

ANNUAL RESEARCH REPORT

Vol.1

研究成果報告書 第1巻(2002年)

Nanoscience and Nanotechnology Center
ISIR, Osaka University

大阪大学産業科学研究所
産業科学ナノテクノロジーセンター

目次

センター長の挨拶	 1
産業科学ナノテクノロジーセンター組織図	 2
研究グループ紹介	
ナノマテリアル・デバイス研究部門	 3
人工生体情報ナノマテリアル分野	 4
単分子素子集積デバイス分野	 23
超分子プロセス分野	 39
ナノバイオデバイス分野	 58
ナノシステム設計分野	 69
ナノ量子ビーム研究部門	 73
量子ビームナノファブリケーション分野	 74
ナノ量子ビーム開発分野	 84
ナノビームプロセス分野	 95
超高速ナノ構造分野	 106
ナノテクノロジー産業応用研究部門	 112
環境調和ナノマテリアル分野	 113
計算機ナノマテリアルデザイン分野	 132
ナノバイオ知能システム分野	 145
ナノテクノロジートランスファー分野	 154
産業科学ナノテクノロジーセンター 事務補佐員	 155

センター長の挨拶

センター長 川合 知二

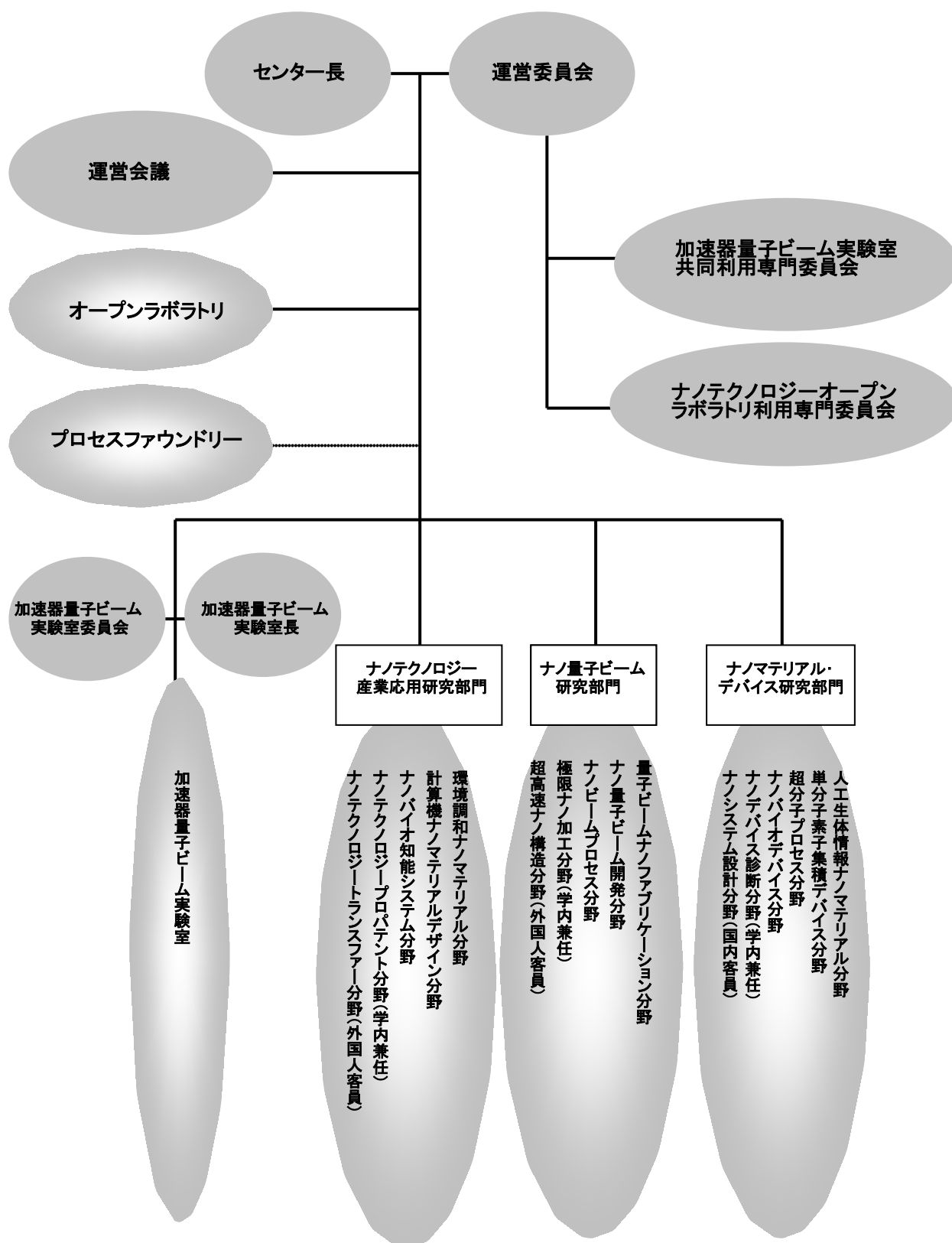
産業科学ナノテクノロジーセンターは、原子・分子を積み上げ材料を創成するボトムアップナノテクノロジー、材料を極限まで削りナノデバイスを作成するトップダウンナノテクノロジー、さらに積極的な産業応用を目指し総合的にナノテクノロジーを推進するための研究センターとして昨年平成14年4月に発足しました。

