ 下部電極の磁気異方性は膜の面内横方向に付与した。Co、及び、 $Ni_{75}Fe_{25}$ の膜厚はそれぞれ10-40 nm、 $Alq_3$ の膜厚は10-100 nmとした。接合部のサイズは $80\times80~\mu$  m²とした。各層の表面状態観察には原子間力顕微鏡(AFM)を用いた。 $Ni_{75}Fe_{25}$ とCoの磁化状態評価には集光型磁気光学カー効果(MOKE)、及び、超伝導量子干渉素子(SQUID)磁力計を用いた。作製した素子の磁気抵抗(MR)効果測定には磁場中直流4端子法を用いた。低温測定にはクライオスタットを用い、温度範囲は4.2-300 Kとした。

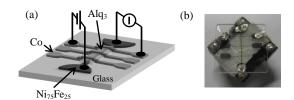


図2. Co/Alq<sub>3</sub>/Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>接合の(a)構造と(b)写真。

図 3 に MOKE により室温にて測定した Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>(35.3 nm)/Glass、及び、Co(38.8 nm)/Glassの磁気ヒステリシス曲線を示す。図3よりNi<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>の保磁力は11 Oe、Coの保磁力は30 Oeとなり、典型的な軟磁性を示すことがわかった。図4にSQUIDにより低温にて測定した同材料の磁気ヒステリシス曲線を示す。図4より、T=10,77,300 Kでは、Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>の保磁力はそれぞれ、29,14,10 Oe、Coの保磁力は77,51,25 Oeとなることがわかった。MOKE、及び、SQUID測定による室温での保磁力は、Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>、及び、Coともに良い一致を示した。また、低温下では、温度減少に伴い保磁力が大きくなることがわかった。

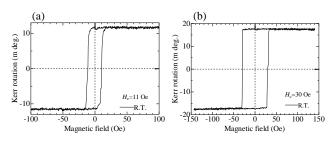


図3. MOKEにより測定した(a) Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>(35.3 nm)/Glass、及び、 (b) Co(38.8 nm)/Glassの磁気ヒステリシス曲線。

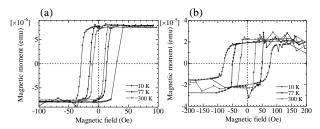


図4. SQUIDにより測定した(a) Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>(35.3 nm)/Glass、及び、 (b) Co(38.8 nm)/Glassの磁気ヒステリシス曲線。

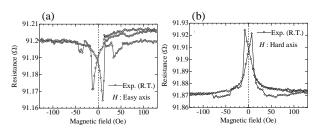


図5. Co(26.1 nm)/Alq<sub>3</sub>(40 nm)/Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>(18.2 nm)/Glassにおける室温でのMR効果。

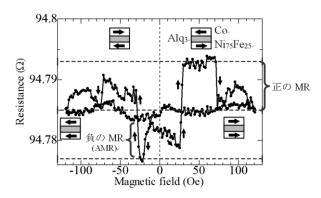


図6. Co(26.1 nm)/Alq<sub>3</sub>(40 nm)/Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>(18.2 nm)/Glassにおける77 KでのMR効果。

図5にCo(26.1 nm)/Al $q_3$ (40 nm)/Ni $_{75}$ Fe $_{25}$ (18.2 nm)/Glassにおける室温でのMR効果を示す。図5(a)はCo、Ni $_{75}$ Fe $_{25}$ 強磁性層の磁化容易軸に対して平行に磁場を印加したときのMR効果である。図5(b)はCo、Ni $_{75}$ Fe $_{25}$ 強磁性層の磁化容易軸に対して垂直に印加したときのMR効果である。外部磁場方向によってMRの符号が変化することから、本効果は異方性磁気抵抗(AMR)効果であると考えられる。

図6にCo(26.1 nm)/Alq $_3$ (40 nm)/Ni $_{75}$ Fe $_{25}$ (18.2 nm)/Glassにおける77 KでのMR効果を示す。 $\pm 25$  Oe付近に見られる負のMR効果はAMR効果であると考えられる。それに対し、磁場の絶対値がと30-75 Oeの間では正のMR効果が見られる。これはSQUIDによる磁気ヒステリシス曲線との対応から、スピン信号を観測できていると考えられる。すなわち、CoとNi $_{75}$ Fe $_{25}$ の磁化方向が平行であるときは抵抗が小さく、反平行のときは抵抗が大きい。本実験によりスピン信号が得られたことから、Alq $_3$ のスピンコヒーレンス長は77 Kにて少なくとも40 nm以上を示すことがわかった。

#### (b1) 2次元金属電極における自由電子近似の妥当性

電子デバイスなどにおいて、一般的に輸送特性を計算する場合、電極は2次元や3次元の自由電子と考えて、自由電子のフェルミレベルでの状態密度のみを使用して計算を行う。しかしながら、実際の金属電極は、自由電子ではなく、クーロン相互作用を行っている電子の集合である。最近ではナノテクノロジーの進歩で電極も本当の意味で2次元的に作製できる。そこで、今年度は、電子相関をGW近似で取り込んで、2次元電極での準粒子のエネルギー分散を求めた。2次元金属電極における自由電子の分散とGW近似で計算された準粒子の分散を比較し、自由電子近似の妥当性を考察した。2次元金属をrs=1.5相当の密度を有する2次元電子ガスと近似して、絶対零度での準粒子の分散を求めた。図7は、フェルミ波数での1電子スペクトル関数のエネルギー依存性の計算結果である。

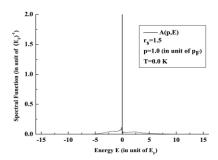


図 7: スペクトル関数のエネルギー依存性(P=P, T=0 K)。

これを見るとわかるように、フェルミ面では、準粒子のピークはデルタ関数となり、寿命は無限であることがわかる。このような1電子スペクトル関数をすべての波数に渡ってプロットした結果が図8である。これが2次元電子ガスでの相関を考慮したエネルギー分散である。

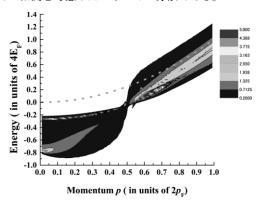


図 8: 2 次元電子ガスのエネルギー分散 (GW 近似)。

これを見るとわかるようにフェルミ面近傍に限って自由電子近似は妥当であるとわかる。図 9 に計算に用いたハミルトニアンとファインマン図を示す。GW 近似では、Vertex 関数を  $\delta$  関数で近似している。

$$H = \sum_{k\sigma} \frac{\hbar^2 k^2}{2m} a^{\dagger}_{k\sigma} a_{k\sigma} + \frac{1}{2L^d} \sum_{q \neq 0} \sum_{k\sigma} \sum_{\mathbf{k'}, \mathbf{c'}} V_q a^{\dagger}_{\mathbf{k}+q\sigma} a^{\dagger}_{\mathbf{k'}-q\sigma'} a_{\mathbf{k'}, \mathbf{c'}} a_{k\sigma}$$

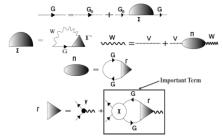


図 9: ハミルトニアンとファインマン図。

# (b2) 障壁を介したトポロジカル絶縁体から正常金属への スピン注入

図 10 のような構造において、トポロジカル絶縁体(TI)から正常金属へのスピン注入を考察した。

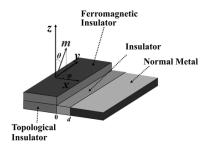


図 10: 磁性絶縁体を蒸着した TI /Insulator/Semi conductor 素子の概念図。

トポロジカル絶縁体には磁化mを有する磁性絶縁体を蒸着し、その磁化mの大きさと方向を極角 $\theta$ と方位角 $\varphi$ を変化させることで、トポロジカル絶縁体の時間反転対称性を破ることにより、トポロジカル絶縁体のバンドを変化させて、スピンコンダクタンスを計算した。そして、そのスピンコンダクタンスの絶縁バリア幅の依存性を考察した。その結果、スピンコンダクタンスは磁化mの方向に敏感であり、それは Dirac-Cone のバンドが開くことならびにシフトすることが原因であることが分かった。また、バリア幅に対しては緩やかに変化することもわかった。これは、バリア幅がフェルミ波長より十分小さいことによるものである。結果の例として、図 11 にスピンコンダクタンスのバリア幅依存性と方位角 $\varphi$  依存性を示す。

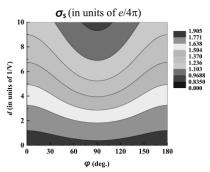


図 11: Spin conductance のバリア幅並びに方位角  $\varrho$  依存

## 3. 今後の研究の展望

トップダウン系とボトムアップ系の接続・統合を Generating function として、デバイスベース並びにプラットフ ォームベースのアプローチを進めていく。デバイスベース 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 Dad 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、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をさら に深く掘り下げ、マヨナラ粒子が関与する場合について取 り組む予定である。さらに、ラシュバスピン軌道相互作用 ならびに Dresselhaus スピン軌道相互作用は、ゲージ場の観 点からみ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、既存のスピン現 象においても、位相不変量が隠れていることも十分考えら れるので、それらの探索も行う予定である。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。

今後も図1に示すアトム(Atom)・ビット(Bit)・エネルギー(Energy)/環境(Environment)空間 [ABE<sup>2</sup>空間] において、AB平面では、上記量子十字素子を次世代の高機能電子デバイスとして、BE平面では、フォトン・フォトキャリア直交型高効率太陽電池を、そしてAE平面では、プラットフォームベースのアプローチとして、廉価にして高性能であるCUSP技術を展開し、"Clean space for the rest of us"の観点で製造環境としてはもとより、医療や養護・療養環境としてもCUSPの機能性を高め、社会へのフィードバックへとつなげていく予定である。量子十字素子は、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へ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、トップダウンー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。

## 4. 資料

#### 4.1 学術論文等

T. Matsumoto, W. Kai, T. Fukushima, M. Takahashi, A. Ishibashi, H. Kobayashi, Improvement of minority carrier lifetime by HCN treatments, ECS J. Solid State Sci. Technol. 2 Q127-Q130 (2013)

- K. Kondo: "Spin transport in normal metal/insulator/topological insulator coupled to ferromagnetic insulator structures", J. Appl. Phys. Vol.115, pp. 17C701-1 - 17C701-3 (2014).
- K. Kondo, H. Kaiju and A. Ishibashi: "Focused Magneto-Optic Kerr Effect Spectroscopy in Ni75Fe25 and Fe Ferromagnetic Thin Films on Organic Substrates", *Jpn. J. Appl. Phys.* Vol.52, pp. 013001-1- 013001-5 (2013).
- 4) M. D. Rahaman, H. Kaiju and A. Ishibashi: "Ultra-high cleanliness of ISO class minus 2 realized by clean-unit system platform for integrating the bottom-up and top-down systems", *Dhaka Univ. J. Sci.*, 61(2): 157-160 (2013)
- 5) Y. Yoshida, K. Oosawa, S. Watanabe, H. Kaiju, K. Kondo, A. Ishibashi and K. Yoshimi: "Nanopatterns induced by pulsed laser irradiation on the surface of an Fe-Al alloy and their magnetic properties", *Appl. Phys. Lett.*, 102: 183109-1-183109-4 (2013)
- 6) H. Kaiju, Y. Yoshida, S. Watanabe, K. Kondo, A. Ishibashi and K. Yoshimi: "Magnetic Properties on the Surface of FeAl Stripes Induced by Nanosecond Pulsed Laser Irradiation", J. Appl. Phys., 115: 17B901-1-17B901-3 (2014)

#### 4.2 著書

1) 海住英生、近藤憲治、石丸学、弘津禎彦、石橋晃:「磁 性薄膜エッジを用いたナノスケール接合デバイス」、 日本磁気学会研究会資料、194: 13-19 (2014)

#### 4.3 特許

- 国内特許
- 1) 石橋 晃、松岡 隆: PCT/JP2013/78139、光電変換装置、 建築物および電子機器、2013年10月17日
- 2) 石橋 晃: 特願 2013-208775、放射性物質及び放射線対 応ファンフィルターユニット、放射性物質及び放射線 対応高清浄環境システム、放射性物質含有廃棄物の減 容処理システム、放射性物質および放射線対応フィル タ並びに水洗除染装置、2013 年 10 月 4 日
- 3) 石橋 晃: 特願 2013-223958、壁ならびに高清浄部屋シ ステム及びその製造方法並びに建築物、2013 年 10 月 29 日
- 国際特許
- 1) 石橋 晃: PCT/JP2013/81096、壁ならびに高清浄部屋シ ステム及び建築物、2013 年 11 月 19 日
- 2) 石橋 晃: 台湾出願番号 第 102143635、壁ならびに高 清浄部屋システム及びその製造方法並びに建築物、 2013 年 11 月 29 日

## 4.4 講演

- a. 招待講演
- 1) 石橋 晃\*:「導波路結合フォトン・フォトキャリア直交

- 型高効率太陽電池」、北海道地域5大学3高専1公設試 新技術説明会、JST東京本部別館ホール、東京・市ヶ 谷、(2013-11)
- 2) 石橋 晃\*:「フォトンフォトキャリア直交型太陽電池プロセス環境CUSP(Clean Unit System Platform)の現状と展望」、物質・デバイス領域共同研究拠点研究会、北海道大学電子科学研究所 (2013-07)
- 3) H. Kaiju\*, K. Kondo, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, and A. Ishibashi: "Ni-based Nanoscale Junctions Utilizing Thin-Film Edges", 2nd International Congress on Advanced Materials, Zhenjiang, China (2013-05)
- 4) H. Kaiju\*, K. Kondo, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, and A. Ishibashi: "Fabrication of Nanoscale Junctions Utilizing Thin-Film Edges and Their Structural and Electrical Properties", Collaborative Conference on Materials Research 2013, Jeju Island, South Korea (2013-06)
- 5) H. Kaiju\*, K. Kondo, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, and A. Ishibashi: "Fabrication of Ni-based Nanoscale Junctions Utilizing Thin-Film Edges and Their Structural and Electrical Properties", The 2013 Energy, Materials and Nanotechnology Fall Meeting, Orlando, Florida (2013-12)
- 6) 海住英生\*、近藤憲治、石丸学、弘津禎彦、石橋晃:「薄膜エッジを利用したナノスケール接合の作製とその電気伝導特性」、物質・デバイス領域共同研究拠点研究会、 北海道大学電子科学研究所1F会議室 (2013-07)
- 7) 海住英生\*、近藤憲治、石丸学、弘津禎彦、石橋晃:「磁性薄膜エッジを用いたナノスケール接合デバイス」、日本磁気学会第194回研究会、中央大学駿河台記念館 (2014-01)

## b. 一般講演

## i )学会

- A. Ishibashi\*, T. Kasai, K. Kondo, H. Kaiju and T. Taniguchi: "Waveguide-coupled Multi-striped Orthogonal Photon-Photocarrier-Propagation Solar Cells", The 14th RIES-Hokudai International Symposium, Sapporo, Japan, (2013-12)
- K. Kondo\*: "Spin transport in normal metal/insulator/topological insulator coupled to ferromagnetic insulator structures", The 58th Annual Magnetism and Magnetic Materials Conference, Denver, USA, November 4-8 (2013).
- 3) K. Kondo\*: "Negative Magnetoresistance in Ferromagnet/Semiconductor/Ferromagnet Structures with Cubic Dresselhaus Spin-Orbit-Interaction", The 14th RIES-Hokudai International Symposium, Sapporo, Japan, December 11–12 (2013).
- H. Kaiju\*, Y. Yoshida, K. Oosawa, S. Watanabe, K. Kondo, A. Ishibashi and K. Yoshimi: "Magnetic properties on the surface of an Fe<sub>52</sub>Al<sub>48</sub> alloy induced by nanosecond pulsed

- laser irradiation", The 58th Annual Magnetism and Magnetic Materials Conference, Denver, USA, November 4–8 (2013).
- 5) H. Kaiju\*, K. Kondo, and A. Ishibashi: "Magnetic Properties of Fe and Co Thin Films on Polyethylene Naphthalate Organic Substrates", The 14th RIES-Hokudai International Symposium, Sapporo, Japan (2013–12)
- 6) Y. Yoshida\*, S. Watanabe, H. Kaiju, K. Kondo, A. Ishi-bashi, and K. Yoshimi: "Self-organized Nanodot-like Patterns and their Magnetic Properties on the Surface of an FeAl alloy by Nanosecond Pulsed Laser Irradiation", The 14th RIES-Hokudai International Symposium, Sapporo, Japan (2013–12)
- 7) 石橋 晃\*、河西 剛、近藤 憲治、海住 英生:「導波路 結合フォトン・フォトキャリア直交型マルチストライ プ半導体太陽電池のSiベース無機半導体での展開」、PV Japan 2013、Tokyo (2013-07)
- 8) 石橋 晃\*、佐藤 和彦、河西 剛、近藤 憲治、海住 英 生:「フォトン・フォトキャリア直交型マルチストライ プ半導体太陽電池のSiベース無機半導体での展開」、日 本応用物理学会 2013年春季大会、早稲田大学 (2013-03)
- 9) 近藤憲治\*:「2次元金属電極における自由電子近似の妥 当性」、日本物理学会秋季大会2013、徳島大学 9月25-9 月28日 (2013).
- 10) 近藤憲治\*、海住英生、石橋 晃:「集光型磁気光学Kerr 効果によるCo/PENの磁気光学定数の決定と表面磁 性」、日本物理学会秋季大会, 徳島大学 (2013-09)
- 11) 海住英生\*、吉田裕、大澤和也、渡辺精一、近藤憲治、 石橋 晃、吉見享祐:「ナノ秒パルスレーザー照射した Fe<sub>52</sub>Al<sub>48</sub>表面の磁気特性」、第37回日本磁気学会学術講 演会、北海道大学 (2013-09)
- 12) 釜 谷 悠 介 、 海 住 英 生 \* 、 近 藤 憲 治 、 石 橋 晃 : 「Co/Alq<sub>3</sub>/Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>接合における電気・磁気・構造特性」、 日本物理学会秋季大会、徳島大学 (2013-09)
- 13) 海住英生\*、近藤憲治、阿部太郎、石橋 晃: 「Co/PEN における面内磁気光学カー効果の回転磁場依存性」、 日本物理学会秋季大会、徳島大学 (2013-09)

#### 4.5 共同研究

#### c. 民間等との共同研究

- 1) 石橋 晃 (H24-25年度物質・デバイス領域共同研究拠点 共同研究):「Si系無機半導体ベースのフォトンーフォトキャリア直交型光電変換素子の検討」研究代表者 帝人 (株) 佐藤和彦
- 2) 石橋 晃 (H25年度物質・デバイス領域共同研究拠点共同研究):「放射線検出器 γ Iと清浄環境CUSPとの結合可能性の検討」研究代表者 東大宇宙線研 榎本良治
- 3) 石橋 晃 (H25年度物質・デバイス領域共同研究拠点共同研究):「フレキシブル基板上におけるフォトン・フォトキ

- ャリア直交型光電変換素子の作製検討」 研究代表者富 士フィルム㈱ 塚原次郎
- 4) 石橋 晃 (H25年度物質・デバイス領域共同研究拠点共同研究):「フォトンーフォトキャリア直交型太陽電池用の高性能導波路の検討」 研究代表者 帝人デュポン㈱ 久保耕司
- 5) 石橋 晃 (H25年度物質・デバイス領域共同研究拠点共 同研究):「CUSP高清浄環境の要"排気"産業応用研究」 研究代表者 シーズテック㈱ 大橋美久
- 6) 石橋 晃 (H25年度物質・デバイス領域共同研究拠点共 同研究):「清浄環境(CUSP)への脱臭性能付加の検討」 研究代表者 (桝飛栄建設 松田順治

#### 4.6 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)):「導波路結合フォトン・フォトキャリア直交型 マルチストライプ半導体太陽電池の研究」H25-H27年 度 18.200千円
- 2) 近藤憲治 (日本学術振興会科学研究補助金基盤研究 (C)):「位相不変量をもつスピン現象の理論研究及びそ の応用デバイスの設計」、H24-H26年度 5,460千円
- 3) 海住英生(日本学術振興会科学研究補助金若手研究 (B)):「分子スピントロニクスデバイスにおける交流 インピーダンス特性」、H24-H26年度
- c. 大型プロジェクト・受託研究

## f . その他

- 1) 海住英生(H25年度総長室事業推進経費若手研究者自 立支援):「Fe系合金ナノ構造を用いた高保磁力磁性材 料に関する研究」、2013年度
- 2) 海住英生(H25年度実証研究推進助成事業):「ナノスケール接合デバイスにおけるスイッチング効果実証研究」、 2013年度

### 4.12 社会教育活動

## a. 公的機関の委員

### b. 国内外の学会の役職

- 1) 石橋 晃: 産総研コンソーシアム ファブシステム研究会 委員(2010-03-2015-03)
- 2) H. Kaiju: The 14th RIES-Hokudai International Symposium, Organizing Committee (2013-03-2014-01)
- 3) 海住英生:第37回日本磁気学会実行委員(2012年6月1日 ~2013年9月30日)
- 4) 海住英生:第75回応用物理学会学術講演会実行委員 (2013年5月1日~2014年9月30日)

#### c. 併任•兼業

1) 石橋晃:産業技術総合研究所 客員研究員 (2010-02-2015-03)

- 2) 石橋晃:シーズテック株式会社(北海道大学発ベンチャーカンパニー)技術担当取締役(CTO) (2007-04-2015-05)
- d. その他
- 1) 近藤憲治: Scientific Reports (Nature Publishing Group) のレフェリー(2013年2月7日~2013年2月14日)
- e. 新聞・テレビ等の報道
- g. 北大での担当授業科目(対象、講義名、担当者、期間)
- 理学部:物理外国語文献講読Ⅱ、石橋 晃、2013年10 月1日~2014年3月31日
- 2) 理学院: 半導体物理学 石橋 晃、2013年10月1日~ 2014年3月31日
- 3) 理学院: 現代物理学(分担)、石橋 晃、2013年4月1日 ~2013年9月30日
- 4) 全学教育:環境と人間「ナノテクノロジー」(分担)、石橋 晃、2013年4月1日~2013年9月30日
- 5) 全学教育: 現代物理学(分担)、石橋 晃、2013年4月1日~2013年9月30日
- 6) 理学部、物理外国語文献講読I、近藤憲治、2013年10 月1日~2014年3月31日
- 7) 理学部、物理学卒業研究I、近藤憲治、2013年4月1日 ~2013年9月30日
- 8) 理学部、物理学卒業研究II、近藤憲治、2013年10月1 日~2014年3月31日
- 9) 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、2013年10月1日~2014年3月31日
- 10) 全学共通、一般教育演習:物質科学の最前線【固体電子物性からソフト有機分子まで】(分担)、海住英生、2013年 4月1日~2013年9月30日

## 薄膜機能材料研究分野

教 授 太田裕道 (東工大院、工博、2012.9~)

助 教 片瀬貴義 (東工大院、工博、2013.4~)

助 教 髙木清二 (名大院、学博、2003.9~2013.9)

博士研究員 李寧 (北見工大院、工博、2013.4~2013.12)

事務補助員 渡邊志野 (2013.4~2014.3)

技術補助員 関芳美 (2014.1~)

学部生 遠藤賢司 (工学部情報エレクトロニクス学科) 小林祐輔 (工学部情報エレクトロニクス学科) 坂上朗康 (工学部情報エレクトロニクス学科) 鈴木雄喜 (工学部情報エレクトロニクス学科) 廣野未沙子(工学部情報エレクトロニクス学科)

## 1. 研究目標

物質表面や異種物質の接合界面近傍における厚さ数ナノにの領域は、仕事関数や化学ポテンシャルの差を解消し、熱平衡状態になるため、固体内部とは全く異なる電子状態になり、様々な興味深い電子・イオン伝導特性が生じる。薄膜機能材料研究分野では、こうした表面・界面で起こる興味深い現象を、単結晶(エピタキシャル)薄膜を用いて解き明かし、モデル化することによる新しい材料設計指針の提案を目指している。具体的には、(a)機能材料の薄膜化・デバイス化に関する研究、(b)低次元電子輸送に関する基礎研究、(c)ナノイオニクスに関する基礎研究を行っている。

## 2. 研究成果

#### (a) 機能材料の薄膜化・デバイス化に関する研究

WドープVO2エピタキシャル薄膜の熱電特性

二酸化バナジウム( $VO_2$ )は、68°Cで単斜晶から正方晶への構造相転移を示し、それと同時に、金属-絶縁体(M-I)転移や、赤外光透過率が変化するサーモクロミック現象を示す特徴を有する。最近、イオン液体を用いた電気二重層トランジスタで、電界効果による $VO_2$ の相転移温度制御が報告され、 $VO_2$ の相転移に伴う物性変化を利用した電界制御デバイスの開発が非常に注目されている。 $VO_2$ の相転移では、電子状態変化に敏感な熱電能(S)も大幅に変化することが報告されており、電子ドープした $VO_2$ の相転移とS値の相間を明らかにすれば、S位変調も組み合わせた新しいデバイスに繋がることが期待できる。本研究では、電界効果と同様に、相転移温度の制御が可能なWをドープ(電子ドープ)した $(V_{1-x}W_x)O_2$ エピタキシャル薄膜を作製し、M-I 転移に伴うS値の変化を系統的に調べた。

 $WO_3$ を添加した $V_2O_5$ ターゲットを用いて、PLD法により、A面サファイア基板上に $(V_{1-x}W_x)O_2$ エピタキシャル薄膜(W添加量は0-6%)を作製した。薄膜の構造と配向関係は、室温で高分解能X線回折により調べた。電気抵抗率 $(\sigma)$ とS値の温度依存性は、同一の薄膜試料を用いて計測し、比較

した。

A面サファイア基板上に作製したVO。薄膜のアウトオブ プレーンX線回折パターンには、サファイア基板の11-20の 回折ピークと共に、単斜晶VO2のh00の回折ピークのみが観 測され、そのロッキングカーブのFWHMは0.2度であった。 W濃度が1.0%以下の(V<sub>1-x</sub>W<sub>x</sub>)O<sub>2</sub>薄膜試料では単斜晶の回折 パターンが観測されたが、2.2%以上では正方晶のルチル型 構造になり、構造相転移温度が低温化したことが分かった。 図1にW濃度の異なるVO。薄膜のS-T曲線を示す。全温度域 でS値は負で、キャリアは電子であることが分かる。W濃度 増加に伴ってS値の転移温度( $T_s$ )は低温側にシフトした。全 ての薄膜試料において、T<sub>c</sub>を境に、低温側(T(T<sub>c</sub>)ではS値の 増大が見られた。W濃度増加に伴い、得られた最大S値は減 少したことから、電子ドープによってフェルミ準位での状 態密度の傾きが緩やかになったと考えられる。一方、高温 側 $(T > T_s)$ では、S値の温度依存性が見られず、S値は一定値 (= -23  $\mu$  V K<sup>-1</sup>)になり、金属的であった。挿入図に、 $\sigma$ -T 曲線から求めたM-m-m移温度( $T_{M}$ )と $T_{S}$ の関係をプロットし た。各W濃度においてTmとTsはほぼ一致しており、Wドー プ(電子ドープ)によって、(V<sub>1-v</sub>W<sub>v</sub>)O<sub>2</sub>の S値を制御できること が分かった。

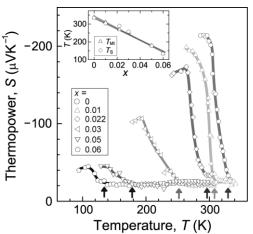


図 1 W ドープ VO<sub>2</sub>薄膜の熱電能 Sの温度依存性

#### (b) 低次元電子輸送に関する基礎研究

## 電界+水素化によるVO₂薄膜の絶縁体-金属転移温度変調

次に、(a)で作製したVO₂薄膜を用いて、電界効果と水素化を組合せた手法により室温で絶縁体から金属まで可逆的に制御可能なデバイスを作製し、VO₂薄膜の熱電能電界変調を行った。具体的には、水を含んだナノ多孔質ガラスをゲート絶縁体とするトランジスタで、ゲート電圧印加により発生する水の電気分解を利用し、電界誘起水素化によるVO₂薄膜の相転移温度制御を行った。

PLD法によりA面サファイア上に作製した $VO_2$ 薄膜(膜厚約20 nm)を用いて、CAN(含水ナノ多孔質ガラス)をゲート絶縁体とするTFT構造を作製した。印加ゲート電圧と印加時間を種々変化させ、比抵抗の温度変化及び室温におけるS値を計測した。

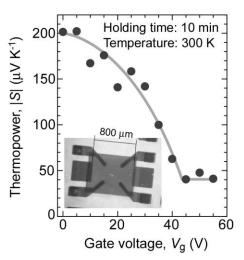


図 2  $V0_2$  薄膜上に作製した CAN ゲート TFT の S値の印加ゲート 電圧依存性

室温(300 K)における比抵抗は正ゲート電圧(実際に効くのはゲート電流×印加時間)の増加に伴い徐々に減少し、絶縁体→金属転移温度も低温シフトした。また、低抵抗化した試料に負のゲート電圧を印加したところ比抵抗は逆に増大した。ゲート電圧印加によってCAN中の水が電気分解し、 $VO_2$ 薄膜の水素化・脱離が起こったと考えられる。図2に各正ゲート電圧で10分間水電気分解を行い、水素化した $VO_2$ 薄膜の室温におけ 3S1値(符号はすべて負)を示す。ゲート電圧印加前の|S1値は約 $200~\mu$ V  $K^{-1}$ であったが、|S16はゲート電圧の増加に伴って緩やかに減少し、約 $40~\mu$ V  $K^{-1}$ で一定になった。この|S1億は $VO_2$ 薄膜の相転移温度以上の温度におけ S19億( $23~\mu$ V  $K^{-1}$ )に近いことから、水電気分解を利用することで $VO_2$ 薄膜の絶縁体→金属転移温度の低温化ができ、同時に熱電能も変調可能であることが分かった。

## (c) ナノイオニクスに関する基礎研究

## $\underline{\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}}$ 薄膜の固相 -液相エピタキシャル成長

最近急速にエネルギー密度が増加して、発火事故が後を 絶たないリチウムイオン電池に代わり、燃えない全固体電 池実現に向けた研究・開発が世界中で活発に進められてい る。正極/電解質/負極が全て固体で、燃えない全固体リチ ウム電池実現の鍵は、「界面」におけるリチウムイオン伝導 機構の解明である。単結晶薄膜、エピタキシャル薄膜が伝 導機構の解明に寄与できると思われるが、蒸気圧が高いLi を含む複合酸化物薄膜の作製は非常に困難である。従って、 本研究では、独自のLiを含む複合酸化物エピタキシャル薄 膜作製に適した手法として「固相ー液相エピタキシャル成 長法」を提案した(図3)。

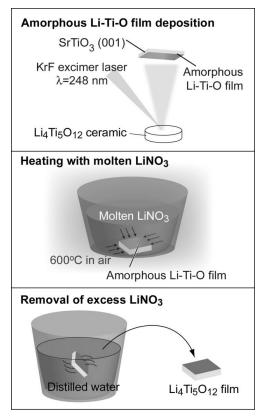


図3 固相-液相エピタキシー法によるLi<sub>4</sub>Ti<sub>5</sub>O<sub>12</sub>薄膜の作製 プロセス

図にLi<sub>4</sub>Ti<sub>5</sub>O<sub>12</sub>薄膜の固相-液相エピタキシャル成長法を模 式的に示す。まず、PLD法により $Li_4Ti_5O_{12}$ セラミックターゲ ットを用いて(001)SrTiO<sub>3</sub>単結晶基板上にLi-Ti-O薄膜を堆 積させた。次に、作製したLi-Ti-O薄膜を $Al_2O_3$ るつぼに入 れ、薄膜表面をLiNO<sub>3</sub>粉末で覆った後、大気中、600℃で30 min 加熱した。その後は試料を電気炉内で室温まで冷却し、 蒸留水に浸漬することで、薄膜表面を覆っている溶融した LiNO3を除去した。室温成膜後の薄膜のアウトオブプレー ンXRDパターンにはSrTiO<sub>3</sub>の00/回折ピークのみが観測され た。この薄膜を入射角0.5度の薄膜法で計測したXRDパター ンにはハローが観測されたことから、室温成膜した薄膜は アモルファスであったことが分かった。このアモルファス 薄膜を大気中600℃で加熱したところ、アウトオブプレーン XRDパターンには004 TiO<sub>2</sub>(アナターゼ)の回折ピークが観 測されたが、目的である $Li_4Ti_5O_{12}$ の回折ピークは見られな かった。蒸気圧が高いLi酸化物が加熱中に昇華したためと 考えられる。

一方、固相一液相エピタキシャル成長法により作製した 薄膜のアウトオブプレーンXRDパターンには004  $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$  の回折ピークが観察された。なお、アウトオブプレーンX 線ロッキングカーブの半値幅は約2度であった。次いで、インプレーンXRD測定を行ったところ、基板SrTiO $_3$ の $_4$ 00回折ピークと共に $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ の400回折ピークが見られ、そのロッキングカーブには四回対称を示す90度間隔の回折ピークが 観察された。以上の結果から、本研究の固相一液相エピタキシャル成長法により $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ エピタキシャル薄膜が作製でき、その方位関係は(001)[100]  $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}||(001)[100]$ SrTiO3であることが分かった。

## 3. 今後の研究の展望

機能材料の薄膜化・デバイス化に関する研究については、今後も共同研究を中心として研究を展開し、幅広く材料探索を行う。特に、拠点共同研究で必要とされるITO単結晶薄膜、 $(Sr,RE)CoO_3$  (RE:Y,希土類)薄膜、及びHigh-k誘電体薄膜の作製に注力する予定である。また、2013年度に導入したAFMを使用してAFMリソグラフィーによるナノメートルオーダーの極細1DEGの電界誘起を目指す。具体的には、 $SrTiO_3$ 単結晶板上に堆積させた含水ナノ多孔性ガラス薄膜上で電界を印加した導電性AFMチップを走査し、ナノメートルオーダーの極細1DEGを広範囲に誘起する。さらにこの1DEGの電子輸送特性を計測可能なシステムの構築を行う予定である。

## 4. 資料

#### 4.1 学術論文等

- H. Jeen, W-S. Choi, M. D. Biegalski, C. M. Folkman, I-C. Tung, D. D. Fong, J. W. Freeland, D. Shin, H. Ohta, M. F. Chisholm, and H-N. Lee, "Reversible redox reactions in an epitaxially stabilized SrCoO<sub>x</sub> oxygen sponge", *Nature Mater.* 12, 1057 (2013).
- H. Jeen, W. S. Choi, J. W. Freeland, H. Ohta, C. U. Jung, and H. N. Lee, "Topotactic phase transformation of the brownmillerite SrCoO<sub>2.5</sub> to the perovskite SrCoO<sub>3-δ</sub>", Adv. Mater. 25, 3651–3656 (2013).
- T. Katase, H. Hiramatsu, T. Kamiya, and H. Hosono, "Electric double-layer transistor using layered iron selenide Mott insulator TIFe<sub>1.6</sub>Se<sub>2</sub>", Proc. Natl. Acad. Sci. USA 111, 3979-3983 (2014).
- T. Katase, H. Hiramatsu, T. Kamiya, and H. Hosono, "Magnetic scattering and electron pair breaking by rare-earth-ion substitution in BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> epitaxial films", New J. Phys. 15, 073019 (2013).
- 5) T. Katase, H. Sato, H. Hiramatsu, T. Kamiya, and H. Hosono, "Unusual pressure effects on the superconductivity of indirectly electron-doped (Ba<sub>1-x</sub>La<sub>x</sub>)Fe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> epitaxial films", *Phys. Rev. B* 88, 140503 (2013).
- 6) H. Sato, T. Katase, W. N. Kang, H. Hiramatsu, T. Kamiya, and H. Hosono, "Anomalous scaling behavior in a mixed-state Hall effect of a cobalt-doped BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> epitaxial films with a high critical current density over 1MA/cm<sup>2</sup>", Phys. Rev. B 87, 064504 (2013).
- H. Hiramatsu, T. Katase, T. Kamiya, and H. Hosono, "Superconducting properties and phase diagram of indi-

rectly electron-doped  $(Sr_{1-x}La_x)Fe_2As_2$  epitaxial films grown by pulsed laser deposition", *IEEE Trans. Appl. Supercond.* **23**, 7300405 (2013).

#### 4.4 講演

#### a. 招待講演

#### i)学会

 H. Ohta\*, "Electric Field Modulation of a Thermoelectric Material", Thermec 2013, Las Vegas, USA, 2013年12月2 日-6日

#### ii )研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 太田裕道\*、「酸化物半導体のエピタキシャル薄膜成長」、 酸化物アライアンス第11回研究会(第5回公開講演会)「透 明導電膜のサイエンス」、産総研つくば中央、2013年5月 24日
- 2) 太田裕道\*, "石ころ素材を薄膜化して、世の中に役立つ機能を引き出す", 埼玉大学応用化学科50周年記念シンポジウム 2013年10月25日

#### b. 一般講演

#### i) 学会

- 1) 遠藤賢司\*, 片瀬貴義, 太田裕道,  $"(W_{1-x}V_x)O_2$ エピタキシャル薄膜の熱電能", 2014年 第61回応用物理学会春季学術講演会, 青山学院大学相模原キャンパス, 神奈川, 2014年3月17日-20日
- 2) 片瀬貴義\*,遠藤賢司,太田裕道, "電界+水素化による VO<sub>2</sub>薄膜の絶縁体-金属転移と熱電能変調",2014年 第 61回応用物理学会春季学術講演会,青山学院大学相模 原キャンパス,神奈川,2014年3月17日-20日
- 3) 李 寧\*, 片瀬貴義, 太田裕道,  $^{"}$ Li $_{4}$ Ti $_{5}$ O $_{12}$ 薄膜の固相-液相エピタキシャル成長 $^{"}$ (ポスター), 薄膜材料デバイス研究会(第10回研究集会), 京都, 2013年10月31日-11月2日
- 4) 李 寧\*, 片瀬貴義, 朱 彦北, 梅村知也, 松元隆夫, 幾原雄一, 太田裕道, "Li<sub>4</sub>Ti<sub>5</sub>O<sub>12</sub>薄膜の固相ー液相エピタキシャル成長", 第49回応用物理学会北海道支部/第10回日本光学会北海道地区 合同学術講演会, 北海道大学, 札幌, 2013年12月9日-10日

## ii)研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 李 寧\*, 片瀬貴義, 太田裕道,  $^{\prime\prime}$ Li $_4$ Ti $_5$ O $_{12}$ 薄膜の固相 $^{-}$ 液 相エピタキシャル成長 $^{\prime\prime}$ , 新学術領域研究 平成25年度若 手の会, 名古屋, 2013年9月29日 $^{-}$ 30日
- 2) 片瀬貴義\*,遠藤賢司,太田裕道,"水電気分解を利用した銅酸化物高温超伝導体の電子物性電界制御",新学術領域研究 平成25年度若手の会,名古屋,2013年9月29日-30日
- 3) 片瀬貴義\*, 遠藤賢司, 太田裕道, "水電気分解を利用したYBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>の $T_c$ 電界制御", 第1回アライアンス若手研究交流会~計算・計測・合成の融合~, 仙台, 2013年 11月25日-26日

- 4) Ning Li\*, Takayoshi Katase, Yanbei Zhu, Tomonari Umemura, Takao Matsumoto, Yuichi Ikuhara and Hiromichi Ohta, "Solid-Liquid Phase Epitaxy", THE 14th RIES-HOKUDAI INTERNATIONAL SYMPOSIUM "網" [mou], Gateaux Kingdom SAPPORO, Sapporo, Japan, 2013年12月11日-12日
- 5) Takayoshi Katase\*, Hidenori Hiramatsu, Toshio Kamiya and Hideo Hosono, "Metastable La doping and superconductivity in iron-pnictide BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> epitaxial films", THE 14th RIES-HOKUDAI INTERNATIONAL SYMPO-SIUM "網" [mou], Gateaux Kingdom SAPPORO, Sapporo, Japan, 2013年12月11日-12日

#### iii)コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 太田裕道\*, "石ころの素材でエネルギーの有効利用?", 北海道大学電子科学研究所一般公開サイエンストーク, 北海道大学, 札幌, 2013年6月8日
- 2) 片瀬貴義\*,研究室メンバー, "体温を電気に変えよう", 北海道大学電子科学研究所一般公開(展示),北海道大 学,札幌,2013年6月8日
- 3) 片瀬貴義\*,太田裕道, "熱電効果",応用物理学会北海 道支部リフレッシュ理科教室(展示),北海道大学,札幌, 2013年10月12日

#### 4.6 共同研究

#### a. 海外機関との共同研究

- 1) 米国オークリッジ国立研究所(Dr. Ho-Nyung Lee)と密接 に共同研究を実施し、成果がNature Materials 誌、 Advanced Materials誌に掲載された。
- 2) フンボルト大学ベルリン校のNorbert Koch教授に超平坦 ITO薄膜を送付し、共同研究を打診した。

## b. 所内共同研究

1) グリーンフォトニクス研究分野(三澤弘明教授、上野貢生 准教授)と密接に共同研究を実施した

## 4.7 予算獲得状況

## a. 科学研究費補助金

- 1) 太田裕道、基盤研究(A):「酸化物半導体一次元電子ガス の電界誘起と超巨大熱電能変調」、2013~2016年度
- 2) 太田裕道、新学術領域「ナノ構造情報」計画班:「原子層 制御による新しい材料機能探索」、2013~2017年度

## 4.8 社会教育活動

#### b. 国内外の学会の役職

 太田裕道:日本熱電学会 評議員、2012年9月1日~2014 年6月30日

## g. 北大での担当授業科目

- 1) 工学部情報エレクトロニクス学科、応用物性工学、太田裕道、2013年10月1日~3月31日
- 2) 工学部、生体工学概論・生体医工学基礎(分担・取り纏め)、太田裕道、2013年10月2日

- 3) 大学院、バイオマテリアル特論、太田裕道、2013年4月1日 ~2013年9月30日
- 4) 工学部情報エレクトロニクス学科生体情報コース、コース アワー(分担)、片瀬貴義、2013年7月2日
- 5) 全学教育科目「環境と人間」ナノって何なの?(分担)、太 田裕道、2013年7月5日
- 6) 工学部情報エレクトロニクス学科生体情報コース、科学技 術英語演習、太田裕道、片瀬貴義、2013年11月8日~ 2014年2月28日

#### i. ポスドク・客員研究員など

1) 博士研究員 李 寧 (2013.4~2013.12)

# 生命科学研究部門

## 研究目的

本研究部門では、非線形光学過程を用いたイメージングや解析、分子配列制御などの基盤技術をベースとして、生きたままの個体、組織深部の"in vivo"観察・操作を実現する新しい生命機能の解析法の開発、細胞の情報処理の解析および非線形化学動力学に基づく生命機能発現、DNAやタンパク質およびナノ粒子などの超分子構造体創製などに取り組んでいます。このような研究は、生命現象の基盤となる生体分子ネットワークや生命機能発現の解明のみならず、「光と細胞や脳科学」などの学際領域やナノテク・バイオ融合領域の発展に貢献すると共に、新しい治療や臨床応用へと繋げます。

## 光細胞生理研究分野

教 授 根本知己(東工大院、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~)

特任助教 飯島光一朗(京大院、生命科学博、2011.1~)

学術研究員 伊藤絵美子(2013.4~)

技術補佐員 洞内 響(2011.4~2014.3)

技術補佐員 小黒真紀(2012.5~)

事務補佐員 髙藤志帆(2010.9~2013.4)

事務補佐員 本久洋子(2013.3~)

#### 院生

博士課程 小泉絢花、一本嶋佐理

修士課程 青柳佑佳、澤田和明、武田和樹、伊藤里紗、 長内尚之、渡邊裕貴

## 1. 研究目標

本研究分野は、超短光パルスレーザーによる非線形光学過程を用いたイメージングを中心に、遺伝子工学、電気生理学、光機能分子などを活用することで、生きた個体、組織での、「光による観察」と「光による操作」を同時に実現する新しい生命機能のイメージング法を展開させることを目標とする。この方法論を、脳神経系、分泌、骨代謝、がん、糖尿病等の基礎研究に適用し、新たな学際的な研究領域「光・細胞

## 2. 研究成果

a) 2光子顕微鏡は、近赤外域のフェムト秒光パルスにより生 じる非線形光学過程である 2光子励起過程を利用する顕微 鏡法であり、他の顕微鏡法では観察が困難な、生体組織深部 の観察が可能である。現在、生物個体中で細胞や生体分子機 能の非侵襲的な可視化解析が可能な方法論として、期待され ている。我々は、この顕微鏡法の黎明期より、その確立と生 命科学への応用を先導し、世界で最も深い深部到達性とサブ マイクロメーターの分解能を実現する生体用 "in vivo" 2光 **子顕微鏡**システムを構築することに成功した(図 1)。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。また、生組織中での観察しながらの細胞、 分子の標識は極めて有用であるが、観察との同時実行は、組 織由来の波長依存的な収差のため困難であった。これらの問 題点を克服すべく、光学的なパラメーターや収差の評価を行 い、レーザー光導入光学系の改良を実施した。今年度は特に 微小な蛍光ビースの生体内への導入法を検討し、生体脳での 点像分布関数を評価するための方法論を検討した。昨年度に 発表した、世界深度記録というべき脳表面から約1.4 mmの蛍

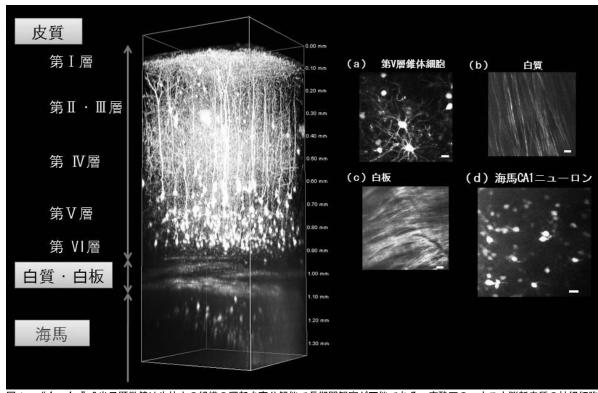


図1. "in vivo" 2光子顕微鏡は生体内の組織の深部を高分解能で長期間観察が可能である。麻酔下のマウス大脳新皮質の神経細胞及び海馬CA1ニューロン。

光断層観察の成功をさらに押し進め、多様な脳部位への応用を試みた。その結果、前頭前野、小脳、RMS等での生体脳in vivoイメージングに成功している。既に、マウス大脳新皮質の全層(I~VI層)を越え、白質、白板、海馬CAI領域の神経も蛍光断層観察することを可能としているが、さらに、東北大学NICHeの横山研究室の開発した半導体ベースの新規パルスレーザー光源を移設し、新規2光子顕微鏡の構築を進め、さらなる深部観察の方途を探索している。また、2光子顕微鏡の同時多重染色性という特徴を十全に活用し、交連線維由来のシナプスのin vivo可視化の方法論の開発も着手した。

(b) 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関始した。また多様な臓器のイメージングへの応用を図り、皮膚、腎臓 (図2) などのマルチカラーイメージングも開始している。

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と補正環効果の検索を行った。その結果、深部イメージングにおいて最適な照射条件は浅層とは異なっていることが判明した。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。本方法論を用いて、固定脳における樹状突起スパインの形態の詳細な評価を進め、海馬CA1錐体細胞における形態多様性を示す結果を得ることができた。本成果は北米神経科学、日本生理学会大会において発表し、後者では優秀ポスター賞を受賞した。また、本事業の課題の一つとして、研究支援部ニコンイメ

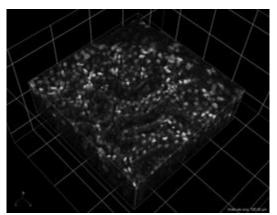


図2. 麻酔下のマウス腎臓の生体in vivoマルチカラーイメージング。SHG、自家蛍光などのシグナルをunmixingによって分離し、再構成した。特徴的な構造が3次元で可視化出来ている。

ージングセンターの大友康平特任助教と共に、白色レーザー 光源(スーパーコンティニウム光)を励起光源としたニポウ ディクス式高速共焦点顕微鏡装置の開発に着手した、蛍光分 子の励起スペクトルを用いた蛍光シグナル分離を用いて、マ ルチイメージングを実現することを目標としている。

一方、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、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継続した。また、マウス生体脳イメージングを長期間にわたって安定して行うための手術法や投薬法の改良に取り組んだ。

これらの固定脳および生体脳でのイメージングの方法論を活用し、名古屋市立大・医、澤本和延教授との共同研究において、新生ニューロンの生体イメージングにも着手した。その結果、RMSから嗅球への移動する新生ニューロンの観察に固定脳、生体脳の両方において成功した。特に前者においては新生ニューロンの分布や移動方向について新たな知見を得た。

(c) 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2光子顕微鏡の空間分解能能 の向上について、原著論文として報告した。また、新たに研 究支援部ニコンイメージングセンターの大友康平特任助教 と共に、誘導放出抑制現象(STED)を利用し、2光子顕微鏡の 空間分解能を上げることで、新たに生体内での超解像イメー ジング法の開発に着手した。

(a) 直線偏光ビーム

(b) ベクトルビーム

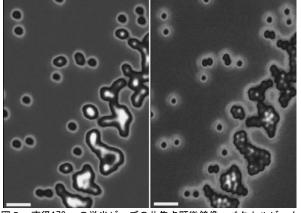


図3. 直径173 nmの蛍光ビーズの共焦点顕微鏡像。ベクトルビーム を用いることで個々のビーズが識別可能となった。

さらに、研究支援部ニコンイメージングセンターの大友康 平特任助教、(株)横河電機と共に、ニポウディスク式高速2 光子顕微鏡システムによる時間分解能の向上にも着手した。

- (d) 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た。特に、脂 肪細胞による血糖調節において、グルコース受容体 GLUT4 の動的分布変化によるグルコース取り込み制御の分子機構 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、蛍光タンパク質でタグ化したGLUT4分子や GLUT4を輸送する小胞のライブイメージングに成功した。そ の結果を日本細胞生物学会において発表した。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Ca<sup>2+</sup>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。また広島大学、 兼松隆教授との共同研究ではPRIP1,2分子のダブルノックア ウトマウスを用いたインシュリン開口放出の分子的な制御 機構に関する研究について、原著論文として発表した。
- (e) 附置研究所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、本研究分野において、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。また、物質・デバイス共同研究拠点においては、阪大産研・永井健治教授の開発したCa²+センサータンパク質を発現するトランスジェニックマウスを、基礎生物学研究所・野中茂紀准教授のグループが作成したので、そのマウスのCa²+依存性の生理機能の解析を推進した。本年度は、小脳プルキ

ンエ細胞層におけるCa<sup>2+</sup>動態の "in vivo" イメージングを実施し、同時に発火するプルキンエ細胞体の空間的分布を観察する事で、体性感覚刺激時と自発的発火時とでの神経細胞集団の活動様式について、比較する事ができた。これらの成果は、物質・デバイス領域共同研究拠点、特定課題B-1「生体ナノシステムの動作原理に基づいた新規バイオナノデバイスの創成と医学研究への展開」に展開されおり、本年度は公開シンポジウムを実施した。

また、北海道大学医学系研究科等から "in vivo" 2光子イメージングについての相談を受け、腎臓に関する共同研究について検討を行っている。

## 3. 今後の研究の展望

今後の我々の研究目標は、生体脳・中枢神経系モデルに おいて、SNARE 分子やその結合因子など、開口放出を引き 起こす分子機械の機能解明とその生理機能、破綻として病 理の理解にある。そのためには、この分子機械の有力な候 補分子の動態、複合体形成などを同時多重可視化し、生合 成分子の放出に伴う分子過程を定量化する方法論を開発す ることが重要である。また、これらの方法論を拡張し、が ん組織、骨組織など多様な生組織の深部解像能を向上させ、 可視化と光操作の同時実行による生体分子動態の高精度解 析を可能としたい。その為に、このような実験を広く可能 とするプラットホームの確立や研究コア・グループの形成 が必要であろう。さらに、先述のように深部断層イメージ ングに成功しているマウス大脳新皮質と、その他の生体臓 器との間の光学的な差異についても検討し、その結果を反 映してレーザー顕微鏡の光学系の改良に努めることが肝要 であろう。またマウス生体脳のin vivoイメージングは、神経 回路網の機能がどのように実現されているのかを理解する ためにも有用である。このように、イメージング技術を展開 させることと、真の生体内部で生じている現象の定量的、 統合的に理解することを縦糸・横糸とすることで、我々の 身体における生理機能や病理の理解を推進し、広く国民の 福祉へと還元していきたいと考える。

## 4. 資料

#### 4.1 学術論文等

- D. Takao, T. Nemoto, T. Abe, H. Kiyonari, H. Kajiura-Kobayashi, H. Shiratori, S. Nonaka: "Asymmetric distribution of dynamic calcium signals in the node of mouse embryo during left-right axis formatio", Developmental Cell (2013)
- S. Ipponjima, T. Hibi, Y. Kozawa, H. Horanai, H. Yokoyama,
   S. Sato and T. Nemoto: "Improvement of lateral resolution and extension of depth of field in two-photon microscopy by a higher-order radially polarized beam", Microscopy, 63(1): 23-32 (2014)
- 3) Y. Kusama, Y. Tanushi, M. Yokoyama, R. Kawakami, T. Hibi, Y. Kozawa, T. Nemoto, S. Sato and H. Yokoyama: "7-ps optical pulse generation from a 1064-nm gain-switched laser diode and its application for two-photon microscopy", Optics Express, 22(5): 5746-5723 (2014)
- 4) S. Asano, T. Nemoto, T. Kitayama, K. Harada, J. Zhang, K. Harada, I. Tanida, M. Hirata, and T. Kanematsu: "Phospholipase C-related catalytically inactive protein (PRIP) controls KIF5B-mediated insulin secretion", Biological Open (in press) (2014)