この目的を達成するために、本センターには、①原子・分子の配列をナノスケールで直接に制御しながら、物質・材料・デバイスの構築を行うナノマテリアル・デバイス研究部門、②量子ビームを用いてナノファブリケーションや反応解析、量子ビーム開発研究、ビームナノプロセスに関する研究を行うナノ量子ビーム研究部門、③産業界にとって有用であり、また将来の新産業の創出に利すると思われるナノテクノロジーに関する科学技術や知的所有権を産業応用するための中核となる研究を行うナノテクノロジー産業応用部門の3部門が設置されています。

今、ナノテクノロジーは、科学技術全般に及び、21世紀の産業革命を起こす原動力として期待を集めていますが、当センターにおいても、短期間で目的にそった重要な研究成果を得ることができ、ここに最初の報告書をお届けすることができました。これも所内の多くの研究者の協力とセンター所属の研究者のたゆまない努力の結果だと思います。

皆様にはこの様な視点で本報告書をお読みいただき、御意見やコメントを頂けたら幸いです。 ナノテクノロジーセンターは今まさに出発いたしました。今後の皆様のご支援をお願いいたします。

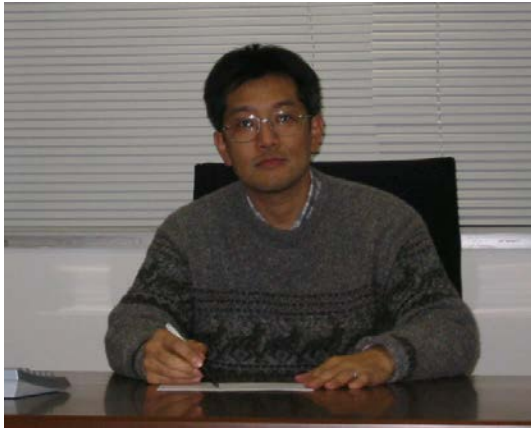
産業科学ナノテクノロジーセンター組織図



ナノマテリアル・デバイス研究部門

人工生体情報ナノマテリアル分野

田畑 仁 (たばた ひとし)



略歴

昭和 39. 4 滋賀県生まれ
 昭和 63. 3 京都大学工学部卒業
 昭和 63. 4 川崎重工業(株) 技術研究所
 平成 6. 4 大阪大学産業科学研究所・助手
 平成 7. 3 理学博士(大阪大学)
 平成 9. 8 大阪大学産業科学研究所・助教授
 平成 12. 9 科技団、さきがけ研究 21 (兼務)
 平成 14. 4 東京工業大学
 応セラ研・客員助教授(兼任)
 平成 14. 12 大阪大学 産業科学研究所・教授

(専門分野) 機能材料科学、人工格子、ナノバイオデバイス

(所属学会) 日本物理学会、応用物理学会、日本金属学会、米国材料学会ほか

- ・機能性酸化物人工格子法による、誘電体や磁性体に関する新規材料創成、新物性発現。
- ・究極の情報材料としての DNA 等バイオ関連分子を利用したバイオ素子のための物性研究。
- ・今後、原子・分子をビルディングブロックとしたボトムアップの物質創成により、生体の持つ優れた機能(認識、判断、記憶および適応学習)を見習った生体情報材料を合成し、新しいセンサやメモリ分野に貢献していきたい。

田中 秀和 (たなか ひでかず)

略歴

1993 年 大阪大学 工学部材料物性工学科 卒業

1995 年 大阪大学 工学研究科 材料物性工学専攻 修士課程修了

1997 年 大阪大学 基礎工学研究科 物理系(物性分野)

専攻博士後期課程 中途退学

1997 年 大阪大学 産業科学研究所 助手

1998 年 理学博士(大阪大学)

2001 年 さきがけ研究 21 「ナノと物性」研究員(兼任)



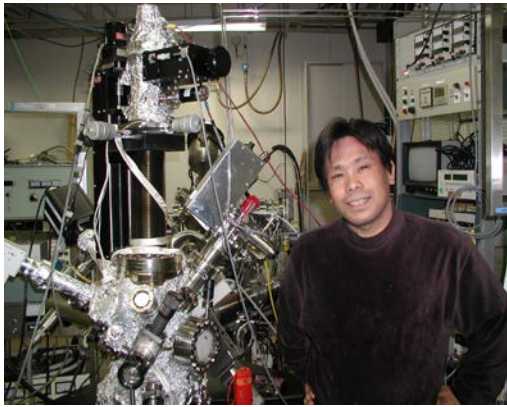
現在の研究テーマ

- ・レーザ MBE 法を用いた遷移金属酸化物人工格子(強磁性体関連)・デバイスの構築
- ・機能調和人工格子による超五感センサ・脳型メモリの創成
- ・DNA を用いたナノ構造・デバイス構築

所属学会 日本物理学会、応用物理学会、アメリカ物理学

会(APS)、材料学会 (MRS)

趣味 日本史、東洋史



松井 裕章 (まつい ひろあき)

略歴

1973 年広島県生まれ

1996 年佐賀大学理工学部物理学科を卒業、

2001 年佐賀大学大学院博士後期課程修了。

この間、1998-2001 年に産業総合技術研究所九州センターに連携大学院研究生として滞在。

1999-2001 年 日本学術振興会特別研究員。

2001 年マンパワー・ジャパン株式会社派遣研究員 (派遣先：大阪大学産業科学研究所)、

2002 年 1 2 月大阪大学産業科学研究所産業科学ナノテクノロジーセンター科学振興特任教員。

専門分野： 光半導体材料、薄膜結晶成長、蛍光及び応力発光材料

所属学会： 応用物理学会

現在の研究テーマ： ワイドギャップ半導体の価電子制御及び結晶成長
＜産業界に貢献できる基盤技術の確立を目指す。＞

研究概要

・機能性酸化物薄膜の Si デバイスへの融合

磁性や誘電性など機能の宝庫である機能性酸化物と、現代のエレクトロニクスを支える Si 素子とを融合することは、エレクトロニクスと光・通信技術の融合を可能するキーテーマリアルとして大変有望である。我々は、Si (100) にエピタキシャル成長する TiN に、耐酸化特性向上のための Al をドーピングした Ti (Al)N を中間層として、Si 基板上に酸化物系の Bi 強誘電体のエピタキシャル成長に成功した。

図 1 に TiN 層をバッファーとして形成した $\text{Bi}_2\text{VO}_{5.5}$ 強誘電体薄膜の XRD および AFM 像を示す。Si 基板上にエピタキシャル成長した強誘電体薄膜が約 $6\text{\AA}$ の分子層ステップを有して結晶成長していることが分かる。この強誘電体薄膜は約 $5\mu\text{C}/\text{cm}^2$ の残留分極を示した。