## 4.2 総説・解説・評論等

- 1) 日比 輝正、一本嶋 佐理、根本 知己: 「ベクトルビームによるレーザー顕微鏡の超解像化の試み」、光技術コンタクト、Vol. 51(No.4): 20-26 (2013)
- 2) 根本 知己、川上 良介、飯島 光一朗、日比 輝正:「新 規レーザーによる多光子励起過程を用いた生体脳深部 イメージング」、生体の科学、64(6):571-576 (2013)
- 3) 川上 良介、日比 輝正、根本 知己:「2光子顕微鏡による大脳新皮質全層と海馬CAI錐体細胞のin vivoイメージング」、生物物理、54(1):35-38 (2014)
- 4) K. Iijima, R. Kawakami and T. Nemoto: "生体組織の深部観察に挑む2光子励起蛍光顕微鏡", O Plus E, 36(2): 152-156 (2014)
- 5) 飯島 光一朗、川上 良介、根本 知己:「CAG-YC-Nano Transgenic mouseを用いた、小脳プルキンエ細胞におけ るカルシウム動態の生体イメージング法」、レーザー研 究 レーザー学会 第452回研究報告 RTM-13-66 (2013)
- 6) T. Nemoto, R. Kawakami, T. Hibi, K. lijima and K. Otomo: "Deep imaging of living mouse brain utilizing novel laser photonics technologies", Plant Morphol (印刷中)

#### 4.3 特許、知的財産等

- 日比 輝正、根本 知己、松爲 久美子、冨岡 貞祐、浜田 啓作: 2013-160985、補償光学素子の設計方法及び顕微 鏡、2013年08月03日
- 2) 日比 輝正、根本 知己、一本嶋 佐理、田辺 綾乃、橋本

信之、栗原 誠、松本 健志、横山 正史:2013-262481、 液晶光学デバイス、2013年12月19日

#### 4.4 受賞

1) 長内 尚之、青柳 佑佳、川上 良介、根本 知己: 優秀 ポスター賞 「新規透徹剤を用いた高解像度共焦点顕微 鏡法による海馬単一神経細胞に沿った樹状突起スパイ ン形態の可視化」 (第91回日本生理学会大会) 2014 年03月

## 4.5 講演

#### a. 招待講演

#### i ) 学会

- 1) 根本 知己\*: 「多光子イメージングの基礎」、平成25年 度新学術「第2回生体蛍光イメージング講習会」、愛媛大 学医学部(東温市) (2013-07)
- 2) T. Nemoto\*, R. Kawakami, K. Sawada, T. Hibi, Y. Kusama, H. Yokoyama, Y. Kozawa and S. Sato: "Improvement of resolution and penetration depth of two-photon microscopy with novel lasers", 2nd BioPhotonics Conference, National Taiwan University, Taipei, Taiwan (2013-07)
- 3) 根本 知己\*: 「2光子顕微鏡を用いた生体脳深部観察法 ー植物組織・細胞への応用可能性」、日本植物学会第77 回大会、北海道大学(札幌市) (2013-09)
- 4) 根本 知己\*: 「新規レーザー光技術を用いた2光子顕微 鏡の空間分解能、深部到達性の向上」、日本生物物理学 会第51回年会、京都国際会館(京都市) (2013-10)
- 5) 根本 知己\*、日比 輝正、一本嶋 佐理: 「Resolution improvement of multi-photon and confocal microscopy with vector beam」、The 69th Annual Meeting of the Japanese Society of Microscopy、ホテル阪急エキスポパーク(吹田市) (2013-05)

#### ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 根本 知己\*:「新規可視化技術を用いた細胞生理機能の解析」、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24年度報告会、北海道大学(札幌市) (2013-04)
- 2) 根本 知己\*: 「計測技術-神経科学のイメージングから -」、科学技術振興機構「自己再生促進技術に関する戦略 検討会」、科学技術振興機構(東京都) (2013-07)
- T. Nemoto\*, R. Kawakami, T. Hibi, S. Ipponjima, K. Sawada and K. Iijima: "Improvement of confocal and multi-photon laser microscopy with novel lasers", CIS-RIES symposium, Hsinchu, Taiwan (2013-12)
- 4) T. Nemoto\*, R. Kawakami, T. Hibi, S. Ipponjima, K. Sawada and K. Iijima: "Improvement of Penetration Depth and Lateral Spatial Resolution of Two-photon Microscopy with Novel Lasers", 7th Internal Symposium on Nanomedicine, Kyushu Institute of Technology, Kita-kyushu (2013-11)
- 5) T. Nemoto\*, R. Kawakami, T. Hibi, S. Ipponjima, K. Sawada,

- K. Otomo, K. Iijima, Y. Kozawa, Y. Kusama, S. Sato and H. Yokoyama: "Improving in vivo two-photon microscopy with novel laser technology", The 2nd DYCE-ASIA workshop, The university of Tokyo, Kashiwa (2013-12)
- 6) 村田 隆\*、大友 康平、日比 輝正、川上 良介、中山 博 史、根本 知己:「2光子スピニングディスク顕微鏡を用 いた植物紡錘体構築機構の解析」、物質・ デバイス領域 共同研究拠点、特定課題B-1「生体ナノシステムの動作 原理に基づいた新規バイオナノデバイスの創成と医学 研究への展開」公開シ ンポジウム、北海道大学電子科 学研究所(札幌市) (2014-01)
- 7) 根本 知己\*: 「計測技術2」、自然科学研究機構新分野創成センターミーティング、星陵会館(東京都)(2014-01)
- 8) 根本 知己\*: 「多光子顕微鏡の基礎と応用」、蛍光生体 イメージングワークショップ、東京大学医科学研究所 (東京都) (2014-01)
- 9) 大友 康平\*、日比 輝正、小澤 祐市、横山 弘之、佐藤 俊一、根本 知己: 「透過型液晶デバイスを用いた二光 子STED顕微鏡の開発」、ベクトルビームの光科学とナノ イメージング研究会、ホテル大観荘、松島市(2014-02)
- 10) 川上 良介\*、澤田 和明、日比 輝正、小澤 祐市、横山 弘 之、佐藤 俊一、根本 知己: 「新規1μm光源を用いた 生体脳深部イメージング」、ベクトルビームの光科学と ナノイメージング研究会、ホテル大観荘、松島市 (2014-02)
- 11) 一本嶋 佐理\*、洞内 響、日比 輝正、小澤 祐市、横山 弘 之、佐藤 俊一、根本 知己: 「"HRPビームを用いた2 光子顕微鏡の高解像化"」、ベクトルビームの光科学とナ ノイメージング研究会、ホテル大観荘、松島市 (2014-02)
- 12) 根本 知己\*、日比 輝正、川上 良介、大友 康平、一本 嶋 佐理、澤田 和明、洞内 響: 「生命科学のナノイメージング」、ベクトルビームの光科学とナノイメージン グ研究会、ホテル大観荘、松島市 (2014-02)
- 13) 根本 知己\*, 日比 輝正, 川上 良介、大友康平:「新規レーザーや光技術を用いた多光子顕微鏡の高性能化」、第 8回NIBBバイオイメージングフォーラム、基礎生物学研究所、岡崎市(2014-03)
- 14) 大友 康平\*、小林 健太郎、松尾 保孝、根本 知己:「北 大ニコンイメージングセンターの活動報告」、全国大学 等バイオイメージング連携体制の今後のあり方を考え る会、基礎生物学研究所(岡崎市)(2014-03)
- iii) コロキウム・セミナー等・その他
- 1) 根本 知己\*: 「新しい光学技術」を用いた2光子顕微鏡 法によるin vivoイメージングの深部化と超解像化」、IT b Mセミナー、名古屋大学理学部(名古屋市) (2013-05)
- 2) 根本 知己\*:「新規光技術を用いた"in vivo"2光子顕微鏡 法の深部化と超解像化」、第15回神経科学コアセンター セミナー、東北大学医学部(仙台市) (2013-05)
- 3) 根本 知己\*: 「新規光学技術を用いた"in vivo"2光子顕 微鏡と神経・分泌の可視化解析」、生命理工学特別講義

- 第一セミナー、東京工業大学生命理工学部(横浜市) (2013-07)
- 4) 根本 知己\*: 「2光子顕微鏡によるin vivoイメージング と細胞生理機能の解析」、第53回生命科学夏の学校、熱 川ハイツ (静岡県賀茂郡伊豆町) (2013-08)
- T. Nemoto\*: "Improving in vivo two-photon and confocal microscopy with novel laser technology", PSI seminar, The Paul Scherrer Institute, Switzerland, Switzerland (2014-03)
- T. Nemoto\* and K. Otomo: "Improving in vivo two-photon and confocal microscopy with novel laser technology", IINS seminar, Bordeaux University, Bordeaux, France, France (2014-03)
- 7) 大友 康平\*、小林 健太郎、松尾 保孝、根本 知己:「北 大ニコンイメージングセンターの活動報告」、全国大学 等バイオイメージング連携体制の今後のあり方を考え る会、基礎生物学研究所(岡崎市)(2014-03)
- 8) T. Nemoto\*: "Improvement of multi-photon microscopy for in vivo mouse brain imaging", バイオ先端イメージングセミナー"Super Resolution Imaging beyond the diffraction limit", 韓国基礎科学研究所, KAIST, Daejeon, Korea (2014-03)

#### b. 一般講演

#### i ) 学会

- 1) 小泉 絢花\*、日比 輝正、高橋 信之、坂本 智弥、河田 照雄、根本 知己: 「2光子顕微鏡を用いた脂肪細胞における蛍光タグ付けしたGLUT4の可視化」、第65回日本細胞生物学会大会、ウインクあいち(名古屋市)(2013-06)
- 2) 澤田 和明\*、川上 良介、根本 知己: 「Optimization of laser illumination in two-photon microscopy for in vivo deep imaging in the mouse」、第36回日本神経科学大会、国立京都国際会館(京都市)(2013-06)
- 3) 横山 雅美\*、草間 裕太、川上 良介、小澤 祐市、佐藤 俊一、根本 知己、横山 弘之:「1μm 帯利得スイッチング LD ベースの高機能光源による2光子イメージング」、第 74 回応用物理学会秋季学術講演会、同志社大学京田 辺キャンパス (京田辺市) (2013-09)
- 4) 田辺 綾乃\*、横山 正史、松本 健志、栗原 誠、橋本 信幸、日比 輝正、一本嶋 佐理、根本 知己: 「レーザー 顕微鏡用液晶収差補正素子の開発」、第22回日本バイオ イメージング学会学術集会、東京大学薬学部(東京) (2013-09)
- 5) 横山 正史\*、田辺 綾乃、松本 健志、栗原 誠、橋本 信幸、日比 輝正、一本嶋 佐理、根本 知己: 「レーザー 共焦点顕微鏡用液晶光学補正モジュールの開発」、日本 時計学会2013年度マイクロメカトロニクス学術講演会、 中央大学理工学部(東京都) (2013-09)
- 6) Y. Aoyagi\*, R. Kawakami, H. Osanai, K. lijima and T. Nemoto: "High resolution fluorescence imaging in deep regions of the fixed mouse brain by a novel optical clearing reagent", Annual meeting of Society of Neuroscience

- (SFN2013), San Diego convention center, San Diego, USA (2013-11)
- 7) A. Tanabe, M. Yokoyama, K. Matsumoto, M. Kurihara, N. Hashimoto, T. Hibi, S. Ipponjima and T. Nemoto, "Adaptive optics device for laser scanning microscopy using liquid crystals", 9th International Conference on Optics-photonics, Itabashi Culture Center, Tokyo (2014-02)
- 8) 長内 尚之\*、青柳 佑佳、川上 良介、根本 知己:「新 規透徹剤を用いた高解像度共焦点顕微鏡法による海馬 単一神経細胞に沿った樹状突起スパイン形態の可視化」、 第91回日本生理学会大会、鹿児島大学郡元キャンパス (2014-03)

#### ii)研究会・シンポジウム・ワークショップ

- T. Hibi\*, R. Kawakami, T. Nemoto: "Improvement of Two-Photon Microscopy for Biological Researches", G3 international meeting, Academia Sinica, Taipei, Taiwan (2013-10)
- 2) 大友 康平\*、日比 輝正、小澤 祐市、横山 弘之、佐藤 俊 一、根本 知己:「透過型液晶デバイスを用いた二光子 STED顕微鏡の開発」、第一回アライアンス若手研究交流 会、東北大学 片平さくらホール(仙台市) (2013-11)
- 3) K. Otomo\*, T. Hibi, Y. Kozawa, H. Yokoyama, S. Sato, T. Nemoto: "Development of the stimulated emission microscope by use of transmission type liquid crystal devices", RIES international symposium 2013, Hotel Châteraisé Gateauex Kingdom, Sapporo (2013-12)
- R. Ito\*, T. Hibi and T. Nemoto: "Fluorescent spectroscopic imaging of epidermal structure with solvatochromic dye", RIES international symposium 2013, Hotel Châteraisé Gateauex Kingdom Sapporo, Sapporo (2013-12)
- 5) H. Osanai\*, Y. Aoyagi, R. Kawakami and T. Nemoto: "Visualizing dendritic spine morphologies along single dendrites of hippocampal pyramidal neuron by a high-resolution confocal fluorescent microscopy with a novel clearing reagent", RIES international symposium 2013, Hotel Châteraisé Gateauex Kingdom Sapporo, Sapporo (2013-12)
- H. Watanabe\*, T. Hibi and T. Nemoto: "3D imaging of living mouse kidney with two-photon microscopy", RIES international symposium 2013, Hotel Châteraisé Gateauex Kingdom Sapporo, Sapporo (2013-12)
- K. Kobayashi\*, K. Otomo, Y. Matsuo and T. Nemoto: "Annual Activity Report at Nikon Imaging Center", RIES international symposium 2013, Hotel Châteraisé Gateauex Kingdom, Sapporo (2013-12)
- 8) Y. Kusama\*, Y. Tanushi, M. Yokoyama, R. Kawakami, T. Hibi, Y. Kozawa, T. Nemoto, S. Sato and H. Yokoyama: "Novel light pulse sourse for two-photon microscopy based on a 1064-nm gain-switched laser diode", The 2nd DYCE-ASIA workshop, The University of Tokyo Kashiwa (2013-12)

9) 大友 康平\*、日比 輝正、小澤 祐市、横山 弘之、佐藤 俊一、根本 知己: 「透過型液晶デバイスを用いた二光子 STED顕微鏡の開発」、第4回vivid workshop、瑠璃光(石川県加賀市) (2014-02)

#### 4.5 シンポジウムの開催

- 1) T. Komatsuzaki, T. Nemoto, H. Ohta, C. Li, K. Niikura, S. Noro, M. Akiyama, H. Kaiju, T. Kamei and H. Teramoto: "The 14th RIES-Hokudai International Symposium ~網 mou~", Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (Sapporo, Hokkaido) (2013年12月11日~2013年12月12日)
- 2) 根本 知己:「電子科学研究所ニコンイメージングセンターセミナー『第2回蛍光バイオイメージング・ミニシンポジウム』」、北海道大学電子科学研究所(札幌市)(2013年09月20日)
- 3) 根本 知己:物質・デバイス領域共同研究拠点、特定課題B-1「生体ナノシステムの動作原理に基づいた新規バイオナノデバイスの創成と医学研究への展開」公開シンポジウム、北海道大学電子科学研究所(札幌市)(2014年01月24日)

#### 4.6 共同研究

#### a. 民間等との共同研究

- 1) 根本 知己、日比 輝正、川上 良介、野中 茂紀(自然科学研究機構基礎生物学研究所)、「カメレオンナノトランスジェニックマウスを用いた中枢神経系におけるCa<sup>2+</sup>動態の可視化解析」、2013年度、基礎生物学研究所個別共同研究
- 2) 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、リンパ節におけるin vivo蛍 光イメージング法の確立」、2013年度
- 3) 根本 知己 (株) ニコンインステック: 共同研究、2013 年度
- 4) 根本 知己 (株) ニコン: 共同研究、2013年度
- 5) 根本 知己、物質・デバイス領域共同研究拠点、特定課題B-1「生体ナノシステムの動作原理に基づいた新規バイオナノデバイスの創成と医学研究への展開」、オーガナイザー、2013~2014年度

#### b. 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、2008~2013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、2010~2014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」

#### 4.7 予算獲得状況 (研究代表者、分類、研究課題、期間)

#### a. 科学研究費補助金

- 1) 根本 知己、新学術領域研究 研究領域提案型、 生体深 部の可視化と操作が同時に可能な個体用 in vivo 2光子 顕微鏡の開発と応用、2010~2014年度
- 2) 日比 輝正、挑戦的萌芽研究、組織内環境の多光子励起 イメージングによる新奇検査・診断法の開発、2013~ 2015年度
- 3) 一本嶋佐理、特別研究員奨励費、皮膚ターンオーバーの 破綻を惹き起こす微小構造変化のイメージング、 2013-2015年度

## b. 奨学寄付金

1) 川上 良介、内藤記念科学奨励金、長期in vivo2光子顕 微鏡法によるマウス前頭前野における精神疾患発症機 序の経時イメージング」、2013~2014年度

#### 4.8 社会教育活

#### a. 公的機関の委員

- 1) 根本 知己:(独)科学技術振興機構、専門委員(2010年 ~現在)
- 2) 根本 知己:(独)科学技術振興機構、国際科学技術協力 推進委員(2014.1)

#### 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

- 根本 知己:名古屋大学トランスファーマブ生命分子研究所、セミナー講師(2013.5)
- 2) 根本 知己:東北大学大学院医学系研究科、セミナー講師(2013.5)
- 3) 根本 知己:東京工業大学、非常勤講師(2013.7)
- 4) 根本 知己:(独) 科学技術振興機構研究開発戦略センター、有識者 (2013.7)
- 5) 根本 知己: 札幌市、行政評価参加者(2013. 9)
- 6) 根本 知己:(株)ニコン、講演者(2014.3)

#### d. 外国人研究者の招聘

1) Prof. Gary Brooker, Johns Hopkins Univ. (2013年10 月21日)

#### e. 北大での担当授業科目

- 1) 工学部、量子力学、根本 知己、2013年04月01日~2013 年09月30日
- 大学院情報科学研究科、脳機能工学特論、根本 知己、 2013年04月01日~2013年09月30日
- 3) 工学部、コースアワー、川上 良介、2013年04月01日~ 2013年09月30日
- 4) 全学共通、環境と人間-ナノって何なの?、根本 知己、 2010年04月01日~2015年03月01日

## f. 北大以外での非常勤講師

1) 根本 知己、東京工業大学大学院生命理工学研究科、東

工大集中講義、2013年07月04日~2013年07月05日

- g. ポスドク・客員研究員など
- ・ポスドク:飯島光一朗(特任助教)
- h. 修士学位及び博士学位の取得状況
- 修士課程(2名)
- 1) 青柳 佑佳(北海道大学大学院情報科学研究科) 「生後マウス脳における新生ニューロンの移動様式解明 に向けた3次元イメージング」
- 2) 澤田 和明(北海道大学大学院情報科学研究科) 「高出力1μmピコ秒パルスレーザー光源のマウス脳深部 イメージングへの適用」

## 生体分子デバイス研究分野

教 授 居城邦治(東工大院、工博、2004.3~) 准教授 新倉謙一(東工大院、博(工)、2005.1~) 助教 三友秀之(東工大院、博(工)、2011.4~) 院 生

博士課程 魏 金建

修士課程 杉村尚俊、鈴木康修、飯田良、堀江健太

学部生 田崎太悠、中村聡

## 1. 研究目標

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役分子を駆 使する、あるいはその特徴を利用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の持つ分子認識、自己会合性を利 用することでサイズや特性の異なる機能性ナノ粒子を簡便 に作り分ける手法を開発している。さらに、DNAの塩基配 列選択的な相互作用を利用することでナノ粒子を階層的に 集合化し、より高度な機能を賦与することを目指している。 また、ナノ粒子表面の修飾方法を工夫することで、1つの 粒子に異なる2つの性質をドメイン状もしくは半面ずつに 有するヤヌス型の粒子の作製を行い、機能性ナノ粒子の集 合体形成制御と高機能化の達成を目指している。さらには、 ウイルスの外殻タンパク質からなる再構築ウイルスカプセ ルを使い、核酸医薬やタンパク質製剤などの細胞内への高 効率導入法の開発など新規機能性材料の開発に取り組んで いる。これらの研究を通じてバイオ・ナノサイエンス研究 の新展開を目指している。

#### 2. 研究成果

## (a) DNAを利用した機能性ナノ粒子の作製

金属などのマテリアルは、ナノスケールのサイズになるとバルクとは異なる機能を発揮することが知られており、特に金や銀のナノ粒子は光によって励起され、蛍光やラマン散乱の増強・光触媒活性などを示すため有用な材料として注目されている。そのため、このようなナノマテリアルを作製し、機能性材料へと応用していく研究が積極的に進められている。ナノ粒子の作製においてはボトムアップ型の手法が有効であり、近年表面被覆材もしくは鋳型を用い

てサイズや形状を制御する手法が発展してきた。我々は、 このようなナノ粒子の作製、およびそれらを機能性材料へ と組み上げるために、分子認識能など高度な機能性を有す る生体高分子であるDNAに着目している。本研究では、 様々な塩基(A:アデニン、G:グアニン、C:シトシン、T:チミ ン)を有する一本鎖DNAを鋳型として共存させ、数分程度 のUV光の照射によって、簡便に塩化銀の塊から銀ナノ粒子 を作製することに成功した(図1)。得られた銀ナノ粒子か らはプラズモンに由来する400 nm付近の吸収が観察された。 アデニンの20量体(dA20)を用いた場合、20 nm程度の銀ナノ 粒子が得られ、dC20やdT20を用いた場合は40 nm程度の銀 ナノ粒子が得られた。このように塩基の種類や長さ、濃度 などを変えることで得られる粒子径を制御できることもわ かった。得られた銀ナノ粒子は青色光の励起によって蛍光 を発し、HeLa細胞に取り込ませた状態でも安定的に蛍光を 発し続けた。また、表面増強ラマン散乱(SERS)測定におい ても、得られた銀ナノ粒子は良好な結果を示した(図2)。 また、本手法で作製した銀ナノ粒子の表面は鋳型とした DNAに覆われているため、DNAの塩基認識能を利用するこ とで異なるサイズの銀ナノ粒子を集合化させることにも成 功した(図3)。

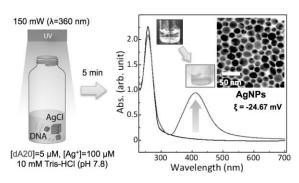


図1. UV 光照射による塩化銀からの銀ナノ粒子の作製 UV 照射前後の溶液の写真と吸収スペクトルの変化および作製 した銀ナノ粒子の TEM 像。

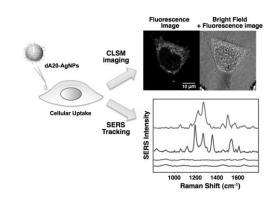


図2. 作製した銀ナノ粒子の光学的機能 培養細胞に取り込ませた後の共焦点蛍光顕微鏡像と SERS シ グナル。

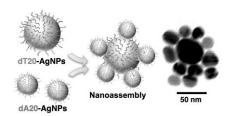


図3. 作製した銀ナノ粒子の集合体形成 dA20 と dT20 を用いて作製した銀ナノ粒子のハイブリダイゼーションによるヘテロ集合体形成の模式図と TEM 像。

また、塩化銀から銀ナノ粒子を作製する際のUV照射時間を短くすることで、銀と塩化銀が融合したナノ粒子(Ag/AgClNPs)の作製にも成功した。このAg/AgClNPsは光触媒活性を有し、有機物(色素分子)を光分解することが確認できた。汚染物質の光分解などへの応用も期待される。

#### (b) 親疎水面をもつヤヌスナノ粒子の合成と自己集合

光や磁場と反応する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、高速・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・表面増強ラマン散乱など新しい応用につながる手法 として期待されている。我々は機能性のナノ粒子として金 ナノ粒子に注目し、金ナノ粒子の自己集合を誘起するため の表面修飾分子の開発を行ってきた。フッ素誘導体を表面 リガンドに用いると、その疎溶媒性から溶液中でナノ粒子 が凝集するが、その際にカプセル状に粒子が集合すること を見いだしてきた。しかしこれらの手法は、粒子表面が被 覆される速度、溶媒の誘電率(すなわち溶媒の種類)など のバランスでカプセル形成およびそれらのサイズが決定さ れるため、制御というより自然任せの自己集合である。そ こで親水面と疎水面をもつヤヌス粒子を作製し、両親媒性 分子がベシクルあるいはミセルを形成するようにナノ粒子 を集合させることが本研究の目的である。

親水性と疎水性のチオール分子で金ナノ粒子を修飾することでヤヌス粒子を合成できるが、修飾のプロセスで(1) one-step法:2つのリガンド分子と金ナノ粒子を同時に混合(2) two-step法:親水性のリガンドで一度コーティングした後に疎水性のリガンドを添加、の2つの方法を試した(図4)。ナノ粒子上のリガンド分子の相分離状態はMALDI-TOF分析から明らかにした。one-step法では2つのリガンドがほぼランダムに固定化されているが、two-step法では2番目に添加した分子がドメインを形成し、添加する濃度を調整することで親疎水のヤヌス型になることがわかった。これは2番目に加える分子のアルキル鎖長が、最初に覆った分子よりも長いため、リガンド交換した部位からのドメイン成長が促進されていることを示している。

興味深いことに親疎水のヤヌス粒子とランダム粒子では 水中での凝集挙動に大きな違いが見られた。ヤヌス粒子か らできた集合体は沈殿することがなかったが、ランダム粒 子は水中に一時的に分散するものの半日で沈殿した。光散 乱測定でヤヌス粒子は200 nm程度の集合体(単一の粒子は5 nm)を形成していることがわかった。水中で凝集構造を維持していることから、ヤヌス粒子集合体はその集合体表面に親水面を露出し、疎水部分を内側にした構造(図5)をとっていると予想している。現在このヤヌス粒子集合体がベシクル状の中空になっているのか、あるいは内部にも粒子が詰まっているのかを詳細に検討している。

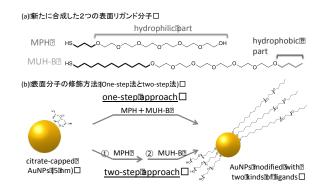


図4. 親水面と疎水面をもつヤヌス金ナノ粒子の調製





図5. ヤヌス金ナノ粒子集合体のTEM像と予想される集合体構造。 外側が親水面

#### (C) RNA分解酵素を内包したウイルスカプセルの作製

短鎖RNAやアンチセンス核酸などの核酸医薬は次世代医薬品として注目されているが、分解酵素からの保護と細胞輸送が課題となっている。ウイルスタンパク質(VP1)の自己集合で形成されるウイルス様微粒子(Virus-like particle, VLP)は中空構造であり、薬剤などの低分子をはじめ、タンパク質・核酸といった高分子など様々な分子を内包可能である。当研究室ではこれまでに、VLP内壁に結合するタンパク質(VP2)を用いることでGFPを選択的にVLPに内包可能であることを報告している。また、VLP内壁のチオール基を用いて薬剤を内包し、細胞内の還元環境に応答して薬剤を放出することに成功している。

本研究ではDNA/RNAのハイブリッド鎖からRNAのみを分解する酵素であるRNase Hに着目し、RNase HとターゲットRNAと相補的なAntisense DNA (AntiDNA)を同時に内包したVLP(RNase H/AntiDNA-VLP)を構築し、VLP内部でのターゲットRNAの特異的分解を可能とするシステムの構築を目指した(図6)。VLPに酵素と核酸を同時に内包することで、分解酵素から保護と高効率な細胞輸送が期待できる。

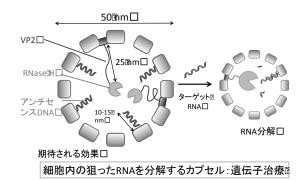


図6. RNA分解酵素を内包したウイルスカプセル

ウイルスカプシドタンパク質(VP1)と RNase H-VP2融合タンパク質をそれぞれコードした2つのプラスミドを大腸菌に導入し、共発現によって RNase H 内包 VLP(RNase H-VLP)を作製した。内包タンパク質は SDS-PAGE、Western Blot 法で評価した。5'末端に蛍光分子を、3'末端にシステイン残基と特異的に反応するマレイミド基を導入したAntiDNAを RNase H-VLP に加え、蛍光量を測定することでDNA が内包できるのかを確認した。

電子顕微鏡像観察から、直径50 nmのVLPの形成が確認できた。また、SDS-PAGEの結果、VP1とRNase H-VP2の分子量に相当するバンドが検出され、anti-VP2抗体を用いたWestern Blot法の結果から、VP2を含むことが確認された。これらの結果から、RNase H-VP2の内包を確認した。また、SDS-PAGEのバンド強度から、RNase Hの内包量はVLP 1粒子当たり平均5個であることがわかった。

マレイミド基をもたない DNA と VLP と混合後は、VLP から蛍光が検出されなかったのに対し、マレイミド基を導入した DNA では VLP の溶出時間に蛍光が検出された。この結果から、DNA は VLP 表面のポア(2~3nm) を透過し、VLP 内部に存在するシステイン残基と反応して固定化されていることが示唆された。

アガロースゲル電気泳動で、RNA 分解評価を行うと、AntiDNA を持たない RNase H-VLP では分解が起こらなかったのに対し、RNase H/AntiDNA-VLPでは RNA の分解が確認でき、その分解率は約 30%であった。これらから、ウイルスカプセル内部に RNase H と鋳型である AntiDNA を共存させたコンプレックスは、RNA 分解可能な触媒となることを実証できた。

## 3. 今後の研究の展望

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

- K. Niikura, N. Iyo, Y. Matsuo, H. Mitomo, and K. Ijiro: "Sub-100 nm Gold Nanoparticle Vesicles as a Drug Delivery Carrier enabling Rapid Drug Release upon Light Irradiation", ACS Appl. Mater. Interfaces, Vol. 5 (9), 3900-3907 (2013)
- Studies on bone metabolism by isotope microscopy, FTIR imaging and micro-Raman spectroscopy, H. Kimura-Suda, M. Kajiwara, N. Sakamoto, S. Kobayashi, K. Ijiro, H. Yurimoto, H. Yamato, J. Oral. Biosci., Vol. 55, 61 (2013)
- 3) K. Niikura, T. Matsunaga, T. Suzuki, S. Kobayashi, H. Yamaguchi, Y. Orba, A. Kawaguchi, H. Hasegawa, K. Kajino, T. Ninomiya, K. Ijiro, and H. Sawa: "Gold Nanoparticles as a Vaccine Platform: Influence of Size and Shape on Immunological Responses in Vitro and in Vivo", ACS Nano, Vol. 7 (5), 3926-3938 (2013)
- H. Kumano, H. Nakajima, H. Iijima, S. Odashima, Y. Matsuo, K. Ijiro, and I. Suemune: "Enhanced Photon Extraction from a Quantum Dot Induced by a Silver Microcolumnar Photon Reflector", Appl. Phys. Express, Vol. 6 (6), 062801 (2013)
- 5) 三友 秀之・渡辺 雪江・松尾 保孝・新倉 謙一・居城 邦治: "塩基配列選択的な金属化によるナノギャップ構造形成に向けた鋳型DNAの作製", 高分子論文集, Vol. 70(7), 337-340 (2013)
- 6) G. Wang, H. Mitomo, Y. Matsuo, N. Shimamoto, K. Niikura, and K. Ijiro: "DNA-templated plasmonic Ag/AgCl nanostructures for molecular selective photocatalysis and photocatalytic inactivation of cancer cells", Journal of Materials Chemistry B, 1, 5899-5907 (2013)
- 7) S. Kobayashi, T. Suzuki, M. Igarashi, Y. Orba, N. Ohtake, K. Nagakawa, K. Niikura, T. Kimura, H. Kasamatsu, and H. Sawa: "Cysteine Residues in the Major Capsid Protein, Vp1, of the JC Virus Are Important for Protein Stability and Oligomer Formation", PLOS ONE, 8(10), e76668 (2013)
- 8) D. Ishii, H. Horiguchi, Y. Hirai, H. Yabu, Y. Matsuo, K. Ijiro, K. Tsujii, T. Shimozawa, T. Hariyama, and M. Shimomura: "Water transport mechanism through open capillaries analyzed by direct surface modifications on biological surfaces", Scientific Reports, 3, 3024 (2013)
- K. Kobayashi, K. Niikura, C. Takeuchi, S. Sekiguchi, T. Ninomiya, K. Hagiwara, H. Mitomo, Y. Ito, Y. Osada, and K. Ijiro: "Enhanced Cellular Uptake of Amphiphilic Gold Nanoparticles with Ester Functionality", *Chem. Commun.*, 50, 1265–1267 (2014)

#### 4.2 総説・解説・評論等

1) 三友 秀之、居城 邦治:「生物のナノ構造が紡ぐ多彩 な色彩を模倣したバイオミメティク材料」、*工業材料、 Vol. 61 (11)、40-43 (2013)* 

#### 4.4 講演

#### a. 招待講演

#### i) 学会

- K. Ijiro\*, N. Iyo, Y. Matsuo, H. Mitomo and K. Niikura: "Nanoparticle Vesicles towards Surface-Enhanced Raman Scattering and Drug Carrier", IUPAC 9th International Conference on Novel Materials and their Synthesis (NMS-IX) & 23rd International Symposium on Fine Chemistry and Functional Polymers (FCFP-XXIII), Shanghai China (2013-10)
- K. Ijiro\*: "Self-assembled nanoparticle vesicles for optical and bio applications", SPIE Optics + Photonics 2013 Conference, San Diego, California, USA (2013-08)

#### ii ) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- K. Ijiro\*: "Preparation of Nanoparticle Vesicles and Those Optical and Bio-Applications", 2013 SNU-HU Chemistry Symposium on "The Present Chemistry at SNU and HU", Seoul, Korea (2013-12)
- 2) K. Niikura\*, H. Mitomo and K. Ijiro: "Fabrication of Enzyme-encapsulated Virus-like Particles as Nanoreactor in Cells", The 17th SANKEN International Symposium, 大阪大学 (2014-01)
- 3) H. Mitomo\*, K. Horie, N. Shimamoto, Y. Matsuo, K. Niikura and K. Ijiro: "Dynamic Control of the Distance between Metal Nanostructures by using Polymer Network", The 14 th RIES-HOKUDAI International Symposium, ガトーキングダム札幌 (2013-12)
- K. Ijiro\*: "Nanoparticle Vesicles toward Biosensing and Drug Carrier", Synthetic Biology Meeting, Newcastle, UK (2013-07)
- 5) K. Ijiro\*: "Self-assembly of Nanoparticles toward Biosensing and Drug Carrier", 1st Conference of JSPS Core to Core Program, Leuven, Belgium (2013-06)
- K. Ijiro\*: "Nanoparticle vesicles: preparation and applications in biosensing and drug delivery", Discussion Symposium on Artificial Life and Biomimetic Functional Materials, Glasgow, UK (2013-05)

#### iii) コロキウム・セミナー等・その他

1) 新倉 謙一\*:「ナノ粒子のバイオ応用を目指した粒子表面分子設計」、岐阜大学生命工学特論 公開セミナー、 岐阜大学(2014-01)

## b. 一般講演

## i)学会

1) 田崎 太悠\*、新倉 謙一、 小林 謙也、 三友 秀之、 長

- 田 義仁、 伊藤 嘉浩、 居城 邦治: 「Au- $Fe_3O_4$ ハイブリッドナノ粒子を用いた薬剤輸送キャリアの開発」、日本化学会第94春季年会(2014)、名古屋大学東山キャンパス (2014-03)
- 2) 中村 聡\*、三友 秀之、鈴木 康修、松尾 保孝、新倉 謙 一、居城 邦治: 「マクロスケール接着技術に向けた DNAブラシの作製」、日本化学会第94春季年会(2014)、 名古屋大学東山キャンパス (2014-03)
- 3) 田崎 太悠\*、新倉 謙一、小林 謙也、三友 秀之、長田 義仁、伊藤 嘉浩、居城 邦治: 「水分散性を持つ核酸 提示ハイブリッドナノ粒子の作製」、第48回高分子学会 北海道支部研究発表会、北海道大学(2014-01)
- 4) 中村 聡\*, 三友 秀之, 鈴木 康修, 松尾 保孝, 新倉 謙一, 居城 邦治: 「接着界面としての高密度DNAグラ フト基板の作製」、第48回高分子学会北海道支部研究発 表会、北海道大学(2014-01)
- K. Niikura\*, N. Iyo, Y. Matsuo, H. Mitomo and K. Ijiro:
   "Gold nanoparticle vesicles as a drug delivery carrier enabling rapid drug release upon light irradiation", 247th ACS National Meeting, Dallas, USA (2014-03)
- 6) K. Kobayashi\*, K. Niikura, C. Takeuchi, K. Hagiwara, Y. Ito, Y. Osada and K. Ijiro: "Enhanced cellular uptake of amphiphilic gold nanoparticles bearing ester groups", 247th ACS National Meeting, Dallas, USA (2014-03)
- N. Sugimura\*, K. Niikura, K. Hagiwara, C. Takeuchi, H. Mitomo and K. Ijiro: "Single-stranded RNA selective permeation through nanopores in a virus capsule surface", 247th ACS National Meeting, Dallas, USA (2014-03)
- 8) R. Iida\*, K. Niikura, S. Sekiguchi, H. Mitomo and K. Ijiro: "Janus gold nanoparticles: Control of the phase separation of two surface ligands", 247th ACS National Meeting, Dallas, USA (2014-03)
- K. Ijiro\*, G. Wang, A. Ishikawa, Y. Matsuo, K. Niikura and H. Mitomo: "DNA-templated Fabrication of Nano Devices", The Polymers for Advanced Technologies 2013, Berlin, Germany (2013-09)
- 10) 飯田 良\*、新倉 謙一、関口 翔太、三友 秀之、居城 邦 治:「チオールリガンドの相分離構造を有する金ナノ 粒子の表面設計」、第64回コロイドおよび界面化学討論 会、名古屋工業大学(2013-09)
- 11) 三友 秀之\*、堀江 健太、王 国慶、松尾 保孝、新倉 謙 一、谷 武晴、納谷 昌之、居城 邦治: 「ハイドロゲ ルと金ナノ粒子を用いた動的表面増強ラマン散乱基板 の作製」、2013年 第74回応用物理学会秋季学術講演会、 同志社大学 (2013-09)
- 12) 飯田 良\*、新倉 謙一、関口 翔太、三友 秀之、居城 邦治: 「チオールリガンドの相分離を利用した金ナノ粒子の表面設計」、第62回高分子討論会、金沢大学(2013-09)
- 13) 杉村 尚俊\*、新倉 謙一、萩原 恭二、三友 秀之、永井

- 健治、澤 洋文、居城 邦治: 「酵素内包ウイルスカプセルの作製と微小空間での酵素反応」、第62回高分子討論会、金沢大学(2013-09)
- 14) 小林 謙也\*、新倉 謙一、竹内 智恵、高原 周子、萩原 恭二、伊藤 嘉浩、長田 義仁、居城 邦治: 「エステ ル置換基を有する両親媒性ナノ粒子とその細胞内導入 への効果」、第62回高分子討論会、金沢大学(2013-09)
- 15) 堀江 健太\*、三友 秀之、王 国慶、松尾 保孝、新倉 謙 一、谷 武晴、納谷 昌之、居城 邦治: 「ハイドロゲ ルの膨潤・収縮を利用した金ナノ粒子配列構造の動的 制御」、第62回高分子討論会、金沢大学(2013-09)
- 16) 新倉 謙一\*、松永 達也、鈴木 忠樹、小林 進太郎、山 口 宏樹、大場 靖子、川口 晶、長谷川 秀樹、梶野 喜 一、二宮 孝文、澤 洋文、居城 邦治: 「ナノ粒子ワ クチンのワクチン活性に及ぼす粒子形状およびサイズ 効果」、第62回高分子討論会、金沢大学(2013-09)
- 17) 新倉 謙一\*、伊與 直希、松尾 保孝、居城 邦治:「光 応答性薬剤放出が可能な金ナノ粒子ベシクル」、第62 回高分子学会年次大会(2013)、京都国際会館 (2013-05)
- 18) 三友 秀之\*、堀江 健太、島本 直伸、松尾 保孝、新倉 謙一、長田 義仁、居城 邦治:「高感度ラマン分光法 に向けたハイドロゲルによる金ナノ粒子間距離の制 御」、第62回高分子学会年次大会(2013)、京都国際会館 (2013-05)
- 19) 新倉 謙一\*、関口 翔太、松尾 保孝、居城 邦治:「表面の分子運動を駆動力としたナノ粒子の細胞膜透過」、 第62回高分子学会年次大会(2013)、京都国際会館 (2013-05)
- 20) 新倉 謙一\*、居城 邦治、王 国慶、三友 秀之、松尾 保 孝: 「DNAを介した塩化銀の光還元による多機能性 ナノ粒子の作製」、第62回高分子学会年次大会(2013)、 京都国際会館 (2013-05)

#### ii )研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) K. Horie\*, H. Mitomo, G. Wang, Y. Matuso, K. Niikura, T. Tani, M. Naya and K. Ijiro: "Dynamic control of the interparticle gaps of gold nanoparticles transferred onto the gel films for surface enhanced Raman scattering", The 14 th RIES-HOKUDAI International Symposium, ガトーキングダム札幌 (2013–12)
- 2) R. Iida\*, K. Niikura, S. Sekiguchi, H. Mitomo and K. Ijiro: "Dynamic control of the interparticle gaps of gold nanoparticles transferred onto the gel films for surface enhanced Raman scattering", The 14 th RIES-HOKUDAI International Symposium, ガトーキングダム札幌(2013-12)
- 3) H. Mitomo\*, K. Horie, G. Wang, Y. Matsuo, K. Niikura, T. Tani, M. Naya and K. Ijiro: "Stimuli-Responsive Metal Array Structure on the Hydrogel", Sixth French-Research Organization-Tohoku University Joint Workshop on Frontier Materials "Frontier 2013", 東北大学

(2013-12)

- 4) R. Iida\*, K. Niikura, S. Sekiguchi, H. Mitomo and K. Ijiro: "Fabrication of Janus Gold Nanoparticles with Hydrophilic/Hydrophobic Face and and Their Selfheir Self-Assembly Behaviors", International Symposium on Advanced Soft Materials, 北海道大学 (2013–10)
- 5) H. Mitomo\*, N. Shimamoto, K. Sano, Y. Osada, and Kuniharu Ijiro: "Hybridization of inorganic matters to polymer gels for enhancing the strength and functionality", International Symposium on Advanced Soft Materials, 北海道大学 (2013-10)
- 6) Y. Suzuki\*, A. Eguchi, H. Mitomo, Y. Matsuo, K. Niikura and K. Ijiro: "Enzymatically hydrolytic lift-off method of DNA brush synthesized by surface initiated polymerization", International Symposium on Advanced Soft Materials, 北海道大学 (2013-10)
- 7) K. Horie\*, H. Mitomo, G. Wang, Y. Matuso, K. Niikura, T. Tani, M. Naya, and K. Ijiro: "Enzymatically hydrolytic lift-off method of DNA brush synthesized by surface initiated polymerization", International Symposium on Advanced Soft Materials, 北海道大学 (2013–10)
- 8) 飯田 良\*、新倉 謙一、関口 翔太、三友 秀之、居城 邦 治:「親水/疎水表面を持つヤヌス型金ナノ粒子の作製 と水中での集合体形成」、2013年度北海道高分子若手研 究会、ホテル山渓苑(2013-08)
- 9) 小林 謙也\*、新倉 謙一、関口 翔太、竹内 智恵、高原 周子、伊藤 嘉浩、長田 義仁、居城 邦治:「両親媒性 ナノ粒子作製のための表面リガンド分子設計」、第23回バ イオ・高分子シンポジウム、東京工業大学(2013-07)
- 10) 新倉 謙一\*、松永 達也、鈴木 忠樹、長谷川 秀樹、梶 野 喜一、澤 洋文、居城 邦治: 「In vivo およびin vitro における金ナノ粒子ワクチンの形状依存的な活性」、第23 回バイオ・高分子シンポジウム、東京工業大学(2013-07)
- 11) 飯田 良\*、新倉 謙一、関口 翔太、三友 秀之、居城 邦 治:「チオールリガンドの相分離を利用したヤヌス型金ナ ノ粒子の作製」、日本化学会北海道支部2013年夏季研究 発表会、北見工業大学(2013-07)
- 12) 堀江 健太、三友 秀之\*、島本 直伸、松尾 保孝、新倉 謙一、長田 義仁、居城 邦治:「ハイドロゲルによる金ナ /粒子間距離の制御」、日本化学会北海道支部2013年夏 季研究発表会、北見工業大学(2013-07)
- 13) 居城 邦治\*:「生物に学ぶ構造色デバイス」、第58回高分子夏季大学、広島国際会議場 (2013-07)

## 4.6 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-)
- 2) 居城 邦治、University of California, Riverside, USA:
  「Study on Self-assembling of Nanoparticles」 (2013年-)

3) 居城 邦治、National Chiao Tung University, Taiwan, ROC:「Development of Nanoparticle Devices」 (2012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) 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)
- 3) 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-)
- 4) 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-)
- 5) 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-)
- 6) 居城 邦治、富士フィルム「金属微細構造による光制御 に関する基礎検討」(2012年-)

#### 4.7 予算獲得状況 (研究代表者、分類、研究課題、期間)

- 三友 秀之、若手研究 B、多孔性無機粒子の縫い込み 型導入による高強度機能性ゲルの創製、2012~2014 年度
- 2) 三友 秀之、ノーステック財団「研究シーズ発掘(札幌フードタレント)」補助金、毒素およびウイルスの 高感度検出法の開発、2013年度
- 3) 居城 邦治、富士フィルム、金属微細構造による光制 御に関する基礎検討、2013年度
- 4) 新倉 謙一、基盤研究 B 、ラジオ波照射による薬剤 放出可能な磁性粒子集合化カプセルの創製、2013~ 2015年度
- 5) 王 国慶、特別研究員奨励費、DNAを用いた金ナノ粒 子の3D規則配列とファノ共鳴効果、2012~2013年度

#### 4.8 社会教育活動

#### a. 国内外の学会の役職

- 三友 秀之:高分子学会北海道支部 事務・会計 (2012年06月01日~2014年05月31日)
- 2) 三友 秀之:高分子学会 北海道支部 若手会幹事 (2012年06月01日~現在)
- 3) 三友 秀之: 日本化学会 生体機能関連化学部会 若 手会幹事 (2012年04月01日~現在)
- 4) 居城 邦治: 社団法人高分子学会北海道支部長(2012 年06月01日~2014年05月31日)
- 5) 居城 邦治: Asian Conference on Nanoscience & Nanotechnology (AsiaNANO), Steering Committee (2004年04月01日~現在)
- 6) 居城 邦治: 社団法人高分子学会バイオ・高分子研究 会運営委員 (2002年04月01日~現在)

## b. 新聞・テレビ等の報道

1) 新倉 謙一: 2013.4.3、日刊工業新聞、「取り込んだ薬物 光照射で放出 北大がナノカプセル開発」

- 2) 居城 邦治・新倉 謙一: 2013.12.17、日経産業新聞、「針 状分子で細胞膜通す 理研など新手法 遺伝子治療応用
- c. 北大での担当授業科目 (対象、講義名、担当者、期間)
- 総合化学院、物質化学Ⅲ(分子組織化学)、居城 邦治・ 新倉 謙一、2013年10月01日~2014年03月31日
- 2) 平成25年度 大学院共通授業科目「ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論」ナノバイオシステム論」オムニバス形式、新倉 謙一、2013年8月9日
- 3) 理学部、超分子化学、居城 邦治、2013年04月01日~2013 年09月30日
- 4) 総合化学院、特別研究 V、居城 邦治、2013年04月01 日~2014年03月31日
- 5) 総合化学院、論文購読I、居城 邦治、2013年04月01日 ~2014年03月31日
- 6) 全学共通、環境と人間 (ナノって何なの? 最先端 光・ナノテク概論)、居城 邦治、2013年04月01日~2013年 09月30日
- 7) 全学教育、化学I、新倉 謙一、2013年04月01日~2013 年09月30日
- 8) 総合化学院、論文購読 V、居城 邦治、2013年04月01 日~2014年03月31日
- 9) 総合化学院、特別研究I、居城 邦治、2013年04月01日 ~2014年03月31日
- 10) 総合化学院、論文購読Ⅱ、居城 邦治、2013年04月01 日~2014年03月31日
- 11) 総合化学院、特別研究Ⅱ、居城 邦治、2013年04月01 日~2014年03月31日

## d. 修士学位及び博士学位の取得状況

修士学位:2名

- 1) 杉村 尚俊「酵素を内包したウイルスカプセルの作製と 微小空間での酵素反応」
- 2) 鈴木 康修「DNAブラシをテンプレートとしたボトム アップ型3D金属パターニング法に関する研究」

## 生命動態研究分野

教 授 中垣俊之 (名大院、学博、2013.10~) 准教授 髙木清二 (名大院、学博、2003.9~) 助 教 黒田茂 (北大院、理博、2013.10~) 博士研究員 國田樹 (はこだて未来大院、システム情報 科学博士、2013.10~)

## 1. 研究目標

生き物の賢さは一体どのようにして生み出されるのか? 生命システム特有の情報処理のしくみは、古代ギリシャ時 代から今日に至るまで、その時代の学問を総動員して連綿 と問い直されてきた手強い課題である。これに取り組むこ とは、基礎学問として、人間そのものの理解を深める。生 物らしい情報処理の方法を捉えることができれば、人の感 性になじみの良いインターフェースをもった機械をつくる というイノベーションにもつながると期待できる。

我々は、単細胞生物を主な対象として、生物の情報処理 能力の高さを実験により評価し、さらにそのしくみをダイ ナミクスの観点から解明することを目指す。単純な体制を 活かして、モノの運動法則から生物行動を理解するという、 いわば生命情報処理の原点を目指す。そのために、理論や 実験ならびにフィールド観察を、また生物学や数学や物理 学および情報科学を活用する。

具体的には6つの研究テーマを掲げている。(1)アメーバからヒトにいたる生命知の基本アルゴリズムの探求、(2)ヒトにやさしい機械インターフェースの設計指針の探索、(3)単細胞生物の行動と情報処理過程の可視化技術の開発、(4)生物行動の多様性と柔軟性を担うダイナミクスの解明、(5)生体システムの用不用適応則から読み解く形状と機能の最適化、(6)バイオレオロジーによる生体運動の力学機構の解明。

#### 2. 研究成果

(a) 繊毛虫ゾウリムシにおけるキャピラリー空間からの 非難学習

生物の記憶や学習などの適応現象の物理的な仕組みを理解することを目的として、単細胞生物ゾウリムシの空間の広がりに対する適応的行動を調べてきた。具体的には、単細胞生物の繊毛虫ゾウリムシがその身体を転回させることができないほど細い管に閉じ込められた時に、その管の行き詰まりの端からどのように非難するかを観察した。

図1はキャピラリー空間に閉じ込められたゾウリムシの 運動の様子を示している. ゾウリムシは、管の行き詰まり に達すると回避反応と呼ばれる一時的な後退遊泳(SBS)を 示した(図1の0-1分). その回避反応を何度も繰り返した 後、ゾウリムシは徐々に後退距離を伸ばした(図1の1-2分)。 最終的にはSBSよりも5倍程度の長い距離を後退する長期 後退遊泳(LBS)を示した(図1の2-3分)。この実験では十分 に長い管を用いたのでゾウリムシはLBSによって管から非 難することはできなかったが、その行動はゾウリムシが管 から非難するために発達させた新たな行動であった。

我々は、LBSが出現する物理的な仕組みを明らかにするために、ゾウリムシの行動を調節している細胞の膜電気現象に基づいて、実験を再現し得る数理モデルを提案した。そのモデルの核心は、系に時定数の遅い反応と速い反応とが共存することであった。

これらの結果は、単細胞生物が通常とは異なる環境に置かれたときに新たな行動を獲得する能力があることを示すとともに、その過程を物理的に議論する可能性を提示した点に意義がある.

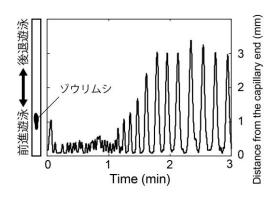


図 1. キャピラリー空間に閉じ込められたゾウリムシの運動の軌跡.

(b) 蠕動的這行運動のモードスイッチングに関する一般則筋肉の収縮波を用いた這行(しゃこう)は、多くの生物種にわたり広く見られる移動方法である。たとえば、プラナリア、ヒル、アメフラシ、ナメクジ、ヒザラガイ、ミミズ、などがある。この体軸に沿って伝搬する収縮・弛緩の波は、地面と接触する体の部位が地面を後方に蹴って体自身が前に進む作用を担っている。ところで、このような運動波の向きは、前向きと後ろ向きの両方があり、過去百年にわたり注目されてきた。ムカデやヤスデといった多足の脚式這行動物でも、実は同様のことがあり、この場合は足先の疎密が体軸に沿って伝搬する。そしてやはり前向きと後ろ向きの場合がある。近年の力学解析により、脚の疎密波と非脚式這行の筋肉波は移動運動において同じ役割を果たしており、脚式と非脚式の這行運動は共通の機構をもつことがわかってきた。

我々は、様々な動物を実験室内で強制的に後退させたと きの這行運動を観察し、各動物が前進と後退の運動様式の 切り替え(モードスイッチングと呼ぶ)をどのように実現 しているかについて、波の伝播方向と接地摩擦の制御の観 点から力学的に解析した。そして、運動機構は這行動物の 間で多様であるが、前進・後退モード間スイッチング方式 は本質的に二つの基本形に分類できることを示した。これ らの結果を踏まえて、進化過程において非脚式動物は、脚 の獲得以前からすでに歩行と同様の運動様式を獲得してい たという説を提出した。すなわち、脚式動物は、脚獲得の ずっと以前から歩行運動様式を習得していたのであろうと いう結論を得た。

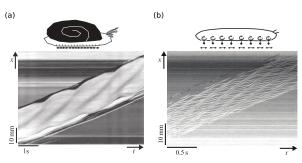


図 2. 無脚這行と脚式這行の前向運動波の例 (共に前進時) (a) 巻貝の一種の腹足波 (b) ヤスデの脚波

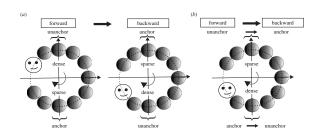


図 3. 二つのタイプの前進・後退モードスイッチング方式の 相空間表示 (a) 波の方向の逆転、摩擦タイミングは固定 (b) 波の方向は固定、摩擦タイミングの逆転.

## 3. 今後の研究の展望

#### 【 Fアクチン溶液の自発的な相分離現象 】

アメーバ生物の細胞運動の力学機構を明らかにするために、 細胞運動を担う主要なタンパク質アクチン繊維の溶液のレ オロジー応答性を調べてきた。アクチン繊維1本1本の形態 から溶液の全体および局所の応力や粘弾性特性を理解する ことを目指している。

#### 【 繊毛虫テトラヒメナの空間記憶能 】

生物の記憶や学習の物理機構を明らかにするために、繊毛 虫テトラヒメナの空間適応能を調べてきた。生物実験から テトラヒメナが空間の形状や大きさに対する記憶能を持つ こと示された。その仕組みが細胞運動を調節する膜電気現 象によって説明できる可能性があることがわかってきた。

## 【 真正粘菌変形体の逡巡行動 】

真正粘菌変形体は毒物に遭遇すると迷い行動を示した後で、 複数の行動の選択肢の中から一つを選んで行動する。その 粘菌の行動選択の仕組みを明らかにするために、粘菌の行 動を再現する数理モデルの構築と解析を行った。その結果、 粘菌の生体リズムと環境の揺らぎの同調が粘菌の行動選択 に影響を与えることがわかってきた。

## 【 這行の自発的なモードスイッチング 】

環境および内的状態に依存した多彩なモードおよびモード 間遷移が這行運動に存在することがわかってきた。これは 環境との相互作用を介して自己組織的に実現される生物的 運動制御の好例と考えられる。更なる実験的研究を進める と共に、力学モデルの構築をおこなっている。

#### 【 用不用則による交通輸送ネットワークの構築 】

粘菌が形成する管ネットワークの発達の仕組みは、「多く流れる部位は発達し、そうでない部位は衰退する」という用不用則に依っている。この生物式適応ネットワーク形成の基本設計則に基づいて、現実社会の様々なネットワーク(北海道の交通網や国際的光ケーブル網など)の設計を、複数要因間の最適トレードオフの観点から検討する。また更に進んで、町と道の共発展モデルを考察する。

#### 【 流れやすさの指標による粘菌ネットワークの解析 】

粘菌を出口が一か所だけある容器に閉じ込めると、粘菌は容器の形に適応した管の輸送ネットワークを作って身体を効率的に外部に排出させていた。我々はその適応的につくられるネットワークの機能性について、管の内部に流れる原形質の流れやすさを指標にして定量評価することを試みている。

## 4. 資料

#### 4.1 学術論文等

- Shigeru Kuroda, Itsuki Kunita, Yoshimi Tanaka, Akio Ishiguro, Ryo Kobayashi, Toshiyuki Nakagaki: "Common mechanics of mode switching in locomotion of limbless and legged animals", The Royal Soc. Interface, Vol.11, 20140205 (2014).
- Qi Ma, Anders Johansson, Atsushi Tero, Toshiyuki Nakagaki, David J. T. Sumpter: "Current reinforced random walks for constructing transport network", The Royal Soc. Interface, Vol.10, 20120864 (2013).
- 3) Itsuki Kunita, Kazunori Yoshihara, Atsushi Tero, Kentaro Ito, Chiu Fan Lee, Mark D. Fricker, Toshiyuki Nakagaki: "Adaptive Path Finding and Transport Network Formation by the Amoeba-Like Organism *Physarum*", WSH2011 and IWNC 2012, Vol.6, pp.14-29 (2013).
- 4) Itsuki Kunita, Sho Sato, Tetsu Saigusa, Toshiyuki Nakagaki: "Ethological Response to Periodic Stimulation in *Chara* and *Blepharisma*", WSH2011 and IWNC 2012, Vol.6, pp.3-13 (2013).

#### 4.2 総説、解説、評論等

1) 中垣俊之: "粘菌によせる関心の由来-生物らしさとは

- ", 科学, Vol.83, NO.8, pp.892-893, 岩波書店 (2013-08).
- 2) 中垣俊之: "生命情報処理の現象数理学-粘菌の迷路解きー", 現象数理学入門(三村昌泰編), 東京大学出版会, pp.27-46 (2013).
- 3)黒田茂,中垣俊之:"生命現象の物理学-生物行動の運動方程式をめざして-",物理学ガイダンス(日本評論社編集部編),pp.189-216,日本評論社(2014).
- 4) 黒田茂, 國田樹: "生命のリズムを取り出す", 研究者 が教える動物実験 第3巻(日本比較生理生化学会編), 共立出版, 出版準備中.

#### 4.3 講演

#### a. 招待講演

#### i)学会

- 1) 中垣俊之\*: "化学機械としてみた粘菌の行動知", 平成 25年度機械学会熱工学カンファレンス特別講演会, 弘前大学 (2013-10-19).
- 2) 中垣俊之\*:"アメーバの賢さを解き明かすレオロジー", 平成25年度 資源素材関係学協会合同秋季大会 市民参 加型特別講演会,北海道大学(2013-09-04).

#### ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) Shigeru Kuroda\*: "Common mechanics of mode switching in locomotion of limbless and legged animals", CREST International symposium: Locomotion of animals, robotics and mathematics, 北海道大学 (2014-03-20/21).
- 2) 中垣俊之\*: "生命の境界-2nd session いきものマテリアルー", 第5回ニコニコ学会 $\beta$ シンポジウム,東京六本木ニコファーレ(2013-12-21).
- 3) 中垣俊之\*: "アメーバとヒトのあいだ-生命知の起源 とイグノーベル賞-", 第50回人間教育講座, 慶応大 学(2013-12-19).
- 4) Toshiyuki Nakagaki\*: "Rules for biologically inspired adaptive network design", RIES-Hokudai International Symposium 「網」, Sapporo Gateaux Kingdom (2013-12-11/12).
- 5) 黒田茂\*: "這行におけるモード間遷移", 津田一郎還暦 記念集会 -複雑系数理から動的脳観へ-, 北海道大学 (2013-09-17/18).
- 6) 中垣俊之\*: "粘菌運動アルゴリズム", 北大創成シンポジウム--未来を開く生態予測シミュレーション--, 北海道大学(2013-08-01).
- 7) 中垣俊之\*: "粘菌のレオロジーとエソロジー", 分子ロボティクス研究会, 北海道大学 (2013-06-29).
- 8) Toshiyuki Nakagaki\*: "Ethology and rheology of an amoeba –Behavioral diversity and decision-making in Physarum-", 東北大学原子分子材料科学高等研究機構主催のセミナー,東北大学(2013-06-22).
- 9) Toshiyuki Nakagaki\*: "Behavioral diversity and decision-making of an amoeboid cell", The 7th International

- Conference on Engineering of Chemical Complexity, Conference Center Hohe Dune, Rostock-Warnemunde, Germany (2013–06–10/13).
- 10) 中垣俊之\*: "粘菌のエソロジーとダイナミクス",第1 3回学習院大学生命科学シンポジウム,学習院大学 (2013-05-25).

#### b. 一般講演

#### i) 学会

- 1) 山口達也\*, 手老篤史, 秋山正和, 國田樹, 中垣俊之:" テトラヒメナの容器記憶現象に対しての数理モデル", 応用数学合同研究集会, 龍谷大学 (2013-12-19/21).
- 2) 瀧川佳紀\*, 國田樹, 佐藤勝彦, 田中良己, 折原宏, 中 垣俊之: "F-アクチン溶液のシアバンディング", 第61 回レオロジー検討会, 山形大学 (2013-09-25/27).

#### ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- Shigeru Kuroda\*: "On mechanics of peristaltic locomotion: transition among possible modes in crawling locomotion", Japan-Sweden Research Workshop on Ethology and Rheology of *Physarum* and Its Related Topic II, University of Gavle, Sweden (2014-02-17/20).
- 2) Itsuki Kunita\*, Kei-Ichi Ueda, Toshiyuki Nakagaki: "Physical Ethology of Protozoa", Japan-Sweden Research Workshop on Ethology and Rheology of *Physarum* and Its Related Topic II, University of Gavle, Sweden (2014-02-17/20).
- 3) Tatsuya Yamaguchi\*, Atsushi Tero, Masakazu Akiyama, Itsuki Kunita, Toshiyuki Nakagaki: "Mathematical Model of *Tetrahymena* for Spatial Adaptation of Circle Container", Japan-Sweden Research Workshop on Ethology and Rheology of *Physarum* and Its Related Topic II, University of Gavle, Sweden (2014-02-17/20).
- 4) Shigeru Kuroda\*: "Transition among possible modes in crawling locomotion", RIES-Hokudai International Symposium 「網」, Sapporo Gateaux Kingdom (2013-12-11/12).
- 5) Itsuki Kunita\*, Katsuhiko Sato, Yoshimi Tanaka, Yoshinori, Takikawa, Hiroshi Orihara, Toshiyuki Nakagaki: "Shear banding in an F-actin solution", RIES-Hokudai International Symposium「網」, Sapporo Gateaux Kingdom (2013-12-11/12).
- 6) 吉原一詞\*, 中垣俊之, 黒田茂, 國田樹: "生物の適応 則に基づく機能的構造形成の数理モデリング", 第23 回「非線形反応と協同現象」研究会, 北海道大学 (2013-12-07).
- 7) 國田樹\*: "細胞運動における細胞レオロジーと応力場のクロストーク~アクチン繊維の階層的な構造形成~", 第2回 プロトコンピューティング研究会, 神戸大学(2013-12-02/03).
- 8) 國田樹\*, 佐藤勝彦, 田中良己, 瀧川佳紀, 折原宏, 中垣俊之: "Shear banding in an F-actin solution", 新学術

領域「動く細胞と場のクロストークによる秩序の生成」 第 3 回 若 手 の 会 , ラフォーレ 那 須 (2013-11-10/11) .

- 9) 瀧川佳紀\*、折原宏、佐藤勝彦、田中良己、國田樹、 中垣俊之: "F-アクチン溶液のシアバンディング", ソ フトマター研究会,首都大学東京(2013-12-13/15).
- 10) 山口達也\*, 手老篤史, 秋山正和, 國田樹, 中垣俊之:" テトラヒメナの円型容器のサイズ記憶現象に対しての 数理モデル", 創発システムシンポジウム「創発夏の学校2013」, 大阪アカデミア(2013-08-31/09-02).

#### iii)コロキウム・セミナー等・その他

- 1) Itsuki Kunita\*, Kei-Ichi Ueda, Toshiyuki Nakagaki: "Facilitation and inhibition of behavioral choice by environmental fluctuations in an amoeba", 国際研究会「ヘルムート・バラント教授と非線形科学について語る会」, 函館市中央図書館(2014-08-23/24).
- 2) 國田樹, 秋山文枝, 吉原一詞, 及川典子, 中垣俊之:" 単細胞生物のかしこさを感じてみよう", はこだて国 際科学祭 科学屋台, 函館五稜郭タワー (2013-08-17).

#### 4.4 シンポジウムの開催

- 1) スエーデン、イエーブレ大学にて、国際研究集会 "Ethology and Rheology of *Physarum* and its related topics II" を2014年2月17-20日にわたり主催した。
- 2) 函館市中央図書館にて国際研究会"ヘルムート・ブラント教授と非線形科学について語る会"を8月23-24日に主催した。
- 3) スエーデン国、ルンド大学にてEU-FP7プロジェクト"A Biological Agent Computing System"のキックオフ会議 を2014年1月8-10日にわたり開催した。

#### 4.5 共同研究

## a. 海外機関との共同研究

- 1) 仏国クロードベルナールリョン第一大学ジャンポール リュー教授とアメーバ運動の力学測定に関する共同研 究を展開した。
- 2) スエーデン国、ウプサラ大学のデービットサンプター 教授らと生物ネットワークの流量強化適応則について 共同研究をして論文発表した。
- 3) スエーデン国、ルンド大学ハイナー・リンケ教授等と欧州共同体科学研究プロジェクトEU-FP7に"A Biological Agent Computing System"を申請し、採択された。EU 外の国籍のため招待専門家として参画した。
- 4) 仏国パリ南第11大学、ダニエル・ヒルホルスト教授らのFrench-Japanese Associated International Laboratory of Reaction-diffusion system (ReaDiLab, LIA197)に参画した。
- Australian Research Council (ARC) Discovery Project:
   Modelling and simulation of self-organized behavior in bi-

ological and bio-inspired systems. Chief investigator: Bernd Meyer (Monash University, Australia) and Barry Hughes (The University of Melbourne). 2011-2015. Investigatorとして参画した。

#### 4.6 予算獲得状況

#### a. 科学研究費補助金

- 1) 中垣俊之: 科学研究費補助金 新学術領域研究「動く細胞と場のクロストークによる秩序の生成」公募研究, 課題番号25111726, 平成25-26年度, テーマ: 細胞運動 における細胞レオロジーと応力場のクロストーク, 代表者.
- 2) 中垣俊之: 科学研究費補助金 新学術領域研究「ゆらぎ の構造と協奏: 非平衡系における普遍法則の確立」計 画研究分担者, 平成25-29年度, テーマ: 非平衡定常状 態におけるソフトマターのゆらぎとレオロジー, 代表 者: 折原宏(北海道大学).
- 3) 中垣俊之:科学研究費補助金 平成23-25年度,基盤研 究C 課題NO. 23540433, テーマ:自己駆動する境界運 動と流れの相互作用による推進・輸送現象の解明,代 表者:飯間信(広島大学).
- 4) 國田樹:科学研究費補助金 平成25-26年度,若手(B) 課題NO. 25730178, テーマ:ソフトマター物理による生体情報処理の新しいインターフェイスの提案,代表者.

#### b. 受託研究

- 1) 中垣俊之: 科学技術振興機構 戦略的国際科学技術協力 推進事業 日本・スエーデン研究交流 平成23-25年, テ ーマ: 生物輸送ネットワークのダイナミクス, 日本側 代表者.
- 2) 中垣俊之:科学技術振興機構クレスト「数学と諸分野 の協働によるブレークスルーの探索」2008-2013年度, テーマ:生物ロコモーションに学ぶ大自由度システム の新展開,代表者:小林亮(広島大学).

## c. 奨学寄付金

1) 中垣俊之: 秋山記念生命科学振興財団研究助成, 平成 25年度, テーマ: 単細胞生物に学ぶ生命知の基本アル ゴリズム.

#### 4.7 社会教育活動

#### c. 併任·兼業

- 1) 中垣俊之:公立はこだて未来大学客員教授
- 2) 中垣俊之: 大阪大学生命機能研究科客員教授
- 3) 中垣俊之:明治大学先端数理科学インスティテュート 客員研究員
- 4) 中垣俊之:北海道大学トポロジー理工学教育研究センター兼務
- 5) 中垣俊之: 道立啓成高等学校スーパーサイエンスハイ スクール運営指導委員会運営指導委員長
- 6) 中垣俊之:慶応義塾大学理工学部「人間教育講座」講

#### d. 新聞·テレビ等の報道

- 1) 中垣俊之:「心は三河 豊かな自然が原点-北大電子研 教授中垣俊之さん-」,中日新聞,(2014-03-03).
- 2) 中垣俊之: "ビートたけしの達人対談 単細胞だってナメるなよ"、新潮 4 5, Vol. 33, No.4, pp. 272-283 (2014) 新潮社.
- 3) 中垣俊之: 平成26年度版高等学校国語科用教科書「現代文B」「標準現代文B」、竹内薫著「ノーベル賞VSイグノーベル賞」のなかで、我々の粘菌の賢さを探る研究が紹介された。
- 4) 中垣俊之:中学校指導用教材中学校理科(東京書籍) 映像データベース 10に「生物と細胞」、「迷路を解く粘菌の話」が掲載された。
- 5) 中垣俊之研究室:「はこだて国際科学祭」に出展した科学屋台『単細胞生物のかしこさを感じてみよう』の取材記事,北海道新聞(2013-08-07).

#### e. 外国人研究者の招聘

- 1) 独国マグデブルグ大学シュテファン・ミュラー教授 (2013-08-28).
- 2) 独国バイロイト大学ヘルムート·ブラント教授 (2013-08-23/24).
- 3) 英国王立ロンドン大学生物工学科学生バシレイオス・スミルリス氏 (2013-07-03/08-20).

## f. ポスドク・客員研究員など

- 1) 博士研究員: 國田樹(2013.10~).
- g. 修士学位および博士学位の取得状況

## 修士学位

1) 吉原一詞(公立はこだて未来大学大学院システム情報 科学研究科):「用不用則に基づく生物システムの機能 的構造形成の数理モデリング」

# 数理科学研究部門

## 研究目的

本研究部門では、複雑系科学、力学系理論、化学動力学理論などの数理科学をベースとして、複雑系としての脳神経系などの生命システムの機構解明、高次分子複合体の機能などの状態変化における偶然と必然の原理の解明、および表皮細胞が集団組織として作り出すバリア機能の解明などの研究に取り組んでいます。このような研究は、従来のアプローチでは十分解明できなかった分子複合体、細胞、組織、脳といった階層を越えて繋がっている複雑な生命システム現象などの解明に貢献します。

## 複雑系数理研究分野

教 授 津田一郎 (京都大学、理博、2005.10~) 准教授 青沼仁志 (北海道大学、博士(理学)、2001.1~) 准教授 佐藤 譲 (東京大学、博士(学術)、2006.4~) 助 教 西野浩史 (岡山大学、博士(理学)、2000.10~) 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~)

学術振興会 特別研究員 渡邊 崇之(東京大学、

博士(理学)、2010.4.1~)

学術研究員 田所 智 (北海道大学、理博、2003.9~) 岩﨑正純 (岡山大学、博士(理学)、2010.4~) 渡部大志 (北海道大学、修士、2012.4~) 前田真秀 (大阪府立大学、修士、2011.5~) 玉井信也 (東京大学、修士(学術)、 2006.4~)

塚田啓道(北海道大学、理博、2013.6~)

院 生 松永伸夫 (M2)、田島実香(M2)、西野入竜一(M2)、 工藤 信宏(M1)、品田憲人(M1)、平塚倖太(M1)

事務補佐員 平 厚子 (2003.9~)

三浦由貴 (2011.3.~)

## 1. 研究目標

複雑系数理研究分野は旧計算論的生命科学と旧神経情報研究分野が統一された研究分野である。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、認知機構、昆虫の神経情報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とシステムにおける成分の 創出

昨年に引き続き、同様の計算を進めている。大脳新皮質 のヘテロな階層構造の機能的役割を調べるために、ランダ ムネットからある種の進化的選択圧のもとでネットワーク を進化させると、ヘテロ構造が出現することを発見し、そ のダイナミクスの特徴を研究した。(山口、津田)

#### 2. 第二自己組織化の提案

上の研究を一つのモデルとして、第二種自己組織化を提唱した。従来の自己組織化 (区別するために第一種自己組織化と呼ぶ)はミクロな要素の相互作用によってマクロに秩序が創発する原理に関するものであったが、ここでは、

脳の機能分化や胚の発生過程に見られるように、システム に拘束条件を付けることで、システムの要素が分化するこ とを言う。ある種の変分原理である。(津田)

#### 3. 熟慮に関する数理モデルの構築

人や動物の行動に対する意思決定において、学習の初期 段階では熟慮行動が見える。あるいは、意思決定を迷って いるように見えることがある。行動レベルでは、VTEとい う頭ふりの現象が認められる。特にラットにおける熟慮行 動は海馬と深く関係し、実験的にVTEと海馬活動のダイナ ミクスの関係が研究されてきた。われわれはVTEの神経機 構を解明するためにいくつかのレベルで数理モデルを構築 した。(李、田所、前田、山口、津田)

#### 4. 視覚幻覚の神経回路モデルの構築

レビー小体型認知症にみられる特異な視覚幻覚に関わる神経パスのダイナミクスを解明するために、視覚野、下側頭葉、腹側前頭前野を含む広範囲の神経パスの数理モデルを構築し、計算機シミュレーションを行った。視覚野から前頭前野へのパスに部分的欠損があると、視野の一部にシーンとは無関係な視覚像が現れることをシミュレーションで示した。条件などは今後の課題である。また他のパスの欠損の可能性についても今後の課題である。(塚田、津田、山口)

#### 5. ランダム力学系の研究

非線形力学系にノイズを付加したときに起こる現象とし て確率共鳴、ノイズ同期、雑音誘起カオスなどが知られて いるが、新たに、付加ノイズ強度に応じて多重転移を示す 現象(多重雑音誘起転移)、ノイズ強度に依存して軌道分布 が振動を起こす現象(統計的周期性)といった、これまでに 知られていなかった雑音誘起現象が、広いクラスの非線形 力学系に偏在していることを発見した。また基礎理論を、 回転流体や生体リズム、脳波の実験データ解析に応用して 成果を上げた。これらはランダム力学系アプローチとして 総括できる、新たな非線形動力学解析である。今後「雑音 誘起現象論」の体系化を進めるとともに、決定論力学系の カオス(deterministic chaos)の拡張概念である、ランダム力 学系における確率的振動(Stochastic oscillation)や確率的カ オス(Stochastic chaos)といった複雑現象とその発生メカニ ズムを、ランダムストレンジアトラクター、ランダムベイ シンといった力学系理論の諸概念に基づいて分析していく。

#### 6. 適応行動の実時間制御の研究

ダイナミックに変化する環境のなかで適応的な行動を実時間で実現する脳の設計原理を理解するため、クロコオロギやクロヤマアリを使い動物に普遍的にみられる攻撃行動が社会的な経験に応じて変容するメカニズムについて研究を進めた(下図参照)。攻撃行動の動機付けにかかわる脳内の神経修飾機構の時間発展について調べ、その結果をもとに、個体が社会環境の変化に応じて行動を変容させる神経生理機構の動的システムモデルを構築し、シミュレーション実験やロボット実装実験から、個体間相互作用と脳神経

系に内在する多重フィードバック構造が社会環境における 行動の実時間適応には重要であることが明らかになった。 (青沼)

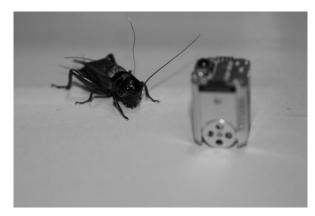


図:本文参照

#### 7. 匂いの空間分布パターン検出の神経アルゴリズム

空気中の匂いは連続的な濃度勾配をもって分布するわけ ではなく、不定形の匂い分子の塊(フィラメント)として 断続的に存在する。このように間欠的で常に変化する情報 を動物はどう利用しながら匂い源へ正確に定位するのだろ うか?本研究では、長い嗅感覚器(触角)を持ち、正確な 匂い源定位能力をもつワモンゴキブリをモデル動物として、 匂いの位置情報を脳内高次ニューロンがどう符号化してい るのかを明らかにすることを目的とする。平成25年度は、 一次嗅覚中枢(触角葉)の性フェロモンを処理する大糸球 体から出力する投射ニューロンの細胞内記録・染色を行い、 触角の特定領域の匂い刺激のみに応答する投射ニューロン が全部で11タイプ存在することをほぼ確定させた。これら のニューロンの樹状突起が大糸球体に占める割合と触角内 の感覚細胞の軸索の投射パターンの間には明瞭な相関関係 がみられ、各投射ニューロンの受容野が感覚細胞との直接 のシナプスによって形成されることが強く示唆された。今 後は同定されたニューロンタイプの相互作用について数理 解析の手法を取り入れながら明らかにしていきたい。(西 野)

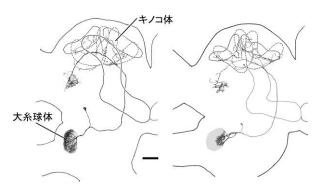


図:触角の基部での匂い刺激を検出する投射ニューロン(左図) と先端での匂い刺激を検出する投射ニューロン(右図)。大糸球体 の中の樹状突起の位置が異なることに注意。スケールバーは100 μm。

## 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ラット海馬のスライス実験や小鳥の歌学習において実証された。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的遍歴とカントルコーディングの実証研究をさらに発展させたい。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発展型力学系やランダム力学系を含む非自律力学系に関する理論を提供したい。また、これらの基礎理論の構築を目指す。大自由度カオス力学系の数学的研究もさらに発展させていく。特に、ランダム力学系を含む非自律力学系の諸現象をカオス力学系の諸概念を拡張することで一般化する。また、第二種自己組織化原理の数学的定式化を目指す。

さらに、昆虫の神経情報に関するミクロ分子過程からマクロ行動までの階層構造を明らかにしていく。無限定環境下で如何に微小脳をもつ昆虫が行動決定していくかといった動物行動の本質的問題に挑戦していく。昆虫の情報処理のほとんどは匂い情報であることからそれを扱うキノコ体を中心とした嗅覚系の研究をさらに発展させていく。

## 4. 資料

#### 4.1 学術論文等

- Yutaka Yamaguti, Ichiro Tsuda, Yoichiro Takahashi: Information flow in heterogeneously interacting systems, Cognitive Neurodynamics, 8(1), pp 17-26 (2014), DOI: 10.1007/s11571-013-9259-8
- Kota Hiratsuka, Yuzuru Sato, Zin Arai: Computability and Complexity of Julia Sets: a review, NOLTA journal, in press 2013
- 3) Toshi Nakajima, Ryosuke Hosaka, Ichiro Tsuda, Jun Tanji, Hajime Mushiake: Two-dimensional representation of action and arm-use sequences in the presupplementary and supplementary motor areas, The Journal of neuroscience: the official journal of the Society for Neuroscience, Vol. 33(39), 15533-44 (2013), DOI: 10.1523/JNEUROSCI. 0855-13.2013
- 4) Hiromichi Tsukada, Yutaka Yamaguti, Ichiro Tsuda: Transitory memory retrieval in a biologically plausible neural network model, Cognitive Neurodynamics, 7:(5), pp. 409-416 (2013), DOI: 10.1007/s11571-013-9244-2
- 5) Yongtao Li and Ichiro Tsuda: Novelty-induced memory transmission between two nonequilibrium neural networks Cognitive Neurodynamics, 7(3), pp225-236 (2013) DOI: 10.1007/s11571-012-9231-z
- 6) R. Okada, H. Ikeno, T. Kimura, M. Ohashi, H. Aonuma

- and E. Ito: "Error in the honeybee waggle dance improves foraging flexibility", Sicentific Reports, 4(4175): 1-9 (2014)
- 7) T. Watanabe and H. Aonuma: "Tissue-specific promoter usage and diverse splicing variants of the found in neurons; an ancestral Hu/ELAV-like RNA binding protein gene of insects, in a direct developing-insect Gryllus bimaculatus", Insect Mol. Biol., 23(1): 26-41 (2014)
- T. Watanabe, H. Sadamoto and H. Aonuma: "Molecular basis of the dopaminergic system in the cricket Gryllus bimaculatus", Invert. Neurosci., 13: 107-123 (2013)
- M. Sakura and H. Aonuma: "Aggressive behavior in the anten-nectomized male cricket Gryllus bimaculatus", J. Exp. Biol., 216(12): 2221-2228 (2013)
- 10) K. Kawabata, H. Aonuma, K. Hosoda and J. Xue: "Active inter-action utilizing micro mobile robot and on-line data gathering for experiments in cricket pheromone behavior", J. Robot. Auton. Syst, 61: 1529-1538 (2013)
- 11) K. Kawabata, H. Aonuma, K. Hosoda and J. Xue: "A system for automated interaction with the cricket utilizing a micro mobile robot", <span style="font-style:italic; "J. Robot. Mech., 25(2): 333-339 (2013)</p>
- 12) S. Yano, T. Watanabe, H. Aonuma and H. Asama: "Pitch-fork bifurcation in a receptor theory-based model of the sero-tonergic system", Mol. BioSyst., 9: 2079-2084 (2013)
- 13) M. Mizunami, Y. Matsumoto, H. Watanabe and H. Nishino: "Invertebrate Learning and Memory (eds. Randolf Menzel and Paul Benjamin)", Academic Press (2013)
- 14) T. Ichikawa, Y. Toh, K. Ohkubo and H. Nishino: "Microscopic analysis of mechanosensory system monitoring the dynamic claw actions in the tenebrionid beetle Zophobas atratus", Zoomorphology in press

## 4.2 総説·解説·評論等

- 1) 杉本 靖博、青沼 仁志、川端 邦明、大須賀 公一:「個 体間相互作用から学ぶコトミメティクスーロボット間 相互作用による内部状態の変化を用いた位置同定法の 再解釈-」、第26回自律分散システムシンポジウム資料、 14SY0001:151-152(2014)
- 2) 青沼 仁志:「個体間相互作用から学ぶコトミメティクスー昆虫の個体間相互作用によって変容する内部状態-」、第26回自律分散システムシンポジウム資料、14SY0001:147-150(2014)
- 3) 川端 邦明、青沼 仁志、杉本 靖博、細田 耕、薛 建儒: 「個体間相互作用から学ぶコトミメティクスー昆虫-ロボット相互作用系による行動実験-」、第26回自律分散システムシンポジウム資料、14SY0001:153-156(2014)
- 4) 佐藤 英毅、加納 剛史、青沼 仁志、松坂 義哉、石黒 章 夫: 「クモヒトデの腕間協調メカニズムの数理モデ

- ル」、第26回自律分散システムシンポジウム資料、 14SY0001:177-182 (2014)
- 5) 青沼 仁志: 「自律分散-創発-移動知-コトミメティ クス,生物学のこれまでとこれから」、第26回自律分散 システムシンポジウム資料、14SY0001:287 (2014)
- 6) 加納 剛史、大須賀 公一、小林 亮、青沼 仁志、石川 将 人、杉本 靖博、大脇 大、石黒 章夫: 「「個性」を持 つ粒子集団が創り出す動的秩序~人間社会における交 友関係を採り上げた事例研究~」、第26回自律分散シス テムシンポジウム資料、14SY0001: 244-248 (2014)
- 7) 矢野 史朗、渡邊 崇之、青沼 仁志、淺間 一:「受容 体理論による縫線核セロトニン神経のモデル化と解 析」、第26回自律分散システムシンポジウム資料、 14SY0001:289-292 (2014)
- 8) 高梨琢磨、深谷 緑、小池卓二、西野 浩史: 「昆虫に おける振動情報の機能解明と害虫防除への応用」、生物 科学、65(2): 102-107 (2013)

#### 4.3 国際会議議事録等に掲載された論文

- Kazuhiro Matsumoto, Yuzuru Sato, Hiroshi Endo, Keiichi Kitajo: Random dynamical systems modeling for brain wave synchrony, Proc. of NOLTA2013, 1, p395-398 (2013)
- Kota Hiratsuka, Yuzuru Sato, Zin Arai: Computability and Complexity of Julia Sets, Proc. of NOLTA2013, 1, p2-5 (2013)
- Yasuhiro Fukushima, Yoshikazu Isomura, Yutaka Yamaguti, Shigeru Kuroda, Ichiro Tsuda: Inhibitory Network Dependency in Cantor Coding, Advances in Cognitive Neurodynamics (III), Proceedings of the Third International Conference on Cognitive Neurodynamics 2011, ed.Yamaguchi,Yoko, Springer (2013) pp.635-640, DOI: 10.1007/978-94-007-4792-0\_85
- 4) Yongtao Li, Ichiro Tsuda: A Communicative Model: Can We Interpret Neural Dynamics of Understanding?, Advances in Cognitive Neurodynamics (III), Proceedings of the Third International Conference on Cognitive Neurodynamics? 2011, ed.Yamaguchi, Yoko, Springer, pp.551-558 (2013), DOI: 10.1007/978-94-007-4792-0\_74
- 5) Hiroshi Fujii, Takashi Kanamaru, Kazuyuki Aihara, Ichiro Tsuda: Attentional Cholinergic Projections May Induce Transitions of Attractor Landscape via Presynaptic Modulations of Connectivity, Advances in Cognitive Neurodynamics (III), Proceedings of the Third International Conference on Cognitive Neurodynamics ? 2011, ed.Yamaguchi,Yoko, Springer (2013) pp.97–103, DOI: 10.1007/978-94-007-4792-0\_14
- Ichiro Tsuda: Towards Understanding of Neural Dynamics in Communicating Brains, Advances in Cognitive Neurodynamics (III), Proceedings of the Third International

- Conference on Cognitive Neurodynamics ? 2011, ed. Yamaguchi, Yoko, Springer (2013) pp.415-420, DOI: 10.1007/978-94-007-4792-0\_56
- K. Kawabata, H. Aonuma, K. Hosoda and J. Xue: "Controlled interaction with the cricket based on on-line pose estimation of mobile robot", Proc. IEEE Intern. Conf. Robot. Biomim. 1347-1352 (2013)
- 8) Y. Okuda, S. Takahashi, K. Kawabata, H. Aonuma, K. Iwata and Y. Satoh: "Vision-based tracking for ecology analysis of the cricket", Proceedings of the 1st Int. Symp. Computing and Net-working Across Practical Development and Theoretical Research (CANDAR'13) (2013)
- Y. Okuda, S. Takahashi, K. Kawabata, H. Aonuma, K. Iwata and Y. Satoh: "Behavior observation method for the cricket", Proc. 2013 IEEE Int. Conf. TENCON. 546– (2013)

## 4.4 講演

#### a. 招待講演

#### i ) 学会

- Ichiro Tsuda: Classes of Mathematical Modeling for Brain Dynamics, Keynote Speech, The Third Joint IEEE International Conference on Development and Learning and on Epigenetic Robotics. Osaka City Central Public Hall, Osaka, Japan. August 18–22 (2013)
- ii )研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) 津田一郎: カオス脳理論からコミュニケーション神経情報 学へ向けて, 招聘講演、第26回情報伝送と信号処理ワー クショップ(CSWS)、登別温泉第一滝本館(北海道)、2013 年11月13日
- I. Tsuda: Modeling the Genesis of Functional Elements in the Networks of Interacting Units, Invited talk, The 3rd International Symposium on Innovative Mathematical Modeling, The University of Tokyo, Tokyo, November 12, 2013
- 3) 津田一郎: 脳ダイナミクスの数理構造と医療, 招待講演、 北大一理研ジョイントシンポジウム「未来医療を拓く生体予 測シミュレーション」、北海道大学学術交流会館(北海道)、 2013年8月1日
- 4) Ichiro Tsuda: A genesis of components in the networks of interacting units Invited talk. The 4th International Conference on Cognitive Neurodynamics(ICCN'13), Agora for Biosystems, Sigtuna, Sweden, 23-27 June (2013)
- 5) Yuzuru Sato: Random dynamical systems approaches to noise-induced phenomena, Invited Talk, Workshop on Lagrangian Coherent Structures and Dynamical Systems, Hokkaido University, Sapporo, (5 Mar. 2014)
- 6) Yuzuru Sato: Real number computation and dynamical systems, 招待講演, 力学系と計算, RIMS, Kyoto University, Kyoto (15 Jan. 2014)

- H. Aonuma\*: "Modeling of Group Size Dependent Aggres-sion in the Cricket", CREST International Symposi-um-Locomotion of Animals, Robotics and Mathematics, Hokkaido University (2014-03)
- 8) 青沼 仁志\*: 「適応行動の実時間性を創り出す脳を理解するためのニューロロボティクス」、ブレインウェア工学研究会、東北大学電気通信研究所 (2013-12)
- 9) 青沼 仁志\*: 「個体間相互作用による内部状態の変化 と攻撃行動の動機付け」、スワームロボティクス調査 研究会主催講演会、北海道大学 (2013-12)
- 10) H. Aonuma\*: "Synthetic approach for understanding social adaptability using insects", The 1st Joint Symposium of Bordeaux Univ. and Tohoku Univ., 東北大学 (2013-10)
- 11) 青沼 仁志\*: 「個体間相互作用により調節される脳機能の恒常性」、平成25年度第2回ブレインウェア研究会、東北大学電気通信研究所(2013-06)

#### iii)コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 津田 一郎: 脳の中のカオス-数学、物理学、情報学、生物学が交差するサイエンス,招待講演、第22 回先端科学移動大学2 0 1 3、釧路湖陵高校(北海道)、2013年11月15日
- 2) 津田 一郎: 社会を変える数学、招待講演、第14回九大・北大合同フロンティア・セミナー、東京ステーションコンファレンス(東京都)、2013年11月21日
- 3) 津田 一郎:コミュニケーションする脳!?、招待講演、第22 回先端科学移動大学2013、釧路市生涯学習センター (北海道)、2013年11月16日
- 4) 青沼 仁志\*:「個体間相互作用により変容する攻撃行動 の動機付け」、長谷川研究室セミナー、北海道大学農学 部(2014-01)
- 5) 青沼 仁志\*:「社会適応の創発メカニズムのシステム的 理解」、EZOゼミ、北海道大学環境科学院 (2013-03)

## b. 一般講演

# i )学会

- 1) Yuzuru Sato: Random dynamical systems modeling for brain wave synchrony, 一般講演, NOLTA 2013, Santa Fe, USA, (11 Sept. 2013)
- 2 Yuzuru Sato: Computability and Complexity of Julia Sets 一般講演, NOLTA 2013, Santa Fe, USA, (9 Sept. 2013)
- 3 下地 博之\*、青沼 仁志、岡田 泰和、三浦 徹、辻 和 希:「トゲオオハリアリにおけるワーカーの脳内アミ ン濃度と女王接触頻度の関係」、第61回日本生態学会大 会、広島国際会議場 (2014-03)
- 4 杉本 靖博\*、青沼 仁志、川端 邦明、大須賀 公一:「個 体間相互作用から学ぶコトミメティクスーロボット間 相互作用による内部状態の変化を用いた位置同定法の 再解釈-」、第26回自律分散システムシンポジウム、 東京大学(2014-01)

- 5) 加納 剛史\*、大須賀 公一、小林 亮、青沼 仁志、石川 将人、杉本 靖博、大脇 大:「「個性」を持つ粒子集 団が創り出す動的秩序~人間社会における交友関係を 採り上げた事例研究~」、第26回自律分散システムシ ンポジウム、東京大学(2014-01)
- 6) 青沼 仁志\*: 「自律分散-創発-移動知-コトミメティ クス,生物学のこれまでとこれから」、第26回自律分散 システムシンポジウム、東京大学 (2014-01)
- 7) 川端 邦明\*、青沼 仁志、杉本 靖博、細田 耕、薛 建 儒:「個体間相互作用から学ぶコトミメティクスー昆 虫-ロボット相互作用系による行動実験ー」、第26回自 律分散システムシンポジウム、東京大学(2014-01)
- 8) 佐藤 英毅\*、加納 剛史、青沼 仁志、松坂 義哉、石黒 章夫:「クモヒトデの腕間協調メカニズムの数理モデ ル」、第26回自律分散システムシンポジウム、東京大学 (2014-01)
- 9) 矢野 史朗\*、渡邊 崇之、青沼 仁志、淺間 一: 「受 容体理論による縫線核セロトニン神経のモデル化と解 析」、第26回自律分散システムシンポジウム、東京大学 (2014-01)
- 10) 青沼 仁志\*: 「個体間相互作用から学ぶコトミメティクスー昆虫の個体間相互作用によって変容する内部状態」、第26回自律分散システムシンポジウム、東京大学(2014-01)
- 11) K. Kawabata\*, H. Aonuma, K. Hosoda and J. Xue: "Con-trolled interaction with the cricket based on on-line pose es-timation of mobile robot", IEEE Intern. Conf. Robot. Bio-mim., Shenzhen, China (2013-12)
- 12) Y. Okuda\*, S. Takahashi, K. Kawabata, H. Aonuma, K. Iwata and Y. Satoh: "Behavior observation method for the cricket", 2013 IEEE Int. Conf. TENCON., Xi'an, China (2013-12)
- 13) 青沼 仁志\*、渡邊 崇之: 「クロヤマアリの攻撃行動 の動機付けに関わる脳内アミン」、日本動物学会 第84 回岡山大会、岡山大学 (2013-09)
- 14) 佐藤 英毅\*、加納 剛史、坂本 義哉、松坂 義哉、青沼 仁志、石黒 章夫: 「腕切断実験から探るクモヒトデ の腕間協調メニズム Investigation of inter-limb coordination mechanism of opiuroids via arm-amputation experiments」、第23回日本数理生物学会、静岡大学浜松 キャンパス (2013-09)
- 15) 加納 剛史\*、大須賀 公一、小林 亮、青沼 仁志、石川 将人、杉本 靖博、大脇 大、石黒 章夫: 「人間社会 の生成崩壊ダイナミクスの数理モデル」、第23回日 本数理生物学会、静岡大学(2013-09)
- 16) H. Aonuma\*: "Brain biogenic amine associated with early colony establishment in the queen of Japanese wood ant", 日本比較生理生化学会第35回大会, イーグレひめじ (兵庫県姫路市) (2013-07)

## ii )研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) Yuzuru Sato: Random basin in dice roll、一般講演、ランダム力学系理論とその応用、RIMS, Kyoto, Japan, (20 Feb. 2014)
- 2) Yuzuru Sato: Random dynamical systems approaches to noise-induced phenomena, 一般講演、ランダム力学系理論とその応用、RIMS, Kyoto University, Kyoto, (19 Feb. 2014)
- 3) Yuzuru Sato: Asymmetric game dynamics and its applications, 一般講演、マクロ経済動学の非線形数理、RIMS, Kyoto University, Kyoto (24 Jan. 2014)
- 4) 西田 洋司、高橋 宗良、山口 裕、津田 一郎、ローレンス・ヨハン: A predictive model of theta phase shift during fixation in the hippocampus, 一般講演、第30回日本脳電磁図トポグラフィ研究会、福岡山王ホール(福岡山王病院内、福岡県)、2014年1月11日-12日
- 5) 田島 実香、山口 裕、津田 一郎: Gamma波の伝搬に対する抑制性細胞の役割、ポスター、脳と心のメカニズム 第14回 冬のワークショップ、ルスツリゾート(北海道)、2014年1月8日-1月10日
- 6) 由利 美智子,山口 裕: The generalized iterated function system in the hippocampus,口頭発表、津田教授還曆記 念研究集会 複雑系数理から動的脳観へ、北海道大学 理学部大講堂(北海道)、2013年9月17日-18日
- 7) 山口 裕、津田 一郎: Evolution of Heterogeneous Modules via Maximization of Bi-directional Information Transmission, ポスター、2013年度包括脳ネットワーク 夏のワークショップ、名古屋国際会議場(愛知県)、2013年8月29日-9月1日
- 8) Yongtao Li, Ichiro Tsuda: A Plausible Model of Hippocampal-VTA Microcircuits, ポスター、2013年度包括脳ネットワーク夏のワークショップ、名古屋国際会議場(愛知県)、2013年8月29日-9月1日
- 9) 塚田 啓道、藤井 宏、津田 一郎、合原 一幸: A Neurodynamical Account for Visual Hallucinations in Dementia with Lewy Bodies (DLB) with a Conceptual Model, ポスター、2013年度包括脳ネットワーク夏のワークショップ、名古屋国際会議場(愛知県)、2013年8月29日-9月1日
- 10) Hiromichi Tsukada, Hiroshi Fujii, Ichiro Tsuda and Kazuyuki Aihara: Recurrent complex visual hallucinations in dementia with Lewy Bodies (II): a neurodynamical account based on nicotinic receptor loss hypothesis with a conceptual model, poster, The 4th International Conference on Cognitive Neurodynamics(ICCN'13), Agora for Biosystems, Sigtuna, Sweden, 23-27 June (2013)
- 11) Yongtao Li, Ichiro Tsuda: A computational model of hip-pocampal-VTA microcircuits: Why expectation of reward in rat striatum at choice point is covert?, poster, The 4th International Conference on Cognitive Neurodynamics(ICCN'13), Agora for Biosystems, Sigtuna, Sweden,

の情報表現、2012~2014年度

- 23-27 June (2013)
- 12) Yutaka Yamaguti: Evolution of Heterogeneous Network Modules via Maximization of Bi-directional Information Transmission, poster, The 4th International Conference on Cognitive Neurodynamics(ICCN'13), Agora for Biosystems, Sigtuna, Sweden, 23-27 June (2013)
- 13) Yuzuru Sato: Random dynamics from time series, Invited Talk, mini-symposium "Dynamics, Prediction and Control of Noisy Complex Systems from Physiology to the Atmosphere", SIAM Conference on Applications of Dynamical systems, Snowbird, USA, (21 May 2013)
- 14) Yongtao Li and I. Tsuda: When Brain Meets Chaos Oral Presentation, Cognitive Neurodynamics and Control Workshop, East China University of Science and Technology, Shanghai, China, Apr. 26(2013)
- 15) 加納 剛史\*、大須賀 公一、小林 亮、青沼 仁志、石川 将人、杉本 靖博、大脇 大、石黒 章夫: 「交友関係 の自己組織化過程の数理モデル」、第19回交通流のシミュレーションシンポジウム、名古屋大学(2013-12)
- 16) Y. Okuda\*, S. Takahashi, K. Kawabata, H. Aonuma, K. Iwata and Y. Satoh: "Vision-based tracking for ecology analysis of the cricket", the 1st Int. Symp. Computing and Networking Across Practical Development and Theoretical Research (CANDAR'13), 松山 (2013-12)
- 17) 青沼 仁志\*: 「個体間相互作用によって変容する内部 状態の理解」、2013年度無脊椎動物神経生物学研究会、 御殿場高原ホテル時之栖 (2013-09)

## 4.5 予算獲得状況 (研究代表者、分類、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的遍歴の役割、2009~2013年度
- 3) 津田 一郎、HFSP AWARDS 2010、"Deliberative decision-making in rats"、2010~2012年度(2014年まで使用期限延長)
- 4) 津田 一郎、基盤研究 C、学習・記憶における部分と全 体の情報表現、2012~2014年度
- 5) 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
- 6) 佐藤 譲、基盤研究C、雑音誘起現象へのランダム力学 系アプローチ、2012~2014年度
- 7) 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
- 8) 西野 浩史、新学術領域研究(公募)、昆虫の聴覚器規 範設計の解明、2013~2014年度
- 9) 西野 浩史、住友財団・基礎科学助成、昆虫における性 フェロモンの多面的作用の解明、2012~2014年度
- 10) 山口 裕、基盤研究 C、学習・記憶における部分と全体

#### 4.6 社会教育活動

#### a. 公的機関の委員

- 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 (2013年4月1日 ~2014年3月31日)
- 2) 津田 一郎、独立行政法人科学技術振興機構、「複雑系数理モデル学の基礎理論構築とその分野横断的科学技術応用」国際アドバイザー(2013年4月1日~2014年3月31日)
- 3) 津田一郎、東京大学大学院情報理工学系研究科、外部評価委員、2013年4月10日~2013年4月12日)
- 4) 津田 一郎、独立行政法人日本学術振興会、科学研究費 委員会専門委員、(2013年12月1日~2014年11月30日)
- 5) 津田 一郎、科学技術動向研究センター、専門調査員 (2013年4月1日~2014年3月31日)
- 6) 津田一郎、文部科学省、科学研究費委員会専門委員、 2012年12月1日~2013年11月30日)
- 7) 津田 一郎、文部科学省研究振興局、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、(2012年12月12 日~2013年11月30日)
- 8) 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~2014年9月30日)
- 9) 津田 一郎、京都大学数理解析研究所、専門委員会委員、 (2013年4月1日~2015年8月31日)
- 10) 津田 一郎、北海道大学数学連携研究センター運営委員、 兼務教員(2013年4月1日~2014年3月31日)
- 11) 津田 一郎、情報システム研究機構統計数理研究所、数 学協働プログラム運営委員会委員(2013年6月1日~ 2014年3月31日)
- 12) 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 (2013年4月1日~2014年3月31日)
- 13) 佐藤 譲、北海道大学数学連携研究センター兼務教員 (2013年4月1日~2014年3月31日)
- 14) 佐藤 譲、独立行政法人理化学研究所 脳科学総合研究 センター、客員研究員 (2013年4月1日~2014年3月31 日)
- 15) 佐藤 譲、JSIAM Letters編集委員、日本応用数理学会 (2013年4月1日~2014年3月31日)
- 16) 青沼 仁志, 理化学研究所機関間連携研究グループ XJTU連携研究チーム客員研究員(2013年4月1日~2014 年3月31日)
- 17) 山口 裕、北海道大学数学連携研究センター兼務教員 (2013年4月1日~2014年3月31日)
- 18) 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(2013年4月1日~2014年3月31日)

### b. 国内外の学会の役職

- 1) 青沼 仁志: 日本動物学会国交流委員会委員 (2013 年2月1日~2016年12月31日)
- 2) 佐藤 譲、日本応用数理学会、代表会員(2013年4月1日~2014年3月31日)
- 3) 西野 浩史、日本比較生理生化学会 評議委員 (2013 年4月1日~2014年3月31日)
- 4) 西野 浩史、日本動物学会北海道支部 庶務幹事(2013 年8月1日~2014年3月31日)
- d. 北大での担当授業科目 (対象、講義名、担当者、期間)
- 1) 理学部、学部3年、数理科学基礎、津田 一郎他 (オム ニバス方式)、平成25年度1学期
- 2) 大学院生、全学大学院共通科目「脳科学入門V」、津田 一郎、2014年5月22日・7月10日・7月17日
- 3) 理学部、学部4年/大学院、数理解析学続論「カオスと 複雑性」(学部) / 数理解析学講義「カオスと複雑性」 (院)、佐藤 譲、平成25年度1学期
- 4) 生命科学院、生命システム科学基礎論、青沼 仁志、2013 年04月01日~2014年09月30日
- 5) 生命科学院、行動システム制御科学特論、青沼 仁志、 2014年04月01日~2013年09月30日
- 6) 生命科学院、生命科学論文講読、青沼 仁志、2013年04 月01日~2014年03月31日
- 7) 学部1年、フレッシュマンセミナー「最先端の研究に触れる:生命現象の可視化と数理」、分担、西野 浩史、前期
- 8) 理学部、学部2年、コンピュータ、山口 裕、平成25年 度2学期
- e. 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→電子科学研究所)

• 学術研究員

田所 智 (電子科学研究所)

渡部 大志 (数学連携研究センター→電子科学研究所)

岩﨑 正純 (電子科学研究所)

前田 真秀 (数学連携研究センター→電子科学研究所)

玉井 信也 (数学連携研究センター→電子科学研究所)

渡邊 崇之(学術振興会 特別研究員)

塚田 啓道 (数学連携研究センター→電子科学研究所)

・日本学術振興会外国人招へい研究者

Rubin WANG (華東理工大学)

2012年8月1日~2013年5月31日

## 分子生命数理研究分野

教 授 小松崎民樹 (総研大、理博、2007.10〜) 准教授 Chun Biu Li (テキサス大、PhD、2008.3〜) 助 教 寺本 央 (東大院、博(学術)、2008.6〜) 助 教 西村吾朗 (阪大院、理博、2007.10〜) 特任助教 河合信之輔 (京大院、理博、2011.4〜2013.9) 博士研究員 James N. Taylor (2012.8〜) 古川大介 (2012.4〜)

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) Genming Wang(生命科学院 生命融合科学コース) 博士課程前期

菊池正浩 (生命科学院生命融合科学コース)

井部邦彦 (理学院数学専攻) 新沼 奏 (理学院数学専攻) 津田吏紗 (理学院数学専攻)

1. 研究目標

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

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

当該研究分野では、化学反応や生体分子の構造転移などの状態変化における「偶然と必然」、「統計性と選択性」、「部分と全体」の基礎原理を解明するとともに、"トップダウン"

と"ボトムアップ"の両アプローチを橋渡しする概念や方法論を確立し、できるだけ自然現象に照らし合わせながら生命システムの階層性の論理を構成し、生命の中に積木細工をこえる新しい概念を創出することを目指している。

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

# 2. 研究成果

# (1)変化点解析による単一ヌクレオチドのトンネル電流解析

塩基を1分子レベルで特定するトンネル電流を用いた一分子検出技術(図 1a-b)の近年の進展(Tsutsui et al., Nat. Nanotech., 5, 286, 2010; Ohshiro et al., Sci. Rep., 2, 501, 2012)により、近い将来、個人医療向けの第三世代の無標識、低価格、高性能なDNA配列決定装置の誕生が期待されている。しかしながら、実験ノイズに加えてトンネル電流が計測されるナノポア(ナノ細孔)を通過するヌクレオチドの立体配座ゆらぎの存在などにより、ヌクレオチドを正確に特定することは必ずしも容易ではない(図 1b)。今年度は、高速かつ正確な単一DNAシークエンシングの実現にむけて、トンネル電流から単一ヌクレオチドを同定する新たなデータ駆動型の解析手法を検討した。

具体的には、我々は電流揺らぎのノイズのモデルを同定 する必要なしにトンネル電流時系列内の変化を検知する変 化点解析を考案した。それによって、低いS/N比であって も、例えば、ビンニング法、ローパスフィルターによる平 滑化、閾値法といった従来の解析法では特定できなかった 高速な電流変化を自動的かつ正確に同定することが可能と なった(図 1c 上段)。電流データからヌクレオチドを同定 するということは、立体構造の揺らぎなど予期できないノ イズも存在する。また解析上、変化点の同定自体にも偽陽 性判定などを必然的に伴う。そのため、変化点を同定した うえで、塩基の数が決まっていることを利用して、情報理 論に基づくクラスタリング法を適用することを提案した (図 1c 下段)。その結果、ノイズ除去された電流のヒスト グラムからヌクレオチド毎に異なる分布を容易に確認する ことができた (図 1d,e)。解析手法自体は汎用性が極めて 高く、例えば、イオンチャンネル開閉、1分子酵素反応、 量子ドットのブリンキング現象、蛋白質モーターの階段的 変化といった、有限離散準位を伴う一分子実験時系列に応 用することができ、生体分子に内在する複雑な動力学を客 観的に定量化することができる。

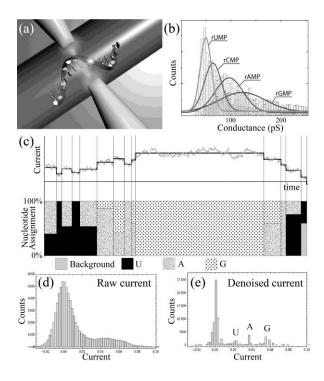


図 1(a) 2 つのナノ電極間のトンネル電流計測による DNA/RNAシークエンシングの概略図(阪大産研谷口研提供) (b) RNAの4つのヌクレオチドーリン酸の電導度ヒストグラム。低い S/N 比であるため、ヌクレオチドの電流分布が重なっている。 (c)変化点解析の結果事例(上図)と、クラスタリング法によるヌクレオチド配列(下図)。クラスタリング法により、変化点の間隔がどのヌクレオチドに対応するかの確率を得ることができる。生データ(d)とノイズ除去(e)の電流のヒストグラムから、変化点解析がヌクレオチドの特定において強力なノイズ除去ツールであることがわかる。