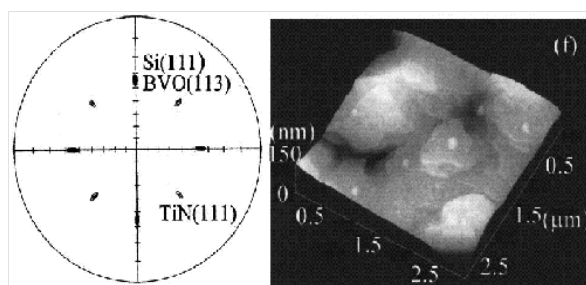


図 1. $\text{Bi}_2\text{VO}_{5.5}/\text{TiN}/\text{Si}(100)$ ポールフィギア (左)
および AFM 像 (右)

・適応学習メモリ：極薄シリコン酸窒化層を用いた強誘電体薄膜メモリ

表面化学処理を施し原子スケールで平坦化した Si 基板上に、独自に開発した低エネルギー窒素プラズマ装置により約 1nm の酸窒化 (SiON) 極薄膜を成長させ、これを中間層として強誘電体 $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ 薄膜を形成した。 SiON 極薄膜は 700°C 、100mTorr の酸化処理に対して極めて安定であり、原子レベルで平坦な界面を保持し、 SiO_2 層の成長は見られなかった。この酸化条件下であれば、他の多くの機能性酸化物薄膜形成が可能であり、この極薄 SiON 薄膜技術はシリコンの高機能化インテグレーションに大きな可能性を拓く要素技術である。強誘電体薄膜/ SiON/Si は実用上十分なメモリ特性を示し、界面準位は $\sim 10^{11}\text{cm}^{-2}\text{eV}^{-1}$ と見積もられた (図 2)。 SiON は SiO_2 に近い 8eV 程度の大きなバンドギャップを有するため、 BaTiO_3 や PZT 等の比較的バンドギャップの小さな (3~3.5eV) 強誘電体のエピタキシャル成長時に問題となる、バンド不連続性 (有効バリア高さ) が十分に補償される魅力的な材料である。

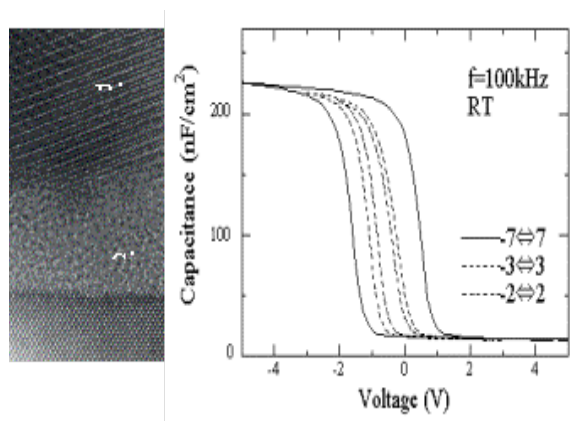


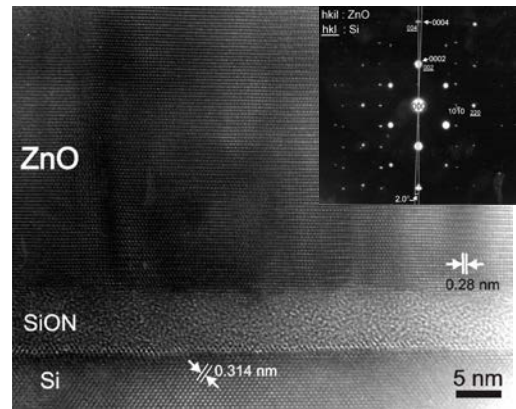
図 2. Bi 強誘電体/ SiON/Si の TEM、C-V 特性

・透明なトランジスタの実現：

ワイドギャップ半導体 ZnO-TFT

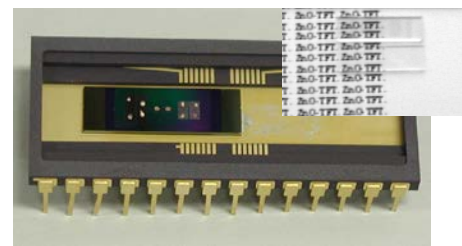
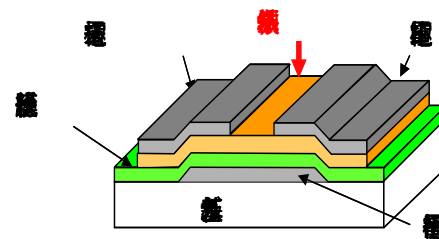
酸化亜鉛(ZnO)は、バンドギャップ 3.3eV を持ち、可視光に対して透明な酸化物半導体である。4) で示した極薄 SiON 中間層を介して、ZnO 薄膜が Si 基板上にエピタキシャル成長することを見つけた。(図 3 参照)