# (2) 分子の動作機序を理解するための方法論の整備

分子の動力学は、特に分子の高振動励起状態において、 一見すると法則性がなく統計的に無秩序に振舞うように見 えるが、その分子の運動を元の座標ではなく、ある非線形 変換を介した座標系で観測すると、その動力学の背後に隠 れた秩序が浮き彫りになる場合が多い。その非線形変換は リー正準変換摂動理論により構成できるが、その摂動論的 な制約から分子の平衡構造あるいは遷移状態近傍でしか見 通しの良い記述を与えないことが知られている。分子が高 振動励起状態にあると、分子はそれらの構造から離れた大 振幅運動を呈するため、従来の正準変換摂動理論ではその ような大振幅運動を記述することが難しかった。我々は、 そのような大振幅運動を記述するための新規な正準変換摂 動理論の計算法を開発した。リー正準変換摂動理論が有効 である領域を定量化するために、non blow-up領域(摂動の 補正が有限となる領域)、validity領域(摂動の結果得られる 標準型が背後にある構造をある精度の範囲で記述できる領 域)、という二つの概念を導入した。それらの概念をもとに、 リー正準変換摂動理論の際に用いられる型(Hori, Deprit, Dragt & Finn)に依存してどのようにnon blow-up領域、 validity領域が依存するかを調べた。その結果、いくつかの モデルでは、Dragt & Finn型がnonblow-up領域、validity領域 二つの側面で最良の結果を与えることがわかった。また、その型に基づき、有効領域を改良するための方法論も開発した。この方法論は、エネルギー伝達の背後にある法則性の発見、状態選択的化学反応理論の構築だけではく、近年、活発に議論されている結合振動子系の協同運動の抽出等への応用も期待されている。

#### (3) 推定量の数値的構成

生体分子の1分子蛍光観測や、その他多くの物理実験に おいて、観測量は統計的なばらつき(誤差)を伴う。観測 量は、知りたい物理量の値(真値)そのものではなく、真 値をパラメータとして与えられる何らかの確率分布に従う 確率変数である。そこで、実験データの解析においては、 観測量の関数として, 真値に近いと期待される「推定量」 を計算することになる。推定量を観測量の関数としてどの ような形で構成するかは、実験データの解析において重要 な部分の一つである。観測量の確率分布が物理量の関数と して簡単な形 (正規分布等)で表記できる場合には、最良 の推定量を解析的に構成することが可能であるが、現実の 実験では観測量の確率分布と物理量との関係が単純な形で はない場合や、確率分布が解析的に書けない場合も存在す る。そこで、本研究では数値計算による手法を用いて、任 意の与えられた確率分布から最良の推定量を数値的に構成 する手法を展開した。

推定量の「良さ」を評価する基準としては、bias(推定値の期待値と真値との差)やrisk(推定値の平均2乗誤差)が知られている。本研究の手法では、研究の興味や得られるデータの性質に応じて自由に調整できるパラメータを導入してbiasとriskとに重みをつけ、両者の重み付平均を最小化することによって最良の推定量を構成するようにした。これにより不偏推定量(bias がゼロ)および平均2乗誤差が最小の推定量が、各々上記のパラメータに特定の値を設定した場合の解として得られる。

得られた推定量の性質を確認するために、一分子 FRET 実験のシミュレーションおよび実データに適用した。この 実験は、生体分子の特定の場所に結合した色素分子からの 蛍光強度を時間領域で計測するものであり、観測量は各時間に検出器に届いた光子数、その確率分布はポアソン分布で、平均値が色素間距離の分数式で表される。本研究の手法で構成された推定量を用いて色素間距離 xの2乗を推定

した場合の期待値を xの 関数として描いたもの を図 2 に示す。従来よよ 用いられている最尤推 定量を用いた結果も かせて示されているが, 本研究の推定量の方 が真値との一致が認さ り良いことが確認さ れた。この手法を用い

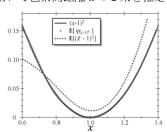


図 2 開発した不偏推定法による色素 分子間距離  $x(=R/R_0)$  の推定。 $R_0$  は Foerster 距離を意味する。

ることで、生体分子の構造ダイナミクス等をより忠実に取り出すことができるものと期待される。

# (4)ノイジーな1分子FRET時系列データから彫りだす自由エネルギー地形に関する新しい手法の開発

近年、単一分子Forster共鳴エネルギー移動(FRET)計測により、多くの生命動態現象に対する機構的な洞察が得られるようになった。例えば、中枢神経系における最も豊富なシグナル伝達物質であるAMPA受容体に対する単一分子FRET実験では、その神経系内での情報伝達に内在する物理機構の評価を可能にした。図3の左上に示されている、例えば神経伝達物質のような小さな分子と相互作用するこれらの結合ドメインを含む受容体は、情報伝達の活性化と非活性化の引き金となる。FRET実験において、これらのドメインは、蛍光プローブでラベルされる。これらのプローブをレーザー励起することで、プローブから放出される光子の時間変化から生体分子における時間ゆらぎを評価することができる。このような構造ゆらぎを時間に対して捉

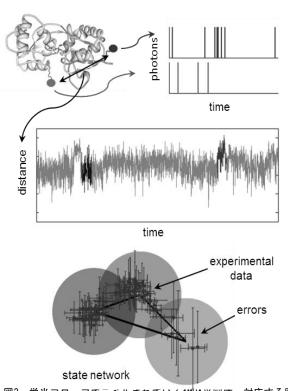


図3: 蛍光フローフでラベルされているAMPA 受容体。対応する距離の時系列データとそこから得られる状態空間ネットワーク。実験誤差故に、単純に各データを0か1の確率で一つの状態に同定することができないことが分かる。

える(図3)ことによって、情報伝達の活性化と非活性化の機構を評価することができ、これらのシステムは遷移ネットワークを通して理解することができることが期待される。しかしながら、このような実験データを読み取る際に著しく困難なのは、図3で示されているような計測時の実験誤差の存在である。今年度は、情報理論におけるRate-distortion理論によるソフトクラスタリングと呼ばれ

る方法に依拠し、このような実験誤差の特徴づけ、定量化をしながら、背後に存在する遷移ネットワークならびに自由エネルギー地形を自動抽出する方法論を開発した。この方法により実験データに潜む物理機構の本質が明らかにされることが期待される。

# (5) コロイド流体における動的不均一性とケージ破れの動力学

光学的にトラップされた単一粒子から生じる微視的摂動に対して力学的に応答するコロイド流体の実験データ(J. Pesic *et al.*, *PRE* **86**, (2012))について、コロイド流体の動的不均一性を調べた。摂動の時間スケールにおいて(ケージ

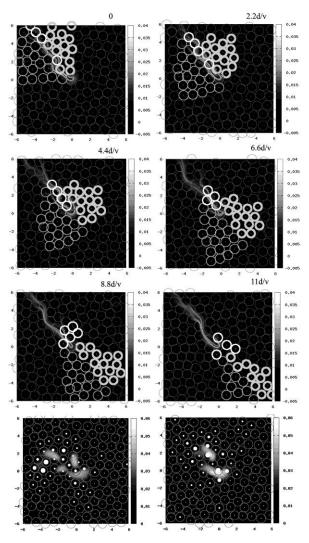


図4: (a) FTLE 場において高い数値をもつ LCS が、流れてくる粒子たち(灰色の細い線と灰色の太い線の円)と中心粒子によって著しくかく乱(白色の円)される粒子を分離することが分かる。(b) (白で塗られた円のサイズで表される) Wavelet 分解して得られる摂動の時間スケールと合致するスペクトル成分と FTLE 場の関係。それらはかご破れの動力学と同じ時間スケールを算出するFTLE の畝の近くに位置している。

の崩壊を引き起こす)充填配置の歪みを受けるコロイド粒子たちを連続ウェーブレット変換、ならびに力学系理論の分野におけるラグランジュ協同構造(LCS)によって調べた。

ラグランジュ協同構造とは、異なる動的挙動の領域に流れを分けるセパラトリクスであり、ここでは、有限時間リアプノフ指数(FTLE)から同定した(Shadden et al., Physica D 212(2005))。我々は、コロイド系における動的不均一性およびケージ破れの動力学を理解するうえで、LCSが有用であること、コロイド粒子を囲む隣接する充填配置が壊れるプロセスを支配するうえで重要な役割を担っていることなどを新規に見出した(図4)。

#### (6) 複雑分子系の化学反応ダイナミクス理論の開発

化学反応という現象は、分子系においてはフェムト秒から 数時間に渡るじつに広い時間スケールで観測される。反応 速度定数を見積もる際の最も標準的な理論である遷移状態 理論は二状態間反応に基づいた理論であるため、準安定状 態が多数ある複雑分子系にそのまま適応すると様々な問題 を生じる。本年度は、①一次のサドル(とよばれるポテン シャルエネルギー表面上の単純な反応障壁)以外での反応 の決定性の定式化、ならびに②第一原理計算に基づく、複 雑分子系の異性化反応ネットワークの時間階層構造抽出を 行った。

①ここ10年ほどで、相空間上での古典的な反応機構の解 明が様々な系でなされるようになった。特に、一次のサド ル近傍で正準変換摂動理論を用いて、反応系と生成系(す なわち、反応の「前」と「後」)を決める真の遷移状態の解 析的な表現や軌道の反応の可否を決める反応性境界(安 定・不安定不変多様体に相当すると考えられている) やそ の摂動に対する頑強性が示された。他方で、系のエネルギ ーを上げると、高次のサドルを含む"複雑な"反応障壁が現 れ、それらが系の大域的な輸送現象 (≒反応) を支配する 可能性があるのにもかかわらず、その重要性をほとんど意 識されてこなかった。我々は従来考えられてきた一次のサ ドルを介した反応での反応性境界の定義をそのような複雑 な反応障壁で適応できるように一般化し、具体的な複数の サドルが障壁を構成する系で反応性境界を抽出した。ただ しこの定義では、予め見たい反応での状態を定義する必要 があり状態をどう定義するのかについては課題として積み 残された。

②この数年の間に、第一原理計算に基づく反応経路自動探索アルゴリズム(例えば GRRM)や、タンパク質一分子計測から得られた時系列の隠れマルコフモデルを用いた解析(ε機械)によって、計算・実験両面で反応ネットワークを直接抽出する手法が開発された。しかしながら、得られたネットワークのノード数が少なくとも数十から数百あり、また時系列解析の場合、観測時間幅により得られるネットワークのノード数が変わってしまうため、どのように得られたネットワークを理解するべきかについては未解決であった。このような課題を解決するため、もしくは、従来の遷移状態理論を複雑な系に適応した際に生じる、流量最小の分割がもつ問題を適切な形で解消するため、我々はネットワークを"往来"最小の分割に基づいて解析し、ネットワークを"往来"最小の分割に基づいて解析し、ネッ

トワークから時間階層を抽出する手法を独自に開発した。 現在、反応経路自動探索アルゴリズムを用いて得られたア リルビニルエーテルのクライゼン転位の際の異性化反応ネ ットワークの解析に取り組んで、実験との対応関係の解明 に取り組んでいる。

# (7)確率的セルオートマトンにおけるパターンと個々の相 関の関係に関する情報理論

昨年までの研究によって、パラメータによって複数のパ ターンを形成する確率的セルオートマトンの一種である Nonlinear voter model において、連結情報量を用いることで パターン毎に高次相関の違いがあることが分かっていた。 特にPeriodic と呼ばれるパターンにおいて2次と4次の相関 といった高次の相関が重要であることが分かっていた。し かし、それは、パターンといったマクロのデータから個々 の相関といったミクロの情報量を抽出した一方向のみで、 なぜその相関が必要であるのか、その量の重要性や解釈を 与えることは難しい。そこで個々の相関であるミクロから パターンであるマクロの構成という逆方向について調べた。 具体的には、相関をモーメントの条件として与えた最大エ ントロピー法を、元のパターンの情報を与える近似法を用 いて解き、その解である最大エントロピー分布からマルコ フ連鎖モンテカルロ法によってパターンを構成し、元の相 関の条件との関係性を調べた。その結果、パターン形成に おける高次相関の重要性について、相関からパターンを組 み立てることによる構成論的な理解を得ることができ、ま た相関の条件に対して、条件を増やすことで元のパターン の情報が増えたにも関わらず、元のパターンから遠ざかる ケースが存在することが分かった。

# (8) 生体計測のための光子検出システムの開発とそれによるゆらぎ測定の研究

本年度は、生体分子の溶液中での運動あるいは組織レベルでの光強度のゆらぎを通じて見る運動の計測を目的とした光子計測システムを試作した。試作したシステムの評価には、蛍光イメージングに用いる色素分子を用いその蛍光揺らぎ計測を行った。

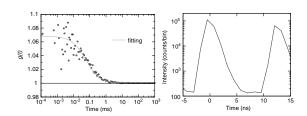


図5 IR806メタノール溶液の蛍光自己相関関数と時間応答関数

光強度のゆらぎを用いた計測の中で、蛍光揺らぎ計測は、 蛍光相関分光法などとして近年細胞レベルの研究に用いられ、単一分子レベルでの分子間相互作用などの解析に有用 であることがわかってきた。通常、プローブに用いる蛍光 分子による制限から可視波長域で行われることが多い。より生体組織の透過性が高くかつバックグラウンドが少ない波長域である近赤外波長域に計測波長域を移すことにより、組織レベルで分子レベルの計測が可能となる可能性がある。そこで、本研究では、光子を高速で計測しその振る舞いを解析できる検出系とその応用として近赤外波長域の蛍光ゆらぎ計測のための共焦点顕微鏡光学系を試作した。特に、光子計数システムでは、FPGA(Field Programable Gate Array)を用いた光子記録回路を設計試作し、最小約1 ns時間分解能で独立した2つの(約2 ns分解能で4入力)検出器で検出された光子の検出時刻データすべてを記録可能となった。このことにより、検出光子に対する様々な解析が可能となった。ちにより、検出光子に対する様々な解析が可能となった。特に、今回は、光子の自己時間相関関数、相互相関関数などを計算するとともに、パルス光を用いることにより同時に光子の時間応答関数を得ることを行った。

図5に、in vivo蛍光イメージングでの使用が考えられる 蛍光色素IR806のメタノール溶液の自己相関解析と時間応 答関数測定の結果を示す。メタノール溶液中でこの色素は 自由拡散運動を行っていると考えられるため、この自己相 関関数は励起光領域を通過する時間(拡散時間)とその中に 含まれる数の情報を持つ。自己相関関数はモデル関数をあ てはめることにより評価することができ、フィッティング の結果は図に示された通り、実験の相関関数をおおよそ再 現することができた(図中緑線)。またここで得られた拡散 時間は分子量から推定される値と近かった。

蛍光分子の動きの情報は重要な情報であるが、合わせて、環境に敏感に依存する蛍光寿命も計測することによりさらなる情報が得られる。多くの色素では蛍光寿命がナノ秒オーダであり、今回試作した装置の時間分解能を考えると計測可能であるはずである。図5の右図にその結果を示す。2つあるピークはレーザーの繰り返し周期(12.5 ns)に対応する。装置自身に由来する時間広がりが大きく、その影響の考慮が必要であるが、おおよそ予測される値となっている。これらのことからこの装置を用いてイメージングプローブの評価が可能であることがわかった。そこで共同研究先で開発している蛍光イメージングで用いる蛍光性ラクトソームについて計測を行い、粒子径が約35 nmであることを確かめることができた。

今後は、このシステムにより蛍光イメージングプローブの評価を行うとともに、散乱光の強度ゆらぎなどの解析などにも光子計数装置を応用する予定である。その結果、より多くの生体組織情報を取り出す方法を構築する予定である。

# 3. 今後の研究の展望

生体機能を司る分子は、多くの場合、アボガドロ数個ではなく、少数個が参画し、有限時間内に生体機能は生起する。そこでは平衡統計の枠組みが必ずしも成立している保証はなく、一分子観察を通して、長時間の分子記憶などの

動態現象として具現化されているものと思われる。しかし ながら、シグナル伝達、エネルギー伝達、DNA複製など の細胞機能において重要な役割を果たす分子機械は、熱揺 らぎに晒されながら、入力刺激に対する応答として始まる 一連の構造変化とそれに伴う化学反応から成り、平均熱工 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ックス と熱揺らぎの拮抗関係、時空間スケールの異なる階層間の 情報伝達、環境に適応しながら時々刻々変化する階層ネッ トワーク構造の遍歴現象などを考察していき、一分子基礎 学の創出を目指していく予定である。

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

- T. Sultana, H. Takagi, M. Morimatsu, H. Teramoto, C. Li and T. Komatsuzaki: "Non-Markovian properties and multiscale Hidden Markovian Network Buried in Single Molecule Time Series", The Journal of Chemical Physics, 139: 245101-245101-12 (2013)
- Y. Matsunaga, A. Baba, C. Li, J. E. Straub, M. Toda and T. Komatsuzaki: "Spatio-temporal hierarchy in the dynamics of a minimalist protein model", The Journal of Chemical Physics, 139: 215101-215101-13 (2013)
- Y. Nagahata, H. Teramoto, C. Li, S. Kawai and T. Komatsuzaki: "Reactivity boundaries for chemical reactions associated with higher index and multiple saddles", Physical Review E, 88(4): 42923-42923-11 (2013)
- H. Teramoto, G. Haller and T. Komatsuzaki: "Detecting invariant manifolds as stationary Lagrangian coherent structures in autonomous dynamical systems", Chaos, 23: 43107-43107-12 (2013)
- C. Li and T. Komatsuzaki: "Aggregated Markov Model Using Time Series of Single Molecule Dwell Times with Minimum Excessive Information", Physical Review Letter, 111: 58301-58301-5 (2013)

- 6) Y. Nagahata, H. Teramoto, C. Li, S. Kawai and T. Komatsuzaki: "Reactivity boundaries to separate the fate of a chemical reaction associated with an index-two saddle", Phys. Rev. E, 87(6): 062817-062817-4(2013)
- S. Kawai, D. Cooper, C. F. Landes, H. D. Mootz, H. Yang and T. Komatsuzaki: "Numerical Construction of Estimators for single-molecule fluorescence measurements", The Journal of Physical Chemistry B, 117(27): 8061-8074 (2013)

## 4.2 著書·訳書

- S. Kawai and T. Komatsuzaki: "Dynamics of Chemical Reaction around a Saddle Point - What divides reacting and non-reacting trajectories?", Reaction Rate Constant Computations; Theories and Applications edited by Keli Han and Tianshu Chu (RSC)(2013)
- Thomas Peacock, George Haller: 小松崎 民樹 訳, "ラグランジュ協同構造—流体の流れに隠れた骨格",パリティ11月号,(丸善出版株式会社)(2013)

#### 4.3 講演

#### a. 招待講演

#### i ) 学会

- 1) Y. Tsukazaki, Y. Mori, Y. Ohyanagi, Y. Nakane, M. Hasegawa, Q. Ma, T. Sakata, H. Yasuda, Y. Watanabe, Y. Yoshikawa, G. Nishimura, T. Jin: "In vivo multi-model cellular imaging with emission tunable 2nd near-infrared quantum dots", 日本光学会年次学術講演会(OPJ2013), 奈良県新公会堂, 奈良市, 奈良県(2013-11)
- 2) 小松崎 民樹\*:「分子イメージングから要素間の高次相 互作用の定量化に向けて」、第51回日本生物物理学会年 会、国立京都国際会館(2013-10)
- 3) 李 振風\*:「Inferring Kinetics Objectively from Single Molecule Time Series with Full Information Content」、第 51回日本生物物理学会年会、国立京都国際会館 (2013-10)
- 4) H. Teramoto\*: "Detecting and analyzing methods of normally hyperbolic invariant manifolds", XXXIII Dynamics Days Europe-Madrid 2013, Madrid, Spain (2013-06)
- 5) 小松崎 民樹\*: 「データ駆動型モデリングと一分子動 態解析における虚実」、日本顕微鏡学会第69回学術講演 会、ホテル阪急エキスポパーク (2013-05)

## ii )研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 西村 吾朗\*:「Tissue optical properties in an 1-um wavelength region」、第15回光科学技術で拓く脳・精神 科学平和探求研究会、ホテルクラウンパレス浜松、浜 松市、静岡県 (2014-02)
- Chun-Biu Li\*: "Time Series, Networks and Dynamics: A Perspective from the Information Theory", The 14th

- RIES-HOKUDAI International Symposium 網 [mou], CHÂTERAISÉ Gateaux Kingdom SAPPORO(2013-12)
- S. Kawai\*, H. Teramoto and T. Komatsuzaki: "Essential Coordinates to Describe the Dynamics of Many-atom Systems", 5th JCS International Symposium on Theoretical Chemistry, Todai-ji Culture Center (2013-12)
- 4) 寺本 央\*:「スペクトル解析による生体分子の構造転移モードの解析」、第1回アライアンス若手研究交流会 ~計算・計測・合成の融合~、東北大学片平キャンパス(2013-11)
- 5) 小松崎 民樹\*: 「分子個性(Dynamic disorder): 一分子生物学から産まれた新しい概念?」、第2回バイオ単分子研究会、つなぎ温泉 紫苑 (2013-11)
- 6) 小松崎 民樹\*:「Dynamic Disorder 再考:解析の虚実」、 研究会「理論と実験」2013、広島大学理学部 (2013-10)
- 7) 寺本 央\*、戸田幹人、小松崎民樹: 「個々の軌道の振舞いとその集団分布の振舞いの関係〜一軌道レベルでのスペクトル解析法とそれによる溶質分子と水の協同運動の抽出〜」、第36回溶液化学シンポジウム プレシンポジウム、北海道大学 学術交流会館(2013-10)
- Chun-Biu Li\*: "When Computational Mechanics Meets Single Molecule Time Series", 2013 International Symposium on Nonlinear Theory and its Applications, Santa Fe, USA (2013-09)
- Tamiki Komatsuzaki\*: "Revisiting Energy Landscape, Timescale, Coarse-Graining", Chemistry and Dynamics in Complex Environments, Telluride, CO., USA (2013-06)
- 10) Hiroshi Teramoto\*: "Detecting and analyzing methods of normally hyperbolic invariant manifolds", Illuminating 2013: Dynamical Perspectives on Molecular Processes, Loughborough, Leicestershir, UK (2013-05)

# iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 寺本 央\*、戸田幹人、小松崎民樹: 「力学系をみる二 つの視点: 軌道と分布の描像、の関係」、関東力学系セ ミナー、一橋大学 (2013-11)
- Chun-Biu Li\*: "The Hidden Markov Modeling with Exact Information Content of Dwell-Time Time Series", Complexity Sciences Center, Davis, USA (2013-09)
- 3) 小松崎 民樹\*: 「確率の起源:偶然と必然の原理」、 第1回少数性生物学トレーニングコース、大阪大学産業 科学研究所 (2013-8)
- 4) Tamiki Komatsuzaki\*: "A microscopic ruler tells us the underlying networks in single molecule measurements", Nanoscale Science Seminars 2013:A Microscopic ruler tells us the underlying networks in single molecule measurements, Stuttgart, Germany (2013-05)

#### b. 一般講演

## i ) 学会

1) 寺本 央\*、戸田 幹人、小松崎 民樹: 「生体分子と水の過渡的な協同運動の抽出」、日本物理学会 第69回年

- 次大会、東海大学湘南キャンパス (2014-03)
- 2) 宮川 尚紀\*、寺本 央、河合 信之輔、李 振風、小松崎 民樹:「パターン形成における本質的な高次相関情報 量の抽出」、日本物理学会 第69回年次大会、東海大学 湘南キャンパス (2014-03)
- 3) 永幡 裕\*、寺本 央、李 振風、小松崎 民樹: 「タンパク質―分子計測から得られたマルコフ連鎖がもつ時間階層構造の理解に向けて」、日本物理学会 第69回年次大会、東海大学湘南キャンパス (2014-03)
- 4) 牧野 顕、古川 大介、K. Awasthi、天満 敬、小野 正 博、西村 吾朗、佐治 英郎: 「光安定性の高い近赤外 蛍光イメージング用ナノ粒子造影剤の創製」、日本薬学 会第134年会、熊本大学、熊本市、熊本県 (2014-03)
- 5) 竹越 雅史、大川 晋平、正本 和人、西村 吾朗、山田 幸生:「一般化パルススペクトル法を用いた蛍光トモグラフィーの3次元画像再構成」、第26回日本機械学会バイオエンジニアリング講演会、東北大学片平キャンパス、仙台市、宮城県(2014-01)
- 6) 古川 大介\*、K. Awasthi、西村 吾朗: 「3次元時間分解型拡散トモグラフィにおける精度向上に向けた検討」、日本光学会年次学術講演会(OPJ2013)、奈良県新公会堂、奈良市、奈良県(2013-11)
- 7) T. Sultana\*, H. Takagi, M. Morimatsu, H. Teramoto, C. Li, Y. Sako and T. Komatsuzaki: "A Multiscale Kinetic Scheme Extracted from EGFR-Grb2 Single Molecule Reaction",第51回日本生物物理学会年会,国立京都国際会館(2013-10)
- 8) 永幡 裕\*、寺本 央、李 振風、小松崎 民樹: 「一分 子時系列から抽出されたマルコフ連鎖 定常ネットワ ーク における遷移確率が"最小"となる分子の"状態"の同定」、第51回日本生物物理学会年会、国立京都 国際会館(2013-10)
- 9) P. Nag\*, H. Teramoto, C. Li and T. Komatsuzaki: "Coherent dynamics in colloidal fluids in terms of Lagrangian coherent structures (LCS)", 第51回日本生物物理学会年会,国立京都国際会館(2013-10)
- 10) H. Yaginuma\*, S. Kawai, T. Keisuke, K. V. Tabata, T. Komatsuzaki, H. Imamura and H. Noji: "Quantifying the absolute ATP concentration inside single bacteria cells", 第51回日本生物物理学会年会, 国立京都国際会館 (2013-10)
- 11) J. N. Taylor\*, C. Li, S. Kawai and T. Komatsuzaki: "An Information-Theoretical approach to Local Equilibrium State Analysis for Single-Molecule Time-Series", 第51回 日本生物物理学会年会,国立京都国際会館 (2013-10)
- 12) H. D. Mootz, T. Komatsuzaki\*, H. Yang, X. Sun, T. E. Morrell, I. U. Rafalska-Metcalf, J. Alfermann, G. Volkmann, E. Dehling, C. Li, S. Kawai and J. N. Taylor: "Dynamical Conformation Coordinations in Non-Ribosomal Peptide Synthetases", HFSP 2013

- Awardees Meeting, The Palais de la Musique et des Congres (PMC), France (2013-07)
- 13) 河合 信之輔\*、寺本 央、小松崎 民樹:「生体分子の 長時間ダイナミクスと実効自由度」、第 16回理論化学討 論会、福岡市健康づくりサポートセンター(あいれふ)(福 岡市)(2013-05)

## ii )研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1. 永幡 裕\*、寺本 央, Li Chun-Biu, 小松崎 民樹:「タンパクの時系列から得られたMarkov連鎖の解析に向けて:グラフの分割とクラスタリングで定義する複雑な化学反応における状態とその時間階層構造」,第10回数学総合若手研究集会,北海道大学学術交流会館(2014-3)
- 2. 永幡 裕\*、堀山 貴史、前田 理, 寺本 央, Chun-Biu Li, 小松崎 民樹: 「タンパク質の時系列から得られた Markov連鎖の解析に向けて:グラフの分割とクラスタ リングで定義する複雑な化学反応における状態とその 時間階層構造」、2013年度日本生物物理学会北海道支部 例会、北海道大学 シオノギ創薬イノベーションセンター (2014-03)
- P. Nag\*: "Extracting cage breaking motion and dynamical heterogeneity in colloidal fluids in terms of Lagrangian Coherent Structures (LCSs)", Workshop on Lagrangian Coherent Structures and Dynamical Systems, Hokkaido University (2014-3)
- H. Teramoto\*: "Transportation barriers in dynamical systems", Workshop on Lagrangian Coherent Structures and Dynamical Systems, Hokkaido University (2014-3)
- P. Nag\*, H. Teramoto, C. B. Li, T. Komatsuzaki: "Dynamical heterogeneity and cage breaking dynamics in colloidal fluids in terms of Lagrangian Coherent structures (LCSs)", Biophysical Society of Hokkaido Branch Meeting, Hokkaido University (2014-3)
- P. Nag\*, H. Teramoto, C. B. Li, T. Komatsuzaki: "Extracting coherent dynamics in colloidal fluids in terms of Lagrangian Coherent structures (LCSs)", International Life-Science Symposium, Hokkaido University (2014-3)
- 7. 寺本 央\*、戸田 幹人、小松崎 民樹:「生体分子と水の 過渡的な協同運動の抽出」、新学術領域研究「少数性生 物学」第6回領域会議、ヒルトンニセコビレッジ(2014-02)
- 8. Chun-Biu Li\*, Tamiki Komatsuzaki: "Constructing Kinetic Scheme Objectively from Dwell-Time Time Series with Exact Information Content", 新学術領域研究「少数性生物学」第6回領域会議、ヒルトンニセコビレッジ (2014-02)
- 9. J. N. Taylor\*, Chun-Biu Li, and Tamiki Komatsuzaki: "Extracting the Underlying Free Energy Landscape Buried in Photon-by- Photon based Single-Molecule Measurements", 新学術領域研究「少数性生物学」第6回領域会議、ヒルトンニセコビレッジ(2014-02)

- 10. 寺本 央\*:「軌道レベルのスペクトルによる軌道の複雑さの特徴付け」、2013年度冬の力学系研究集会、広島大学 東千田キャンパス302講義室 (2014-01)
- 11. 寺本 央、Preetom Nag\*、Chun Biu Li、小松崎民樹:「コロイド流体の動的協同運動のLagrangian Coherent Structureによる抽出」、北海道大学電子科学研究所平成25年度研究交流会、電子科学研究所1階セミナールーム(2014-1)
- 12. H. Teramoto\*: "Relation between dynamics of individual trajectories and that of their ensemble distributions—Spectral Analysis of Individual Trajectories—", The 14th RIES-HOKUDAI International Symposium 網 [mou], CHÂTERAISÉ Gateaux Kingdom SAPPORO (2013-12)
- 13. J. N. Taylor\*, C.B. Li, S. Kawai, and T. Komatsuzaki: "An Information-Theoretical Approach to Local Equilibrium State Analysis for Single-Molecule Time-Series", The 14th RIES-HOKUDAI International Symposium 網[mou], CHÂTERAISÉ Gateaux Kingdom SAPPORO (2013-12)
- 14. T. Sultana\*, H. Takagi, M. Morimatsu, H. Teramoto, Chun-Biu Li, Y. Sako, and T. Komatsuzaki: "Scrutiny of Heterogeneity in Memory by Extracting Reaction Network Buried in Single Molecule Time Series of EGFR and Grb2", The 14th RIES-HOKUDAI International Symposium 網 [mou], CHÂTERAISÉ Gateaux Kingdom SAPPORO (2013-12)
- 15. Y. Nagahata\*, H. Teramoto, T. Horiyama, C. Li and T. Komatsuzaki: "Toward understanding hierarchical structure of complex reaction networks extracted from single molecule time series", The 14th RIES-HOKUDAI International Symposium 網 [mou], CHÂTERAISÉ Gateaux Kingdom SAPPORO (2013-12)
- 16. N. Preetom\*, H. Teramoto, C. Li and T. Komatsuzaki:

  "Coherent dynamics in colloidal fluids in terms of Lagrangian Coherent Structures (LCSs)", The 14th RIES-HOKUDAI International Symposium 網 [mou], CHÂTERAISÉ Gateaux Kingdom SAPPORO (2013-12)
- 17. N. Miyagawa\*, H. Teramoto, C. Li and T. Komatsuzaki:

  "Information of multi-order correlation in pattern formation", The 14th RIES-HOKUDAI International Symposium 網[mou], CHÂTERAISÉ Gateaux Kingdom SAP-PORO (2013-12)
- 18. K. Ibe\*, H. Teramoto, Chun-Biu Li, T. Komatsuzak i: "Extracting the Protein-folding Dynamics from Single Molecule Time Series", The 14th RIES-HOKUDAI International Symposium 網[mou], CHÂTERAISÉ Gateaux Kingdom SAPPORO (2013-12)
- 19. 永幡 裕\*、寺本 央、堀山 貴史、李 振風、小松崎 民 樹:「タンパク質一分子の計測から得られた定常マル コフ連鎖がもつ時間階層構造の理解に向けて」、

- ERATO湊離散構造処理系プロジェクト「2013年度 秋 のワークショップ」、第一滝本館 (2013-11)
- C. Li\* and T. Komatsuzaki: "Toward the Decoding of Single Nucleotides Tunneling Current by Change Point Analysis", Technologies for Medical Diagnosis and Therapy Symposium, Academia Sinica, Taiwan (2013-10)
- 21. J. N. Taylor\*, S. Kawai, C. Li and T. Komatsuzaki: "Let Systems Tell for themselves: Energy Landscape and Complex Network", Technologies for Medical Diagnosis and Therapy Symposium, Academia Sinica, Taiwan (2013–10)
- 22. 永幡 裕\*、小松崎 民樹:「タンパクの時系列から得られた、複雑な化学反応ネットワークが持つ階層構造の理解に向けて」、研究会「理論と実験」2013、広島大学理学部(2013-10)
- 23. 宮川 尚紀\*、小松崎 民樹:「パターンの形成中に存在する高次相関情報量」、研究会「理論と実験」2013、広島大学理学部 (2013-10)
- 24. 小松崎 民樹\*:「天文学から生まれたカオスと化学動力学の出会い」、Symposium on Cross-Talk between Chemistry and Planetary Sciences、北海道大学、電子科学研究所1階会議室(2013-10)
- 25. 寺本 央\*、戸田 幹人、小松崎 民樹: 「反応座標切替機構の量子的兆候」、第7回分子科学討論会2013京都、京都テルサ (2013-09)
- 26. 河合 信之輔\*、寺本 央、小松崎 民樹: 「時間スケールに依存して変化する実効自由度とエネルギー地形」、第7回分子科学討論会2013京都、京都テルサ(2013-09)
- 27. 永幡 裕\*、寺本 央、李 振風、河合 信之輔、小松崎 民 樹: 「反応の運命を分ける反応性境界: 定義の一般 化とH5+プロトン移動反応における反応性境界の抽 出」、第7回分子科学討論会2013京都、京都テルサ (2013-09)
- 28. 永幡 裕\*、小松崎 民樹: 「一分子時系列から抽出されたマルコフ連鎖定常ネットワークにおける遷移確率が"最小"となる分子の"状態"の同定」、生物物理若手の会第53回夏の学校、小松家八の坊(2013-09)
- 29. T. Komatsuzaki\*: "Toward System Molecular Biology & Data Science", A Symposium on Single Molecule Biophysics and Cyt c Biochemistry, 定山渓ビューホテル (2013-08)
- 30. J. N. Taylor\* and T. Komatsuzaki: "An Information-Theoretical approach to Local Equilibrium State Analysis for Single-Molecule Time-Series", A Symposium on Single Molecule Biophysics and Cyt c Biochemistry, 定山渓ビューホテル (2013-08)
- 31. Y. Nagahata\*, H. Teramoto, T. Horiyama, C. Li and T. Komatsuzaki: "Identifying the most distinct disjoint sets to extract hierarchical structure in Markov chain steady

- state network extracted from time series by finding "minimum" transition probability", A Symposium on Single Molecule Biophysics and Cyt c Biochemistry, 定山渓ビューホテル (2013-08)
- 32. N. Preetom\*, H. Teramoto, C. Li and T. Komatsuzaki: "Co-operative motion in colloidal fluids in terms of Lagrangian Coherent Structures(LCS)", A Symposium on Single Molecule Biophysics and Cyt c Biochemistry, 定山 渓ビューホテル (2013-08)
- 33. N. Miyagawa\*, H. Teramoto, C. Li and T. Komatsuzaki: "Information of multi-order correlation in pattern formation", A Symposium on Single Molecule Biophysics and Cyt c Biochemistry, 定山渓ビューホテル (2013-08)
- 34. H. Teramoto\*: "Spectral Analysis of Dynamics from a given Time Series", A Symposium on Single Molecule Biophysics and Cyt c Biochemistry, 定山渓ビューホテル (2013-08)
- 35. S. Kawai\*: "Unbiased Estimation of Distribution from Experimental Data", A Symposium on Single Molecule Biophysics and Cyt c Biochemistry, 定山渓ビューホテル (2013-08)
- 36. 河合 信之輔\*、Cooper David、Landes Christy、Mootz D. Henning、Yang Haw、小松崎 民樹: 「実験データからノイズを取り除き背後の物理量を評価する方法」、日本化学会北海道支部2013年夏季研究発表会、北見工業大学(2013-07)
- 37. 永幡 裕\*、寺本 央、李 振風、河合 信之輔、小松崎 民 樹: 「2つの反応方向を持つサドルにおける化学反 応:行先・起源を分ける反応性境界の抽出」、日本化学 会北海道支部2013年夏季研究発表会、北見工業大学 (2013-07)
- H. Teramoto\*: "Coherent Dynamics in Colloidal Fluids in terms of Lagrangian Coherent Structure", The Complexity of Dynamics and Kinetics in Many Dimensions, Telluride, CO., USA (2013-06)
- 39. Y. Nagahata\*, H. Teramoto, C. Li and T. Komatsuzaki: "Identifying states in Markov chain steady state network extracted from time series by finding minimum transition probability", The Complexity of Dynamics and Kinetics in Many Dimensions, Telluride, CO., USA (2013-06)
- C. Li\*: "Does Dynamic Disorder Exist in the Enzymatic Reactions on the Single Molecule Level?", The Complexity of Dynamics and Kinetics in Many Dimensions, Telluride, CO., USA (2013-06)
- 41. T. Komatsuzaki\*: "Revisiting Energy Landscape & Extracting it from FRET measurement", The Complexity of Dynamics and Kinetics in Many Dimensions, Telluride, CO., USA (2013-06)
- 42. Y. Nagahata\*, H. Teramoto, C. Li, S. Kawai and T. Komatsuzaki: "Reactivity Boundaries to Separate the Fate of

- a Chemical Reaction Associated with Multiple Saddles", Geometry of Chemical Reaction Dynamics in Gas and Condensed Phases, Telluride, CO., USA (2013–06)
- 43. H. Teramoto\*: "Breakdown of Normally Hyperbolic Invariant Manifolds, its Consequences and Quantum Manifestation", Geometry of Chemical Reaction Dynamics in Gas and Condensed Phases, Telluride, CO., USA (2013-06)
- T. Komatsuzaki \*: "Phase Space Geometrical Aspects in Condensed Phase Reactions", Geometry of Chemical Reaction Dynamics in Gas and Condensed Phases, Telluride, CO., USA (2013-06)
- 45. S. Kawai\*, D. Cooper, C. Landes, H. D. Mootz, H. Yang and T. Komatsuzaki: "Unbiased estimation of physical properties in noisy experimental data", IMS Workshop on "Hierarchical Molecular Dynamics: From Ultrafast Spectroscopy to Single Molecule Measurements", Okazaki Conference Center、(愛知県岡崎市) (2013-05)
- 46. J. N. Taylor\* and T. Komatsuzaki: "An Information Theoretical approach to Local Equilibrium State Analysis for Single-Molecule Time-Series", IMS Workshop on "Hierarchical Molecular Dynamics: From Ultrafast Spectroscopy to Single Molecule Measurements", NINS Okazaki Conference Center (2013-05)
- 47. C. Li\*: "Data-driven Approach to Unveil Single Molecule Kinetics from Dwell-Time Time Series", IMS Workshop on "Hierarchical Molecular Dynamics: From Ultrafast Spectroscopy to Single Molecule Measurements", NINS Okazaki Conference Center (2013-05)
- 48. 小松崎 民樹\*、李 振風、寺本 央、河合 信之輔、ジェ ームス ニコラス テイラー:「階層性と多様性を内包 する生命動態システムの解析基盤創成」、平成24年度 アライアンス成果報告会、北海道大学 学術交流会館 (2013-04)

# iii) コロキウム・セミナー等・その他

1) 永幡 裕\*、寺本 央、堀山 貴史、李 振風、小松崎 民 樹:「定常マルコフ連鎖から階層構造を抽出する際に生 じる組み合わせ爆発」、湊離散構造処理系プロジェクト ERATO セミナー、北海道大学工学部 (2013-10)

## 4.4 シンポジウムの開催

- 1) H. Teramoto: "Workshop on Lagrangian Coherent Structures and Dynamical Systems", Hokkaido University (Sapporo, Hokkaido) (2014年03月5日~2014年03月7日)
- 2) T. Komatsuzaki, T. Nemoto, H. Ohta, C. Li, K. Niikura, S. Noro, M. Akiyama, H. Kaiju, T. Kamei and H. Teramoto: "The 14th RIES-Hokudai International Symposium ~網 mou~", Chateraise Gateaux Kingdom Sapporo (Sapporo, Hokkaido) (2013 年 12 月 11 日~2013 年 12 月 12 日)

- 3) M. Ebisuya, Y. Arai, H. Takagi, R. Kasai, N. Hiroi, A. Funahashi, C.B. Li, V.M. Draviam, Z. Kalay: "International Workshop on Quantitative Biology 2013", Osaka University, Icho-kaikan (Suita, Osaka) (2013年11月25日)
- 4) T. Komatsuzaki: "Symposium on Cross-Talk between Chemistry and Planetary Sciences", Hokkaido University (Sapporo, Hokkaido) (2013 年 10 月 9 日)
- 5) T. Komatsuzaki: "A Symposium on Single Molecule Biophysics and Cyt c Biochemistry", Jyozankei View Hotel (Sapporo, Hokkaido) (2013年08月23日~2013年08月25日)
- 6) T. Komatsuzaki, C. Li and R. S. Berry: "The Complexity of Dynamics and Kinetics in Many Dimensions", Telluride Intermediate School (Telluride, CO. USA) (2013 年 06 月 16 日~2013 年 06 月 20 日)
- 7) T. Komatsuzaki, M. Toda and R. S. Berry: "Geometry of Chemical Reaction Dynamics in Gas and Condensed Phases", Telluride Intermediate School (Telluride, CO. USA) (2013 年 06 月 10 日~2013 年 06 月 14 日)

#### 4.5 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
- 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
- 3) 李 振風, 小松崎 民樹 (北海道大学)、Arezki Boudaoud (リヨン高等師範学校)、Adrienne Roeder (コーネル大)、Richard S. Smith (コンスタンツ大) との国際共同研究「From stochastic cell behavior to reproducible shapes: the coordination behind morphogenesis」、2013-2016年度 国際ヒューマン・フロンティア・サイエンス・プログラム
- 4) 小松崎 民樹、寺本 央(北海道大学)、チューリッヒエ 科大学 (George Haller) とのラグランジュ協同構造に 関する数理研究
- 5) 小松崎 民樹、寺本 央、Preetom Nag (北海道大学)、シ カゴ大学 (Norbert Scherer, Aaron Dinner) とのコロイド 粒子の協同現象に関する理論と実験の国際共同研究

### b. 受託研究

1) 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、組織中蛍光物質について位 置濃度の定量化手法の確立

#### 4.6 予算獲得状況

#### a. 科学研究費補助金

- 1) 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
- 2) 河合 信之輔、若手研究 B、時系列情報から再構成する多原子分子ダイナミクスと本質部分の抽出、2012~ 2014年度
- 3) 西村 吾朗、基盤研究(C)、生体組織病態検出のための 散乱光ゆらぎイメージング技術の確立、2012~2014年 度
- 4) 小松崎 民樹、基盤研究 B、階層性と頑健性をもつ生 命動態システムの解析基盤構築、2013~2015年度
- 5) 小松崎 民樹、萌芽研究、分子個性を彫り出すシステム 生物学の探求、2013~2015年度

#### b. 奨学寄附金

- 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
- 2) C.B. Li (国際ヒューマン・フロンティア・サイエンス・プログラム推進機構): "From stochastic cell behavior to reproducible shapes: the coordination behind morphogenesis", 2013~2016年度, A. Boudaoud (リヨン高等師範学校), A. Roeber (コーネル大), R. Smith (コンスタンツ大) との共同研究

## 4.7 社会教育活動

## a. 国内外の学会の役職

- 1) 小松崎 民樹:生物物理学会刊行「BIOPHYSICS」編集委員(H25年1月~現在)
- 2) 小松崎 民樹:生物物理学会平成26·27年度代議員(H26年1月~現在)
- 3) 小松崎 民樹:日本化学会北海道支部支部役員(幹事) (H26年3月~現在)
- 4) 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(H21年4月~現在)
- 5) 寺本 央:生物物理学会 北海道地区委員(2012年4月1日~現在)
- 6) 西村 吾朗:日本応用物理学会分科会日本光学会北海道

地区幹事(2013.4.1~現在)

#### b. 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)
- 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)

#### c. 受賞

- 1) 李 振風: ヒューマン・フロンティア・サイエンス「プログラム グラント賞」 2013年4月
- 2) 永幡 裕:日本生物物理学会北海道支部例会「発表賞」 2014年03月

#### d. 新聞・テレビ等の報道

1) 李 振風, 小松崎 民樹: 「分子の"心拍数(=パルス)"から, 分子の"病状"を客観的に判定するための新しいアルゴリズムの開発に初めて成功」, マイナビニュース、Yahoo!ニュース、OPTRONICS, 他8媒体(8月6日)

#### e. 外国人研究者の招聘(氏名、国名、期間)

- 1. Stefan Hecht、Germany、(2014年03月11日~2014年03月16日)
- 2. Niels Verellen、Belgium、(2014年03月09日~2014年03月14日)
- 3. George Haller、Switzerland、(2014年03月06日~2014年03月08日)
- 4. Bertrand Fourcade、France、(2014年02月15日~2014年02月20日)
- Norbert Koch、Germany、(2014年01月08日~2014年01月11日)
- 6. Rigoberto Hernandez、USA、(2013年12月06日~2013年12月08日)
- 7. Jianhua Xing、USA、(2013年07月04日~2013年07月07日)
- 8. Haw Yang、USA、(2013年06月05日~2013年06月07日)
- 9. Henning Mootz、Germany、(2013年06月05日~2013年06月07日)

### f. 北大での担当授業科目

- 全学共通、生化学特別講義Ⅱ、小松崎 民樹、2013年10 月01日~2014年03月31日
- 2) 全学共通、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論 I ナノバイオシステム論、小松崎 民樹、2013年08月08 日
- 3) 生命科学院、生命情報分子科学特論、(1分子システム 生物学[Single Molecule Systems Biology])、小松崎 民樹、 2013年07月11日~2013年08月01日
- 4) 全学共通、生化学特別講義 I、小松崎 民樹、2013年04 月01日~2013年09月30日
- 5) 全学共通、生命融合科学概論、小松崎 民樹、2013年04 月01日~2013年09月30日
- 6) 理学部、数理解析学続論 [Advanced Mathematical Analysis]、李 振風、2013年07月11日~2013年08月01日

7) 理学院、数理解析学講義 [Analytic Studies]、李 振風、 2013年04月01日~2013年09月30日

## f. 北大以外での担当授業科目

- 1) 大阪大学産業科学研究所 少数性生物学トレーニング コース(2013)「1分子時系列データ解析(講義+実習)」、 小松崎 民樹、2013 年 08 月 04 日~2013 年 08 月 05 日
- 2) 京都大学 発生・細胞生物学/生命動態システム科学 ジョイントコース (2013) 「Toward deciphering molecular individuality in systems biology」、小松崎 民樹、 2013 年 05 月 24 日~2013 年 05 月 24 日

## g. ポスドク・客員研究員など

1) 博士研究員 James N. Taylor(2012.8~) 古川大介(2012.4~)

## j. 修士学位及び博士学位の取得状況

#### 修士学位:

1) 井部 邦彦「遷移ネットワークによるたんぱく質折り畳み運動の理解」

#### 博士学位:

 Tahmina Sultana A Theoretical Study on Multiscale Reaction Network Extracted from Single Molecule Time Series!

# 動的数理モデリング研究分野

教 授 長山雅晴 (東大院,博士(数理科学),2012.4~) 助 教 秋山正和(広島大学,博士(理学),2012.7~) 助 教 Elliott GINDER (金沢院,博士(理学),2012.10 ~)

技術補佐員 出羽真樹子 (2013.4~) 院生

博士課程 澤武裕輔、松下和樹修士課程 久保実沙貴

# 1. 研究目標

#### (1) 生命現象の数理解析

氷などの結晶成長、液滴運動、生物の形作り、細胞運動、 アメーバ細胞などのロコモーション様式、人間の脳の働き など我々の身の回りには様々な現象が満ち溢れている。そ して、どの現象にもそれらを引き起こすメカニズムが必ず 存在している。我々はこのメカニズムの探究を目標として いる。例えば、細胞内では非常に多くの物質が相互に複雑 に絡み合い、自由度の大きい系 (高次元系)を構成してお り、発生現象等の複雑な生命現象を、高い自由度のまま理 解することは不可能に近い。そこで、まずは自由度の小さ いモデル系 (toy モデル) を構成し、モデル系が現象を説 明しているのかを考察するのである。トップダウン的なこ の考え方は、うまく toy モデルを構成出来れば一見複雑に 見える現象も見通しよく簡単に説明することができる。し かし、現象の細部には目をつぶらねばならない場合もある。 そこで、toy モデルを構成し実際の現象を深く観察・実験 し toy モデルに不足分を付け加えることで現象を説明する 最小限のモデルを作ることを目指す。即ち、現象を再現す るための数理モデル化ではなく、数理モデルを作りながら 現象の本質となっている部分を抜き出すのである。このよ うなアプローチを通して我々は、生命現象に潜むメカニズ ムを解明していく。

## (2)動く界面の数理解析

平均曲率フローは画像処理を始め粘性流体の運動にも様々な応用と物理現象に現れる。このような幅広い応用を持つ界面運動は、計算上で取り扱う必要が常時あり、例としては「Phase Field」、「Level Set Method」、「Front Tracking」などがあるが、これらの方法はメリットとデメリットの両面が備わる。更にもう一つのアプローチとして「Threshold Dynamics」(TD)と呼ばれている研究分野がある。この研究の拠点となる BMO アルゴリズムに、今年度は着目し研究を進めた。

このアルゴリズムの名前は、作成した人物の「Bence, Merriman, Osher」から有来し、美しい数学的な構造を持っている。近似解法としては、位相的な変化やマルチフェーズの運動にも使用可能であり、計算上でシンプルに表せる

ことも分かったが、BMOにおける運動は界面の法線速度を 平均曲率に限定されているものである。その一方、振動し ている界面の運動について考えると、そのような界面運動 は法線加速度を平均曲率に依存する事が分かる。そこで、 今年度の研究は液滴と泡の運動における、上記のような振 動している界面運動のTDに目指した。

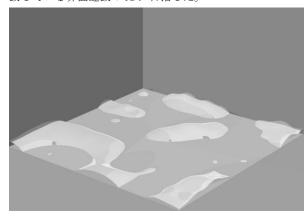


図1. 液敵運動の数値シミュレーション

# 2. 研究成果

#### (1) 表皮構造の数理解析

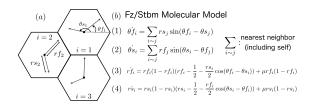
今年度は、皮膚バリア機能を数理科学として評価するための基盤として、角層直下に見られる Ca²+局在化に対して評価関数を構成し、Ca²+局在化の安定性評価を行った。そのための局在化可能細胞を定義し、局在化可能細胞に対して、Ca²+濃度のバラツキと局在化可能細胞層のバラツキを数量化した。この数量化の時間平均を取ることから、Ca²+局在化の安定性を定義した。その結果、これまでの数値計算結果において Ca²+局在化が見られると判断されていた結果が安定であることが確認された。この数量化によって、Ca²+局在化が安定である場合は、表皮構造が安定に保たれていることがわかった。また、娘幹細胞の分裂回数が少なくなると Ca²+局在化構造を維持できないことが数値計算からわかった。この計算結果は、老人皮膚にみられる現象と似ており、老化現象に娘幹細胞の分裂回数が関係していることを示唆している。

# (2) 細胞極性の数理解析

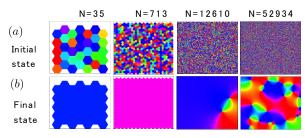
秋田大学の山崎正和氏と共に、平面内細胞極性に関する数理解析を行っている。上皮組織内の細胞の多くは、細胞の頂部-基部軸と直交する組織平面の特定の軸に沿った極性を獲得する。これは平面内細胞極性(planar cell polarity、PCP)と呼ばれ、ほとんどの多細胞生物において見られる一般的な現象である。例えば、人の内耳にある有毛細胞はその細胞一つ一つに多数の毛があり、それらが平面上に規則正しく並ぶことで「音を聞く」という機能を生み出していることが知られている。他にも、魚類の鱗、哺乳動物の体毛、鳥類の羽などの細胞でも、細胞極性を持つことにより全体としてのマクロな形態形成がなされている。近年、PCPは分子生物学的な研究が進み、詳細な分子機構がわか

りつつある一方、そのようなミクロな情報をいかに統合しマクロな現象である PCP を理解するかという大きな問題が残されている。

この問題に対し、ショウジョウバエの PCP に共通な分子の動態を数理モデル化した(下図(b))。



数理モデルを数値計算したところ、細胞数が小さい場合 (ex.N=35、713)は全体の極性は一方向へ揃い、逆にある程度、細胞数が大きい場合(N=12610,52934)、極性は揃わずいわゆる「つむじ」状構造が見られた(図参照)。



## (3) 自走粒子運動の数理解析

複数の樟脳ろ紙を円環状水路に浮かべたときに現れる集団運動の出現機構に対して数理モデルに対する数値シミュレーションおよび計算機援用解析によって、その数理解析的理解を行った。

樟脳ろ紙数に依存して、玉突き現象や渋滞現象が観察さ れる実験系について、これらの現象が起こる機構を数理的 に理解することを目的として研究を行った。本年度は2個 の樟脳ろ紙に対する運動について研究を推進した。ここで は、樟脳ろ紙数を固定した以外に表面張力を表現する関数 を固定し、水路長に依存した樟脳ろ紙運動について考察を 行った。数理モデルに対して数値シミュレーションを行っ た結果、水路長が短い場合は対称振動運動が安定に現れる ことがわかった。徐々に水路長を長くすると対称回転運動 と対称振動運動が共存し、振動回転運動、回転対称運動、 非対称回転運動 (クラスター運動) が現れることがわかっ た。次に、これらの計算結果が得られる要因を明らかにす るために回転解の存在とその安定性の解析を行った。その 結果、水路長が非常に長い場合、安定対称回転解から安定 非対称回転解への Pitchfork 分岐点が存在し、対称回転解の 不安定化によって安定な非対称回転解が現れることがわか った。適当な水路長の場合、安定対称回転解が Hopf 分岐を 起こして不安定化することがわかり、その Hopf 分岐点から 振動回転解が出現することが示唆された。これらの結果か ら、水路長に依存して現れる2つの樟脳ろ紙の運動は分岐 論的な視点から理解することができた。

最後に、我々の得た数理的な結果が実験系に再現される か調べた。その結果、水路長が短い場合は、非対称回転運 動が現れ、水路長を徐々に長くすると、対称回転運動、非 対称回転運動が観察された。これらの結果は、数理モデル で得られた運動形態の変化を部分的に再現していることか ら数理モデルで解析した分岐論的理解という点で2個の樟 脳ろ紙運動については理解できたと考えられる。

## (4)動く界面の数理解析

最初に、上で解説した Threshold dynamics アルゴリズムの理論的な裏づけを行った。それは界面が滑らかな場合において、初期界面に対する符号つき距離関数を初期形状とし、初速度をゼロとする波動方程式の短い時間 dt における解の値を決まった高さで切断してできる界面が曲率を加速度にもつ界面運動の近似であることを証明した。証明では符号つき距離関数のテーラー展開と波動方程式の解の公式を主に用いた。

この基本スキームの場合は前のステップの速度が受け継がれず、界面がゼロ速度から加速することになるため、初期条件の改良が課題となった。そこで、前時間ステップとさらにその一つ前のステップにおける界面の符号つき距離関数の適切な線形結合により初期条件を与えたときに速度が伝わることを示した。

また、このように提案・解析したアルゴリズムを実装し数 値実験を行い、その性能を評価した。図1は複数の時刻で の界面の形状を重ねて表示した計算結果の例である。

更に、円を初期界面とした問題の解析解と対応する消滅時刻を求め、数値計算の結果と比較した。時間ステップ幅 dt を十分小さくとった場合、数値解が解析解に収束することが分かった。

結果として、今まで知られていなかった双曲型 Threshold dynamics の計算アルゴリズムを開発し、その数学的な根拠を明らかにすることに成功した。

## 3. 今後の研究の展望

## (1)表皮構造の数理モデル

皮膚バリア機能の評価を行うための基盤として Ca²+局在 化の安定性評価の指標を提案した。今後は、バリア機能の 恒常性維持を数理科学として定式化していく。これによってバリア機能の恒常性維持を評価し、皮膚疾患に見られる バリア機能低下を数量化することを目指す。この数量化によって、Ca²+局在化の安定性がバリア機能の恒常性維持に 本質的に重要な要因であることを示していきたい。また、皮膚の老化現象を定量化することによって、老化現象を数 理科学的に取り扱い、老人表皮に見られる Ca²+局在化の消失が起こる要因を明らかにしたい。さらに、表皮内の末梢神経伸密度がヒスタミン由来でない「かゆみ」の発生要因

となるのではないかと考えられている。この仮説に対して 数理モデルを構築し、数値計算によって検証していきたい。

## (2) 細胞極性の数理

現在までの成果から、分子の動態を考慮した数理モデルにより、細胞数の違いによる振る舞いや、極性の揃い方の傾向などに関しては、多くの実験事実を再現することに成功している。

最近になって、細胞に外部から力場をかけるという実験を行っている。この場合、現在の枠組みの数理モデルでは、現象を再現することができないことがわかった。そこで、力場情報も考慮した新モデルを構築する予定である。

#### (3) 自走粒子運動の数理解析

今年度の2個の樟脳ろ紙運動について解析を行い、一部の運動については分岐解析を行うことによって回転運動解の出現機構は理解することができたが、全ての運動についての解析は困難であった。そのため、来年度は分岐点近傍での方程式の縮約化を行い、縮約方程式に対する計算機援用解析を行うことで、2個の樟脳ろ紙運動を完全に解析したい。また、3個以上の複数の樟脳ろ紙の集団運動でみられる玉突きのような運動を繰り返し続ける現象や、全体として静止しているような状況から間欠的に振動する現象に対しての理解が進んでいない。これらの現象が起こる要因を数理モデルの解析から調べていきたい。

また、樟脳の運動速度が水路の水深に依存して変化する 現象が報告され、対称な樟脳と非対称な樟脳ではその依存 性が異なることが報告されている。この現象を数理的に理 解するためには流体との相互作用が必須であることから、 流体との相互作用を記述した数理モデルの構築を行い、水 深と系の対称性による速度変化の数理解析を行っていきた い。

# (4)動く界面の数理解析

双曲型 Threshold dynamics の計算のアルゴリズムを界面の振動が重要な役割をもつ現象のモデルに応用できることが興味深い。特に、未だに解明されていない接触角のダイナミックスの解説につながると期待している。そのために、3次元の問題、多相の問題およびそれぞれの相の体積が保存されるようなグローバルな条件がつくような問題などへのアルゴリズムの拡張が必要となる。また、今後の課題としては、本アプローチは妥当性が更に高くなるよう体積および接触角度と自由境界を自動的に取り扱えるよう研究を進めて行きたい。

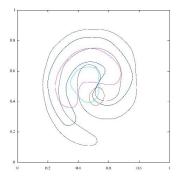


図2. 双曲型TDアルゴリズムの数値計算.

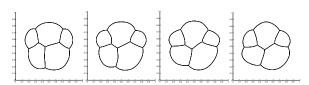


図3. マルチフェーズ双曲型 BMO の運動。(左から右へと時間は進行する)

# 4. 資料

#### 4.1 学術論文等

- K. Iida, H. Kitahata and M.Nagayama, "Theoretical study on the translation and rotation of an elliptic camphor particle", Physica D, 272(2014), 39–50.
- M. Denda, S. Denda, M. Tsutsumi, M. Goto, J. Kumamoto, M. Nakatani, K. Takei, H. Kitahata, S. Nakata, Y. Sawabu, Y. Kobayashi, M. Nagayama, "Frontiers in epidermal barrier homeostasis - an approach to mathematical modeling of epidermal calcium dynamics", Experimental Dermatology, 23(2014), 79-82, DOI: 10.1111/exd.12302.
- 3) S. Nakata, T. Miyaji, T. Ueda, T. Sato, Y. S. Ikura, S. Izumi and M. Nagayama, "Reciprocating motion of a self-propelled object on a molecular layer with a local minimum and a local maximum isotherm", Journal of Physical Chemistry C, 117(2013) 6346-6352, DOI: 10.1021/jp400971h.
- T. Hirashima, Y. Hosokawa, T. Iino and M.Nagayama, "On Fundamental Cellular Processes for Emergence of Collective Epithelial Movement", Biology Open, 2(7)2013, 660–666, DOI: 10.1242/bio.20134523.
- E. Ginder, S. Omata, K. Svadlenka. "A variational method for multiphase area-preserving interface motions", Journal of Computational and Applied Mathematics, 257 (2014), 157-179.

# 4.2 総説·解説·評論等

1) 秋山正和、モルフォゲンの凸性に着目した細胞分裂の モデル、新学術領域研究「複合適応形質進化の遺伝子 基盤解明」、ニュースレター

## 4.3 国際会議議事録等に掲載された論文

- 長山雅晴、小林康明、澤武裕輔、中田聡、北畑裕之、後藤真紀子、堤も絵、傳田光洋、"表皮構造の数理モデル" 、計算工学講演会論文集、18 (2013)
- 2) 飯田渓太、北畑裕之、長山雅晴、"樟脳粒の自発運動: 粒子形状と運動の関係について"、計算工学講演会論文 集、18 (2013)

## 4.4 講演

#### a. 招待講演

#### i )学会

- Masaharu Nagayama, Mathematical analysis of the collective motion of camphor disks, 2013 Northeastern Asian Symposium on High Performance Computing Method and Modeling, September, 23-24, 2013, (Invited)
- 2) 秋山正和、モルフォゲンの凸性に着目した細胞分裂の モデル、日本植物学会第77回大会(2013.9.13-15)
- ii )研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) 表皮バリア機能の恒常性評価について、合同シンポジウム、JST東京本部別館(2014.1.11)
- 2) 秋山正和、山崎正和、"平面内細胞極性の数理モデル"、 芝浦工業大学談話会 (2013.11.11)
- iii) コロキウム・セミナー等・その他
- 1) 長山雅晴, 表皮構造の数理モデルと表皮の恒常性評価について、L&Mセミナー、旭川医科大学(2013.4.19)
- E. Ginder, A variational approach to volume constrained membrane motions. Institute for Mathematics and its Applications (USA). (2013.6.5)

## b. 一般講演

#### i ) 学会

- 1) 長山雅晴、樟脳円盤の集団運動に対する数理解析、日本数学会年会、学習院大学(2014.3.15~3.18)
- 2) 長山雅晴、表皮構造の恒常性評価について、日本応用 数理学会、アクロス福岡(福岡市) (2013.9.9~9.11)
- 3) 長山雅晴、皮膚構造の数理モデル~表皮の恒常性評価 について~、計算工学講演会、東京大学(2013.6.19~ 6.21)
- 4) E. Ginder, The hyperbolic BMO algorithm、日本数学会 2013年度年会(2014.3)
- 5) 秋山正和、"平面内細胞極性の数理モデル"、日本数 学会年会、学習院大学
- ii )研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) 長山雅晴、円環水路上での樟脳ろ紙の集団運動について、非線形現象の数値シミュレーションと解析2014、北海道大学(2014.3.7~3.8)
- 2) 長山雅晴、表皮構造の数理モデル、小研究会「細胞の理論、増殖、形、遊走」、九州大学 (2014.2.19~2.20)
- 3) 長山雅晴、表皮構造の数理モデル ~表皮バリア機能の 恒常性評価について~、数理形態形成セミナー、名古屋 大学医学研究科 (2013.11.13)
- 4) E. Ginder、A numerical method for curvature dependent acceleration、北陸応用数理研究会 2014、金沢大学サテライトプラザ (2014.2.14)
- 5) E. Ginder、On the hyperbolic BMO algorithm、Kunitachi One-Day Symposium、一橋大学 (2014.2.5)
- 6) E. Ginder, Droplets and Bubbles: the Free Boundary and Interfacial Dynamics, The 17<sup>th</sup> Sanken International Symposium, 大阪大学 (2014.1.12)

- 7) E. Ginder、Droplets and bubbles: a hyperbolic free boundary problem approach、2013年度応用数学合同研究集会 (2013.12)
- E. Ginder, A thresholding algorithm generating motion by hyperbolic mean curvature flow, The 14<sup>th</sup> Ries-Hokudai International Symposium. (2013.12.12)
- 9) E. Ginder, Droplets and Bubbles: the Free Boundary and Interfacial Dynamics, Kyoto University Applied Mathematics Seminar、京都大学 (2013.10.15)
- 10) E. Ginder, A point-mass approach to diffusing camphor particles. 2013年「数理モデリング」研究会、北大・電子研 (2013.8.29)
- E. Ginder, A variational approach to droplet motion. The 9<sup>th</sup> East Asia Siam Conference (Indonesia). (2013.6.19)
- 12) E. Ginder, Droplets and bubbles: a variational approach. University of Glasgow (UK). (2013.5.31)
- 13) 秋山正和、"平面内細胞極性の数理モデル"、北陸応用数理研究会 2014、金沢大学・金沢大学サテライトプラザ (2014.2.13-2.15)
- 14) 秋山正和、"平面内細胞極性の数理モデル"、生命数理 研究会、北海道・ニセコ (2014.1.12-15)
- 15) 秋山正和、"平面内細胞極性の数理モデル"、応用数学 合同研究集会 (2013.12.19-21)
- Masakazu, A, "A Mathematical Model of Cleavage", EASIAM2013 (2013.6.19)

## iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 秋山正和、"脳の試作モデル"、新学術領域「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」山口班-西浦班 合同ミーティング.
- 2) 秋山正和、"平面内細胞極性の数理モデル"、応用数 理研究会 (2013.8.21)

### 4.5 特許

1) 秋山正和、"THREE-DIMENSIONAL OBJECT DISPLAY CONTROLSYSTEM AND METHOD THEREOF" アメリカ合衆国特許 No.: US 8,462,105 B2

## 4.6 共同研究

- 1) 長山雅晴、新日鐵住金株式会社、液相焼結現象の数学 モデル開発、2013年度~2014年度
- 2) 長山雅晴、株式会社資生堂、表皮構造モデルの構築、 2013年度
- 3) 長山雅晴、中田聡 (広島大) 等とともに、自走粒子運動の数理解析を行った。
- 4) Elliott Ginder, Karel Svadlenka (金沢大学):「Threshold dynamics」の数理解析
- 5) Elliott Ginder, Seiro Omata (金沢大学):「Analysis of a hyperbolic free boundary problem with volume constraint」
- 6) 秋山正和、山崎正和氏(秋田大)等とともに、平面内 細胞極性に関する数理的研究を行い、国内外の学会・

集会にて発表を行った。また、本研究の成果が認められ、日本数学会応用数学研究奨励賞を受賞した。

- 7) 杉山貴昭 (九州大学数理学府)、手老篤史 (九州大学マス・フォア・インダストリ研究所)とともに、"四脚動物の自発的な歩容遷移を再現する結合振動子モデル"の研究を行い、応用数学合同研究集会 (2013.12.19-21) にて発表を行った。
- 8) 山口達也(九州大学数理学府)、手老篤史(九州大学マスフォアインダストリ研究所)、國田樹(北海道大学電子科学研究所)、中垣俊之(北海道大学電子科学研究所)とともに共同研究を行い、"テトラヒメナの容器記憶現象に対しての数理モデル"を応用数学合同研究集会(2013.12.19-21)にて発表を行った。
- 9) 秋山正和、山口陽子氏(理研)、西浦廉政氏(東北大)、 川崎真弘氏(筑波大学)、手老篤史氏(九州大)とと もに、脳の関する数理的研究を行った。

## 4.7 予算獲得状況 (研究代表者、分類、研究課題、期間)

#### a. 科学研究費補助金

- 1) 長山雅晴、科学研究費補助金 挑戦的萌芽研究、化学反応を伴う粒子および液滴運動に対する数理解析、2013 年度~2014年度
- Elliott Ginder, JST Grant-in-Aid for Young Scientists (B), 変分法を用いた液滴や泡の運動モデルに対する数理 解析, 2013年 度~2015年度

## b. その他

- 3) 長山雅晴、JST CREST、生理学と協働した数理科学に よる皮膚疾患機構の解明、2010年度~2015年度
- 4) 長山雅晴、共同研究費、液相焼結現象の数学モデル、 2013年度

# 4.8 社会教育活動

a. 公的機関の委員

なし

# b. 国内外の学会の役職

- 1) 長山雅晴、日本応用数理学会、「応用数理」編集委員
- 2) 長山雅晴、日本数学会 応用数学分科会委員
- 3) 長山雅晴、日本数学会応用数学分科会主催の応用数学 合同研究集会運営委員(幹事)
- 4) Elliott Ginder、日本数学会応用数学分科会主催の応用 数学合同研究集会運営委員
- 5) 秋山正和、日本数学会応用数学分科会主催の応用数学 合同研究集会運営委員
- 6) 秋山正和、日本数理生物学会、数理生物学会ニュースレ ター編集委員
- 7) 秋山正和、The 14th RIES-Hokudai International Symposium) Organizing Committee.
- 8) 秋山正和、第23回「非線形反応と協同現象」研究会 世話 人
- 9) 秋山正和、応用物理学会リフレッシュ理科教室にて公開

実験「樟脳舟を科学しよう!!」を行った。

- 10) 秋山正和、電子科学研究所一般公開にて公開実験「対流パターンを観察しよう!」を行った。
- c. 新聞・テレビ等の報道

なし

- d. 北大での担当授業科目(対象、講義名、担当者、期間)
- (1) 長山雅晴 (理学部3, 4年, 数理科学A, 長山雅晴, 20 13年後期)
- (2) Elliott Ginder (理学部3, 4年生, 数理科学演習, 秋山正和 · Elliott Ginder, 2013年後期)
- (3) 秋山正和(学部3,4年,数理科学演習,秋山正和·Elliott Ginder,2013年後期)
- e. ポスドク・客員研究員など
- ・ポスドク:小林康明
- · 学術研究員: 西慧

# 附属グリーンナノテクノロジー研究センター

# 研究目的

本研究センターでは、ナノテク技術を基盤としたグリーンイノベーションを目的としており、高効率・広帯域太陽光エネルギー変換システム、フォトンの有効利用を目指したサブ波長デバイス、高効率量子状態変換素子などの極限省エネルギーフォトニックネットワークインターフェース、さらには、室温での二酸化炭素完全分離材料などの研究に取り組んでいます。これらの研究成果は、「低炭素研究ネットワーク拠点事業」などの大型プロジェクトの発足や有機的な産学連携研究に繋がっています。

# グリーンフォトニクス研究分野

教 授 三澤弘明 (筑波大院、理博、2003.5~) 准教授 上野貢生 (北大院、博(理)、2010.1~) 助 教 押切友也 (阪大院、博(理)、2012.12~) 院 生

博士課程

石 旭、钟 玉磬、那日苏

修士課程

鎌田義臣、松塚祐貴、于 瀚、常盤塁也、野澤翔

# 1. 研究目標

近年、二酸化炭素の排出量の増加や石油価格の高騰など 地球規模の環境・エネルギー問題が顕在化しつつあり、光 をエネルギー源・駆動源とする光化学研究の重要性が増し ている。したがって、環境負荷を低減し、真の低炭素社会 を実現するためには、「光子の有効利用」という概念が極め て重要であり、反応系に投入された光エネルギーを余すと ころなく利用できる「光反応場」の構築が強く求められて いる。グリーンフォトニクス研究分野の三澤教授は、光子 の有効利用の概念を世界でさきがけて提唱し、金属ナノ構 造が示す光アンテナ効果により光エネルギーを高効率に利 用する「光-分子強結合反応場の創成」を目的として、文部 科学省の科学研究費補助金特定領域研究(領域代表:平成 19~22年度)を推進し、本分野を世界的に牽引してきた。 また、平成23年度からは、日本におけるプラズモニック化 学および関連する学際的研究分野の振興をめざし、その活 動の国際的な発信、国際的な規模での本分野の振興に寄与 することを目的として、「プラズモニック化学研究会」(会 長:平成23年~27年度)を発足し、プラズモニック化学研 究領域の発展に努めてきた。

グリーンフォトニクス研究分野では、「光子の有効利用」 という概念のもと、プラズモン増強場における光化学反応 の高効率化に関する研究を展開してきた。近年では、プラ ズモンが示す光アンテナ効果を利用して太陽電池や人工光 合成などの光ーエネルギー変換に関する研究を推進してい る。平成24年度までの研究において、酸化チタンなどの半 導体基板上に局在プラズモン共鳴を示す金属ナノ構造を配 置することにより、可視・近赤外光を効率良く光電変換で きること、そしてその原理について、高分解能透過電子顕 微鏡による金属/半導体界面の構造解析、GC-MSによる反 応物の定量、および分光電気化学測定による金属フェルミ 準位の解析を行い検討した。その結果、1) 半導体結晶表 面と金属との原子レベルでの接合が効率良い金属から半導 体への電子移動・電荷分離に必要であること、2)形成さ れた正孔が酸化チタン表面準位などにトラップされている 可能性があること、3) そのトラップされた多数の正孔が 水の4電子酸化反応を誘起し、酸素を発生させること、を明 らかにした。これまでの研究成果に基づき、平成25年度は、本系を人工光合成の研究に展開し、水の可視光分解による水素発生の研究を進めた。また、光アンテナ構造を搭載した半導体電極を光エネルギー変換システムとして社会実装するためには、コスト削減を図る必要がある。そこで、本年度は、プラズモン太陽電池の薄膜化に関する研究も行った。

## 2. 研究成果

チタン酸ストロンチウム単結晶基板の表面と裏面にそれぞれ金ナノ粒子と白金板を配置し、金ナノ粒子に任意の波長の可視光を照射して酸素と水素を化学量論的に発生させるプラズモン誘起の人工光合成システムを構築した。発生した酸素ガスの定量は、酸素の同位体を含む水を実験に使用し、発生した酸素分子の同位体をGC-MSにより計測した。一方、水素ガスの定量は、ガスクロマトグラフィを用いた。また、半導体薄膜電極は、基板界面における単分子層の化学反応に基づいて膜厚を原子レベルで制御することが可能な原子層堆積装置(ALD)により作製した。

#### (i) プラズモン誘起の水分解システム

0.05wt%のニオブをドープしたチタン酸ストロンチウム 単結晶基板上に、ボトムアップ技術により可視波長域 (λ max: 600 nm) に局在プラズモン共鳴を示す金ナノ微粒 子を作製した。また、基板の裏面にはオーミック接触を得 るためにIn-Ga合金をペーストし、水素発生触媒として白金 板を接合した。作製した金ナノ微粒子/チタン酸ストロン チウム/白金板を用いて、図1(a)に示す水の光分解システ ムを構築した。本系においては、金ナノ微粒子側において 酸素発生を、白金側において水素発生をそれぞれ分離して 行うことが可能で、それぞれの水溶液のpHを制御すること により化学バイアスを印加した。図1(b)に水素発生側のpH を1、酸素発生側のpHを13に設定して水の光分解を行い、 水素・酸素発生量を光の照射時間に対してプロットしたグ ラフを示す。なお、照射波長は550 nm~650 nmで、照射強 度は0.7 W/cm<sup>2</sup>である。水素および酸素の発生量は照射時間 に対し線型的な応答を示し、水素および酸素の発生量の比 率は2:1となったことから、化学量論的に水の光分解が誘起 されることが明らかになった。また、水素発生量のアクシ ョンスペクトルは、プラズモン共鳴スペクトルの形状とよ い一致を示し、プラズモン共鳴に基づく電荷分離によって 水素および酸素が発生していることが明らかになった。つ まり、増強された近接場光が、金の電子を励起し、励起さ れた電子がチタン酸ストロンチウムの電子伝導体に電子移 動し、白金表面でプロトンを還元して水素発生を、形成さ れた正孔がチタン酸ストロンチウムの表面準位にトラップ され、水分子または水酸化物イオン(pHに依存)を酸化し て酸素発生を誘起したと考察される。pH依存性の実験結果 から、水素発生側はpH3でも水素が発生すること、そして

酸素発生側はpH6.8でも酸素が発生することを明らかにし、 本系においては化学バイアスがそれらのpHの差に対応す る約220 mVでも水の光分解が誘起されることが明らかに なった。

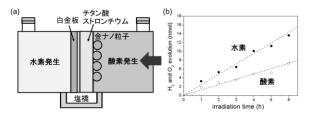


図1: (a) 金ナノ微粒子/チタン酸ストロンチウム/白金板を用いた水の光分解システム、(b) 水素・酸素発生量の光照射時間依存性

# 

単純に半導体電極を薄膜化しただけでは、1)逆電子移動反応を抑制するための十分な空間電荷層が形成できない、2)薄膜によるファブリペロー干渉によって干渉色が現れる(図2(a))、などの問題が生ずる可能性がある。我々は、半導体電極の薄膜化によって顕在化すると考えられるこれらの課題に取り組むため、石英ガラス基板上にALDにより酸化チタン薄膜を成膜し、金ナノ微粒子を担持させて光電気化学測定により酸化チタンの膜厚が光電変換特性に及ぼす影響について検討を行った。

膜厚30 nmの酸化チタン電極 (XRDによりアナターゼであることを確認)を用いて図2(b)に示すように波長600 nmにプラズモン共鳴スペクトルを有する金ナノ微粒子を担持し、既報の電解質水溶液を用いた3電極系の光電気化学測定を行ったところ、光電流は観測されなかった。これは、膜厚が薄いために十分な空間電荷層が形成されないことやシート抵抗が大きいなどのロスが考えられる。なお、金ナノ微粒子の形成には既報のアニール法 (300°C)を用いた。

一方、同様に種々の膜厚の酸化チタン電極を作製し、金 ナノ微粒子と相互作用せず薄膜内に入射した光によるファ ブリペロー干渉が光電変換効率 (IPCE) に与える影響を検 討した。以下にその代表例として膜厚215 nm、および243 nm の酸化チタン電極上に金ナノ微粒子を担持し、それらの光 学特性と光電変換特性を比較検討した結果について述べ る。図2(c)および(d)に膜厚215 nmおよび243 nmの酸化チタ ン薄膜の透過(T)、反射(R)スペクトル、および散乱や 吸収に由来する1-T-Rの波長依存性を示す。TおよびRスペ クトルにおける揺らぎは、酸化チタン薄膜内に入射した光 が電極裏面で反射し、電極表面の光とのファブリペロー干 渉を起こすことに起因すると考えられる。実際、観測され たTおよびRスペクトルの干渉の波長は膜厚に依存し、その ピーク波長は理論計算結果と良く一致することが示され た。また、これらの基板に波長600 nmにプラズモン共鳴を 有する金ナノ微粒子を担持した場合、膜厚215 nmの基板で は干渉の波長域がプラズモン共鳴帯とほぼ完全に重なる

が、膜厚243 nmでは完全には重なっていないことがわかる (図中のグレーの部分が局在プラズモン共鳴帯)。

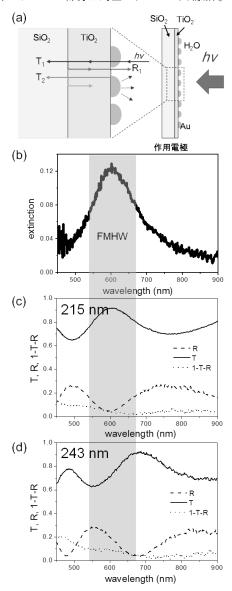


図2:金ナノ微粒子/酸化チタン電極、およびファブリペロー干渉の略図(a)、膜厚30 nmの酸化チタン電極上に担持した金ナノ微粒子のプラズモン共鳴スペクトル(b)、石英ガラス基板上に成膜した酸化チタン薄膜の透過、反射スペクトル、および1-T-Rの波長依存性:膜厚215 nm(c)、および膜厚243 nm(d)

さらに、プラズモン共鳴に基づく吸収や散乱が本干渉によって増強されるかを、基板上に金ナノ微粒子を配置した後に測定した(1-T-R)値から、図1に示した金ナノ微粒子を配置する前に測定した(1-T-R)値を差し引いた $\Delta(1-T-R)$ 値の波長依存性を比較することにより検討した(図3(a))。干渉の波長域がプラズモン共鳴帯とほぼ完全に重なった場合には、干渉により入射光が薄膜内に閉じ込められるため、本波長域において干渉を示さない膜厚30 nmの酸化チタン電極の $\Delta(1-T-R)$ 値に比べて増大した。一方、干渉の波長域とプラズモン共鳴帯との重なりが悪い場合は、逆に $\Delta(1-T-R)$ 値は減少した。さらに、これらの電極によるIPCE

のアクションスペクトルを比較すると(図3(b))、膜厚215 nmの酸化チタン電極では干渉の波長がプラズモン共鳴帯とほぼ完全に重なるために、プラズモン共鳴波長域では膜厚243 nmの酸化チタン電極に比べてIPCEが増強されることが明らかになった。これらの結果から、プラズモン太陽電池の薄膜化には、膜厚も重要なパラメータの一つであることが示された。

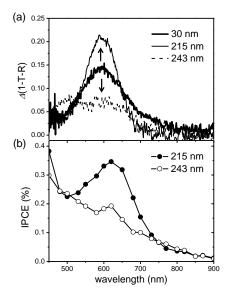


図3: (a) プラズモン共鳴に基づく吸収や散乱に由来する△1-T-Rの 波長依存性、(b)光電変換効率のアクションスペクトル

## 3. 今後の研究の展望

平成25年度は、金ナノ構造/チタン酸ストロンチウム電極を陽極、白金を陰極として水の光分解システムを構築し、220 mVのバイアスで酸素と水素が化学量論的に発生する人工光合成システムの構築に成功した。今後は、白金の代わりにルテニウムを助触媒とした同様のシステムを用いて、エネルギーキャリアとして注目されるアンモニアの合成を窒素の光固定により試みる。また、平成25年度は、全固体透明プラズモン太陽電池を構築する上で重要な、酸化チタン電極の薄膜化とその光電変換特性について明らかにした。今後は、本年度構築した金ナノ構造/酸化チタン薄膜電極上にホール移動層として酸化ニッケルを成膜することにより全固体プラズモン太陽電池を作製し、その光電変換特性について検討する予定である。

# 4. 資料

#### 4.1 学術論文

- G. Bi, L. Wang, L. Ling, Y. Yokota, Y. Nishijima, K. Ueno, H. Misawa, and J.-R. Qiu: "Optical properties of gold nano-bowtie structures", Opt. Commun., 294, 213-217 (2013).
- K. Ueno and H. Misawa: "Surface Plasmon-enhanced Photochemical Reactions", J. Photochem. Photobiol. C, 15, 31-52 (2013).

- K. Ueno and H. Misawa: "Plasmon-enhanced Photocurrent Generation and Water Oxidation from Visible to Near-infrared Wavelengths", NPG Asia Mater., 5, e61 (2013).
- 4) Q. Sun, K. Ueno, H. Yu, A. Kubo, Y. Matsuo, and H. Misawa, "Direct Imaging of the Near Field and Dynamics of Surface Plasmon Resonance on Gold Nanostructures Using Photoemission Electron Microscopy", Light: Science & Applications, 2, e118 (2013).
- 5) X. Shi, K. Ueno, T. Oshikiri, and H. Misawa, "Improvement of Plasmon-enhanced Photocurrent Generation by Interference of TiO<sub>2</sub> Thin-film", J. Phys. Chem. C, 117, 47, 24733-24739 (2013).
- 6) A. Watanabe, Y. Kotake, Y. Kamata, A. Chikamatsu, K. Ueno, H. Misawa and T. Hasegawa: "Photoelectrochemical Behavior of Self-assembled Ag/Co Plasmonic Nanostructures capped with TiO<sub>2</sub>", J. Phys. Chem. Lett., 5, 1, 25–29 (2014).
- K. Imura, K. Ueno, H. Misawa, H. Okamoto, D. McArthur,
   B. Hourahine, and F. Papoff, "Plasmon Modes in Single Gold Nanodiscs", Opt. Express, 22, 10, 12189–12199 (2014).

#### 4.2 総説·解説·評論等

- 1) 三澤弘明:「光と物質を強く相互作用させる革新的光化 学反応場の創出 懐中電灯で分子にレーザー並みの光 強度を感じさせる方法論」、化学と工業、66巻、8号、 639-641 (2013).
- 2) 三澤弘明:「光励起制御を目指した金属ナノ構造の構築」、日本写真学会誌、76巻、6号、444-452 (2014).
- 3) 上野貢生、三澤弘明:「可視光局在プラズモンの人工光 合成への展開」、化学工業、65巻、3号、21-25(2014).

#### 44 英聿

1) 上野貢生、三澤弘明: "電子ビームリソグラフィー"、「プラ ズモンナノ材料開発の最前線と応用」、分担執筆 (シーエ ムシー出版 監修 山田 淳)、87-93 (2013).

## 4.6 特許

1) 三澤弘明、押切友也、上野貢生:特願2014-21110、光 アンモニア発生装置及びアンモニア発生方法、2014年2 月6日

#### 4.7 講演

#### i )学会

- H. Misawa\*: "Towards nanostructure-enhanced photoenergy conversion in the plasmonic chemical reaction field" (Plenary), 26<sup>th</sup> International Conference on Photochemistry, Leuven, Belgium (2013-07).
- K. Ueno\*, S. Nozawa, H. Itoh, W. Nakano, and H. Misawa: "Plasmon-induced volume phase transition of polymer gel with infrared light radiation", 26<sup>th</sup> International Conference on Photochemistry, Leuven, Belgium (2013-07).
- 3) T. Tokiwa\*, Q. Sun, T. Ohikiri, K. Ueno, and H. Misawa:

- "Fabrication and characterization of 3-D metallic photonic crystals by direct laser writing and atomic layer deposition", 26<sup>th</sup> International Conference on Photochemistry, Leuven, Belgium (2013-07).
- 4) Y. Matsuzuka\*, Q. Sun, O. Lecarme, K. Ueno, and H. Misawa: "Spectral properties and visualization of dark plasmon mode induced by stacked nanogap gold structures", 26<sup>th</sup> International Conference on Photochemistry, Leuven, Belgium (2013–07).
- O. Lecarme\*, K. Ueno, and H. Misawa: "Plasmonic properties of thin aluminum nanostructures for application in NIR solar cells", 26<sup>th</sup> International Conference on Photochemistry, Leuven, Belgium (2013-07).
- 6) Y. Kamata\*, K. Ueno, T. Oshikiri, and H. Misawa: "Plasmonic solar cell using silver nanoparticles loaded titanium dioxide photoelectrode", 26<sup>th</sup> International Conference on Photochemistry, Leuven, Belgium (2013-07).
- 7) 三澤弘明\*:「プラズモニック化学:人工光合成·太陽電池 への展開」(特別講演),2013年光化学討論会、松山 (2013-09).
- 8) 上野貢生\*、伊藤弘子、中野 和佳子、野澤 翔、三澤弘明:「ナノギャップ金チェイン構造を用いた遠赤外光照射によるプラズモン放射圧の誘起」、2013年光化学討論会、松山(2013-09).
- 9) 押切友也\*、上野貢生、三澤弘明:「金ナノ構造/チタン酸ストロンチウム/ルテニウム触媒を用いたアンモニアの光電気化学的合成」、2013年光化学討論会、松山(2013-09).
- 10) 中村圭佑\*、鎌田義臣、押切友也、上野貢生、三澤弘明: 「ポリマーを基材とした金ナノ構造/酸化チタン電極の作 製と光電変換特性、2013年光化学討論会、松山 (2013-09).
- 11) Q. Sun\*, Y. Han, K. Ueno, and H. Misawa: "Dynamics of localized surface plasmon of gold nanostructures on titanium dioxide probed by time-resolved photoemission electron microscopy", 2013年光化学討論会、松山(2013-09).
- 12) 上原日和\*、押切友也、上野貢生、三澤弘明:「銀ナノ構造 ーシアニン色素ハイブリッドシステムにおけるプラズモンー 励起子強結合状態のダイナミクスと光電場増強」、2013年 光化学討論会、松山(2013-09).
- 13) 松塚祐貴\*、O. Lecarme、孫 泉、押切友也、上野貢生、 三澤 弘明:「光電子顕微鏡を用いた積層型ナノギャップ 金構造における光電場増強効果の検討」、2013年光化学 討論会、松山 (2013-09).
- 14) 鎌田義臣\*、押切友也、上野貢生、三澤弘明:「銀ナノ構造/酸化チタン電極を用いた全固体プラズモン太陽電池の光電変換特性」、2013年光化学討論会、松山(2013-09).
- 15) O. Lecarme\*, X. Shi, K. Ueno, and H. Misawa: "Spectral

- properties of Al nanorods on  $SrTiO_3$  for photocurrent generation", 2013年光化学討論会、松山(2013-09).
- 16) Y. Zhong\*, Y. Mori, X. Shi, T. Oshikiri, K. Ueno, and H. Misawa: "Plasmon-assisted water splitting with visible light irradiation using gold nanoislands loaded strontium titanate", 2013年光化学討論会、松山 (2013-09).
- 17) 上野貢生\*:「プラズモニック構造を利用した光化学反応制御」(招待講演)、日本物理学会2013年秋季年会、徳島 (2013-09).
- 18) K. Ueno\*: "Fabrication and characterization of metallic nanostructures with single nanometer-sized gap" (Invited), 26th International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC 2013), Sapporo (2013-11).
- 19) 上野貢生\*、Y. Zhong、森 有子、三澤弘明:「金ナノ構造 /チタン酸ストロンチウム基板によるプラズモン共鳴を利 用した水の光電気分解」、第23回日本MRS年次大会、横 浜(2013-12).
- 20) O. Lecarme\*, K. Ueno, and H. Misawa: "Plasmonic properties of aluminum nanorods in near-infrared: transparency, absorption and near-field enhancement", 第61 回応用物理学会春季学術講演会、相模原(2014-03).
- 21) Q. Sun\*, Y. Han, K. Ueno, A. Kubo, Y. Matsuo, and H. Misawa: "Revealing higher order surface plasmon resonances and their dynamics by PEEM", 第61回応用物理学会春季学術講演会、相模原(2014-03).
- 22) 上野貢生\*、伊藤弘子、中野和佳子、野澤翔、孫泉、三 澤弘明:「光アンテナ構造を用いた遠赤外光照射による プラズモン放射圧の誘起」、第61回応用物理学会春季学 術講演会、相模原(2014-03).
- 23) 常盤塁也\*, 孫泉, 上野貢生, 三澤弘明:「フェムト秒レーザー直接描画と加熱による可視波長域にフォトニックバンドギャップを持つ3次元フォトニック結晶の作製」、第61回応用物理学会春季学術講演会、相模原(2014-03).
- 24) 三澤弘明\*:「プラズモンを利用した可視・近赤外光に よる人工光合成系の構築」(招待講演)、日本化学会第 94春季年会、名古屋(2014-03).
- 25) 上原日和\*、押切友也、上野貢生、三澤弘明:「金属ナノ 構造体への J 会合体分子の空間選択的配置によるプラ ズモン-励起子強結合系の構築」、日本化学会第94春季 年会、名古屋(2014-03).
- 26) 押切友也\*、上野貢生、三澤弘明:「可視光照射による プラズモン誘起アンモニア合成」、日本化学会第94春季 年会、名古屋(2014-03).
- 27) Y. Zhong\*, Y. Mori, K. Ueno, T. Oshikiri, and H. Misawa: "Plasmon-induced water splitting under visible light irradiation using gold nanostructured strontium titanate single crystals", 日本化学会第94春季年会、名古屋(2014-03).
- 28) 野澤 翔\*、上野貢生、三澤弘明、A. Mazhorova, M. Clerici, L. Razzari, and R. Morandotti: 「テラヘルツ帯域におけ る光アンテナ構造の分光特性」、日本化学会第94春季年

- 会、名古屋(2014-03).
- 29) 中村圭佑\*、鎌田義臣、石 旭、押切友也、上野貢生、 三澤弘明:「原子層堆積法による酸化チタン薄膜を用いた プラズモン誘起光電変換」、日本化学会第94春季年会、 名古屋(2014-03).
- 30) H. Yu\*, Q. Sun, A. Kubo, Y. Matsuo, K. Ueno, and H. Misawa: "Selective excitation of surface plasmon resonance modes in gold nanoparticles and probing their dynamics by photoemission electron microscopy", 日本化学会第94春季年会、名古屋(2014-03).
- ii )研究会・シンポジウム・ワークショップ
- 1) 上原日和\*:「金属ナノ構造による局在表面プラズモンを用いた光-分子強結合」、日本学術会議主催・第3回先端フォトニクスシンポジウム、東京(2014-04).
- Quan Sun\*: "Probing surface plasmons using nonlinear photoemission electron microscopy with excitation by femtosecond laser pulses", Short Pulse Strong Field Laser Physics International Symposium Honouring See Leang Chin, Quebec, Canada (2013-05).
- 3) H. Misawa\*: "Fabrication and characterization of metal nanostructures" (Invited, Summer Course), The 2nd International Summer Course and Workshop on "Single Molecule/Nanoparticle Spectroscopy and Imaging", Hsinchu, Taiwan (2013-06).
- 4) H. Misawa\*: "Plasmon-Enhanced Photocurrent Generation and Water Oxidation" (Invited, Workshop), The 2nd International Summer Course and Workshop on "Single Molecule/Nanoparticle Spectroscopy and Imaging", Hsinchu, Taiwan (2013-06).
- 5) H. Misawa\*: "Plasmon-enhanced photocurrent generation and water oxidation" (Invited), Symposium on Plasmon-based Chemistry and Physics (Pre-conference of ICP2013), Leuven, Belgium (2013-07).
- K. Ueno\*: "Plasmonic chemistry and its application to nanolithography and infrared sensor" (Invited), Symposium on Plasmon-based Chemistry and Physics (Pre-conference of ICP2013), Leuven, Belgium (2013-07).
- 7) Y. Kamata\*, K. Ueno, T. Oshikiri, and H. Misawa: "Solid state plasmonic solar cell using silver nanostructures loaded titanium dioxide photoelectrode", Symposium on Plasmon-based Chemistry and Physics (Pre-conference of ICP2013), Leuven, Belgium (2013-07).
- Y. Matsuzuka\*, Q. Sun, O. Lecarme, K. Ueno, and H. Misawa: "Fabrication and spectral characterization of stacked nanogap gold structures", Symposium on Plasmon-based Chemistry and Physics (Pre-conference of ICP2013), Leuven, Belgium (2013-07).
- S. Nozawa\*, K. Ueno, H. Itoh, W. Nakano, and H. Misawa: "Plasmon-Induced Radiation Force with Infrared Light Radiation", Symposium on Plasmon-based Chemistry and

- Physics (Pre-conference of ICP2013), Leuven, Belgium (2013-07).
- 10) T. Oshikiri\*, K. Ueno, and H. Misawa: "Ammonia Photosynthesis Using Ruthenium Loaded Strontium Titanate Photoelectrochemical Catalyst", Symposium on Plasmon-based Chemistry and Physics (Pre-conference of ICP2013), Leuven, Belgium (2013-07).
- 11) T. Tokiwa\*, Q. Sun, T. Oshikiri, K. Ueno, and H. Misawa: "Spectral Properties of 3-D Metallic Photonic Crystals Fabricated by Direct Laser Writing and Atomic Layer Deposition", Symposium on Plasmon-based Chemistry and Physics (Pre-conference of ICP2013), Leuven, Belgium (2013-07).
- 12) 上野貢生\*:「赤外光エネルギー変換 ープラズモン放射 圧による高分子ゲルの体積相転移-」(招待講演)、第 13 回バイオテンプレート研究懇談会、横浜(2013-08).
- 13) 三澤弘明\*:「プラズモニック光化学: 人工光合成への展開」 (招待講演)、JST・CREST「元素戦略」領域 H25 全体会議、 南房総(2013-09).
- 14) 上野貢生\*:「プラズモン増強場を用いた光ーエネルギー 変換系の構築」(招待講演)、戦略目標「プロセスインテグ レーションによる次世代ナノシステムの創製」3研究領域合 同公開シンポジウム、東京(2013-10).
- 15) 上野貢生\*:「プラズモン増強を用いた表面光化学反応」 (招待講演)、第78回表面科学研究会 ナノスケールの振動分光の最前線、東京(2013-10).
- 16) 三澤弘明\*:「可視光局在プラズモンの人工光合成への展開」(特別講演)、文部科学省私立大学戦略的研究基盤 形成支援事業「太陽光活用を基盤とするグリーン/ライフイ ノベーション創出技術研究拠点の形成」第2回公開発表 会、横浜(2013-11).
- 17) H. Uehara\*, T. Oshikiri, K. Ueno, and H. Misawa: "Dynamics of plasmon-molecule strong coupling in a hybrid system of silver nanostructures and cyanine dye", The 14th RIES-HOKUDAI International Symposium 網 [mou], Sapporo (2013-12).
- 18) Q. Sun\*, H. Yu, K. Ueno, and H. Misawa: "Revealing the plasmon coupling in gold nanostructures directly from near field by PEEM", The 14th RIES-HOKUDAI International Symposium 網 [mou], Sapporo (2013-12).
- 19) T. Oshikiri\*, K. Ueno, and H. Misawa: "Plasmon assisted photoelectrochemical synthesis of ammonia using strontium titanate bearing gold-nanoislands and ruthenium", The 14th RIES-HOKUDAI International Symposium 網 [mou], Sapporo (2013-12).
- 20) O. Lecarme\*, Q. Sun, K. Ueno, and H. Misawa: "Plasmonic properties of Al nanostructures from visible to near—IR for solar system applications", The 14th RIES-HOKUDAI International Symposium 網 [mou], Sapporo (2013—12).

- 21) K. Nakamura\*, Y. Kamata, T. Oshikiri, K. Ueno, and H. Misawa: "Fabrication of gold nanostructured titanium dioxide photoelectrodes and its photocurrent generation properties", The 14th RIES-HOKUDAI International Symposium 網 [mou], Sapporo (2013-12).
- 22) 三澤弘明\*:「プラズモニック化学の将来展望」(特別講演)、 CREST「元素戦略を基軸とする物質・材料の革新的機能 の創出」『安定な有機ラジカルの蓄電および光電変換材 料への応用』チーム会議、浜松(2014-01).
- 23) H. Misawa\*: "Future perspective of plasmonic chemistry" (Invited), Symposium on Functional Nanostructures (Symposium Honoring the 60<sup>th</sup> Birthday of Prof. Thomas W. Ebbesen), Strasbourg, France (2014-01).
- 24) 上野貢生\*:「プラズモン放射圧を利用した遠赤外分光イメージング技術」(招待講演)、2013年度日本分光学会北海道支部シンポジウム、札幌(2014-01).
- 25) 三澤弘明\*:「プラズモニック化学の将来展望」(特別公演)、 さきがけ「光の利用と物質材料・生命機能」平成25年度研 究報告会、東京(2014-03).
- 26) 上野貢生\*:「プラズモン増強場を用いた表面化学反応」 (招待講演)、平成25年度日本表面科学会東北・北海道 支部学術講演会、仙台(2014-03).

#### iii) コロキウム・セミナー等・その他

1) 三澤弘明\*:「プラズモニック化学 - 反応制御を目指して -」(基調講演)、第10回日本写真学会光機能性材料セミ ナー - 光励起制御を目指した金属ナノ構造の構築-、富 士フイルム(株)、東京(2013-06).

# 4.8 シンポジウムの開催

- 1) 三澤弘明:「第4回プラズモニック化学シンポジウム」、東京 工業大学田町キャンパスイノベーションセンター、東京 (2013年6月14日)
- 2) 三澤弘明、上野貢生: ICP 2013 Pre-conference: Plasmon-based Chemistry and Physics, KU Leuven, Leuven, Belgium(2013年7月19日—20日)
- 3) 三澤弘明:「第5回プラズモニック化学シンポジウム」、TKP 神田ビジネスセンター、東京(2013年11月15日)
- 4) 三澤弘明: Japan-China Bilateral Symposium on Nanophotonics and Plasmonic Chemistry, メルパルク横浜, 横浜(2013年11月23日)

## 4.9 共同研究

## a. 所内共同研究

1) 三澤弘明、上野貢生、笹木敬司、西井準治、中村貴義、 プロジェクト研究(A):国際連携「ナノテクノロジー を基礎とするグリーンイノベーション創出研究拠点形 成事業(JSPS)申請に向けた中国研究ネットワークと の共同研究体制の構築」(2013年度):中国の国際的な プレゼンスは経済成長と相まって大きくなりつつあり、 また科学技術に関する成長も著しい。そのような中、 本プロジェクト研究では、中国国内の研究者の共同研 究ネットワークと電子科学研究所とが包括的な共同研 究を推進するシステムの構築を目指す。

#### c. 民間等との共同研究

- 1) 三澤弘明、上野貢生(株式会社イムラ・ジャパン):「高 効率太陽光発電に関する研究」(2013年度) サスティナ 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。
- 2) 三澤弘明(旭硝子株式会社):「ガラス等の表面上における金属ナノ粒子の自己組織化制御」(2013~2014年度)ガラスおよび酸化チタン表面上の金ナノ微粒子の自己組織化によるパターニングと光学特性評価を実施し、ソーラーアプリケーション等への展開を目的とする。

#### d. 受託研究

- 1) 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。
- 2) 三澤弘明、日本学術振興会 学術システム研究センター「光化学分野に関する学術研究動向調査研究」(2012年度~2014年度):光化学研究において局在プラズモン共鳴がどのように活用されていくのかを基礎化学のみならず応用技術の視点からも展望する。

## 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、科学研究費補助金(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) 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)
- 3) 押切友也、電子科学研究所、科学研究費補助金(若手スタートアップ)、「プラズモニック光電気化学触媒を用いた窒素の固定化」、(2013~2014年度)
- 4) 三澤弘明、電子科学研究所、科学研究費補助金(新学術領域研究(公募))、「可視・近赤外局在プラズモンによる水の完全分解システムの構築」(2013~2014年度)

## 4.11 受賞

1) 三澤弘明:「プラズモニック化学:人工光合成・太陽電池への展開」,特別講演賞,2013年光化学討論会(2013).

#### 4.12 社会教育活動

## a. 公的機関の委員

- 三澤弘明:文部科学省 科学技術政策研究所 科学技術 動向センター 専門調査員(2006年4月4日~2015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~2016年3月31日)
- 4) 三澤弘明: European Research Council, Peer Reviewer (2010年7月21日~2013年12月31日)
- 5) 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)
- 6) 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)
- 7) 三澤弘明:日本学術振興会 学術システム研究センター研究員(2012年4月1日~2014年3月31日)
- 8) 三澤弘明:石狩市 石狩超電導直流送電プロジェクト 推進協議会 構成員(2013年2月15日~2015年3月31日)
- 9) 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~2015 年3月31日)

### b. 国内外の学会の役職

- 1) 三澤弘明: Journal of Photochemistry and Photobiology C: Photochemistry Reviews, Deputy Editor(2010年1月1日~2013年12月31日)
- 2) 三澤弘明: Nanotechnology Innovation Center for Environment & Ecosystem, Academic Committee (2012年7月 31日~2017年12月31日)
- 3) 三澤弘明:第12回ナノテクノロジー総合シンポジウム 組織・プログラム委員会有識者(2013年8月8日)
- 4) 上野貢生:日本分析化学会 北海道支部 幹事(2013年3 月1日~2014年2月28日)
- 5) 上野貢生:日本分析化学会「ぶんせき」編集委員 (2013 年3月1日~2014年2月28日)
- 6) 上野貢生: 応用物理学会第26回マイクロプロセス・ナ ノテクノロジー国際会議実行委員会委員(2013年1月25 日~2014年12月31日)
- 10) 上野貢生: 光科学異分野横断萌芽研究会 組織委員 (2011 年 2 月 28 日~)
- 11) 三澤弘明: Asian Nanoscience and Nanotechnology Association, President (2013 年 5 月~)
- 12) 三澤弘明: 光化学協会 理事 (2014年1月1日~2017年12月31日)
- 13) 三澤弘明: 光化学協会 会長(2014年1月1日~2015年12月31日)
- 14) 三澤弘明: ACS Photonics, Editorial Advisory Board (2014年1月1日~2015年12月31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) 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)

#### e. 新聞・テレビ等の報道

#### • 新間

- 三澤弘明:2013.9.19、日経産業新聞、「赤外線を電気に変換」
- 三澤弘明:2014.1.22、日経産業新聞、「電子の動き 観察成功」

## ・テレビ

- f. **外国人研究者の招聘**(氏名、国名、期間)
- 1) Kai Sun、中国(2013年11月21日~24日)
- 2) Hong-Bo Sun、中国 (2013年11月21日~24日)
- 3) Thomas Ebbesen、フランス (2014年1月9日~11日)
- 4) George Thomas、インド (2014年2月27日)
- g. 北大での担当授業科目(対象、講義名、担当者、期間)
- 1) 工学部、電気回路、三澤弘明(2013年4月1日~2013年9月30日)
- 2) 情報科学研究科、バイオオプティクス特論、三澤弘明、 上野貢生、押切友也(2013年10月1日~2014年3月31日)
- i. ポスドク・客員研究員など
- 1) 孫 泉(特別経費「北海道企業群によるナノ加工技術集 積拠点の形成ーナノインプリントによる生産技術の開 発ー」・特任助教、2011.4.1~)(所属は2009.1.1~)
- 2) 上原日和(文部科学省 科学研究費補助金基盤研究(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」・学術研究員、アライアンス・ 非常勤研究員、2012.4.1~)
- 3) Olivier Lecarme (文部科学省 科学研究費補助金基盤研究(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」・博士研究員、2012.9.1 ~2014.3.31)
- 4) 陳岐岱(共同研究(旭硝子)「ガラス等の表面上における金属ナノ粒子の自己組織化制御」・特任准教授、2013.10.1 ~2013.12.31)
- 5) Worawut Khunsin(日本学術振興会 外国人特別研究員、2013.9.1~2014.8.31)

## j. 修士学位及び博士学位の取得状況

# ·博士課程(1名)

 石旭:金ナノアイランド/酸化チタン電極によるプラズモン 増強光電流の発生と水の酸化反応に関する研究 (Plasmon-Enhanced Photocurrent Generation and Water Oxidation with Gold Nanoislands Loaded Titanium Dioxide Photoelectrodes) (2014年3月)

#### ·修士課程(2名)

- 1) 松塚祐貴: 光電子顕微鏡を用いた積層型ナノギャップ 金構造における光電場増強効果の検討(Probing the Electromagnetic Field Enhancement Effects Induced on Stacked Nanogap Gold Structures using Photoemission Electron Microscopy) (2014年3月)
- 2) 鎌田義臣:ホール移動層として酸化ニッケルを用いた全固

- 体プラズモン太陽電池の構築 (Construction of Solid-state Plasmonic Solar Cell using Nickel Oxide as Hole Transport Layer)(2014年3月)
- 3) 于瀚:光電子顕微鏡を用いた金ナノ微粒子に誘起される 局在表面プラズモンの近接場分布とダイナミクスの追跡 (Probing the Near-Field and Dynamics of Localized Surface Plasmon Resonance in Gold Nanoparticles by Photoemission Electron Microscopy) (2014年3月)

# 光電子ナノ材料研究分野

教 授 西井準治 (都立院、工博、2009.7~) 准教授 海住英生 (慶大院、工博、2013.10~)

大学院生 柴田智広 (総合化学院M2)

莊司孝斗(総合化学院M2) 生田目直季(総合化学院M1) 川口慶雅(総合化学院M1)

学部生 森澄人 (理学部化学科)

## 1. 研究目標

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

### (1) 電子スピンの制御

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

#### (2)イオンの制御

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

#### (3) 光波制御機能の発現

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

## 2. 研究成果

# (1) ナノ秒パルスレーザー照射によるナノストライプ FeAI合金の形成と磁気特性

磁気ナノ構造はその興味深い基礎物性と応用可能性の高 さから国内外で大きな注目を集めている。例えば、ナノド ット、ナノストライプ、ナノワイヤー、ナノチューブでは 保磁力、飽和磁場、スイッチング磁場の増大現象が観測さ れており、それらの挙動はバルクのそれと比較して大きく 異なる。また、応用面では、磁気ナノ構造を用いた新たな デバイスとして、ビットパターンドメディア(BPM)、磁壁 ロジックデバイス、レーストラックメモリ、磁気ランダム アクセスメモリ(MRAM)等が提案されている。このような現 状において、我々は本学エネルギー・マテリアル融合領域 研究センター渡辺教授の研究グループとの共同研究により、 Fe<sub>50</sub>Al<sub>48</sub>合金表面にナノ秒パルスレーザーを照射すると、そ の表面形態がストライプ構造、網目構造、ドットパターン に変化することを見出した。また、この表面構造変化に伴 い、磁気特性が常磁性から強磁性に転移することも明らか にした。今回、我々は本手法で得られたナノストライプFeAl 合金に注目し、その表面状態、及び磁気特性の詳細につい

て調べることを目的とした。

Fe $_{52}$ Al $_{48}$ 合金表面へのナノ秒パルスレーザー照射には Nd:YAGパルスレーザーを用いた。パルス幅は6 ns、繰り返しパルス周波数は2 Hz、パルス数は200 pulses、平均レーザーエネルギー密度は1.24 kJ/m $^2$ 、波長は532 nmとした。表面ナノ構造解析には原子間力顕微鏡(AFM)、走査型電子顕微鏡(SEM)、及び、エネルギー分散型X線分光法(EDS)を用いた。磁気特性評価には集光型磁気光学カー効果(MOKE)法を用いた。最大印加磁場は1 kOe、面内印加磁場回転角は0-90°、観測スポットサイズ径は3 µm、測定温度は室温とした。

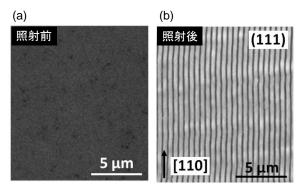


図1 レーザー照射(a)前と(b)後のFeAI合金のSEM像

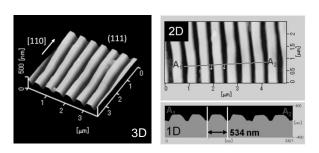


図2 レーザー照射後のFeAI合金の表面AFM像

図1にナノ秒パルスレーザー照射前と後のFeAl合金のSEM像を示す。レーザー照射前では表面が平坦であることに対し、レーザー照射後では(111)面の[110]方向に沿って、ストライプが形成されることがわかる。図2にレーザー照射後のFeAl合金の表面AFM像を示す。ストライプ周期は534nm程度となり、入射レーザー波長532nmとほぼ等しいことがわかった。また、ストライプ高さは155nm程度で、幅は242nm程度であった。

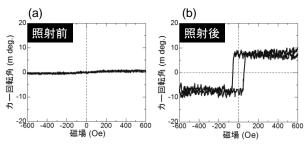


図3 レーザー照射(a)前と(b)後のFeAI合金の表面磁化曲線

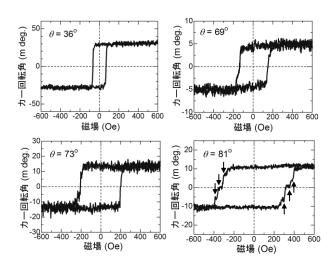


図4 レーザー照射後のFeAI合金における表面磁化曲線の回転 磁場依存性

図3にナノ秒パルスレーザー照射前と後のFeAl合金の表面磁化曲線を示す。磁場の印加方向は[110]方向に対して平行とした。レーザー照射前では、カー回転角がほぼ $0^{\circ}$ となり、保磁力は0 Oeを示す。これは常磁性であることを示し、規則化B2-Fe $_{52}$ Al $_{48}$ の特性と矛盾しない。それに対し、レーザー照射後では磁化曲線にヒステリシスが観測された。これは強磁性であることを示し、 $Fe_{52}$ Al $_{48}$ の表面が不規則化A2構造となった分析結果と矛盾しない。

図4にレーザー照射後のFeAI合金における表面磁化曲線の回転磁場依存性を示す。ここで磁場回転角 $\theta$ は磁場とストライプ方向のなす角度と定義した。すなわち、 $\theta$ =0 $^{\circ}$ 、90 $^{\circ}$ は、それぞれ、ストライプ方向、及びストライプに対して面内垂直方向に磁場を印加することを意味する。磁場回転角 $\theta$ が大きくなる程、すなわち、面内磁場がストライプ方向に対して垂直になる程、保磁力 $H_c$ が大きくなることがわかる。

図5に保磁力の磁場回転角依存性を示す。実丸が実験結果 で、実線と破線が、それぞれ磁壁(DW)移動モデルと Stoner-Wohlfarth(SW)モデルによる計算結果である。図5よ り、保磁力の磁場回転角依存性はDW移動モデルによる計 算結果と良い一致を示すことがわかる。これは、磁化反転 が磁壁ピニングにより行われ、そのメカニズムがインコヒ ーレントモードであることを意味する。これは図4の $\theta$ =81° において矢印で示した複数のJump fieldsと呼ばれる「飛び」 が観測されていることと矛盾しない。ここで、磁壁ピニン グが生じる原因について考察する。SEM観察、及び、EDS 分析によると、ストライプ構造の傾斜部において、Al-oxide の存在が確認された。これはナノ秒パルスレーザー照射に より自己組織的にFeAlストライプ構造が形成する際に、そ のストライプ構造の傾斜部にAlとOが結合した結果形成さ れたものと考えられる。Al-oxideが存在すると磁気的には 不純物が存在することと等価であるため、これにより磁壁 ピニングが生じたものと考えられる。

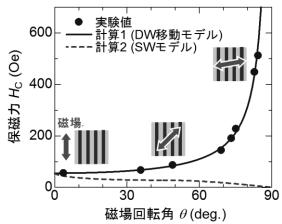


図5 レーザー照射後のFeAI合金における保磁力の磁場回転角 依存性

#### (2) コロナ放電処理によるガラスの表面改質

タッチパネルなどに使われるガラスの強化手法のひとつ としてイオン交換法がある。これは、ガラス中の Na<sup>+</sup>イオ ンをK<sup>+</sup>イオンと置換し、イオン半径の違いによる圧縮応力 でガラス表面を強化する手法であるが、溶融塩中にガラス を長時間浸漬する必要がある。我々は、コロナ放電を用い ることで、イオン交換法と同じ効果が発現することを見出 した。コロナ放電とは、高電圧を印加した針やワイヤーに 生じた電界による放電であり、帯電防止や集塵などに幅広 く用いられている。放電中の電極では気体がプラズマ化し、 正に帯電したイオンはアース電極へ衝突する。この現象を 利用して、図6に示す構成において、上層ガラスから下層 ガラスヘイオンが移動することを実証した。実験には NaBSi ガラス(20Na<sub>2</sub>O-10B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-70SiO<sub>2</sub>, mol%)と KBSi ガラス (20K<sub>2</sub>O-10B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-70SiO<sub>2</sub>, mol%)の2種類のガラスを用いた。 針状電極を正極、平板状電極をアース極として、それぞれ 1 mm 厚の NaBSi と KBSi を重ねあわせてアース極の上に置 き、針電極-ガラスサンプル間の距離を5mm として200℃ の空気中にてコロナ放電処理を施した。その後、C60-XPS 法を用いた深さ方向の元素分析を行った。図 7 に、KBSi を針電極側、NaBSi をアース極側になるように設置し、印 加電圧 4.5 kV で 720 分間のコロナ放電処理を施した場合の C<sub>60</sub>-XPS スペクトルを示す。KBSi 表層からは K が消失した。 また、赤外吸収スペクトルから、プロトンが侵入して OH 基が形成されていた。一方、NaBSi 表層には K が侵入して おり、深さ方向の Na と K 濃度の総和は一定であった。ま た、下層ガラスの下面から Na が排出された。このことか ら、上層のアルカリイオンが下層ガラスに侵入したことが 確認された。これらのガラスを上下入れ替えても同様の現 象が確認され、コロナ放電はガラス表層のアルカリイオン 交換に応用可能であることが実証された。本プロセスの特 徴は、ガラスを高温の溶融塩に浸漬することなく、所望の 領域のみを低温で表面処理できる点にあり、今後、様々な 応用が期待される。

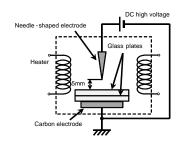


図6 コロナ放電処理を用いたガラスのイオン交換

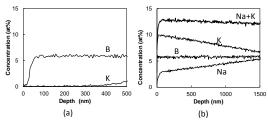


図 7 コロナ放電処理後のアノード側ガラス表面の  $C_{60}$ -XPS 分析結果: (a)上層に置いた KBSi、(b)下層の NaBSi

## (3) パラジウム薄膜のプラズモン特性と水素センシング

パラジウムは、水素を吸蔵して誘電率が変化することで知られている一方、d電子局在性が強くプラズモン共鳴を励起しにくい金属でもある。本研究では、パラジウムのプラズモン共鳴(SPR)特性を明らかにし、水素吸蔵・放出との相関の有無について調べた。実験当初はクレッチマン配置での実験を試みたが明確な SPR ディップ(反射率の低下)が見出せなかった。そこで、RCWAを用いてパラジウム回折格子を設計したところ、波長 850nmの p-偏光で励起した場合、格子周期 500nm、デューティ比 0.5、格子深さ 60nmの矩形構造において、入射角度 42度で最も強くプラズモン結合することを見出した(図 8)。図中に示す様に、入射角度43度でプラズモン結合による反射率の低下が見られた。回折格子を用いた SPR 曲線は過去の文献には報告がなく、本研究が初めてであると考えられる。

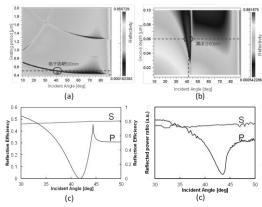


図8 RCWA 法で求めたパラジウム回折格子の波長 850 nm での プラズモン共鳴特性: (a) 入射角度と格子周期の関係、(b) 入射 角度と溝深さの関係、(c) SPR 曲線の計算値、(d) 作製した回折 格子の SPR 曲線

水素雰囲気中でパラジウム回折格子を評価するため、図 9 に示す様な水素ガスを導入できる光学系を構築した。チ ャンバー内に窒素-水素混合ガスを導入し、0 次反射光強度の入射角度依存性を調べたところ、図 10 に示す様に、偏光状態やプラズモン共鳴状態に依存することなく、水素濃度に応じて反射率が変化することがわかった。したがって、これまでパラジウム薄膜のプラズモン共鳴を用いた水素センシングに関する多くの報告(例えば B. Chadwick, et al. Appl. Surf. Sci. 68 (1), 135-138 (1993).)があるが、その多くは、水素吸蔵による自由電子密度変化に応じた反射率の低下を検出している可能性が高いことが明らかとなった。



図 9 水素-窒素混合ガス雰囲気下での反射パワー測定光学 系

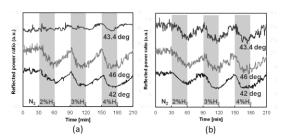


図 10 水素分圧の異なる雰囲気下でのLD光(波長 850 nm)の反射率の入射角度依存性:(a)p偏光、(b)s偏光

## 3. 今後の研究の展望

今回、FeAI 合金にナノ秒パルスレーザーを照射すると、 その表面がストライプ構造となることが明らかになり、さ らに、その詳細な磁気特性も明らかになった。今後は、本 手法により、レーザー波長・パルス数依存性、及び材料依 存性等を調べ、新規な磁性材料探索研究を推進する。これ により応用上は新たな高保磁力磁性材料の創製を目指す。 一方、電圧勾配を利用した固体材料中のイオンの存在状態 の制御については、光学及び固体イオニクスの分野で新た な機能を発現する上で有望な手段であると位置づけている。 現在、当該研究室では、中温域燃料電池のための固体電解 質への応用を目指して固体中のアルカリカチオンのプロト ンへの完全置換に挑戦している。さらに、パラジウムを用 いた水素の光センシングのニーズは今後ますます高まると 考えられる。表面プラズモン共鳴の利用は有力であるが、 金や銀に比べて誘電率の虚部が極めて大きく、現状ではメ リットが見出せない。今後は、下地として誘電体フォトニ ック結晶構造を利用するなど、さらなるデバイス構造の最 適化が重要である。

# 4. 資料

## 4.1 学術論文等

- H. Ikeda, H. Kasa, H. Nishiyama and J. Nishii: "Evaluation of demolding force for glass-imprint process", *Journal of Non-Crystalline Solids*, 383: 66-70 (2013)
- H. Ikeda, D. Sakai, S. Funatsu, K. Yamamoto, T. Suzuki, K. Harada and J. Nishii: "Generation of alkali-free and high-proton concentration layer in a soda lime glass using non-contact corona discharge", *Journal of Applied Physics*, 114: 063303-1-063303-6 (2013)
- N. Ikutame, K. Kawaguchi, H. Ikeda, D. Sakai, K. Harada, S. Funatsu and J. Nishii: "Low-temperature fabrication of fine structures on glass using electrical nanoimprint and chemical etching", *Journal of Applied Physics*, 114: 083514-1-083514-4 (2013)
- T. Shoji, H. Ikeda, H. Mayama, H. Nishiyama and J. Nishii: "Proton implantation into tungsten phosphate glass using corona discharging", *Physics Procedia*, , 48: 81–84 (2013)
- H. Ikeda, H. Kasa, H. Mayama, H. Nishiyama and J. Nishii: "Evaluation of demolding force by parallel mold press for glass imprint", *Physics Procedia*, 48: 109-112 (2013)
- T. Shibata, H. Ikeda, H. Nishiyama, K. Tawa and J. Nishii:
   "Optimization of Metal Quality for Grating Coupled Surface Plasmon Resonance", *Physics Procedia*, 48: 179–183 (2013)
- T. Ishiyama, S. Suzuki, J. Nishii, T. Yamashita, H. Kawazoe and T. Omata: "Electrochemical Substitution of Sodium Ions in Tungsten Phosphate Glass with Protons", Journal of The Electrochemical Society, 160(11): E143-E147 (2013)
- I. Yamada, J. Nishii and M. Saito: "Incident angle and temperature dependence of WSi wire-grid polarizer", *In-frared Physics & Technology*, 63: 92–96 (2013)
- Y. Yoshida, K. Oosawa, S. Watanabe, H. Kaiju, K. Kondo, A. Ishibashi and K. Yoshimi: "Nanopatterns induced by pulsed laser irradiation on the surface of an Fe-Al alloy and their magnetic properties", *Applied Physics Letters*, 102: 183109-1-183109-4 (2013)
- 10) M. D. Rahaman, H. Kaiju and A. Ishibashi: "Ultra-high cleanliness of ISO class minus 2 realized by clean-unit system platform for integrating the bottom-upand top-down systems", D. U. Journal of Science, 61: 157-160 (2013)
- 11) D. Kobayashi, Y. Yamamoto, K. Yamamoto, S. Funatsu, K. Harada and J. Nishii: "Mechanism of hologram formation on glass surface by recording technique with corona discharge", *Journal of Surface Analysis*, 20(3): 226-229

(2014)

- 12) I. Yamada, J. Nishii and M. Saito: "Deformable silicone grating fabricated with a photo-imprinted polymer mold", Review of Scientific Instruments, 85: 013102-1-013102-4 (2014)
- 13) I. Yamada, N. Yamashita, T. Einishi, M. Saito, K. Fukumi and J. Nishii: "Modeling and imprint fabrication of an infrared wire-grid polarizer with an antireflection grating structure", *Infrared Physics & Technology*, 64: 13-17 (2014)
- 14) K. Kawaguchi, H. Ikeda, D. Sakai, S. Funatsu, K. Uraji, K. Yamamoto, T. Suzuki, K. Harada and J. Nishii: "Accelerated formation of sodium depletion layer on soda lime glasssurface by corona discharge treatment in hydrogen atmosphere", Applied Surface Science, 300: 149-153 (2014)
- 15) H. Kaiju, Y. Yoshida, S. Watanabe, K. Kondo, A. Ishibashi and K. Yoshimi: "Magnetic Properties on the Surface of FeAl Stripes Induced by Nanosecond Pulsed Laser Irradiation", *Journal of Applied Physics*, 115: 17B901-1-17B901-3 (2014)

#### 4.2 講演

#### a. 招請講演

- H. Kaiju\*, K. Kondo, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, and A. Ishibashi: "Ni-based Nanoscale Junctions Utilizing Thin-Film Edges", 2nd International Congress on Advanced Materials, Zhenjiang, China (2013-05)
- H. Kaiju\*, K. Kondo, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, and A. Ishibashi: "Fabrication of Nanoscale Junctions Utilizing Thin-Film Edges and Their Structural and Electrical Properties", Collaborative Conference on Materials Research 2013, Jeju Island, South Korea (2013-06)
- H. Kaiju\*, K. Kondo, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, and A. Ishibashi: "Fabrication of Ni-based Nanoscale Junctions Utilizing Thin-Film Edges and Their Structural and Electrical Properties", The 2013 Energy, Materials and Nanotechnology Fall Meeting, Orlando, Florida (2013-12)
- 4) 海住英生\*、近藤憲治、石丸学、弘津禎彦、石橋晃:「薄 膜エッジを利用したナノスケール接合の作製とその電 気伝導特性」、物質・デバイス領域共同研究拠点研究会、 北海道大学電子科学研究所1F会議室(2013-07)
- 5) 酒井 大輔\*、原田 建治、原 悠一郎、池田 弘、山本 清、 山本 雄一、舩津 志郎、西井 準治: 「コロナ放電を 用いたガラスへの潜像記録及び顕在化」、第14回情報フ ォトニクス研究グループ研究会、札幌市(2013-09)
- 6) D. Sakai\*, K. Harada and J. Nishii: "Visualizing Method of Index Modulated Hologram in Glass Using Corona Discharge", IWH2013, 北見工業大学 (2013-10)
- 7) 海住英生\*、近藤憲治、石丸学、弘津禎彦、石橋晃:「磁

性薄膜エッジを用いたナノスケール接合デバイス」、日本磁気学会第194回研究会、中央大学駿河台記念館(2014-01)

#### b. 一般講演

#### i ) 学会

- 1) 二瓶卓也\*、甲田智弘、庄司浩一朗、的場正憲、海住英生、為ヶ井強、土屋雄司、神原陽一:「鉄系超伝導体 F-doped SmFeAsOの臨界電流密度」、日本材料科学会50 周年記念行事・平成25年度学術講演大会、工学院大学 (2013-06)
- 2) 生田目 直季\*、池田 弘、酒井 大輔、原田 建治、西井 準治:「電圧印加ガラスインプリントによる微細構造 の形成機構解明」、日本化学会北海道支部2013年夏季研 究発表会、北見工業大学(2013-07)
- 3) 川口 慶雅\*、池田 弘、酒井 大輔、原田 建治、西井 準治:「コロナ放電処理によるシリケートガラス中のアルカリープロトン置換」、日本化学会北海道支部2013年夏季研究発表会、北見工業大学(2013-07)
- 4) D. Sakai\*, H. Ikeda, K. Harada, Y. Hara, K. Yamamoto and J. Nishii: "Selective chemical vapor deposition for electrically pretreated glass", Optics in Engineering 2013, 宇都宮大学 (2013-09)
- 5) K. Tawa\*, T. Yasui, C. Hosokawa, J. Nishii and H. Aota: "Fluorescence Imaging of Neuron Cells Cultured on a Plasmonic Dish", 2013 JSAP-MRS Joint Symposia, 同志 社大学京田辺キャンパス (2013-09)
- 6) 印藤 健也\*、森田 晋平、山本 俊介、田和 圭子、西井 準治、三ツ石 方也、宮下 徳治:「表面プラズモン共 鳴/ 導波モード励起を利用した発光ナノデバイスに よる偏光識別」、第74 回応用物理学会秋季学術講演会、 同志社大学京田辺キャンパス (2013-09)
- 7) 川口 慶雅\*、池田 弘、酒井 大輔、原田 建治、秋葉 周 作、鈴木 俊夫、西井 準治:「コロナ放電処理による ガラス中のアルカリイオン交換」、第74 回応用物理学 会秋季学術講演会、同志社大学京田辺キャンパス (2013-09)
- 8) 生田目 直季、池田 弘、酒井 大輔、原田 建治、秋葉 周 作、鈴木 俊夫、西井 準治\*:「電圧印加ガラスイン プリントによる高アスペクト比構造の形成」、第74 回 応用物理学会秋季学術講演会、同志社大学京田辺キャ ンパス (2013-09)
- 9) 酒井 大輔\*、池田 弘、原田 建治、原 悠一郎、山本 清、山本 雄一、西井 準治:「コロナ放電選択堆積によって形成した周期構造」、第74 回応用物理学会秋季学術講演会、同志社大学京田辺キャンパス (2013-09)
- 10) 海住英生\*、吉田裕、大澤和也、渡辺精一、近藤憲治、 石橋晃、吉見享祐:「ナノ秒パルスレーザー照射した Fe<sub>52</sub>Al<sub>48</sub>表面の磁気特性」、第37回日本磁気学会学術講 演会、北海道大学(2013-09)

- 11) 近藤憲治\*、海住英生、石橋晃:「集光型磁気光学Kerr 効果によるCo/PENの磁気光学定数の決定と表面磁 性」、日本物理学会秋季大会, 徳島大学 (2013-09)
- 12) 釜 谷 悠 介 、 海 住 英 生 \* 、 近 藤 憲 治 、 石 橋 晃 : 「Co/Alq<sub>3</sub>/Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>接合における電気・磁気・構造特性」、 日本物理学会秋季大会、徳島大学 (2013-09)
- 13) 海住英生\*、近藤憲治、阿部太郎、石橋晃:「Co/PENに おける面内磁気光学カー効果の回転磁場依存性」、 日 本物理学会秋季大会、徳島大学 (2013-09)
- 14) 酒井 大輔\*、原田 建治、原 悠一郎、池田 弘、山本 清、山本 雄一、 舩津 志郎、西井 準治: 「コロナ放電を用いたガラスホログラムの潜像記録及び顕在化」、ホログラフィック・ディスプレイ研究会、北見工業大学(2013-10)
- 15) N. Ikutame\*, D. Sakai, J. Nishii, H. Ikeda and K. Harada: "Fabrication of fine structures on a glass using electrical nanoimprint process", NNT2013, バルセロナ, Spain (2013-10)
- 16) D. Sakai, N. Ikutame, K. Kawaguchi, J. Nishii\*, H. Ikeda and K. Harada: "Selective SiO2 Deposition on Electrically Imprinted Glass Surfaces", NNT2013, バルセロナ, Spain (2013-10)
- 17) 荘司 孝斗\*、池田 弘、酒井 大輔、西井 準治: 「プロトン導入によるリン酸塩ガラス中の構造変化と伝導性評価」、日本セラミックス協会東北北海道支部研究発表会、長岡市グランドホテル (2013-10)
- 18) 柴田 智広\*、西井 準治: 「水素センシングのための パラジウムグレーティングのプラズモン特性」、日本セ ラミックス協会東北北海道支部研究発表会、長岡市グ ランドホテル (2013-10)
- 19) K. Kawaguchi\*, H. Ikeda, D. Sakai, K. Harada, S. Akiba, T. Suzuki and J. Nishii: "Cation Exchange in Glasses Using Corona Discharge Treatment", The 30th Japan-Korea International Seminar on Ceramics, 北九州国際会議場 (2013—11)
- 20) T. Shibata\*, H. Ikeda and J. Nishii: "Plasmonic coupling characteristics of palladium grating for hydrogen sensing", The 30th Japan-Korea International Seminar on Ceramics, 北九州国際会議場 (2013-11)
- 21) T. Shoji\*, H. Ikeda, D. Sakai and J. Nishii: "Proton Injection into Phosphate Glasses by Corona Discharge Treatment", The 30th Japan-Korea International Seminar on Ceramics, 北九州国際会議場 (2013-11)
- 22) 柴田 智広\*、西井 準治: 「Pd金属を用いた表面プラ ズモンによる水素検出」、第54回ガラスおよびフォトニ クス材料討論会、産業技術総合研究所 関西センター (2013-11)
- 23) 川口 慶雅\*、池田 弘、酒井 大輔、原田 建治、秋葉 周 作、鈴木 俊夫、西井 準治:「水素雰囲気中における コロナ放電処理によるイオン交換」、第54回ガラスおよ

びフォトニクス材料討論会、産業技術総合研究所 関西 センター (2013-11)

- 24) 鈴木 俊夫\*、関根 朋美、秋葉 周作、山本 清、池田 弘、 酒井 大輔、原田 建治、西井 準治: 「コロナ放電処 理されたガラス表層の深さ方向分析」、第54回ガラスお よびフォトニクス材料討論会、産業技術総合研究所 関 西センター (2013-11)
- 25) H. Kaiju\*, Y. Yoshida, K. Oosawa, S. Watanabe, K. Kondo, A. Ishibashi and K. Yoshimi: "Magnetic properties on the surface of an Fe<sub>52</sub>Al<sub>48</sub> alloy induced by nanosecond pulsed laser irradiation", The 58th Annual Magnetism and Magnetic Materials Conference, Denver, USA (2013-11)
- 26) T. Shibata\* and J. Nishii: "Plasmonic characteristics of palladium for hydrogen sensing", The 14th RIES-Hokudai International symposium, ガトーキングダム札幌(2013-12)
- 27) T. Shoji\*, H. Ikeda, D. Sakai and J. Nishii: "Introduction of Proton into Phosphate Glass under Corona Discharge Plasma in Hydrogen Atmosphere", The 14th RIES-Hokudai International symposium, ガトーキングダム札幌 (2013-12)
- 28) H. Kaiju\*, K. Kondo, and A. Ishibashi: "Magnetic Properties of Fe and Co Thin Films on Polyethylene Naphthalate Organic Substrates", The 14th RIES-Hokudai International Symposium, Sapporo, Japan (2013–12)
- 29) Y. Yoshida\*, S. Watanabe, H. Kaiju, K. Kondo, A. Ishibashi, and K. Yoshimi: "Self-organized Nanodot-like Patterns and their Magnetic Properties on the Surface of an FeAl alloy by Nanosecond Pulsed Laser Irradiation", The 14th RIES-Hokudai International Symposium, Sapporo, Japan (2013-12)
- 30) A. Ishibashi\*, T. Kasai, K. Kondo, H. Kaiju and T. Taniguchi: "Waveguide-coupled Multi-striped Orthogonal Photon-Photocarrier-Propagation Solar Cells", The 14th RIES-Hokudai International Symposium, Sapporo, Japan (2013-12)
- 31) 三澤 貴浩\*、生田目 直季、酒井 大輔、阿部 太郎、西井 準治:「電圧印加インプリントによるガラス表面への微細構造形成」、The 24th Meeting on Glasses for Photonics 2014、東京工業大学 (2014-02)
- 32) 酒井 大輔\*、西浦 崇雄、角田 聡、西井 準治: 「コロナ放電処理を利用したソーダライムガラスの異方性ウェットエッチング」、第61回応用物理学会春季学術講演会、青山学院大学相模原キャンパス (2014-03)
- 33) 三澤 貴浩\*、生田目 直季、酒井 大輔、阿部 太郎、原 田 建治、西井 準治:「電圧印加ガラスインプリント による微細構造の形成機構解明」、第61回応用物理学会 春季学術講演会、青山学院大学相模原キャンパス (2014-03)
- 34) 石橋晃\*、河西剛、近藤憲治、海住英生:「導波路結合

フォトン・フォトキャリア直交型マルチストライプ半 導体太陽電池」、日本応用物理学会 2014年春季大会、 青山学院大学 (2014-03)

#### 4.3 予算獲得状況

- a. **科学研究費補助金**(研究代表者、分類名、研究課題、 期間)
- 1) 西井準治、基盤研究(B)、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、2011~2013年度
- 2) 西井準治、挑戦的萌芽研究、大気圧コロナ放電による 中温域プロトン伝導体の創製、2013~2014年度
- 3) 海住英生、若手研究(B)、分子スピントロニクスデバイ スにおける交流インピーダンス特性、2012~2014年度
- b. その他(研究代表者、分類名、研究課題、期間)
- 西井準治、JST・ALCA、アルカリープロトン(AP)置換の 機構解明と高度化および触媒/電極材料の探索、2012 ~2014年度
- 2) 海住英生、科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業 (さきがけ)終了後外部成果発表経費、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、 2013年度
- 3) 海住英生、総長室事業推進経費若手研究者自立支援、 Fe系合金ナノ構造を用いた高保磁力磁性材料に関する 研究、2013年度
- 4) 海住英生、実証研究推進助成事業、ナノスケール接合 デバイスにおけるスイッチング効果実証研究、2013年 度

## c. 民間との共同研究

- 1) 西井準治、旭硝子(株)、ガラス表面改質の高速・大面 積処理に関する研究、2013~2014年度
- 2) 西井準治、丸善石油化学、UVナノインプリントを用いた次世代光学素子の開発、2013~2014年度
- 3) 西井準治、富士電機、表面プラズモンセンシング技術 に関するフィジビリティ研究、2013年度

### 4.4 社会教育活動

## a. 公的機関の委員

 海住英生: 文部科学省科学技術政策研究所科学技術動 向研究センター専門調査員(2014年2月23日~2015年3 月31日)

## b. 国内外の学会の役職

- 1) H. Kaiju: The 14th RIES-Hokudai International Symposium, Organizing Committee (2013年3月~2014年1月)
- 2) 海住英生:第37回日本磁気学会実行委員(2012年6月1日 ~2013年9月30日)
- 3) 海住英生:第75回応用物理学会学術講演会実行委員 (2013年5月1日~2014年9月30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、基礎化学 I、西井準治、2013年4月1日~2014 年9月30日

- 2) 総合化学院、ナノフォトニクス材料論 II、西井準治、2013 年6月1日~2014年9月30日
- 3) 全学共通、ナノテクノロジー・ナノサイエンス概論 II(分担)、海住英生、2013年10月1日~2014年3月31日
- 4) 全学共通、トポロジー理工学特別講義 II (分担)、海住英 生、2013年10月1日~2014年3月31日
- h. 北大以外での担当授業科目(担当者、教育機関、講義名、 期間)
- 1) 西井準治、京都大学工学研究科、マイクロ・ナノフォトニクス材料工学、2013年4月1日~2013年9月30日
- i. ポスドク・客員研究員など
  - ・ポスドク

酒井大輔(2013.4~2014.3)

- j. 修士学位及び博士学位の取得状況
  - ·修士課程(2名)
- 1) 柴田智広:「パラジウム回折格子の光学特性と水素検出」
- 2) 荘司孝斗:「リン酸塩ガラスへのプロトン導入法の検討と伝導性評価」

# ナノ光機能材料研究分野

教 授 末宗幾夫 (東工大院、工博、1993.4~) 准教授 熊野英和 (北大院、工博、1997.4~) 助 教 笹倉弘理 (北大院、工博、2007.11~2013.1) 博士研究員

小田島聡、劉 祥明

院生

中島秀朗、石原 渚、竹本 亮、根岸洋介、原田拓弥

# 1. 研究目標

本研究分野では、(I)単一の量子ドットを計測するためのナノ構造の作製とその評価、(II)量子ドットなど量子ナノ構造を内部に含むナノフォトニック構造の作製による電子状態と光子状態の制御、(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) 量子ドットから発生した単一光子の高効率取り出し

今後量子情報処理・通信を実用的なレベルで普及させていくためには、クロック毎に確実に単一光子を発生するオンデマンド単一光子源の実現が不可欠である。半導体量子ドットは効率よく単一光子を発生し、最も研究が進んでいるが、その屈折率は3.5程度と高く、空気との界面で全反射し、そのままでは発生した光子の1%程度しか外部に取り出すことができない。これを解決するために世界的に研究が行われているが、通信距離を伸ばすために安定に光ファイバーへ結合させるためにはなお課題が多い。我々は、発光源である単一量子ドットを光学反射率の高い金属に埋めこ

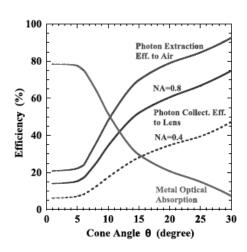


図 1 銀に埋めこんだ GaAs ナノコーン (円柱の側面を傾斜) 中で発光した光子を取り出す効率と銀に吸収される割合の側面傾斜角依存性。NA=0.4 と 0.8 のレンズによる集光効率も表示。

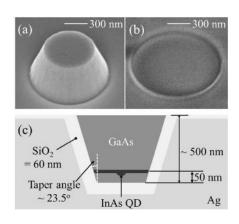


図 2 (a) InAs 量子ドットを埋めこんだ GaAs 表面に RIE で形成した ナノコーン構造。側面傾斜角は 23.5°。(b) 銀膜に埋めこんで GaAs 基板を除去した表面。(c) (b) の断面を示す模式図。

み光子取り出し効率を改善する方法を提案している。これまでに、円柱構造を銀に埋め込み、光子取り出し効率18%を実現した。その後理論的なシミュレーションを行い、円柱の側面に傾斜をつけることにより、特性が大幅に改善することを確認した。図1は、底面の直径を200nmと固定した場合に、側面の傾斜角を大きくすると金属(銀)の光吸収が減少し、光子を外部に取り出す効率が90%近くまで改善することを示している。一方で取り出した光子を光ファイバーに結合するためにはレンズ系が必要であり、レンズの開口数(NA)によって特性が変化する。

そこで側面が傾斜した半導体ナノ構造を作製するドライエッチング(RIE)技術を開発した。作製したGaAs系の構造例を図2(a)に示す。この構造を銀に埋めこみ(間に薄いSiO2膜を挟み)、GaAs基板を除去した表面を図2(b)に示す。この構造を繰り返し76MHzのパルスレーザで光励起し、図3挿入図に示すように単一ドットからの発光を確認するとともに、単一光子を毎秒164,000カウント検出した。光子検出器その他の光学測定系の損失を見積もると、これは量子ドットから発生した光子の内、NAが0.42のレンズで~25%の光子を取り出せたことになる。この場合の側面傾斜角は23.5°であり、図1から理論的には40%近くが期待され、ま

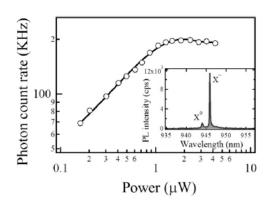


図3 InAs 量子ドットから発生した光子を、銀に埋めこんだナノコーンから取り出し、NA=0.42 のレンズで集光した場合の光励起パワーと光子カウントレート。挿入図はその発光スペクトル。

だ完全に理想的な特性ではないが、今後、作製技術の改善、 またNAのより大きなレンズを用いることで、大幅な特性向 上が期待できる。

#### (b) 発生した単一光子の光ファイバーへの結合

図2に示した銀埋め込み構造に、集光用のレンズを用いて高い効率で発生した光子を集めることができる。一方、このような光子源を単純にファイバー端面に結合する(貼り付ける)場合にどの程度の効率が可能か検討した。その一例を図4に示す。コア径4 μmの単一モードファイバー(SMF)への結合を仮定し、FDTDシミュレーションを行った。その結果、樹脂貼り付け層が1 μmの場合にはSMFへの結合は11.3%にとどまるが、貼り付け層を0.1 μmまで薄くすると15.9%まで効率が向上することがわかり、簡便で有効な方法であることがわかった。

これを実験的に検討する一つの段階として、量子ドットを含む半導体サンプルを微粒子状に小さくし、これを図5(a)に示すように2本のSMFの端面に挟むという簡単な方法でSMFへの結合を試みた。その結果単一ドットから発生した光子が2本のSMFに結合することがわかり、この両者の間で光子相関測定することにより、単一光子発生していることを確認した。この実験においては、3ヶ月以上測定を繰り返しても特性が変化しない、極めて安定な特性を確認できた。

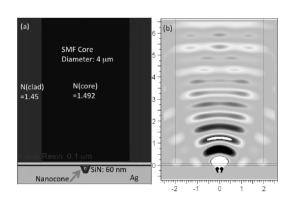


図 4 (a) 発光波長 1550 nm  $\sigma$  InAs 量子ドットを含む InP 系ナノコーンを SMF 端面に貼り付けた FDTD シミュレーションモデル。(b) 間の貼り付け層が  $0.1~\mu m$  厚さの場合に計算した光の電界分布。SMF への光子結合効率は 15.9%。

# (c) 光ファイバー通信波長帯で発光する単一光子源

これまで量子ドットによる単一光子源の研究が盛んに行われてきたが、光ファイバー通信で使われる波長1.3 μm, 1.55 μmで発光する量子ドット光源の研究は、現状では小数のグループに限られている。その理由は、この波長帯の量子ドットはひずみの少ないInP基板上に作製され、量子ドット密度が高くなり、単一ドットを選択することが困難になりやすいという状況があった。今年度MBE成長時のInAs量子ドット作製条件を最適化(より高温での成長)すること

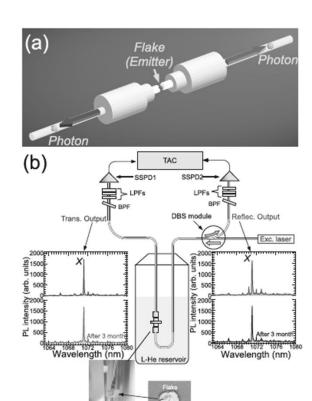
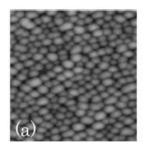


図5(a) InAs 量子ドットを含む GaAs 微粒子を2本の SMF の間に挟んで、発生した光子を SMF に結合させる模式図。(b) この結合部を液体ヘリウムに浸し、1本の SMF を光励起にも併用して、2本の SMF から単一光子を取り出す(図のスペクトルはそれぞれの SMF からの測定結果)。両者の光子相関測定を行って単一光子発生を確認する。

により、図 6 に示すように、より低い密度のドット成長が可能となった。このサンプルをRIEで円柱構造に微細加工し、図 7 に示すように単一量子ドットから波長1.3  $\mu$ m帯で発光するシャープな励起子発光を観測した。このうち、負の荷電励起子(X)発光を用いて、光子相関測定を行った。励起に波長632.8  $\mu$ mのHe-Neレーザを用いた場合、図8(a)に示すように、遅延時間ゼロにおける同時計数カウントの低下は0.5程度にとどまっているが、波長1310  $\mu$ mのレーザで励起した場合には大幅に低下し、対応する二次相関関数のゼロ遅延時間での値 $\mu$ 0(0)は0.009と見積もられる、良好な特性



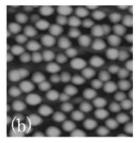


図 6 (a) InP 基板上で InAs 量子ドットの成長を最適化すると、この図のようにドット密度が  $9x10^{10}$ cm<sup>-2</sup>と高くなる。(b) これまでの成長温度  $470^{\circ}$  C から  $530^{\circ}$  C に高くすることにより、密度が低くなり、単一量子ドットを取り出しやすくなる。

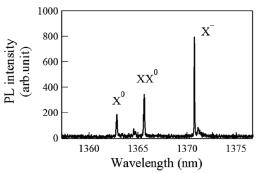


図 7 (a) 図 6 (b) のサンプルを RIE で円柱状に加工し、単一量子ドットを取りだして測定したスペクトル。 $X^-$ : 負の荷電励起子、 $X^0$ : 中性励起子、 $XX^0$ : 中性励起子分子。

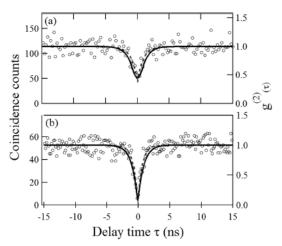


図8 図7の X 発光に関する光子相関測定 (ビームスプリッタ通過後の2 光路における同時光子計数カウント)。 (a) 波長 632.8 nm レーザによる励起。 (b) 波長 1310 nm レーザによる励起。

を示した。二つのレーザの励起による特性の違いは、前者 が量子ドット外部のバリア層にキャリアを励起するために その後のキャリア拡散が特性を支配するのに対し、後者の 場合は量子ドットだけにキャリアを励起するために、本来 の量子ドットの特性を引き出すことができたことによる。

# (d) 単一量子ドットによる量子もつれ光子対発生

今後量子情報通信をより高度化して実用的な通信ネットワークを構築するには、量子もつれ光子対(EPP)を生成するオンデマンド光源が必要である。これまで量子ドットを用いた研究が盛んに進められてきているが、量子ドットの形状が異方性を持つために励起子状態のスピン縮退が解け、これがEPP生成を困難にしてきた。我々は、GaAs(111)基板上にドロップレットエピタキシーで形成された等方性のよいGaAs量子ドットを用い、波長670 nm帯での励起子(X)一励起子分子(XX)によるEPPの生成に成功した。図9(a)は光子の偏光状態を表すポアンカレ球であり、角度 $\theta$ =0°,90°,180°がそれぞれ右円偏光(R),水平偏光(H),左円偏光(L)に相当する。図の $\theta_{XX}$ =0°の例では、XX光子偏光をRに固定すると、X光子の角度 $\theta$ =0°(R偏光)で同時計数確率が最小、 $\theta$ =180°(L偏光)で最大となることを示しており、両者がコ

ヒーレントに強い相関を持っていることを示している。同様の測定を  $\theta_{xx}$ =-90°,90°,180°についても行い、これから再構成される 2 光子状態の密度行列を図9(b)に示す。実部が図の 4 角でのみ0.5となり、虚部が零となるのが理想的な状態であるが、それにかなり近い状態が実現されている。生成した光子対が理想的なベル状態に近い量子状態にあるかは、ベルの不等式が 2 を超えているかどうかで判定できる。この場合には2.33と大きく 2 を超えており、これまで報告されてきた量子ドットからの光子対生成としては、初めて後処理無しでEPP生成に成功した。

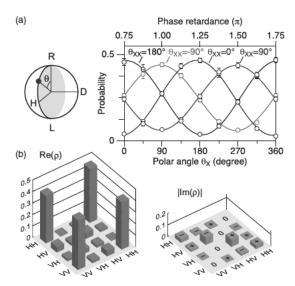


図9 (a) 光子の偏光状態を表すポアンカレ球と、量子ドットから発生した X 光子と XX 光子の偏光相関の測定結果。(b) (a) の結果から求まる 2 光子状態の密度行列の実部(左)と虚部(左)。

# 3. 今後の研究の展望

単一量子ドットから発生した単一光子を効率よく取り出し、オンデマンド光子源へ近づける見通しが開けてきた。また光ファイバー通信波長帯で単一光子源を実現し、光子を効率よく単一モード光ファイバーに結合することも具体的に見通せるようになった。さらにドロップレットエピタキシー法で作製した等方性のよい量子ドットにより、後処理することなく、ベルの不等式を破る量子もつれ光子対の発生に世界で初めて成功した。

今後、この量子もつれを発生する光子源を金属埋め込み構造とすることによって、光子対の取り出し効率を高くしたオンデマンド光源の実現が期待される。特に光子対源の効率は光子取り出し効率の2乗に比例するので、インパクトが大きい。これと並行して、これまで研究を進めてきている電子クーパー対から光子対へ変換することによる量子もつれ光子対により、現在固体光源では不可能な、光子対を同時に生成する光子対源の実現を目指す。特に最近研究している量子ドットを含んだ系では、超伝導効果がより顕著に現れており、その実現に近づいている。

# 4. 資料

#### 4.1 学術論文等

- N. A. Jahan, C. Hermannstädter, J.-H. Huh, H. Sasakura, T. J. Rotter, P. Ahirwar, G. Balakrishnan, K. Akahane, M. Sasaki, H. Kumano, and I. Suemune: "Temperature Dependent Carrier Dynamics in Telecommunication Band InAs Quantum Dots and Dashes Grown on InP Substrates" J. Appl. Phys. 113 (2013) 033506.
- N. A. Jahan, P. Ahirwar, T. J. Rotter, G. Balakrishnan, H. Kumano, and I. Suemune: "Spectral and Transient Luminescence Measurements on GaSb/AlGaSb Multiple Quantum Wells Grown on GaSb/GaAs Heterojunctions With and Without Interfacial Misfit Arrays" Jpn. J. Appl. Phys. 52 (2013) 022101.
- N. A. Jahan, C. Hermannstädter, H. Sasakura, T. J. Rotter, P. Ahirwar, G. Balakrishnan, H. Kumano, and I. Suemune: "Carrier Dynamics and Photoluminescence Quenching Mechanism of Strained InGaSb/AlGaSb Quantum Wells", J. Appl. Phys. 113 (2013) 053505.
- X. Liu, T. Asano, S. Odashima, H. Nakajima, H. Kumano, and I. Suemune: "Bright Single-photon Source Based on an InAs Quantum Dot in a Silver-embedded Nanocone Structure" Appl. Phys. Lett. 102 (2013) 131114.
- I. Suemune: "Enhanced Light Absorption in Thin-film Solar Cells with Light Propagation Direction Conversion" Optics Express 21, S3 (2013) pp. A539-A547.
- 6) H. Kumano, H. Nakajima, H. Iijima, S. Odashima, Y. Matsuo, K. Ijiro, and I. Suemune: "Enhanced Photon Extraction from a Quantum Dot Induced by a Silver Micro-columnar Photon Reflector" Appl. Phys. Express 6 (2013) 062801.
- H. Sasakura, X. Liu, S. Odashima, H. Kumano, S. Muto, and I. Suemune: "Fiber-based Bidirectional Solid-state Single Photon Emitter Based on Semiconductor Quantum Dot" Appl. Phys. Express 6 (2013) 065203.
- 8) Pankaj Ahirwar, Thomas J. Rotter, Darryl Shima, Nahid A. Jahan, Stephen P. R. Clark, Sadhvikas J. Addamane, Ganesh Balakrishnan, Alexandre Laurain, Jörg Hader, Yi-Ying Lai, Jerome V. Maloney, Ikuo Suemune, Robert Bedford: "Growth and Optimization of 2 mm InGaSb/AlGaSb Quantum Well Based VECSELs on GaAs/AlGaAs DBRs" IEEE J. Selected Topics Quantum Electron. Vol. 19, No. 4 (2013) 1700611 (Review Paper).
- 9) T. Kuroda, T. Mano, N. Ha, H. Nakajima, H. Kumano, B. Urbaszek, M. Jo, M. Abbarachi, Y. Sakuma, K. Sakoda, I. Suemune, X. Marie, and T. Amand: "Creating Highly Entangled Photons Using a Symmetric Quantum Dot Cascade" Phys. Rev. B 88 (2013) 041306(R).
- 10) H. Nakajima, H. Kumano, H. Iijima, S. Odashima, and I.

- Suemune: "Carrier Transfer Dynamics between Neutral and Charged Excitonic States in a Single Quantum Dot Probed with Second-order Photon Correlation Measurements" *Phys. Rev.* B **88** (2013) 045324.
- 11) X. Liu, K. Akahane, N. A. Jahan, N. Kobayashi, M. Sasaki, H. Kumano, and I. Suemune: "Single-photon Emission in Telecommunication Band from an InAs Quantum Dot Grown on InP with Molecular-beam Epitaxy" Appl. Phys. Lett. 103 (August, 2013) 061114.
- 12) I. Suemune, H. Nakajima, X. Liu, S. Odashima, T. Asano, H. Iijima, J.-H. Huh, Y. Idutsu, H. Sasakura, and H. Kumano: "Semiconductor Nanostructures Embedded in Metal and Simulation of Photon Extraction and Coupling to Optical Fibers" *Nanotechnology* 24, 455205 (2013).
- 13) R. Takemoto, N. Ishihara, H. Kurosawa, N. A. Jahan, T. Asano, X. Liu, H. Nakajima, H. Kumano, and I. Suemune: "High-Q Resonance Modes Observed in a Metallic Nanocavity" Appl. Phys. Lett. 103, 191104 (2013).

# 4.2 総説・解説・評論等

1) 末宗幾夫:「超伝導フォトニクス(超伝導現象とそのフォトニクス応用)」機械の研究(養賢堂発行)第66巻,第5号,2014年pp.371-377。

#### 4.3 特許

1) 末宗幾夫、笹倉弘理、熊野英和、赤崎達志「量子もつれ光子対発生素子および量子もつれ光子対発生方法」 出願番号:特願2013-099881 出願日:平成25年5月10日

#### 4.4 講演

# a. 招待講演

- I. Suemune and H. Kumano: "Fabrication and Characterization of Semiconductor Nanostructures for Their Quantum Information Applications" The Collaborative Conference on Materials Research (CCMR) 2013, June 23–28, 2013, Jeju Island, South Korea, pp. 290–291 (Invited).
- H. Kumano, X. Liu, H. Nakajima, S. Odashima, and I. Suemune: "Semiconductor Quantum Dots and Their Metal-embedded Nanostructures" 2013 Energy Materials Nanotechnology (EMN) International Open Access Week, October 21-27, 2013, Chengudu, China, B13 (Invited).
- 3) H. Kumano, H. Nakajima, T. Kuroda, T. Mano, K. Akahane, M. Sasaki and I. Suemune: "Semiconductor Photon Sources of Single Photons and Entangled Photon Pairs for Quantum Information and Communication" Quantum Science Symposium Asia-2013, November 25-26, 2013, Tokyo, Japan (Invited).
- I. Suemune: "Light Propagation Direction Conversion for Enhanced Light Absorption in Thin-film Solar Cells" EMN

- Fall Meeting, December 7-10, 2013, Orland Florida, USA (Invited)
- 5) H. Kumano, X. Liu, T. Kuroda, H. Nakajima, S. Odashima, and I. Suemune: "Photon-state Preparation with Quantum-dot-based Photon sources for Secure Quantum Key Distribution" EMN Spring Meeting, February 27-March 2, 2014, Las Vegas Nevada, USA (Invited).
- 6) H. Kumano, H. Kurosawa, X. Liu, H. Nakajima, S. Odashima, and I. Suemune: "Metallic Semiconductor Nanostructures for Photonic Applications" International Conference on Metamaterials and Nanostructures, Varadero, Cuba, April 23rd-30th, 2014 (Invited).
- I. Suemune, N. Ishihara, H. Kurosawa, R. Takemoto, H. Nakajima and H. Kumano: "Metallic Nanocavities with High Q Resonance" EMN Summer Meeting, June 9-13, 2014, Cancun, Mexico (Invited).
- 8) H. Kumano, H. Nakajima, X. Liu, T. Harada, and I. Suemune: "Metallic Confinement of Semiconductor Nanostructures and High-efficiency Coupling to Single-mode Optical Fibers" The Collaborative Conference on Materials Research (CCMR) 2014, June 23-27, 2014, Incheon/Seoul, South Korea (Invited).
- 9) 黒田 隆、間野高明、迫田和彰(物材機構)、中島秀朗、熊野英和、末宗幾夫(北大)「半導体量子ドットを用いた量子もつれ光子対の生成」電子情報通信学会光・量子エレクトロニクス(LQE)研究会(平成25年5月17日,金沢)(招待講演)
- 10) 末宗 幾夫、熊野 英和、中島秀朗、劉 祥明、笹倉 弘理、小田島聡:「量子情報通信のための単一光子・量子もつれ光子対半導体光源」第28回量子情報技術研究会(QIT28)(平成25年5月27-28日、札幌)(招待講演)pp.81-84.

#### b. 一般講演

# i )学会

- X. Liu, T. Asano, S. Odashima, H. Nakajima, H. Sasakura, H. Kumano, and I. Suemune: "Bright Single-photon Source Based on an InAs Quantum Dot in a Metal-embedded Nanocone Structure" The 40th International Symposium on Compound Semiconductors, Kobe, Japan, May 19-23, 2013, TuA3-5.
- X. Liu, N. Kobayashi, K. Akahane, M. Sasaki, H. Kumano, and I. Suemune: "Telecommunication-band Single-photon Emission from an InAs Quantum Dot in a Pillar Structure" The 25<sup>th</sup> International Conference on Indium Phosphide and Related Materials, Kobe, Japan, May 19-23, 2013, MoC3-5.
- N. A. Jahan, C. Hermannstädter, K. Akahane, M. Sasaki, H. Kumano, and I. Suemune: "Temperature Dependence of Single Quantum Dot Luminescence: Influence of Inter-dot

- Coupling" 16th International Conference on Modulated Semiconductor Structures, July 1-5, 2013, Wroclaw, Polond
- 4) X. Liu, T. Asano, S. Odashima, H. Nakajima, H. Kumano, and I. Suemune: "Photon Extraction Enhancement and Suppression of Multi-photon Emission from InAs Quantum Dots in a Metal-embedded Nano-cone Structure" 16th International Conference on Modulated Semiconductor Structures, July 1-5, 2013, Wroclaw, Poland.
- 5) N. Ishihara, R. Takemoto, N. A. Jahan, H. Nakajima, M. Jo, T. Mano, H. Kumano, and I. Suemune: "High-Q Resonance Peak Observed from Metal-embedded InAs/GaAs Quantum Dot Nano-cavity" 16th International Conference on Modulated Semiconductor Structures, July 1-5, 2013, Wroclaw, Poland.
- 6) H. Sasakura, X. Liu, S. Odashima, H. Kumano, I. Suemune, and S. Muto: "Fiber-based Bidirectional Photon Detection from a Single Quantum Dot" 16th International Conference on Modulated Semiconductor Structures, July 1-5, 2013, Wroclaw, Poland.
- T. Takemoto, N. Ishihara, N. A. Jahan, T. Asano, X. Liu, H. Nakajima, H. Kumano, and I. Suemune: "Observation of Sharp Resonance Peaks from a Metal-embedded GaAs Microcavity" SPIE Optics+Photonics, August 25-29, 2013, San Diego, California, USA, 8816-36.
- I. Suemune: "Enhanced Light Absorption in Thin-film Solar Cells with Light Propagation Direction Conversion" SPIE Optics+Photonics, August 25-29, 2013, San Diego, California, USA, 8823-10.
- S. S. Mou, H. Takeda, K. Akahane, M. Sasaki, H. Irie, H. Kumano, I. Suemune: "Study of Cooper-pair Recombination in InAs Quantum Dot Heterostructure" International Symposium on Nanoscale Transport and Technology (ISNTT2013), November 26-29, 2013, Atsugi, Japan.
- 10) H. Kurosawa, N. Ishihara, R. Takemoto, N. A. Jahan, H. Nakajima, H. Kumano, and I. Suemune: "Observation of High-Q Resonance Modes from Metal-coated Nanocavities and Future Prospect based on Cavity Mode Simulation" SPIE Photonic West, February 1-6, 2014, San Francisco, USA
- 11) H. Nakajima, H. Kumano, T. Kuroda, T. Mano, B. Urbaszek, Y. Sakuma, K. Sakoda, and I. Suemune: "Filtering-free Violation of Bell's Inequality Using Photon Pairs Generated from a Quantum Dot Grown by Droplet Epitaxy" 8th International Conference on Quantum Dots (QD2014), May 11-16, 2014, Pisa, Italy.
- 12) H. Kurosawa, N. Ishihara, R. Takemoto, N. A. Jahan, H. Nakajima, H. Kumano, and I. Suemune: "Observation of High Q Cavity Mode in Metal Embedded Semiconductor Nano-pillars" The 41st International Symposium on

- Compound Semiconductors (ISCS 2014) May 11–15, 2014, Montpellier, France
- 13) S. S. Mou, H. Kurosawa, H. Irie, K. Akahane, S. Odashima, H. Kumano, M. Sasaki, and I. Suemune: "Luminescence of Cooper Pairs in an InAs Quantum Dot Heterostructure" The 26th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials (IPRM 2014) May 11–15, 2014, Montpellier, France
- 14) 石原 渚、竹本 亮、黒澤裕之、末宗幾夫:「金属-誘電体遮蔽半導体ピラー構造を用いたナノ共振器による高Q共振ピークの観測」2013年(平成25年)秋季第74回応用物理学関係連合講演会(平成25年9月16日-9月20日,同志社大学)18p-A3-16.
- 15) 竹本 亮、石原 渚、黒澤裕之、末宗幾夫:「金属-誘電体遮蔽半導体ピラー構造の微小光共振器作製とその評価」2013年(平成25年) 秋季第74回応用物理学関係連合講演会(平成25年9月16日-9月20日,同志社大学)19p-D7-17.
- 16) 中島秀朗、黒田 隆、熊野英和、間野高明、迫田和彰、 末宗幾夫:「(111)A面上量子ドットからのもつれ光子対 生成」2013年(平成25年)秋季第74回応用物理学関係 連合講演会(平成25年9月16日-9月20日,同志社大学) 18a-D6-1.
- 17) 小西広一郎、高熊 亨、赤羽浩一、末宗幾夫,早瀬潤子:「高温度成長、低成長量で作製された低密度 InP(311)B基板上InAs量子ドットの光学特性」2013年(平成25年) 秋季第74回応用物理学関係連合講演会(平成25年9月16日-9月20日,同志社大学)18a-D6-2.
- 18) S.S. Mou, H. Takeda, K. Akahane, M. Sasaki, H. Irie, H. Kumano, and I. Suemune: "Possibility of Entangled Photon Pair Generation in InAs Quantum Dot Heterostructure employing Cooper-pair Recombination" 第49回応用物理学会北海道支部学術講演会(平成25年12月9-10日、札幌) B-21.
- 19) 原田拓弥、中島秀朗、浅野智也、小田島聡、熊野英和、 末宗幾夫:「単一量子ドット励起子分子-励起子カスケ ード光子対の効率的な生成」第49回応用物理学会北海 道支部学術講演会(平成25年12月9-10日、札幌) B-20.
- 20) 長谷川知輝、劉 祥明、中島秀朗、末宗幾夫、熊野英和:「ダブルパルス励起された単一半導体量子ドットによる非古典光光子対発生」第49回応用物理学会北海道支部学術講演会(平成25年12月9-10日、札幌) B-19.
- 21) 中島秀朗、黒田 隆、熊野英和、間野高明、劉 祥明、 追田和彰、末宗幾夫:「(111)A面上量子ドットを用いた 量子もつれ光子対生成:高忠実度化への制御」2014年 (平成26年)春季第61回応用物理学関係連合講演会(平成26年3月17-20日、青山学院大学)18a-E15-6.
- 22) 原田拓哉、中島秀朗、小田島聡、熊野英和、末宗幾夫: 「単一量子ドット励起子分子-励起子カスケード過程に おける励起機構の制御」2014年(平成26年)春季第61

- 回応用物理学関係連合講演会(平成26年3月17-20日、 青山学院大学)18a-E15-7.
- 23) 黒澤裕之、石原 渚、竹本 亮、Nahid A. Jahan、中島秀朗、熊野英和、末宗幾夫:「金属埋め込み型ナノピラーにおける高Q値の発生機構」2014年(平成26年)春季第61回応用物理学関係連合講演会(平成26年3月17-20日、青山学院大学)17p-E16-9.

#### ii)研究会・シンポジウム・ワークショップ

1) X. Liu, T. Asano, S. Odashima, H. Nakajima, H. Kumano, and I. Suemune: 「Meta-embedded Nanocone Structure Incorporating an InAs QD for Efficient Single-photon Emission」電子情報通信学会 光・量子エレクトロニクス (LQE) 研究会(平成25年5月17日,金沢)。

#### 4.5 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、入江 宏、赤崎達志、NTT共同研究:「新しい固体量子もつれ光子対光源の開発と超伝導単一光子 検出器を用いた光子相関測定」(2013年5月25日~2013 年2月28日)

#### 4.6 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) 熊野英和、基盤研究(B) (2012年度~2014年度) 半導体 ナノ構造中2準位系の共鳴エネルギー変動の研究
- f. その他(研究担当者、機関名、研究課題、研究期間)
- 1) 熊野英和、総務省戦略的情報通信研究開発推進制度 (SCOPE) (2013年度) 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

#### 4.7 受賞

1) 中島秀朗、黒田 隆、熊野英和、間野高明、迫田和彰、 末宗幾夫:「(111)A面上量子ドットからのもつれ光子対 生成」2013年(平成25年)秋季第74回応用物理学関係 連合講演会(平成25年9月16日-9月20日,同志社大学) 18a-D6-1. 「講演奨励賞受賞」

#### 4.8 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: Journal of Nanoelectronics and Optoelectronics, Editorial Board (2005年12月~現在)
- 3) 末宗幾夫:電子情報通信学会 次世代ナノ技術に関する時限研究専門委員会専門委員(2004年5月~現在)
- 4) 熊野英和:(公社)日本応用物理学会人材育成委員(2012 年 4月~現在)
- g. 北大での担当授業科目(対象、講義名、担当者、期間)
- 1) 工学部、電子デバイス工学、末宗 幾夫、2013年4月1 日~2013年9月30日
- 2) 工学部、応用数学Ⅱ演習、末宗 幾夫、2013年04月01 日~2013年09月30日
- 3) 工学部、統計力学、熊野 英和、2013年10月01日~2014 年03月31日
- 4) 工学部、電子情報工学実験、熊野 英和、2013年04月01 日~2014年03月31日
- 5) 情報科学研究科、光電子物性学特論、末宗 幾夫、熊 野 英和、2013年04月01日~2013年09月30日

#### i. ポスドク・客員研究員など

小田島聡

劉 祥明

#### j. 修士学位及び博士学位の取得状況

- ・博士学位
- 1) 中島 秀朗: 「半導体量子ドットを用いた単一光子・ 量子もつれ光子対生成に関する研究」
- 修士学位
- 1) 石原 渚:「金属ナノ共振器に埋めこんだ量子ドット の発光特性と共振モード発光増強メカニズムに関する 研究」
- 2) 根岸 洋介:「半導体量子ドット発光特性の電界制御に 向けた微細金属電極作製に関する研究」
- 3) 竹本 亮:「金属埋め込み半導体ピラー微小光共振器 の作製と高Q値共振特性評価に関する研究」

# ナノアセンブリ材料研究分野

教 授 中村貴義 (東大院、理博、1997.4~) 准教授 野呂真一郎 (京大院、工博、2004.7~) 助 教 久保和也 (阪大院、工博、2010.10~) 博士研究員 遠藤大五郎 (2012.4~)

院 生 厳寅男(DC3)、吉竹理(DC1)、熊俊(DC1)、荒木 瑞揮(MC2)、石橋秀則(MC2)、大島雄(MC2)、長 谷川啓(MC2)、宮原正樹(MC2)、武藤雄一 (MC2)、中川翔太(MC1)、山田晃弘(MC1)、渡辺 大樹(MC1)

# 1. 研究目標

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

# 2. 研究成果

#### (a) 結晶性超分子ローターの回転空間制御

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。

これまでに、 $Cs_2[[18]crown-6)_3[Ni(dmit)_2]_2$  や (anilinium) ([18]crown-6)[Ni(dmit)\_2]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-Fani\*)カチオンの180°フリップーフロップ運動に関する報告を行った。例えば既に報告した(m-Fani\*) (dibenzo[18]crown-6)[Ni(dmit)\_2]結晶では、aniliniumカチオンのフリップーフロップ運動が、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。結晶中における複合的分子運動の実現は、

回転分子周りの結晶空間の精密設計が重要である。本研究 では、上述のFlip-Flop運動をより効果的に発現させるため の空間制御法を確立することを目的とし、メチルアニリニ ウムカチオン誘導体を含む超分子カチオン塩を合成した。 このカチオンは、アニリニウム分子の4位に嵩高いメチル基 を導入した分子である。m-Fani<sup>+</sup>と同様に結晶内でのフリッ プーフロップ分子回転運動による誘電応答を発現する可能 性が高いだけではなく、メチル基による結晶内における回 転空間制御が可能となる。このカチオン部位は、m-FAni+ のように分子内に嵩高い置換基を持たない分子に比べ、回 転に対する立体障害が高くなるように思われるが、図1に示 すように回転空間を拡張し、分子回転に対する障壁を減少 できる可能性が高い。そこで (4-methylanilinium<sup>+</sup>)(dibenzo[18]crown-6)<sub>2</sub>[Ni(dmit)<sub>2</sub>]<sup>-</sup> (2-fluoro-4-methylanilinium<sup>+</sup>)(dibenzo[18]crown-6)<sub>2</sub>[Ni(dmit)<sub>2</sub>]<sup>-</sup> お (3-fluoro-4-methylanilinium<sup>+</sup>)(dibenzo[18]crown-6)<sub>2</sub>[Ni(dmit)<sub>2</sub>]<sup>-</sup> (3) を作製し、回転子周りにおける結晶空間の変化を比較 する事で、発現する強誘電性を検証した。

dibenzo[18]crown-6

Ni(dmit)<sub>2</sub>

4-methylanilinium+

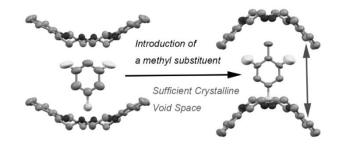


図1 メチルアニリニウム誘導体による回転空間の確保

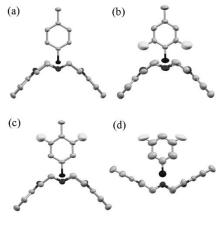


図2 結晶 (a) **1**、(b) **2**、(c) **3**、および(d) (*m*-Fani<sup>+</sup>) (dibenzo[18] crown-6) [Ni (dmit) 2] の超分子カチオン構造

結晶1から3中の窒素原子は、N-H…O水素結合を通じて、 クラウンエーテルと超分子カチオンを形成した(図1)。し かし、結晶1から3における超分子カチオンの構造は、 (m-Fani<sup>+</sup>) (dibenzo[18]crown-6) [Ni(dmit)<sub>2</sub>] 結晶とは、大きく異 なることが分かった。図2に、結晶1から 3、および(m-Fani+) ([18]crown-6) [Ni(dmit)<sub>2</sub>]結晶の、超分子カチオン構造を示す。 (m-Fani<sup>+</sup>) ([18]crown-6) [Ni(dmit)<sub>2</sub>]結晶の超分子カチオン (*m*-Fani<sup>+</sup>) (dibenzo[18]crown-6)は、クラウンエーテルがV字型 構造を形成しているのに対し、結晶1から3の超分子カチオン は、逆V字型を形成していることが分かった。さらに、結晶1 から3のクラウンエーテル内に存在する二つのフェニル基が 形成する二面角は、(m-Fani<sup>+</sup>)(dibenzo[18]crown-6)に比べ、よ り鋭角的になっており、嵩高いメチル基により回転分子まわ りの空間が拡張され、回転障壁を減少させる効果があること が示唆された。結晶1から3のカチオン分子によるフリップー フロップ運動に対する回転障壁を見積もったRHF計算では、 各回転障壁が100,210,および250 kJmol<sup>-1</sup>という、 (m-Fani<sup>+</sup>)(dibenzo[18]crown-6)の回転障壁に比べ小さくなって いることと矛盾しない。さらに、回転分子内に存在するフ ッ素基により、分子回転による双極子モーメントの反転が おこる結晶2と3では、誘電率の温度変化において周波数依 存性がみられ、嵩高い置換基の導入が物性制御に応用でき ることを証明することができた。結晶1から3は、超分子カ チオンと[Ni(dmit)2]間に存在する静電的相互作用により形 成される、安定なイオン性結晶である。本研究で用いた超 分子カチオンは、様々な機能性アニオンとイオン性結晶を 構築できる利点があることから、将来的な複合機能材料開 発のビルディングブロックとして活用できることが期待で きる。フリップーフロップ運動に伴う複合的に大きな分子 座標の変位が起こることに加えて、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事 から、マルチフェロイクス材料を代表とする複合機能発現 材料などへの展開が期待できる。

#### (b) 超分子ローター構造・プロトン移動共存系への展開

ローター分子に置換基を導入することで、分子回転に必要な空間を制御する手法の確立とともに、我々は、新たな展開として、超分子ローター構造にプロトン移動が可能となる部位を導入し、複合的な物性制御法の確立を目指した。プロトンをはじめとする、結晶内におけるイオンの変位は、Li<sub>0.6</sub>([15]crown-5)[Ni(dmit)<sub>2</sub>] $_2$ ·H $_2$ O結晶のリチウムイオンによるイオン伝導や、(HDABCO $^+$ ) $_2$ (TCNQ) $_3$  (HDABCO $^+$  = monoprotonated 1,4-diazabicyclo[2.2.2]octane, TCNQ = 7,7,8,8-tetracyano-p-quinodimethane)のプロトン移動による強誘電性発現など、様々な物性発現に応用できる可能性がある。結晶内における分子回転とプロトン移動の共存系を実現させるためには、分子回転に対する空間の確保、かつプロトン受容部位の配列制御を精密に行う必要がある。この超分子ローター構造を実現するために、我々は、平面的な構造をもつDCH[18]crown-6 (DCH[18]crown-6

trans-syn-trans-dicyclohexano[18]crown-6) に着目した。 DCH[18]crown-6 を 用 い た 結 晶 、 (*m*-Fani<sup>+</sup>) (DCH[18]crown-6)[Ni(dmit) $_2$ ] (4) (図3)では、 m-Fani<sup>+</sup>と DCH[18]crown-6は、交互に積層してサンドイッチ型構造を 形成していた。m-Fani<sup>+</sup>の窒素原子とクラウンエーテルの酸 素原子間の水素結合により超分子カチオンが形成され、超 分子カチオンは一方向に一次元的なカラムを形成していた。 さらにこの一次元カラムが平行に配列して二次元的な超分 子カチオン層を形成していた。DCH[18]crown-6は平面的な 構造をとり、m-Fani+分子の回転に対して有効な空間が形成 していた。この一次元超分子カラム内に、複数のプロトン 受容部位を持つローター分子を導入することにより、分子 回転とプロトン移動の共存系が構築可能であると予想でき る。そこで、ローター部位に分子内に2カ所のプロトン受容 部位をもつ4-aminopyridiniumカチオンを用いて、 (4-aminopyridinium)(DCH[18]crown-6)[Ni(dmit)<sub>2</sub>] (5) 結晶を 合成した。結晶構造を図4に示す。4-aminopyridiniumと DCH[18]crown-6の交互積層により、a軸方向に直線的な一 次元超分子カラム構造が形成され、DCH[18]crown-6を挟ん で隣接するカチオン分子の窒素原子が近接した。従って 4-aminopyridinium間でのプロトン移動が期待される。この ような分子設計により、フリップ-フロップ運動とプロトン 移動が共存した系を構築できると考えられる。

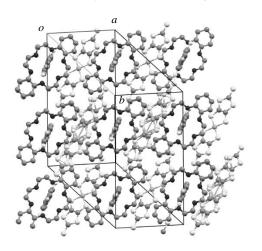


図3.結晶4の構造

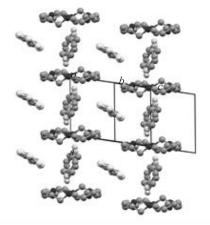


図4. 結晶5の構造

#### (c) 金属錯体を用いた新奇多孔性材料の開発

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

含フッ素アニオンはフッ素原子の強い電子吸引性に由来 した電荷非局在性を示すことから、二酸化炭素などのよう な極性ガスと"適度な"強さで相互作用する。このような 特徴を利用すると、高選択性と容易な再活性を兼備した吸 着分離材料が構築できる。しかしながら、これらアニオン は同時に弱いルイス塩基性でもあるため、金属イオンに配 位または金属イオン間を架橋させることは非常に困難であ った。我々はルイス塩基性の強さの異なる二種類のアニオ ンを共存させることによって、含フッ素アニオンが金属イ オン間を架橋した多孔性金属錯体を合理的に作製すること に成功した。得られた結晶{[Cu(CF<sub>3</sub>SO<sub>3</sub>)(bpp)<sub>2</sub>]·PF<sub>6</sub>·acetone}<sub>n</sub> (6⊃acetone; bpp = 1,3-bis(4-pyridyl)propane)はCuイオンと bpp配位子からなる一次元二重鎖間がCF<sub>3</sub>SO<sub>3</sub>アニオンで架 橋された二次元シート構造を形成していた(図5)。一方で、 共存させたPF<sub>6</sub>アニオンは金属イオンに配位せず、二次元シ ート間にアセトン分子とともに取り込まれていた。PF<sub>6</sub>アニ オンはCF<sub>3</sub>SO<sub>3</sub>アニオンよりもルイス塩基性が弱いため、 CF<sub>3</sub>SO<sub>3</sub>アニオンが金属イオンへ選択的に配位、架橋したと 考えられる。

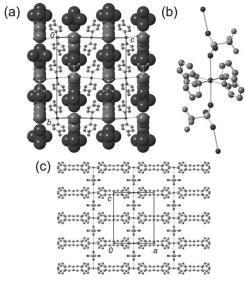


図 5. 結晶 6 の (a) ユニットセル構造、 (b) Cuイオン周りの配位構造、 (c) 二次元シート構造

真空加熱処理によりアセトンを除去したあとの結晶 6 は図 6 に示したように各種ガスを吸脱着することが分かった。高相耐圧における  $CO_2$ 吸着量は  $N_2$ 吸着量の約 2.5 倍であり、 $CO_2$  に対する高選択性を示した。  $CO_2$  の吸着エンタルピーは平均 37 kJ/mol であり、中程度の強さの相互作用が働いていた。以上の結果から、結晶 6 は高選択性と容易な再活性を兼備した吸着分離材料となり得ることが明らかとなった。今後は、室温付近におけるガス吸着選択性を調べ、分離材料としての評価を進める予定である。

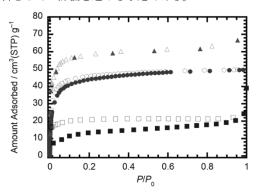


図 6. 結晶6 の $CO_2$  (195 K, red),  $N_2$  (77 K, blue)、および  $O_2$  (77 K, green) 吸脱着等温線 (filled symbols:吸着、open symbols:脱着)

# 3. 今後の研究の展望

ナノアセンブリ材料として、(1)分子回転など結晶内に おける分子集合体の分子運動を積極的に利用した、強誘電 体、分子ローター・プロトン移動共存体による機能性材料 開拓を行うとともに、(2)柔軟な構造を持つ金属錯体を用 いた新規多孔性材料の開発を進めてきた。いずれの材料系 においても、分子集合体において分子の動的自由度を確保 し、それを活用することが機能発現の鍵となっており、単 一分子では実現し難い、分子集合体特有の性質を積極的に 利用した材料系であるといえる。分子集合体を用いる最大 の利点は、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も大きな特徴である。 今後も、このような分子集合体特有の機能に基づく材料の 開拓を進めていく。

## 4. 資料

#### 4.1 学術論文等

- S. Noro\*, K. Fukuhara, Y. Hijikata, K. Kubo, T. Nakamura\*, "Rational Synthesis of a Porous Cu(II) Coordination Polymer Bridged by Weak Lewis-base Inorganic Monoanions Using an Anion-mixing Method", *Inorganic Chemistry*, 52, 5630-5632 (2013).
- 2) S. Noro\*, K. Fukuhara, K. Sugimoto, Y. Hijikata, K. Kubo,

- T. Nakamura\*, "Anion-dependent host-guest properties of porous assemblies of co-ordination complexes (PACs),  $[Cu(A)_2(py)_4]$  (A = PF<sub>6</sub>, BF<sub>4</sub>, CF<sub>3</sub>SO<sub>3</sub>, and CH<sub>3</sub>SO<sub>3</sub>; py = pyridine), based on Werner-type copper(II) compound in the solid state", *Dalton Transactions*, **42**, 11100-11110 (2013).
- S. Noro\*, K. Hasegawa, K. Kubo, T. Nakamura\*, "Finite Winding (H<sub>2</sub>O)<sub>12</sub> Chain Stabilized by One-Dimensional Coordination Polymer", Bulletin of the Chemical Society of Japan, 87, 623-625 (2014).
- 4) K. Kubo\*, Y. Yan, S. Noro, T. Akutagawa, T. Nakamura\*, "Crystal structures of a supramolecular cation salt (adamantylammoni um<sup>+</sup>)<sub>2</sub>(benzo[18]crown-6)<sub>2</sub>[Pd(dmit)<sub>2</sub>]<sup>2-</sup>(acetone)<sub>2</sub>", Inor ganica Chimica Acta, 404, 206-209 (2013).
- S. Noro\*, "Host Materials Based on Metal Complexes with New Combination of Building Blocks", Bulletin of Japan Society of Coordination Chemistry, 61, 38-45 (2013).
- 6) M. R. Karim, K. Hatakeyama, T. Matsui, H.Takehira, T. Taniguchi, M. Koinuma, Y. Matsumoto, T. Akutagawa, T. Nakamura, S. Noro, T. Yamada, H. Kitagawa, S. Hayami\*, "Graphene Oxide Nanosheet with High Proton Conductivity", *Journal of the American Chemical Society*, 135, 8097–8100 (2013).
- H. Ye, Y. Zhang, S. Noro\*, K. Kubo, M. Yoshitake, Z. Liu,
   H. Cai, D. Fu, H. Yoshikawa, K. Awaga, R. Xiong, T.
   Nakamura\*, "Molecule-displacive ferroelectricity in organic supramolecular solids", Scientific Reports, 3, 2249 (2013).
- Z. Liu, K. Kubo\*, S. Noro, T. Akutagawa, T. Nakamura\*,
   "Design of Crystalline Spaces for Molecular Rotations in Crystals", Crystal Growth & Design, 14, 537-543 (2014).
- 9) Y. Yan, K. Kubo\*, S. Noro, T. Akutagawa, T. Nakamura\*, "Crystal Structure and Physical Properties of a Dithiolene Complex Crystal with Adamantane Supramolecular Rotator", Bulletin of the Chemical Society of Japan, 87, 417-419 (2014).
- 10) Y. Noda\*, S. Noro, T. Akutagawa, T. Nakamura\*, "Gold nanoparticle assemblies stabilized by bis(phthalocyaninato)lanthanide(III) complexes through van der Waals interactions", Scientific Reports, 4, 3758 (2014).
- 11) A. Kobayashi\*, T. Ohba, E. Saitoh, Y. Suzuki, S. Noro, H. Chang, M. Kato\*, "Flexible Coordination Polymers Composed of Luminescent Ru(II)-Metalloligands: Importance of Position of Coordination Site in Metalloligands", *Inorganic Chemistry*, 53, 2910-2921 (2014).
- 12) K. Takahashi, N. Hoshino, T. Takeda, S. Noro, T. Nakamura, S. Takeda, T. Akutagawa\*, "Crystal structures, CO<sub>2</sub> adsorption, and dielectric properties of

- $[Cu(II)_2(R\text{-Benzoate})_4(\text{pyrazine})]^{\infty}$  polymers  $(R = m\text{-F}, 2,3\text{-F}_2, m\text{-Cl}, \text{ and } m\text{-CH}_3)^n$ , Dalton Transactions, **43**, 9081–9089 (2014).
- 13) K. Takahashi, N. Hoshino, S. Noro, T. Nakamura, T. Akutagawa\*, "Crystal Structures, Dielectric, and CO2-adsorption Properties of One-dimensional [Cu(II)<sub>2</sub>(Adamantane-1-carboxylate)<sub>4</sub>(pyrazine)]. Coordination Polymers with Polar Ligands", Science of Advanced Materials, in press.

#### 4.2 講演

#### a. 招待講演

#### i ) 国際学会

- T. Nakamura, S. Yoshitake, K. Kubo, S. Noro, T. Akutagawa: "Supramolecular Rotators for Ferroelectrics and Multiferroics", The 15th Asian Chemical Congress, Sentosa, Singapore (2013–8).
- T. Nakamura: "Dielectrics based on Supramolecular Rotator Units in Single Crystals", Symposium on Molecular Science and Synthesis of Functional Molecules for Next Generation, Hiroshima (2014–3).

#### b. 一般講演

#### i )学会

- D. Endo\*, K. Kubo, S. Noro, T. Nakamura: "Structure and physical properties of (supramolecular cation)[Ni(dmit)<sub>2</sub>] salts with benzylammonium and its fluorinated derivatives", 11th International Conference on Materials Chemistry (MC11), Coventry, UK (2013-07).
- Y. Yan\*, T. Akutagwa, K. Kubo, S. Noro, T. Nakamura:
   "Naphthalene-1-aminium crown ether supramolecular cations in [Ni(dmit)<sub>2</sub>] salts", 11th International Conference on Materials Chemistry (MC11), Coventry, UK (2013-07).
- 3) Y. Ohshima\*, K. Kubo, S. Noro, T. Akutagawa, T. Nakamura: "Supramolecuolar cations of (4-aminopyridinium)(dicyclohexano[18]crown-6) in [Ni(dmit)<sub>2</sub>] salt", 11th International Conference on Materials Chemistry (MC11), Coventry, UK (2013-07).
- 4) M. Miyahara\*, K. Kubo, S. Noro, T. Akutagawa, T. Nakamura: "Crystal structure and physical properties of DABCO cations with a magnetic [Ni(dmit)<sub>2</sub>] anion", 11th International Conference on Materials Chemistry (MC11), Coventry, UK (2013-07).
- 5) S. Nakagawa\*, K. Kubo, S. Noro, T. Akutagawa, T. Nakamura: "Structures and Physical Properties of Supramolecular Cation Salts (m-bromoanilinium+)(crown ether derivative)[Ni(dmit)<sub>2</sub>]-", 11th International Conference on Materials Chemistry (MC11), Coventry, UK (2013-07).
- 6) M. Yoshitake\*, K. Kubo, H. Sugihara, Y. Suzuki, J. Kawamata, T. Akutagawa, S. Noro, T. Nakamura: "A su-

- pramolecular rotator in a ferromagnetic [MnCr(oxalate)<sub>3</sub>]<sup>-</sup> crystal", 11th International Conference on Materials Chemistry (MC11), Coventry, UK (2013–07).
- 7) K. Kubo\*, M. Yoshitake, T. Endo, S. Noro, T. Akutagawa, T. Nakamura: "Metal-Organic Frameworks Based on [Mn<sup>II</sup>Cr<sup>III</sup>(oxalate)<sub>3</sub>] Toward Multifunctional materials", Workshop on Organic Electronics of Highly Correlated Molecular Systems (Core-to-Core Program), London, UK (2013-07).
- 8) K. Kubo\*, M. Yoshitake, T. Endo, S. Noro, T. Akutagawa, T. Nakamura: "Crystal structure and physical properties of a supramolecular rotator in (m-fluoroanilinium\*)(dicyclohexano[18]crown-6)[Mn<sup>II</sup>Cr<sup>III</sup>(o xalate)<sub>3</sub>]-", The 10th International Symposium on Crystalline Organic Metals Superconductors and Ferromagnets (ISCOM2013), Montreal, Canada (2013-07).
- 9) 吉竹理\*、久保和也、杉原寛之、鈴木康孝、川俣純、芥川智行、野呂真一郎、中村貴義: "超分子ローター/分子磁性体結晶を利用したマルチフェロイック性の開拓",日本化学会北海道支部 2013年 夏季研究発表会、北見 (2013-07).
- 10) 中川翔太\*、久保和也、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義 : "(*m*-halogenoanilium<sup>+</sup>)(dibenzo[18]crown-6)[Ni(dmit)<sub>2</sub>]- 結晶の構造と物性",第7回分子科学討論会、京都 (2013-09).
- 11) 厳寅男\*、芥川智行、久保和也、野呂真一郎、中村貴義: "(Naphthlene-1-aminium)(dibenzo[18]crown-6)[Ni(dmit)<sub>2</sub>]結晶の 構造と物性"、第7回分子科学討論会、京都 (2013-09).
- 12) S. Noro, T. Nakamura: "Rational Synthesis of Flexible Metal Complexes Using Fluorinated Anions and Their Host-Guest Properties", International Symposium for the 70th Anniversary of the Tohoku Branch of the Chemical Society of Japan、仙台(2013-09).
- 13) M. Miyahara\*, K. Kubo, S. Noro, T. Akutagawa, T. Nakamura: "Structure and Dielectric Properties of Protonated DABCO/[Ni(dmit)<sub>2</sub>] Crystals", International Symposium for the 70th Anniversary of the Tohoku Branch of the Chemical Society of Japan、仙台 (2013-09).
- 14) H. Ishibashi\*, S. Noro, K. Kubo, T. Nakamura: "Structure and Adsorption Properties of Two-Dimensional Copper (II) Complexes with Methanesulfonate Anions", International Symposium for the 70th Anniversary of the Tohoku Branch of the Chemical Society of Japan、仙台(2013-09).
- 15) K. Hasagawa\*, S. Noro, K. Kubo, T. Nakamura: "Control of Pore Structures by Substitution of Pyridine Derivative Ligands in Porous Two-Dimensional Zinc (II) Complexes", International Symposium for the 70th Anniversary of the

- Tohoku Branch of the Chemical Society of Japan、仙台 (2013-09).
- 16) T. Nakamura: "New Dielectrics based on Supramolecular Structures"、The Fifth SEU-Hokkaido University Bilateral Symposium on Material Science、南京市 、中国 (2013-10).
- 17) 吉竹理\*、久保和也、杉原寛之、鈴木康孝、川俣純、芥川智行、野呂真一郎、中村貴義: "超分子ローターを有する強磁性MnCr(oxalate)<sub>3</sub>錯体結晶の構造と誘電物性"、錯体化学会第63回討論会、沖縄 (2013-11).
- 18) J. Xiong\*, D. Endo, K. Kubo, S. Noro, T. Nakamura:

  "Structures and Magnetic Properties of [Ln(Mo<sub>8</sub>O<sub>26</sub>)<sub>2</sub>]<sup>5-</sup>

  (Ln = Gd, Tb, Dy, Ho, Er), as Counter Cations for Supramolecular Rotators"、錯体化学会第63回討論会、沖縄 (2013-11).
- 19) 宮原正樹\*、久保和也、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義: "プロトン化状態を制御したDABCO-[Ni(dmit)<sub>2</sub>]-結晶の構造と誘電性"、錯体化学会第63回討論会、沖縄(2013-11).
- 20) 久保和也\*、大島雄、渡辺大樹、山田晃弘、野呂真一郎、 芥川智行、中村貴義: "アニリニウム/クラウンエーテ ル誘導体超分子カチオンとジチオレン錯体[Ni(dmit)₂]<sup>n-</sup> (0 < n ≤ 1)から構築される新規金属錯体結晶の構造と 物性評価"、錯体化学会第63回討論会、沖縄 (2013-11).
- 21) 石橋秀規\*、野呂真一郎、久保和也、中村貴義: "二種類のCX<sub>3</sub>SO<sub>3</sub>型アニオンが共存した二次元銅錯体の合成とガス吸着特性"、錯体化学会第63回討論会、沖縄(2013-11).
- 22) 長谷川啓\*、野呂真一郎、久保和也、中村貴義: "細孔 特性の精密制御を指向した単座ピリジン配位子を有する二次元多孔性亜鉛金属錯体の合成と性質", 錯体化 学会第63回討論会、沖縄 (2013-11).
- 23) 武藤雄一\*、野呂真一郎、久保和也、中村貴義: "含フッ素アニオンを有する二次元層状金属水酸化物の合成と吸着特性", 錯体化学会第63回討論会、沖縄(2013-11).
- 24) Y. Ohshima\*, K. Kubo, S. Noro, T. Akutagawa, T. Nakamura: "Crystal structure and physical properties of (4-aminopyridinium)(crown ether derivative) supramolecular cations in [Ni(dmit)<sub>2</sub>] salts", 4th Asian Conference on Coordination Chemistry, Jeju, Korea (2013–11).
- 25) S. Noro\*, T. Nakamura: "Structures and Adsorption Properties of Copper(II) Complexes with Fluorinated Anions", 5th RIES-CIS Symposium, 新竹市, 台湾 (2013-12).
- 26) J. Xiong\*, D. Endo, K. Kubo, S. Noro, T. Nakamura: "Structures and Magnetic Properties of [Ln(Mo<sub>8</sub>O<sub>26</sub>)<sub>2</sub>]<sup>5-</sup> (Ln = Gd, Tb, Dy, Ho, Er), as Counter Anions for Supramolecular Rotators", 2013年電子研国際シンポジウム"網"、札幌 (2013-12).

- 27) K. Hasagawa\*, S. Noro, K. Kubo, T. Nakamura: "Crystal Structures and Absorption Properties of Two-Dimensional Porous Zn Complexes with Pyridine Derivatives as Monodentate Ligands"、2013年電子研国際シンポジウム "網"、札幌(2013-12)
- 28) 中川翔太\*、久保和也、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義: "結晶内分子回転により誘起される誘電応答に対する置換基効果"、日本化学会北海道支部会 2014 年冬季研究発表会、札幌 (2014-01).
- 29) 大島雄\*、久保和也、野呂真一郎、芥川智行、中村貴義: "(4-aminopyridinium)(クラウンエーテル誘導体)超分 子カチオンを有する[Ni(dmit)』]塩の結晶構造と誘電 性"、日本化学会北海道支部会 2014年冬季研究発表会、 札幌 (2014-01).
- 30) T. Nakamura: Dielectrics based on Molecular Rotators、
  The Sixth Hokkaido-Southeast University Bilateral Symposium on Material Science、札幌 (2014-03).
- 31) Y. Ohshima\*, K. Kubo, S.Noro, T. Akutagawa, T. Nakamura: "Crystal structure and physical properties of (4-aminopyridinium)(crown ether derivative) supramolecular cations in [Ni(dmit)<sub>2</sub>] salts"、The Sixth Hokkaido-Southeast University Bilateral Symposium on Material Science、札幌 (2014-03).
- 32) 野呂真一郎\*、水谷純也、土方優、久保和也、中村貴義: "電荷分極型中性配位子を用いた多孔性軽金属錯体の 合成と吸着・分離機能"、日本化学会第94春季年会、 名古屋(2014-03).
- 33) 山田晃弘\*、久保和也、星野哲久、芥川智行、野呂真一郎、中村貴義: "複数の水素結合部位を有する超分子カチオン結晶の構造と物性"、日本化学会第94春季年会、名古屋 (2014-03).
- 34) 渡辺大樹\*、久保和也、星野哲久、芥川智行、野呂真一郎 、 中 村 貴 義 : "trans-anti-trans-dicyclohexano[18]crown-6/4-aminopy ridinium超分子カチオンを導入した[Ni(dmit)<sub>2</sub>]結晶の構造と誘電性"、日本化学会第94春季年会、名古屋(2014-03).

# 4.3 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、CO<sub>2</sub>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CO<sub>2</sub>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。

#### 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)
- 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、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)
- 3) 中村貴義、新学術領域研究、超分子ローター構造を包含する元素ブロック高分子の階層化と機能相関(2013~2014年度)
- 4) 野呂真一郎、基盤研究C、電荷分離型中性配分子を利用した多孔性軽金属錯体の構造多様化(2012~2014年度)
- 5) 久保和也、若手研究B、非対称型金属錯体を用いた常 圧化ゼロギャップ物質の開発(2012~2013年度)

#### 4.5 受賞

- 1) 宮原正樹:「International Symposium for the 70th Anniversary of the Tohoku Branch of the Chemical Society of Japan」優秀ポスター賞(Outstanding poster paper Award)、2013年9月
- 2) 石橋秀規:「International Symposium for the 70th Anniversary of the Tohoku Branch of the Chemical Society of Japan」優秀ポスター賞(Outstanding poster paper Award)、2013年9月

#### 4.6 社会教育活動

- a. 北大での担当授業 (対象、講義名、担当者、期間)
- 1) 環境科学院、電子材料科学特論、中村貴義、野呂真一郎
- 2) 環境科学院、環境物質科学実習II、中村貴義、野呂真 一郎、久保和也
- 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
- 4) 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
- 5) 環境科学院、環境物質科学特別研究I、中村貴義、野呂 真一郎、久保和也
- 6) 環境科学院、環境物質科学特別研究II、中村貴義、野 呂真一郎、久保和也
- 7) 環境科学院、分子環境学特論III、久保和也
- 8) 全学教育、一般教育演習 (フレッシュマンセミナー)、 久保和也
- b. ポスドク・客員研究員など
- ポスドク(1名)
- 1) 遠藤大五郎(博士研究員)
- c. 修士学位及び博士学位の取得状況

# ·修士課程(6名)

- 1) 荒木瑞揮
- 2) 石橋秀則
- 3) 大島雄
- 4) 長谷川啓
- 5) 宮原正樹
- 6) 武藤雄一
- •博士後期課程(1名)
- 1) 厳寅男
- ・博士論文
- 1) 厳寅男:大振幅分子運動を示す超分カチオンを導入した[Ni(dmit)<sub>2</sub>]塩の構造と誘電性

# 連携研究部門

研究支援部

# 理研連携研究分野

客 員 教 授 田中拓男 (阪大院、博士(工学)、2010.4~) 特任助教 石田周太郎 (名大院、博士(工学)、2013.1 ~)

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

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

理化学研究所の研究室では、光の波長オーダーもしくは それ以下の構造を人工的に物質に導入することで、より自 在に光の振る舞いを制御しようとする技術の一つであるプ ラズモニック・メタマテリアルを研究テーマの中心に設定 し、理論解析と実験の両面から全く新しい光制御物質の研 究を進めている。メタマテリアルとは、ナノサイズの金属 構造体から構成される一種の人工物質であり、この研究で は、ナノ金属と光との相互作用を利用することで物質の光 学特性を人工的に制御し、これが生み出す新しい光学現象 を利用することで、光を自由自在に制御することを目的と している。このメタマテリアルの面白さは、その光学特性 が人工的にデザインした金属の形・構造によって制御でき る点で、その構造をうまく設計することで、「負の屈折率」 を持つ物質や数百万という巨大な屈折率を持つ物質、光の 磁場に応答する物質など自然界の材料ではあり得ないよう な物質を人工的に作り出す事ができることである。

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。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ー法を用いた2次元金属構造体 のトップダウン加工技術については世界トップレベルの技 術を持っている。さらに、高分子の改質や光化学反応など 光反応性物質に関する知識と経験も深く、近年では、光子-分子間の結合を4~5桁増強できるという成果を発表して いる。本連携研究室では、これら2つのグループが持つ技 術を相補的に活用し、両者が共同で研究を実施することで、 ナノの構造体を使って光を自在に操る技術を付加した従来 とは全く異なる原理に基づく超高率光電変換デバイスの実 現を目指す。

このような研究を効率良く実行するには、材料物性の知識だけでも、また純粋な光学技術の知識だけでもだめで、電磁気学的理論解析技術、光学材料合成技術、マイクロ/ナノ加工技術、量子光学理論などさまざまな分野の技術を融合させることが必要である。理研田中メタマテリアル研究室が持つナノ光学に関する知識と経験に、北大電子研三澤研究室、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

# (i)ナノギャップを有する湾曲金ナノロッドと直線金ナノロッドのプラズモンカップリング

プラズモニック・メタマテリアル技術を用いて、金のみ から構成される高い光捕捉素子の構築を目指し、そのプロ トタイプの試作を行った。これまでに半導体微細加工技術 により作製した湾曲金ナノロッドの光学スペクトル測定か ら、単純な直線金ナノロッドとは異なるプラズモン共鳴ピ ークが得られた。この湾曲形状に起因する共鳴ピークは、 偶数次数の共鳴モードで、直線ナノロッドの場合には平面 波を垂直に入射するだけでは励起できないダークなプラズ モンモードに対応する。ダークモードは放射損失がない分 Q値が高いという性質があり、このダークモードと Q値が 低いブライトモードとの共鳴相互作用を利用した疑似電磁 誘起透明化現象が近年注目されている。本研究では、湾曲 金ナノ構造とロッドとが互いに相互作用するように数ナノ メートルの間隔を隔てて配置することで、湾曲金ナノロッ ドのブライトモードを介して直線金ナノロッドのダークモ ードを励起し、さらに両者の相互作用の結果発現する疑似 電磁誘起透明化現象について透過スペクトルを測定し、評 価した。

金ナノ構造はガラス基板上に電子線リソグラフィー/リフトオフ技術を用いて数ミリ四方に作製した。図 1(a)に示すように、ロッド(A)、湾曲ロッド(B)、ハイブリッド(C)の3種類の金ナノ構造を作製し、どの金ナノ構造も金の厚みは40 nm、ロッドの構造幅は70 nm と同じにした。湾曲ロッド(B)の弧長(カ)はロッド(A)の長軸方向の長さと同じに設計した。ハイブリッド(C)は、湾曲ロッドに弧長と同じ長さを持つロッドを図1(a)に示すようにギャップサイズ10 nmと近接させて配置した。作製した金ナノ構造のそれぞれの光学特性は赤外~可視~紫外の分光光度計を用いて透過スペクトルを測定した。

構造に対して直線偏波をY方向(ロッド(A)の長軸方向に平行)に照射したところ、図1(b)の破線が示すようにロッド(A)の透過スペクトルは1300 nm付近に1つのディップが見られた。これはロッド(A)の長軸長さ由来のプラズモン共鳴ディップである。同様に湾曲ロッド(B)でも同じ波長に1つの透過ディップが見られた。この結果から、湾曲ロッド

(B)の弧長はロッド(A)の長軸長さと等しく、湾曲ロッド構造の自由電子が湾曲形状に沿って振動している事がわかった。ハイブリッド構造(C)も一つの透過ディップが見られたが、ロッドと湾曲ロッドとが近接して配置していることから相互作用により1260 nm付近にプラズモン共鳴ディップが得られる。

図1(c)は、入射光の直線偏波をX方向に照射した際の透過 スペクトルであり、構造によりスペクトル形状が大きく異 なる。ロッド(A)では、短軸の長さ由来であるプラズモン共 鳴ディップのみ波長540 nmに観察された。湾曲ロッド(B) は弧長()の半分の半分に等しいプラズモン共鳴ディップが 波長800 nmに見られた。ハイブリッド(C)は、サンプルBと 比較して2つの共鳴ディップの間である波長800 nm付近に 透過ピークが観測された。スペクトルをここには示してい ないが、ハイブリッド(C)のナノギャップのサイズを20 nm、 30 nmと大きくした構造を作製して同様に透過スペクトル を比較すると、800 nm付近に現れる透過ピークはギャップ サイズが小さいほどピーク強度は大きくなり、ギャップサ イズ100 nmのハイブリッド構造では透過ピークは観察され なかった。これらの結果から、ハイブリッド(C)はロッドと 湾曲ロッドとのプラズモンカップリング、つまりロッドの ダークモードと湾曲ロッドのブライトモードとの相互作用 により、800 nmに透過ピークを引き起こしたと結論した。

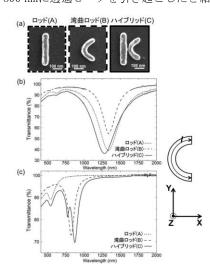


図 1 ロッド(A), 湾曲ロッド(B)とハイブリッド(C)金ナノ構造の (a)電子顕微鏡像, 入射光の直線偏波が (b)y方向と(c)x方向 の透過スペクトル. 右図: 湾曲ロッド(B)のレイアウトと 偏光方向

#### (ii)グラフェンナノ構造を用いた光増強場デバイスの製作

単層グラフェンは、炭素原子が六角形の頂点に配置した 二次元層構造であり、近年その特異なエネルギーバンド構 造や高い移動度のために注目を集め活発に研究がなされて いる。 光学デバイスとしては、 テラヘルツ帯域における プラズモンの励振や可飽和吸収特性を用いた超短パルスモ ードロックレーザーの開発、高速な光強度変調器の開発な ど近赤外から中赤外に渡る広い帯域に渡る応用が進められ

ている。 現在、 可視領域でのグラフェンデバイスの実現 が求められ、 10 nmに迫る大きさの制御されたナノ構造の 作製手法について研究が進められている。 本研究は、 単 層グラフェンシートをナノドット形状にすることで、伝導 体と価電子帯のクロスポイントにバンドギャップを生成し、 可視領域における光増強場デバイスを作製することにある。 そこで、ガラス基板上に転写した単層グラフェンシート上 に電子ビーム描画装置を用いてレジストのナノパターンを 製作し、 Cr蒸着後にリフトオフすることによって金属ナ ノドットパターンを製作する。 図2に作製したCrナノ構造 を示す。 作製したCrナノ構造をマスクとして、 酸素プラ ズマエッチングを行い、 Crナノ構造以外のところで露出 しているグラフェンをエッチングした後、 Crをウェット エッチングによって取り除くことでガラス基板上にグラフ ェンナノ構造を作製した。図3に、ナノ加工前後で取得し たグラフェンのラマン散乱スペクトルを示す。加工前のグ ラフェンが2700 cm<sup>-1</sup>付近の2Dバンドと1580 cm<sup>-1</sup>付近のGバ ンドにおいて急峻なピークを確認し、 G/2Dのピーク強度 より単層であることを確認した。 一方、 加工後のラマン では、 上記ピークに加え、 1350 cm<sup>-1</sup>付近に欠陥由来のピ ークを確認し、酸素プラズマエッチ後のラマン測定でグラ フェン由来のピークを確認することが出来なかったことを 合わせて、 Crナノ構造以下のサイズのグラフェンナノ構 造ができたことを確認した。

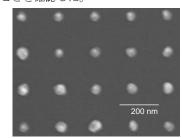


図2 Cr ナノディスク構造(直径40 nm)

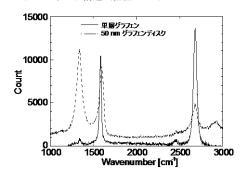


図3 Cr ナノディスク構造(直径40 nm)

この結果は、金属マスクを用いたによるグラフェンナノ加工が可能であることを示し、制御された微細なナノ構造の実現と可視領域におけるグラフェンデバイスの実現の可能性を示唆するものである。

# 3. 今後の研究の展望

今後は、湾曲金ナノ構造及びグラフェンを用いて高効率

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、広範囲に拡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予定である。

# 4. 資料

#### 4.1 学術論文等

- 1) H. Kawagoe, S. Ishida, M. Aramaki, Y. Sakakibara, E. Omoda, H. Kataura, and N. Nishizwa, "Development of a high power supercontinuum source in the 1.7  $\mu$  m wavelength region for highly penetrative," Biomedical Optics Express, **5**, 3, 632–643(2014).
- T. Amemiya, S. Arai, T. Mizumoto, Y. Shoji, T. Tanaka, A. Ishikawa, M. Tanaka, and P. Hai, "Three-dimensional Nanostructuring in YIG Ferrite with Femtosecond Laser,"
   Opt. Lett., 39, 2, pp. 212-215 (2014).
- M. Okano, R. Okamoto, A. Tanaka, S. Ishida, N. Nishizawa, and S. Takeuchi, "Dispersion cancellation in high-resolution two-photon interference," Phys. Rev. A, 88, 043845 (2013)
- T. Tomioka, S. Kubo, M. Nakagawa, M. Hoga, and T. Tanaka, "Split-Ring Resonators Interacting with a Magnetic Field at Visible Frequencies," Appl. Phys. Lett., <u>103</u>, 71104 (2013).
- A. Ishikawa and T. Tanaka, "Plasmon Hybridization in Graphene Metamaterials," Appl Phys Lett., <u>102</u>, 253110 (2013).
- X. Fang, S. Yaginuma, W. Kubo, and T. Tanaka, "Resonance enhancement of difference-frequency generation through localized surface plasmon excitation," Appl. Phys. Lett., 102, 203101 (2013).

#### 4.2 総説・解説・評論等

- 1) 田中拓男、"メタマテリアル"、光産業技術振興協会テクノロジートレンド、**8**、3 (2013).
- 2) 田中拓男、"光メタマテリアルの構造と作製"、化学と工業、<u>66</u>、6、pp. 448-450 (2013).

# 4.3 講演

# a. 招請講演

#### i )学会

 T. Tanaka\*, "DNA-templating technique for optical metamaterials," The 7th International Conference on Nanophotonics(ICNP), HongKong Polytechnic University, China (2013-05).

# ii )研究会・シンポジウム・ワークショップ

1) T. Tanaka\*, "Fabrication techniques for optical met-

- amaterials," UK-Japan Photonics and Metamaterials Research Workshop, British Embassy, Tokyo, Japan) (2014–03).
- 2) 田中拓男\*、"光メタマテリアル"、ニューガラスフォー ラム 第4回ガラス科学技術研究会、板橋区立東板橋 体育館 (2014-02).
- 3) 田中拓男\*、"光メタマテリアル"、電子情報通信学会超高速エレクトロニクス研究会、理研、和光、埼玉 (2013-12).
- 4) 田中拓男\*、"光メタマテリアル"、日本電子第 14 回高 機能膜フォーラム、東京大学、 東京(2013-10).
- 5) 田中拓男\*、"光メタマテリアルと金属ナノ微粒子"、応 用物理学会応用電子物性分科会研究例会「テラヘルツ 波・光波の人工微細構造による制御と応用」、秋葉原、 東京 (2013-10).
- "Plasmonic metal nanoparticles and metamaterials", The 3rd Japan-Korea Metamaterials Forum, Seoul, Korea (2013-06).
- 7) 田中拓男\*、"光メタマテリアルー物理と化学の接点"、 第4回プラズモニック化学シンポジウム、東工大田町 キャンパス (2013-06).
- 8) 田中拓男\*、"光メタマテリアルを目指して"、日本学術 振興会第130委員会,森戸記念館(2013-05).
- 9) 田中拓男\*、"光メタマテリアルの作り方~あり得ない 材料を目指して"、丸文財団特別公開シンポジウム フ オトニクス・エレクトロニクス融合の最先端 最先端 を走る研究者が語る、東京大学先端科学技術研究セン ター (2013-05).

# iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 田中拓男\*、"新しい光の世界へ"、平成25年度理研講演会、田代中学校(2013-11).
- 田中拓男\*、"新しい光の世界へ"、平成25年度理研講演会、香楠中学校(2013-11).

#### b. 一般講演

- 1) 横田幸恵\*、田中拓男、「構造配置による湾曲金ナノロッドダイマー構造のプラズモンカップリング」、第61回応用物理学会学術講演会講演、青山学院大学(2014-03).
- 2) 石田周太郎\*、和田崇、笹木敬司「プラズモントラップ を用いたナノ粒子トラッピングとポテンシャル解析」、 第61回応用物理学会学術講演会講演、青山学院大学 (2014-03).
- 3) Y. Yokota\* and T. Tanaka, "Controlling Gap Distance and Plasmonic Resonances of Gold Curvilinear Nanorods and Straight Nanorods", the 14th RIES-Hokudai international symposium "網", CHÂTERAISÉ Gateaux Kingdom SAPPORO (2013-12).
- 4) 石田周太郎\*、和田崇、笹木敬司「プラズモントラップ

- を用いたナノ粒子トラッピングとポテンシャル解析」、 2013年第49回応用物理学会北海道支部第10回日本光学 会北海道地区合同学術講演会、北海道大学 (2013-12).
- 5) 田中拓男、"メタマテリアルとその応用"、「新しい光科学の創成とナノ情報デバイスへの展開」研究会、東北大(2013-10).
- 6) T. Tanaka\*, "Surface plasmon assisted IR transmission switching on Au nano-particles embedded VO2 thin film," 第74回応用物理学会秋季学術講演会 OSA Joint Meeting, 同志社大学 (2013-09).
- 7) Y. Yokota\* and T. Tanaka, "Plasmon Coupling between Gold Curvilinear Nanorods and Straight Nanorods at Different Distances," 第74回応用物理学会秋季学術講演会 OSA Joint Meeting,同志社大学 (2013-09).
- 8) Y. Yokota\* and T. Tanaka, "Optical Characterization of Gold Curvilinear Nanorods and straight Nanorods," the 26th International Conference on Photochemistry, Leuven, Belgium (2013–07).
- Y. Yokota\* and T. Tanaka, "Plasmon Coupling Efficiency of Gold Curvilinear Nanorods and Straight Nanorods," symposium on plasmon-based Chemistry and Physices, Leuven, Belgium (2013-07).
- 10) Y. Yokota\* and T. Tanaka, "Plasmonic Resonances of Gold Curvilinear Nanorod Arrays," The 6th International Conference on Surface Plasmon Photonics, Ottawa, Canada (2013-05).
- 11) H. Kawagoe\*, S. Ishida, M. Aramaki, Y. Sakakibara, E. Omoda, H. Kataura, and N. Nishizawa, "Highly sensitive ultrahigh resolution OCT using high power supercontinuum at 1.7 ·m wavelength region based on single wall carbon nanotube fiber laser," Advanced Lasers and Photon Sources (ALPS) '13, PACIFICO Yokohama (2013-04).
- 12) N. Nishizawa\* and S. Ishida, "Dynamics of Er-doped soliton-similariton fiber laser and application for ultrahigh resolution optical coherence tomography," Advanced Lasers and Photon Sources (ALPS) '13, PACIFICO Yokohama (2013-04).

# 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) 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) 横田幸恵、若手研究(B)、金属ナノ周期構造を用いた波 長変換素子の構築 (2012~2013年度).

#### 4.5 社会教育活動

#### a. 公的機関の委員

1) 田中拓男:光産業技術振興協会動向調査委員会委員 (2008年4月1日~)

- 2) 田中拓男:日本学術振興会第151委員会企画委員(2010 年4月1日~)
- 3) 田中拓男:日本学術振興会第187委員会企画委員 (2012 年10月1日~)

# ニコンイメージングセンター

教 授 根本知己 (東工大院、博士(理学)、2012.03~) 准教授 松尾保孝 (北大院、博士(工学)、2012.03~) 特任助教 大友康平 (東北大院、博士(薬学)、2012.06 ~)

技術職員 小林健太郎 (北大院、博士(理学)、2012.03 ~)

#### 1. 研究目標

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

ニコンイメージングセンターは、北海道大学にとどまらず日本全国の研究者が最新の生物顕微鏡を利用できる施設として、平成18年にニコンインステック社をはじめとした多数の協賛企業の協力による寄附研究部門として設立された。平成24年度の研究所の改組に伴い、現在は研究支援部の一部門として活動している。研究者と企業の双方と緊密な連絡を取り合うことでニーズとシーズを結びつけ、利用者の要望を速やかに反映させた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、そして本学と顕微観察技術の関連企業との連携強化、ならびに本学における教育研究の量と質の充実や活性化や国際的な交流を目指し、以下に掲げる項目に沿った活動を展開している。

- 1. 最先端の顕微鏡とイメージング関連機器を設置し、基礎研究の環境を提供する。
- 2. 顕微鏡に馴染みのない研究者からハイエンドユーザー まで、さまざまなレベルに合わせて顕微観察法のトレ ーニングコースを行う。
- 3. バイオイメージングの知識と技術の習得を目的として、 専属スタッフがイメージング操作の指導を行う。
- 4. 顕微鏡ユーザーのアイデアを反映した新型顕微技術の 開発を行う。

# 2. 研究成果

#### (a) 利用実績(平成25年4月~平成26年3月)

平成25年度の延べ利用人数・利用時間は、404人・2356時間に達した。平成24年度のデータ(261人・1297時間)と比較し、着実にユーザーが増加していることがわかる。研究者の所属の内訳としては、本学では所内はもちろんのこ

と、工学部・理学部・医学部・歯学部・農学部など、学内の幅広い部局からの利用があった。一方で学外利用も3割程度となり、平成24年度の内訳(1割程度)と比較して大きく増大している。他大学としては大阪大学、千歳科学技術大学などの研究者の利用があり、特に今期は基礎生物学研究所(愛知県岡崎市)の研究者が定期的に実験に訪れている。

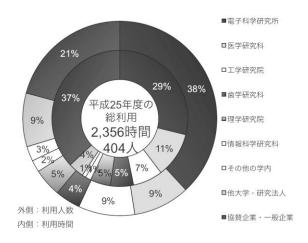


図. 平成25年度の利用状況と利用者所属の内訳

#### (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つけている。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。

平成25年度からの試みとして、ライフテクノロジーズジャパン株式会社との共催により、通年で4回の蛍光イメージングシリーズを開催した。ライフテクノロジーズジャパン株式会社から講師を招き、バイオイメージングの基礎、原理から最先端技術を用いた応用例まで幅広い内容のレクチャーを行った。さらに、新体制となった昨年度に引き続き、株式会社ニコンインステックとの共催の蛍光イメージングミニシンポジウムを始めとする各種学術講演会、セミナーを開催し、分野の最先端研究、協賛企業による最新機器開発状況に関する講演を通じ、互いがフィードバックをし合える環境を定期的に提供し続けている。

#### 3. 今後の研究の展望

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。また協賛企業と連携して新型顕微観察技術の開発や各種セミナーの開催など、顕微鏡やその関連手法に関する知識と技術の更なる普及と深化に努めてゆきたい。

# 4. 資料

#### 4.2 総説・解説・評論等

1) Tomomi Nemoto, Ryosuke Kawakami, Terumasa Hibi, Koichiro Iijima and Kohei Otomo,: "Deep imaging of living mouse brain utilizing novel laser photonics technologies", Plant Morphol. (印刷中)

#### 4.7 講演

#### a. 招待講演

#### i)学会

1) 根本知己、日比輝正、川上良介、大友康平:「2光子顕 微鏡を用いた生体脳深部観察法-植物組織・細胞への応 用可能性」、日本植物学会 第77回大会、札幌(2013-09)

#### ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- Tomomi Nemoto Ryosuke Kawakami, Terumasa Hibi, Sari Ipponjima, Kazuaki Sawada, Kohei Otomo, Koichiro Iijima, Yuichi Kozawa, Yuta Kusama, Shunichi Sato and Hiroyuki Yokoyama: "Improving in vivo two-photon microscopy with novel laser technology", The 2nd DYCE-ASIA workshop, Kashiwa, Japan (2013-12)
- 2) 村田隆、大友康平、日比輝正、川上良介、中山博史、 根本知己:「2光子スピニングディスク顕微鏡を用いた 植物紡錘体構築機構の解析」、物質・デバイス領域共同 研究拠点、特定課題 B-1「生体ナノシステムの動作原 理に基づいた新規バイオナノデバイスの創成と医学研 究への展開」公開シンポジウム、札幌(2014-01)
- 3) 大友康平、日比輝正、小澤祐市、横山弘之、佐藤俊一、 根本知己:「透過型液晶デバイスを用いた二光子 STED 顕微鏡の開発」、ベクトルビームの光化学とナノイメー ジング研究会、松島 (2014-02)
- 4) 根本知己、日比輝正、川上良介、大友康平、一本嶋佐理、澤田和明、洞内響:「生命科学とナノイメージング」、ベクトルビームの光化学とナノイメージング研究会、松島(2014-02)
- 5) 根本知己、日比輝正、川上良介、大友康平:「新規レーザーや光技術を用いた多光子顕微鏡の高性能化」、8th NIBB バイオイメージングフォーラム、岡崎(2014-03)

# iii)コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 大友康平、小林健太郎、松尾保孝、根本知己:「北海道 大学ニコンイメージングセンターの紹介」、全国大学等 バイオイメージング施設の今後のあり方を考える会、 岡崎(2014-03)
- Tomomi Nemoto and Kohei Otomo: "Improving in vivo two-photon and confocal microscopy with novel laser technology", IINS seminar, Bordeaux, France (2014-03)

#### b. 一般講演

#### ii) 研究会・シンポジウム・ワークショップ

- 1) 大友康平、日比輝正、小澤祐市、横山弘之、佐藤俊一、 根本知己:「透過型液晶デバイスを用いた二光子 STED 顕微鏡の開発」、第一回アライアンス若手研究交流会、 仙台(2013-11)
- 2) Kohei Otomo, Terumasa Hibi, Yuichi Kozawa, HIroyuki Yokoyama, Syunichi Sato, Tomomi Nemoto: "Development

- of the stimulated emission microscope by use of transmission type liquid crystal devices", the  $14^{\rm th}$  RIES International Symposium on Joined with the 1st International Symposium of Nano–Macro Materials, Devices, and System Research Alliance Project, Sapporo (2013–12)
- 3) Kentarou Kobayashi, Kohei Otomo, Yasutaka Matsuo and Tomomi Nemoto: "Annual Activity Report at Nikon Imaging Center", the 14<sup>th</sup> RIES International Symposium on Joined with the 1st International Symposium of Nano-Macro Materials, Devices, and System Research Alliance Project, Sapporo (2013-12)
- 4) 大友康平、日比輝正、小澤祐市、横山弘之、佐藤俊一、 根本知己:「透過型液晶デバイスを用いた二光子 STED 顕微鏡の開発」、第四回 Vivid Workshop、加賀(2014-02)

#### 4.8 シンポジウムの開催

#### b. 一般のシンポジウム

- 1) ニコンイメージングセンターとライフテクノロジーズ ジャパン社との共同開催:「Molecular Probes 蛍光イメ ージングセミナーシリーズ -発見にスピードを-」、総 参加者60名、北海道大学(第一回: 2013年6月5日, 第二 回: 2013年9月19日, 第三, 四回: 2014年1月22日)
- 2) ニコンイメージングセンターとニコンインステック社 との共同開催:「(株) エアブラウンのレーザー穿孔シ ステム XYClone セミナー」、参加者15名、北海道大学 (2013年9月3日)
- 3) ニコンイメージングセンターとニコンインステック社 との共同開催:「第二回 蛍光バイオイメージング・ミ ニシンポジウム」、参加者25名、北海道大学(2013年9 月20日)
- 4) ニコンイメージングセンターと光細胞生理研究分野との共同開催:「電子科学研究所学術講演会 "RECENT ADVANCES IN SUPER-RESOLUTION FLUORESCENCE MICROSCOPY BY FINCH HOLOGRAPHY", Prof. Gary Brooker (Johns Hopkins Univ.)」、総参加者21名、北海道大学(2013年10月21日)
- 5) ニコンイメージングセンターとナノテクノロジー連携 研究推進室との共同開催:「北海道大学電子科学研究所 研究支援部ニコンイメージングセンター・ナノテクノ ロジープラットフォーム 学術講演会」、参加者43名、 北海道大学(2013年11月18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) 大友康平、若手研究 (B)、多光子励起光活性化法を利用した生体深部の単一細胞内 cAMP 濃度制御手法の開発、2013 ~ 2014年度

# 国際連携推進室

教 授 小松崎民樹(総研大、理博、2007.10~) 准教授 上野 貢生(北大院、博(理)、2010.1~) 技術補助員 村本麻衣子

# 1. 研究目標

電子科学研究所は、欧米の3つの研究所、アジアの1つの研究所と交流協定を締結し、スタッフや学生の交流、ジョイントシンポジウム等や共同研究プロジェクトを積極的に実施している。国際連携推進室は、これまでの国際連携活動を発展させて、国際連携に関する企画立案・企画助言の役割を担うとともに、国際ネットワークのハブとして連携活動を充実・強化するために平成24年度に設置されたものである。国内の研究所ネットワークと海外の研究組織ネットワークが連携するプログラムなども計画している。

# 2. 研究成果

# (a) 国内の研究所ネットワークと海外の研究組織ネットワークが連携するプログラムの推進

電子科学研究所の今後の国際連携戦略を推進するための 準備、共同研究打ち合わせを行った。具体的には、電子科 学研究所のいくつかの研究室と共同研究が実施されている リヨン高等師範学校 (フランス)、ベルリン・フンボルト大 学(ドイツ)、ルーヴァン・カトリック大学(ベルギー)を 中心として、日本学術振興会先端拠点形成事業に申請した。 申請に向けて、小松崎教授がリヨン高等師範学校に表敬訪 問し、リヨン高等師範学校 Jacques Samarut 学長、Michel Payrard 副学長、コーディネーターの Arezki Boudaud 教授ら と協議を実施し、HFSP グラント賞などの国際共同研究資 金を獲得した。また、竹内教授と小松崎教授はベルリン・ フンボルト大学へ表敬訪問し、Max-Born 研究所の T. Elsaesser 所長、ベルリン・フンボルト大学 INTEGRATIVE RESEARCH INSTITUTE FOR THE SCENCES (IRIS)Rabe 所長、 およびコーディネーターの Oliver Benson 教授らと協議を 実施し、可能な共同研究の探索を積極的に行った。また、 ルーヴァン・カトリック大学(ベルギー)のコーディネー ターである Johan Hofkens 教授の来日に合わせて笹木教授 と小松崎教授は東京にて会談し、学術協定締結を打診およ びその打ち合わせを行った(7月、ベルギーにおいて、ルー ヴァン・カトリック大学と部局間交流協定を締結)。また、 2014 年 3 月、Hofkens 教授が電子研に訪問され、小松崎教 授と笹木教授は国際連携に関する打ち合わせ、および笹木 教授、三澤教授、上野准教授は Hofkens 教授と 2014 年 10 月に札幌で開催する予定のプラズモニック化学とバイオイ メージングに関する国際ワークショップの打ち合わせを行 った。上野准教授は、三澤教授や笹木教授、およびルーヴ アン・カトリック大学を含む他大学の研究者と共同で、光 化学国際会議(ICP2013)のプレカンファレンスとして、プ

ラズモニック化学に関する若手中心の国際会議をルーヴァンで開催した。竹内教授、笹木教授は先端拠点形成事業と独立にベルリン・フンボルト大学およびルーヴァン・カトリック大学との二国間学振共同研究予算を獲得した。

2013 年度の日本学術振興会先端拠点形成事業申請では 採択に至らなかったが、2014 年度はさらにボルドー大学 (計測系)、東京大学(数理系)、広島大学(数理系)を加 えて、数理と計測でつなぐ生命動態システム科学を軸とし て再申請する予定である。

# (b) 電子科学研究所英語版 HP における国際連携推進室のページの構築

電子科学研究所の国際共同研究活動をまとめたページを整備した。海外からの訪問者リスト、海外からのポスドク、院生の統計、国際共同研究リスト、部局間学術協定リスト、電子科学研究所のスタッフが実施した国際研究集会リスト、RIES-Hokudai International Symposium リスト、外国人スタッフリストなどの情報に自由にアクセスできるシステムを作成した。

# (c) JSPS Newsletter Volume XXXII published by JSPS San Francisco の執筆

JSPS San Francisco支部刊行のJSPS Newsletter Volume XXXII に対して電子科学研究所に関する記事を執筆し、近年発表された光イメージング技術に関する電子科学研究所の研究 2件を紹介した。

## (d) グラスゴー大学との部局間学術締結協定書の推敲

部局間学術締結協定書は、国、研究機関に応じて、文章・ 内容が大きく異なり得る。グラスゴー大学からの英文はそ れに該当し、担当された先生から依頼を受けて、グラスゴ 一大学との部局間学術締結協定書の推敲を事務と協議しな がら数回に渡って実施した。

# (e) 第 14 回 RIES-HOKUDAI 国際シンポジウム「網」 開催に 貢献

本シンポジウムは北大・電子科学研究所が主催し、所内だけでなく海外、国内、及び、学内の研究機関に広く開かれた国際シンポジウムであり、関係機関の新たな連携と分野横断的な学問や技術を生み出す土壌を提供することを目的としている。2013年度は国際連携推進室室長が委員長を担当し、本学の支援の下、ナノマクロ物質・デバイス・システム創製アライアンス並びに物質・デバイス領域共同研究拠点との共催により12月11・12日、シャトレーゼ・ガトーキングダム・サッポロにおいて開催した。本学をはじめ、国内では東北大学、東京工業大学、大阪大学、九州大学、岐阜大学、奈良女子大学から、海外ではコロンビア大学(米国)、ジョージア工科大学(同)、慶熙大学(韓国)、ソウル大学(同)からの総勢150人を超える院生、ポスドク、研究者などの参加者が集った。本学は、電子科学研究所の

ほかに情報科学研究科、工学研究院、遺伝子病制御研究所 からも参加があり、ポスター賞新設などを行い、新たな国 際連携推進を促した。

# 3. 今後の研究の展望

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

### 4. 資料

2013年度は所内国際プロジェクトA、ならびに本学研究大学強化促進費を充当していただいた。その予算などを利活用して、日本学術振興会先端拠点形成事業に関係の深い海外の研究者(1.から4.の研究者)を電子研に招へいした。また、10月30日 北海道大学へルシンキオフィス Tero Salomaa副所長が国際連携推進室への表敬訪問を受けた。



クリーンルーム内ナノテクプラットフォームの装置群を視察する Salomaa副所長

以下、()内の研究分野は各訪問者の主な訪問先である。 1. Stefan Hecht 教授、Germany、Humboldt-Universitat zu Berlin, Supramolecular Systems(2014年03月11日~2014年03 月16日)(スマート分子材料研究分野、ナノ光機能材料研究 分野、グリーンフォトニクス研究分野、コヒーレント光研 究分野、ナノアセンブリ材料研究分野、薄膜機能材料研究 分野)

- 2. Verellen Niels 教授、Belgium、Solid State Physics and Magnetism Section, KU Leuven(2014年03月09日~2014年03月14日)(光システム物理研究分野、グリーンフォトニクス研究分野)
- 3. Fourcade Bertrand 教授 (Joliot-Curie interdisciplinary laboratory所長)、France、ENS de Lyon, Joliot-Curie interdisciplinary laboratory (2014年02月15日~2014年02月20日) (動的数理モデリング研究分野、分子生命数理研究分野、光細胞生理研究分野)
- 4. Norbert Koch教授 Germany、Humboldt-Universität zu Berlin(2014年01月08日~2014年01月11日)(光量子情報研究分野、薄膜機能材料研究分野、グリーンフォトニクス研究分野、コヒーレント光研究分野、生体分子デバイス研究分野、ナノアセンブリ材料研究分野)
- 5. Tero Salomaa 副所長 Finland, Hokkaido University Helsinki Office (2013年10月) (国際連携推進室)
- 6. Johan Hofkens 教授、Belgium、Department of Chemistry, KU Leuven (2014年03月03日) (光システム物理研究分野、スマート分子材料研究分野)

# ナノテク連携推進室

准 教 授 松尾保孝(北大院、博士(工学)、2010.1~) (以下、創成研究機構・ナノテク連携研究推進室)

学術研究員 福本 愛 (2007.6~) 学術研究員 吉田 裕 (2012.4~) 学術研究員 川井直美 (2012.4~) 学術研究員 細井浩貴 (2012.9~) 学術研究員 王 永明 (2012.9~) 学術研究員 渡辺真理子 (2013.8~)

学術研究員 小山正孝 (2013.1~2013.11)

## 1. 研究目標

ナノテク連携推進室はグリーンイノベーションやライフ イノベーションといった社会的課題を解決するための学術 研究、技術・産業創出には欠かせない超微細加工やナノ領 域の構造解析・分析といったナノテクノロジーの利用を支 援する組織となっている。通常、ナノテクノロジーを利 用・活用するためにはクリーンルームのような特殊環境や 最新鋭の大型設備を有し、かつ運用するための知識と経験 が無くてはならないが、単独の研究室や研究者だけで実現 することは困難になりつつある。そこで、ナノテクノロジ 一連携推進室では電子研技術部と協力しながら電子研オー プンファシリティー機器(共用化装置)に関する運営、学 内外からのナノテクノロジー研究の相談窓口としての機能 を担っている。加えて、平成24年7月よりスタートした文 部科学省が行う全国的なナノテクノロジー装置共用化プロ グラムである「ナノテクノロジープラットフォーム」事業 についても業務実施者として参画している。北海道大学は 微細構造解析プラットフォーム、微細加工プラットフォー ム事業の実施機関として名を連ねることとなったが、ナノ テクノロジープラットフォーム事業は全学事業として創成 研究機構・ナノテクノロジー連携研究推進室が担っており、 電子科学研究所ナノテク連携推進室はその一部として工学 研究院(全自動微小部分分析室、光電子分光研究室、超高 圧電子顕微鏡室)、情報科学研究科と連携し、学内だけで なく全国の大学・公的研究機関・民間企業に対してナノテ クノロジーに関する支援に取り組んでいる。特に、超微細 加工とナノ計測・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事業推進を行っている。原子層堆積 装置やプラズマCVD装置、超高精度EB描画装置、マスク アライナー、RIE装置、ICPドライエッチング装置、FIB装 置、イオンビームスパッタ装置などのナノ加工・デバイス 化装置による超微細加工に関する支援を行うとともに、高 性能STEM、超高圧透過型電子顕微鏡、各種プローブ顕微 鏡、X線光電子顕微鏡装置、オージェ電子分光装置、集束

イオンビーム加工・分析 装置などによる種々のナノ計 測・表面分析支援までを幅広く行っている。

#### 2. 研究成果

#### (a) 利用実績(平成25年4月~平成26年3月)

平成25年度の支援状況として、ナノテクノロジープラットフォーム事業について記載する。超微細加工PFに関する利用件数は80件、利用延べ日数は1587日に及ぶ。また微細構造解析PFに関しては超高圧電子顕微鏡室を含めて利用件数は120件、利用延べ日数は1768日となっている。全支援課題数200件となり、前年度よりも増加した。 これ以外にも成果非公開(自主事業)として行った数件の支援活動や、ナノテクノロジープラットフォーム以外の電子研共用設備による支援活動も学内外ユーザーに多数利用されている。

支援を行った研究は国内外への論文投稿、学会発表につながっている。微細加工PFでは学会発表が68件、論文掲載が11件、特許出願が2件であった。また、微細構造解析では学会発表が166件、論文掲載が58件、特許出願が1件となった。

#### (b) ナノテクノロジープラットフォーム事業活動

ナノテクノロジープラットフォーム事業は3つのプラットフォーム(微細加工、微細構造解析、分子物質合成)ごとに各機関が参画して行う事業となっており、北海道大学は微細加工・微細構造解析の2つのプラットフォームに属している。電子科学研究所としても両方のプラットフォーム対して装置供出を行っており、研究支援と共に関連する会議などにおいて支援成果報告や広報活動を行っている。また、技術職員を含めた研究支援者は外部での技術研修に参加し、より優れたナノテクノロジー支援の実現を目指して技術研鑽に務めている。昨年度は技術部から海外視察(NNIN:米国のナノテクネットワーク)も行い、国際的な知見を得るための研修にも参加した。この他に、外部ユーザーへの広報活動として学会でのPR活動や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(Nanotech2014)において広報活動を行った。

#### (c) 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、現在事業実施中である。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。高精度電子線描画装置やレーザー描画装置、原子

層堆積装置 (ALD) や時間分解光電子分光装置 (TR-PEEM) が稼働し、学内外からの利用が積極的に利用されるようになった。ナノテクノロジープラットフォームと一体となって運用を行い、幅広いユーザーへの装置開放を行った。

# (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 ーナノインプリントによる生産技術の開 発一

「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・産業応用や新たな産業の創出を目指すプロジェクトを実施いている。現在は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自身に関する開発とその応用技術開発を行い、参画企業への技術移転の推進を図った。

#### (e) 設備の更新と新規装置の導入

電子科学研究所として導入を希望していた収差補正電子 顕微鏡の導入を実現した。本装置は、従来の共用化電子顕 微鏡とは異なり、収差を補正することで原子分解能の TEM/STEM像ならびに元素マッピングを実現可能な装置であ る。北海道では初の装置導入となり、共用化により多くの ユーザーの研究進展に寄与できると考えられる。また、ナ ノテクノロジープラットフォーム事業でも新規装置導入が 行われ、超高速スキャン電子線描画装置、パルスレーザー 堆積装置、既存の光電子顕微鏡システムの高分解能化、収 差補正電子顕微鏡(超高圧電子顕微鏡室に設置)が新たに 支援装置として加わった。微細加工の支援装置2台は電子研 が管理するクリーンルームに年度末に設置、可動をスター トした。また、微細加工や構造解析を支援するためのドラ フト設備や試料前処理装置(基板切断機、研磨機、加熱処 理装置など) も同時に整備され、より一層の支援体制の充 実に努めた。

#### 3. 今後の研究の展望

本ナノテク連携推進室では引き続き、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、ナノテクノロジープラットフォーム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。また、技術部とも協力して新しい支援技術の開発を行い、学内外の研究開発者への協力を継続して行っていく。

# 4. 資料

#### 4.1 その他

1) 平成25年度 成果報告書

#### 4.2 講演

#### iii) コロキウム・セミナー等・その他

- 1) 松尾保孝 「北海道大学での支援例紹介と今後の課題」、 微細構造解析プラットフォーム2013年度 第1回ワー クショップ、Spring-8 (2013-9)
- 2) 松尾保孝 「ナノテクノロジープラットフォーム事業 1年の報告」、ニコンイメージングセンター・ナノテク ノロジープラットフォーム学術講演会、北海道大学電 子科学研究所 (2013-11)
- 3) 松尾保孝 「異分野へのリソグラフィー支援〜バイオ サイエンス先端計測から材料開発まで〜」、施設共用に よるイノベーションの創出 平成25年度 微細加工ナ ノプラットフォームコンソーシアム・低炭素研究ネッ トワーク合同シンポジウム、京都大学(2014-3)
- 4) 松尾保孝 「日々の研究開発をナノテクノロジー導入 で新たなステージへ~充実した人的支援を加えた分析 /加工技術の提供~」、第1回 北海道大学 オープンフ アシリティシンポジウム ~最先端共用機器による社 会貢献とイノベーション創出~、札幌市 (2014-3)
- 5) 松尾保孝 「平成25年支援成果報告 FIB-SEM利用を中心に」、共用・計測合同シンポジウム2014~先端計測の共用化によるイノベーション~、物質・材料研究機構(2014-3)

#### 4.3 予算獲得状況

- f. その他(研究担当者、機関名、研究題目、研究期間)
- 1) 笹木敬司、大塚俊明(工学研究院)、北海道大学、ナノ テクノロジープラットフォーム(微細加工PF,微細構造 解析PF)、2012年度~21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
- 3) 松尾保孝、北海道大学、樹脂基材への金属皮膜形成技 術の開発、2012年度~13年度
- 4) 松尾保孝、北海道大学、チタン窒化物による可視光域 のプラズモニックデバイス創製、2013年度~14年度

## 4.4 共同研究

1) 北海道総合研究機構工業試験場、「樹脂基材への金属皮膜形成技術の開発」(2012年度~2013年度)

# Ⅱ. 予 算

# Ⅱ-1. 研究成果公表に関する各種の統計表

# 1. 学術論文

年 部門等		平成22年	平成23年	年 部門等		平成24年	平成25年
電子材料	欧 文	41 (25)	33 (32)	光科学	欧 文	25 (24)	21 (21)
物性部門	邦 文	0	0	研究部門	邦 文	0	0
電子機能	欧 文	27 (15)	24 (21)	物質科学研究部門	欧 文	17 (14)	11 (10)
素子部門	邦 文	0	1 (1)		邦 文	2 (2)	0
電子計測	欧 文	18 (18)	20 (20)	生命科学	欧 文	9 (9)	5 (3)
制御部門	制御部門 邦 文 1 2 (1) 研究部門	邦 文	0	2			
電子情報	欧 文	22 (21)	(31)	数理科学	欧 文	20 (19)	16 (16)
処理部門 **	邦 文	1	(3)	研究部門	邦 文	2 (1)	1 (1)
ナノテクノロジー	欧 文	21 (18)	42 (38)	ク゛リーンナノテクノロシ゛ー	欧 文	33 (33)	30 (30)
研究センター	邦 文	1 (1)	(0)	研究センター部門	邦 文	1	1
計	欧 文	119 (87)	(135)	) 計	欧 文	102 (97)	78 (75)
計	邦 文	3 (1)		訂	邦 文	5 (3)	4 (1)

<sup>( )</sup>内の数はレフェリー付き。

# 2. 総覧、解説、評論等及び著書数

年 部門等		平成22年	平成23年	年 部門等		平成24年	平成25年
電子材料	総説等	4	5	光科学	総説等	4 (1)	4
物性部門	著書	1	3	研究部門	著書	0	0
電子機能	総説等	3 (1)	1	物質科学	総説等	4 (1)	1
素子部門	著書	2 (2)	1	研究部門	著書	2 (2)	2 (1)
電子計測	総説等	11 (2)	15 (3)	生命科学	総説等	7 (1)	4 (1)
制御部門	著書	1	2	研究部門	著書	0	0
電子情報	総説等	10 (1)	4	数理科学	総説等	1	1 (1)
処理部門 *	著書	3	0	研究部門	著書	0	2 (1)
ナノテクノロジー	総説等	1	7 (1)	ク゛リーンナノテクノロシ゛ー	総説等	2 (1)	3
研究センター	著書	2	2	研究センター部門	著書	4	2
計	総説等 28 (4) 32 (4)	計	総説等	18 (4)	13 (2)		
ĦΤ	著書	9 (2)	8	百丁	著書	6 (2)	5 (2)

<sup>( )</sup>内の数は欧文

<sup>※</sup>客員研究分野は除外した。

<sup>※</sup>出版済のもの

<sup>※</sup>客員研究分野は除外した。

<sup>※</sup>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。

<sup>※</sup>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		平成22年	平成23年	年 部門等		平成24年	平成25年
電子材料	国際学会	15 (8)	34 (15)	光科学	国際学会	24 (7)	35 (14)
物性部門	国内学会	30 (3)	63 (6)	研究部門	国内学会	40 (4)	39 (6)
電子機能	国際学会	20 (3)	16 (4)	物質科学	国際学会	18 (4)	13 (6)
素子部門	国内学会	25 (3)	31 (4)	研究部門	国内学会	24 (1)	36 (3)
電子計測	国際学会	30 (15)	15 (10)	生命科学	国際学会	14 (3)	8 (3)
制御部門	P部門 国内学会 59 (31) 31 (4) 研究部門	研究部門	国内学会	22 (4)	19 (9)		
電子情報	国際学会	11 (2)	18	数理科学	国際学会	24 (11)	22 (8)
処理部門 **	国内学会	28 (4)	33	研究部門	国内学会	38 (4)	41 (6)
ナノテクノロジー	国際学会	31 (8)	19 (3)	ク゛リーンナノテクノロシ゛ー	国際学会	62 (12)	40 (10)
研究センター	国内学会	42 (1)	45	研究センター部門	国内学会	66 (5)	45 (4)
⇒1	国際学会 103 (36) 102 (32)	国際学会	141 (37)	114 (38)			
計	国内学会	180 (42)	215 (14)	計	国内学会	187 (18)	173 (28)

国際学会・国内学会の()内の数は招待講演数

# Ⅱ -2. 予算

# Ⅱ-2-1) 全体の予算

(単位:千円)

年部門等	平成 22 年度	平成 23 年度	平成 24 年度	平成 25 年度
業務費	199, 162	237, 734	165, 907	139, 276
科学研究費補助金	376, 484 (63)	470, 802 (80)	316, 687 (75)	269, 062 (61)
その他の補助金	36, 361 (7)	23, 696 (4)	10, 997 (5)	18, 748 (7)
寄 附 金	29, 615 (11)	31, 640 (14)	25, 026 (15)	22, 993 (16)
受託事業等経費	896, 500 (41)	510, 564 (38)	328, 523 (32)	329, 456 (31)
(受託研究費)	832, 207 (28)	471, 438 (24)	296, 957 (20)	291, 264 (18)
(共同研究費)	64, 293 (13)	39, 126 (14)	31, 566 (12)	38, 192 (13)
合計	1, 538, 122 (122)	1, 274, 436 (136)	847, 140 (127)	779, 535 (115)

() 内の数は受入件数。

<sup>※</sup>客員研究分野は除外した(研究所全体の統計の場合)。

<sup>※</sup>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-2-2) 外部からの研究費受入状況

部門別の受入状況 (単位:千円)

					(中位・111)
部門等	研究費	平成 23 年度	部門等	平成 24 年度	平成 25 年度
	科学研究費補助金	93, 734 (18)		68, 300 (16)	47, 457 (9)
	その他の補助金	0		0	0
	寄附金 I	3, 500 (3)		880(1)	3, 815 (7)
電子材料	寄 附 金 Ⅱ	0	光科学	0	0
物性部門	受託事業等経費	108, 316 (8)	研究部門	102, 696 (4)	135, 581 (4)
	(受託研究費)	108, 316 (8)		102, 696 (4)	135, 581 (4)
	(共同研究費)	0		0	0
	小 計	205, 550 (29)		171, 876 (21)	186, 853 (20)
	科学研究費補助金	24, 310 (8)		28, 800 (11)	69, 700 (9)
	その他の補助金	0		7,000(1)	8,000(2)
	寄附金 I	1,500(1)		1,000(1)	0
電子機能	寄 附 金 Ⅱ	2, 350 (3)	物質科学	6, 897 (2)	1,750(4)
素子部門	受託事業等経費	24, 731 (5)	研究部門	15, 706 (3)	1,000(1)
	(受託研究費)	11, 245 (2)		5, 806 (2)	0
	(共同研究費)	13, 486 (3)		9,900(1)	1,000(1)
	小 計	52, 891 (17)		59, 403 (18)	80, 450 (16)
	科学研究費補助金	166, 104 (25)		35, 724 (9)	30, 200 (7)
	その他の補助金	22, 696 (3)		1,500(1)	400(1)
	寄 附 金 I	17, 290 (2)		0	3,000(1)
電子計測	寄 附 金 Ⅱ	0	生命科学	0	1, 122(1)
制御部門	受託事業等経費	58, 140 (7)	研究部門	39, 391 (5)	36, 152 (8)
	(受託研究費)	52, 640 (5)		38, 480 (3)	34, 895 (5)
	(共同研究費)	5, 500 (2)		911 (2)	1, 257 (3)
	小 計	264, 230 (37)		76, 615 (15)	70, 874 (18)
	科学研究費補助金	61, 457 (14)		56, 496 (17)	56, 442 (19)
	その他の補助金	0		2, 097 (2)	0
	寄附金 I	500(1)		9, 949 (3)	11, 106(1)
電子情報	寄 附 金 Ⅱ	0	数理科学	700(1)	0
処理部門	受託事業等経費	18, 100 (3)	研究部門	52,006(2)	61, 210 (4)
	(受託研究費)	17, 550 (2)		52,006(2)	58, 035 (2)
	(共同研究費)	550(1)		0	3, 175(2)
	小 計	80, 057 (18)		121, 248 (25)	128, 758 (24)

部門等	研究費	平成 23 年度	部門等	平成 24 年度	平成 25 年度
	科学研究費補助金	125, 197 (15)		124, 690 (18)	58, 063 (13)
	その他の補助金	1,000(1)		0	972(1)
	寄 附 金 I	2,500(2)		2, 100(2)	1, 200(1)
附属ナノ テクノロジー	寄 附 金 Ⅱ	400(1)	<ul><li>附属グリーン</li><li>ナノテクノロジ</li><li>一研究センター</li></ul>	3, 300 (4)	1,000(1)
研究センター	受託事業等経費	301, 277 (15)		118, 224 (17)	75, 278 (12)
,,,=	(受託研究費)	281, 687 (7)	,,,-	97, 969 (9)	43, 018 (6)
	(共同研究費)	19, 590 (8)		20, 255 (8)	32, 260 (6)
	小 計	430, 374 (34)		248, 314 (41)	136, 513 (28)
	科学研究費補助金	0		2, 677 (4)	7, 200 (4)
	その他の補助金	0		400(1)	9, 376 (3)
寄附研究部門	寄附金 I	0		0	0
(ニコンバイ	寄 附 金 Ⅱ	3,600(1)	7. 00 lih	200(1)	0
オイメージン グセンター)	受託事業等経費	0	その他	500(1)	20, 235 (2)
	(受託研究費)	0		0	19, 735(1)
	(共同研究費)	0		500(1)	500(1)
	小 計	3,600(1)		3, 777 (7)	36, 811 (9)

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

# Ⅱ-3. 外国人研究者の受入状況

# a. 年度別統計表

部		Ť	_				年	平成21年度	平成22年度	平成23年度
電	子	材	料	物	性	部	門	11	8	5
電	子	機	能	素	子	部	門	0	1	0
電	子	計	測	制	御	部	門	4	4	5
電	子	情	報	処	理	部	門	4	4	1
ナノ	/テ:	クノ	ロジ	一研	究セ	ニンク	<del>7</del> —	9	6	5
			計	+				28	23	16

部門等	平成24年度	平成25年度
光 科 学 研 究 部 門	6	2
物質科学研究部門	1	5
生命科学研究部門	0	0
数 理 科 学 研 究 部 門	4	4
附属グリーンナノテクノロジー研究センター	6	9
計	17	20

#### 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25年度

#### 情報科学研究科

- 長尾 優樹: TiO<sub>2</sub>基板上単一CdSe/ZnS量子ドットの発光特性解析
- 煮雪 亮: ZnOナノ粒子フィルムにおけるランダムレーザー発振モード制御に関する研究
- 野村 健介:金ナノディスク周期構造における多重極子プラズモンモードと光渦励振の研究
- 添田 慧:コヒーレント X 線回折イメージングに向けた VO。ナノ結晶の合成と評価
- 青柳 佑佳:生後マウス脳における新生ニューロンの移動様式解明に向けた3次元イメージング
- 澤田 和明:高出力1μmピコ秒パルスレーザー光源のマウス脳深部イメージングへの適用
- 松塚 祐貴:光電子顕微鏡を用いた積層型ナノギャップ金構造における光電場増強効果の検討(Probing the Electromagnetic Field Enhancement Effects Induced on Stacked Nanogap Gold Structures using Photoemission Electron Microscopy)
- 鎌田 義臣:ホール移動層として酸化ニッケルを用いた全固体プラズモン太陽電池の構築 (Construction of Solid-state Plasmonic Solar Cell using Nickel Oxide as Hole Transport Layer)
- 于 瀚:光電子顕微鏡を用いた金ナノ微粒子に誘起される局在表面プラズモンの近接場分布とダイナミクスの追跡(Probing the Near-Field and Dynamics of Localized Surface Plasmon Resonance in Gold Nanoparticles by Photoemission Electron Microscopy)
- 石原 渚:金属ナノ共振器に埋めこんだ量子ドットの発光特性と共振モード発光増強メカニズムに関する 研究
- 根岸 洋介:半導体量子ドット発光特性の電界制御に向けた微細金属電極作製に関する研究
- 竹本 亮:金属埋め込み半導体ピラー微小光共振器の作製と高Q値共振特性評価に関する研究

# 生命科学院

■ 井部 邦彦:遷移ネットワークによるたんぱく質折り畳み運動の理解

# 総合化学院

- 柴田 智広:パラジウム回折格子の光学特性と水素検出
- 荘司 孝斗:リン酸塩ガラスへのプロトン導入法の検討と伝導性評価
- 鈴木 康修: DNAブラシをテンプレートとしたボトムアップ型3D金属パターニング法に関する研究
- 杉村 尚俊:酵素を内包したウイルスカプセルの作製と微小空間での酵素反応

#### Ⅱ-4-2)博士学位

#### 平成25年度

# 環境科学院

- Chiang Hung-Chu: Study on Electroabsorption and Electrophotoluminescence of Optoelectronic Functional Materials in Solution
- 厳 寅男:大振幅分子運動を示す超分カチオンを導入した[Ni(dmit)。]塩の構造と誘電性

#### 情報科学研究科

- 任 芳: Study on plasmonic-photonic hybrid systems for efficient excitation of nonlinear phenomena
- 石 旭:金ナノアイランド/酸化チタン電極によるプラズモン増強光電流の発生と水の酸化反応に関する研究 (Plasmon-Enhanced Photocurrent Generation and Water Oxidation with Gold Nanoislands Loaded Titanium Dioxide Photoelectrodes)
- 中島 秀朗:半導体量子ドットを用いた単一光子・量子もつれ光子対生成に関する研究

# 生命科学院

- Tahmina Sultana: A Theoretical Study on Multiscale Reaction Network Extracted from Single Molecule Time Series
- Nishad Perur: Driving and Reversible Controlling of Motor Proteins by Photochromic Non- Nucleoside Triphosphates

Ⅱ-4-3) 大学院生在籍数

年		修士			博 士	
研究科名	平成23年	平成24年	平成25年	平成23年	平成24年	平成25年
理 学 院	11	8	14	5	10	4
工 学 研 究 科	0	5	5	0	4	1
環境科学院	5	13	12	8	8	5
情報科学研究科	22	27	22	6	11	8
生命科学院	5	3	4	6	5	10
地球環境科学生命科		1	0		0	0
総合化学院	6	8	9	3	2	1
計	49	65	66	28	40	29

# Ⅲ. 研究支援体制

#### Ⅲ-1. 技術部

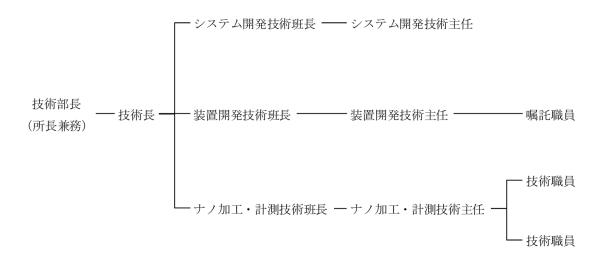
技術部はシステム開発技術班とナノ加工・計測技術班、装置開発技術班(機械工作室・ガラス工作室)からなる。システム開発技術班は、広報・情報・ネットワーク・研究所のウエブサイト管理運営、ニコンイメージングセンターへの技術支援などを行っている。

ナノ加工・計測技術班はクリーンルーム及び共用設備の維持管理、利用指導、ナノ加工計測を行っており、それらに関する技術相談も受けている。また両班は研究所全体に関わる業務として学術講演会や液化窒素ガス汲み出し作業従事者への安全講習会などの支援も行っている。

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、汎用工作機械、NC 加工機を利用した金属・樹脂の精密加工や TIG 溶接(SUS, AL)技術を用いて 多くの実験装置の開発・製作を行っている。近年は三次元 CAD を用いた設計相談にも対応している。

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バールを介しての硝子の 溶着・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22年*	平成23年*	平成24年*	平成25年*
和	書	5, 591	5, 623	5, 649	5,666
洋	書	17, 477	17, 515	17, 442	17, 516
計		23, 068	23, 138	23, 091	23, 182

#### 3. 購入雜誌受入種類数

年 度	平成22年*	Z成22年* 平成23年* <del>-</del>		平成25年*
和雑誌 55		46	46 46	
洋雑誌 21		9	6	8
計	76	55	52	56

#### 2. 所蔵雑誌種類数

年 度	平成22年* 平成23年* 平成24年*		平成25年*	
和雑誌 125		118	106	107
洋雑誌	431	410	385	387
計	556	528	491	494

#### 4. 学外文献複写数

年	度	平成22年*	平成23年*	平成24年*	平成25年*
依	頼	57	109	129	34
受	付	179	110	77	88

<sup>\*</sup> 北キャンパス図書室全体としての数字

#### b. 学術情報システム

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

平成14年度からは電子ジャーナルが本格的に導入され、19,500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 Web"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。

電子ジャーナルおよびデータベースは、平成22年度より運用開始したリモートアクセスサービスにより、一部のタイトルを除き、出張先、自宅など学外からも利用可能となった。

また、インターネットを通じて"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ニクス研究分野に名称変更電子機能素子研究部門超分子分光研究分野を廃止電子計測制御研究部門自律調節研究分野を分子生命数理研究分野に名称変更
  - 20.1 バングラデシュ・ダッカ大学物理化学生物薬学先端科学研究センターとの学術交流協定締結 (21.12 大学間交流協定へ移行 責任部局:大学院歯学研究科)
  - 20.1 台湾・国立台湾師範大学光電科学技術研究所との学術交流協定締結
  - 20.4 台湾・国立台湾大学物理学科との研究交流に関する覚書締結

- 20.6 米国・カリフォルニア大学ロサンゼルス校カリフォルニアナノシステム研究所を代表するカリフォルニア大学評議会との学術交流協定締結
- 20.10 電子情報処理研究部門極限フォトンプロセス研究分野をスマート分子研究分野に名称変更 附属ナノテクノロジー研究センターナノ材料研究分野を極限フォトンプロセス研究分野に名称変更 附属ナノテクノロジー研究センターナノデバイス研究分野をバイオ分子ナノデバイス研究分野に名称 変更
  - 寄附研究部門「ニコンバイオイメージングセンター研究部門」開設期間更新(更新期間3年)
- 22.3 フランス・リヨン高等師範学校との学術交流協定締結
- 22. 4 電子材料物性研究部門ナノ光高機能材料研究分野をコヒーレントX線光学研究分野に名称変更電子機能素子研究部門分子認識素子研究分野を光波制御材料研究分野に名称変更電子計測制御研究部門量子計測研究分野を生体物理研究分野に名称変更附属ナノテクノロジー研究センターナノ理論研究分野をナノ光高機能材料研究分野に名称変更連携研究部門理研連携研究分野を新設
- 22.9 ドイツ・オットー・フォン・ゲーリケ大学マクデブルク自然科学部との学術交流協定締結
- 23.1 台湾・国立交通大学理学院との学術交流協定締結
- 23.9 寄附研究部門「ニコンバイオイメージングセンター研究部門」開設期間満了
- 24. 4 改組に伴い研究部門名、研究分野名を全面改称 
  附属ナノテクノロジー研究センターを附属グリーンナノテクノロジー研究センターに改組転換 
  研究支援部を新設 
  支援部構成:ニコンイメージングセンター、国際連携推進室、ナノテク連携推進室
- 25.7 ベルギー・ルーヴェン・カトリック大学との学術交流協定締結
- 25.11 英国・グラスゴー大学理工学部との学術交流協定締結
- 26.3 中国・吉林大学、ハルピン工業大学及び北京国家ナノテクノロジーセンターとの学術交流協定締結

# [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	簑島	高
応用電気研究所	昭和21年4月1日~昭和21年9月10日	簑島	高
	昭和21年9月11日~昭和35年7月31日	淺見	義弘
	昭和35年8月1日~昭和38年7月31日	東	健一
	昭和38年8月1日~昭和45年3月31日	松本	秋男
	昭和45年4月1日~昭和48年3月31日	望月	政司
	昭和48年4月1日~昭和51年3月31日	馬場	宏明
	昭和51年4月1日~昭和54年3月31日	吉本	千禎
	昭和54年4月1日~昭和57年3月31日	馬場	宏明
	昭和57年4月1日~昭和60年3月31日	山崎	勇夫
	昭和60年4月1日~昭和63年3月31日	達崎	達
	昭和63年4月1日~平成4年4月9日	安藤	毅
電子科学研究所	平成4年4月10日~平成6年3月31日	安藤	毅
	平成6年4月1日~平成9年3月31日	朝倉	利光
	平成9年4月1日~平成13年3月31日	井上	久遠
	平成13年4月1日~平成15年3月31日	下澤	楯夫
	平成15年4月1日~平成15年9月30日	八木	駿郎
	平成15年10月1日~平成17年9月30日	西浦	廉政
	平成17年10月1日~平成21年9月30日	笹木	敬司
	平成21年10月1日~平成25年9月30日	三澤	弘明
	平成25年10月1日~現在	西井	準治

# [名誉教授]

昭和32年4月	(故)	簑島	高
昭和37年4月	(故)	淺見	義弘
昭和43年4月	(故)	東	健一
昭和45年4月	(故)	松本	秋男
昭和55年4月	(故)	吉本	千禎
昭和57年4月	(故)	横澤彌	三郎
昭和62年4月	(故)	羽鳥	孝三
	(故)	馬場	宏明
	(故)	松本	伍良
昭和63年4月	(故)	達崎	達
		山崎	勇夫
平成7年4月		安藤	毅
平成9年4月		朝倉	利光
		小山	富康
平成13年4月	(故)	井上	久遠
		永井	信夫
平成18年4月		八木	駿郎
平成19年4月		狩野	猛
		下澤	楯夫
		下村	政嗣
		伊福部	達
平成21年4月		栗城	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 m²	延面積 ㎡	建築年度
創成科学研究棟	鉄筋コンクリート造5階建		4, 154	平成15年度
北キャンパス総合研究棟5号館	鉄筋コンクリート造5階建	1, 104	5, 419 (116)	平成20年度 (平成21年度増築)
中央キャンパス総合研究棟2号館	鉄筋コンクリート造5階建		1, 294	平成21年度 (改修)
計			10, 867	

延面積欄の()内の数字は増築分で内数

# **Ⅳ-3. 現員**(平成25年度)

(3月末日現在)

	(3万术百先江)
職名	人数
教授	14 (5)
准 教 授	14
講 師	0
助教	19
特任教授	2
特任准教授	0
特任助教	5
教員小計	54 (5)
技術部	10
合 計	64 (5)

( )内の数字は客員で外数

# IV-4. **教員の異動状況** (平成25年度)

# ○転入状況

所属部門	職名	氏	名	採用年月日	前 職
物質科学研究部門	特任教授	太 田 1	信 廣	25. 4. 1	電子科学研究所教授
附属グリーンナノテク ノロジー研究センター	特任教授	末宗	幾夫	25. 4. 1	電子科学研究所教授
物質科学研究部門	助教	片瀬	貴 義	25. 4. 1	東京工業大学フロンティア研究機構 最先端研究開発支援プログラム研究員
物質科学研究部門	特任助教	AWASTHI K	AMLESH	25. 4. 1	電子科学研究所博士研究員
生命科学研究部門	教授	中垣(	俊之	25. 10. 1	はこだて未来大学システム情報科学部 教授
生命科学研究部門	助教	黒 田	茂	25. 10. 1	はこだて未来大学システム情報科学部 特任研究員
附属グリーンナノテク ノロジー研究センター	特任准教授	陳	岐 岱	25. 11. 6	吉林大学電子科学工学院教授

# ○転出状況

所属部門	職名	氏 名	退職年月日	転 出 先
附属グリーンナノテク ノロジー研究センター	准教授	西山宏昭	25. 4.30	山形大学准教授
光科学研究部門	助教	NEWTON MARCUS CHRISTIAN	25. 8. 15	サウサンプトン大学講師
附属グリーンナノテク ノロジー研究センター	特任准教授	陳 岐 岱	25. 12. 31	吉林大学電子科学工学院教授
光科学研究部門	教 授	竹 内 繁 樹	26. 2.28	京都大学教授
生命科学研究部門	准教授	髙木清二	26. 3.31	はこだて未来大学准教授

(26.3.31)

# **Ⅳ-5. 構成員**(平成25年度)

所 長	西	井	進	治	動的数理モデリング研究分野	F			
					教 授	長	Щ	雅	晴
光科学研究部門					助教	秋	Щ	正	和
光システム物理研究分野					助教	GIND	DER EL	LIOTI	ABRAHAM
教授	笹	木	敬	司					
准教授	藤	原	英	樹	連携研究部門				
助教	酒	井	恭	輔	産研アライアンス研究分野	1771			<del></del>
光量子情報研究分野	21		4/2		(兼)	岡	本	<b>~</b>	亮
准教授 助 教	辻岡	見本	裕	史 亮	(兼) 理研連携研究分野	藤	原	正	澄
助教助教	藤藤	平原	正	<del>党</del> 澄	连师座绣研先分野 客員教授	田	中	拓	男
切り コヒーレント光研究分野	肝挛	/尔	Ш.	伍	谷貝狄汉	щ	丁		カ 里化学研究所)
教授	西	野	吉	則	特任助教	石	Ш	周オ	
助教	木	村	隆	志	社会連携客員研究分野	- 11	щ	)HJ /	(CA)
<i>5</i> 7 <i>4</i> 7	//	J 1	P.E.	75	客員教授	永	島	英	夫
物質科学研究部門									(A) (全) (全) (A) (A) (A) (A) (A) (A) (A) (A) (A) (A
分子光機能物性研究分野					客員教授		原		隆
特任教授	太	田	信	廣	L > ( 0 . 0 . 5			-	"大学院大学)
准教授	中	林	孝	和	客員教授	高		正	
特任助教	AWAS	STHI	KAML	ESH	(大阪ナ	マ学ナ	マ学院	Z基礎	建工学研究科)
スマート分子材料研究分野					客員教授	黒	Ш		卓
教 授	玉	置	信	之			(树	日本	×経済新聞社)
助教	亀	井		敬					
助教	深	港		豪	附属グリーンナノテクノロジー	一研多	ピセン	/ター	_
特任助教	ΚI	M	ΥU	N A	センター長 (兼)	笹	木	敬	司
ナノ構造物性研究分野					グリーンフォトニクス研究分	<b>分野</b>			
教 授	石	橋		晃	教授	三	澤	弘	明
准教授	近	藤	憲	治	准教授	上	野	貢	生
薄膜機能材料研究分野					助教	押	切	友	也
教授	太	田	裕	道	光電子ナノ材料研究分野			241.	×.
助教	片	瀬	貴	義	教 授	西	井	準	治
4. A 49 34 7T 45 45 HI					准教授	海	住	英	生
生命科学研究部門					ナノ光機能材料研究分野	-	جبر	ølø.	-
光細胞生理研究分野	<del>1</del> 12		kn	<b>-</b>	特任教授	末	宗	幾	夫
教 授	根口	本	知	己	准教授 ナノアセンブリ材料研究分野	熊	野	英	和
助 教 助 教	日川	比 上	輝良	正 介	カノアビンノリ材料研究分割 教 授	r 中	村	貴	義
· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	飯	島			教 技 准教授	野	们 呂	真-	***
生体分子デバイス研究分野	以	山	光-	环	助教	久	保		
教授	居	城	邦	治	<b>3 3</b>	<i>&gt;</i> <	VK.	4 H	12
准教授	新	倉	謙	— —	研究支援部				
助教	三	友	秀		ニコンイメージングセンター	_			
生命動態研究分野	_	~	,,		センター長(兼)		本	知	己
教授	中	垣	俊	之	特任助教			康	平
准教授	髙	木	清	<u>=</u>	国際連携推進室				
助教	黒	田		茂	室長 (兼)	小木	公﨑	民	樹
					ナノテク連携推進室				
数理科学研究部門					室長 准教授	松	尾	保	孝
複雑系数理研究分野									
教 授	津	田	$\overline{}$	郎	技術部				
准教授	佐	藤		讓	技術部長 (兼)	西	井		治
准教授	青	沼	仁	志	技術長	太	田	隆	夫
助教	山	П		裕	装置開発技術班		_	سلس	-1-
助教	西	野	浩	史	班長	平	田	康	史
分子生命数理研究分野	. ,	مادار ارم	_	1+1	技術職員		井		志
教 授	小札	公﨑	民	樹	嘱託職員	大	沼	英	雄
准教授	李	4-4-	振	風	システム開発技術班	/m ±	th ノハ	77 E	
助教	西土	村士	吾	朗	班長	伊勢		陽	
助教	寺	本		央	主任	11,	林	健力	(IZ //

ナノ加工・計測技術班 班 長	今 村 逸 子
技術職員	笠 晴 也
技術職員	遠藤礼暁
技術職員	大 西 広
契約職員・短時間勤務職員	
理研連携推進員	横田幸恵
博士研究員	髙 島 秀 聡
<i>II</i>	岡野真之
<i>''</i>	小野貴史
<i>))</i>	越智里香
JI JI	國 田 樹 李 永涛
,, ,,	TAYLOR JAMES NICHOLAS
,, JJ	古川大介
 II	小林康明
II	武 井 兼太郎
II.	LECARME OLIVIER
n,	小 田 島 聡
<i>II</i>	黒 澤 裕 之
II .	遠藤大五郎
学術研究員	伊 藤 絵美子
	田所智
<i>II</i>	渡部大志
<i>''</i>	前田真秀
<i>))</i>	玉 井 信 也 塚 田 啓 道
II II	塚 田 啓 道 岩 﨑 正 純
,, ,,	熊 本 淳 一
"	西慧
 11	伊藤弘子
II.	中野和佳子
<i>II</i>	森 有 子
<i>II</i>	上原日和
II.	MOU SINTHIA SHABNAM
非常勤研究員	上原日和
<i>II</i>	酒 井 大 輔
研究支援推進員	坪 井 恵
<i>II</i>	伊藤春奈
" 事務補佐員	須々田 明 子 本 久 洋 子
技術補佐員	小黒真紀
以附而社員	平厚子
<i>II</i>	出羽真樹子
<i>II</i>	菅 原 侑 子
事務補助員	山 田 美 和
<i>II</i>	齋 藤 優 希
II .	中 岡 亜 弓
n,	大 木 真理子
II	加藤まり子
<i>II</i>	渡邊志野
II II	三 浦 由 貴 笠 瑞 穂
技術補助員	金
1文附 無 切 貝	吉田一迅
"	関 芳美
,,	洞内響
IJ	杉村尚俊
JJ	石 田 麻衣子
JJ	鎌田義臣

 松 塚 祐 貴

 常 盤 塁 也

 野 澤 翔

 郭 景 春

 AHMED ESMAIL KAMAL SHALAN

 阿 部 太 郎

 石 代 夕 子

 三 澤 貴 浩

 山 上 智 子

 (平成26年3月末日現在)

IJ

IJ