図 3. ZnO/SiON/Si 接合 TEM 写真 →



さらに我々は、現有の酸化物材料において現在可能な極限の不純物制御 (7N) により ZnO チャンネル部を、Si 基板 or ガラス基板上 ZnO-TFT を作製した。図 4 にボトムゲート式の透明薄膜トランジスタの模式図および、実際 Si 素子上に形成したデバイス写真を示す。

図 4. ZnO 透明薄膜トランジスタ (TFT) →



作製した透明 ZnO-TFT は、エンハンスメント型 (ノーマリーオフ) トランジスタ特性を示し、オフ電流 10^{-11} A 以下、ON/OFF 比が 6 桁あり、閾値電圧が約 2V の極めて良好なトランジスタ特性を示した (図 5)。この値は、現在市販品として実用化されているアモルファス TFT と比較しても全く遜色のないデータであり、現実の使用に十分耐えうる透明 TFT 素子を実際に作製・検証することができた。

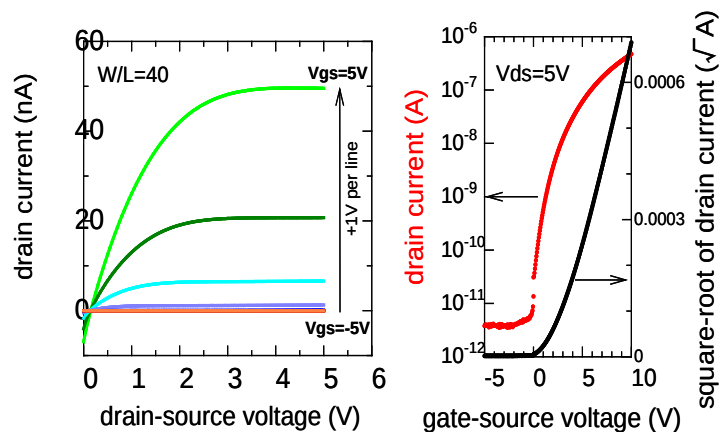


図 5. ZnO-透明 TFT のトランジスタ特性

・スピニエレクトロニクス実現に向けた酸化物磁性半導体の薄膜形成

従来の半導体が取り扱っていた電荷に加えて、スピンをも併せて制御しようとする試み

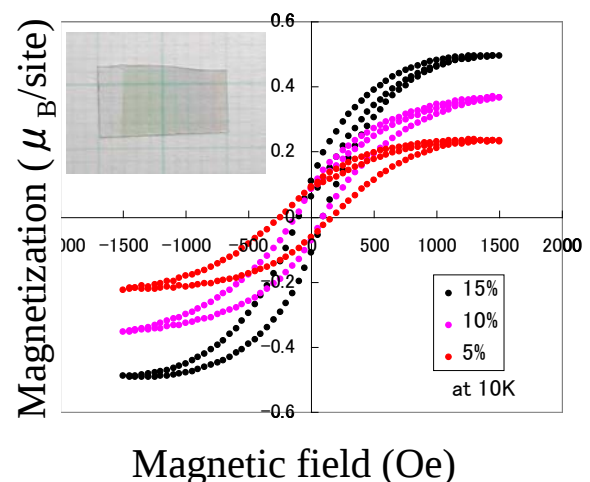
がスピントロニクスとして注目されている。GaAs, CdTe 等の化合物半導体に、Mn 等の遷移金属を置換することにより磁性付与しようとするものである。特に GaN および ZnO 等のワイドギャップ半導体に Mn や Co 等を導入することで室温以上の T_c を有する磁性半導体が理論的に予測されている。

われわれは、レーザーを用いた非平衡薄膜形成手法により、V イオンを ZnO に導入することにより、図 6 に示すような透明磁性体を合成することに成功した。

図 6. 透明磁性半導体 V-ZnO 薄膜→

現在のエレクトロニクスを支える機能素子は、Si-SiO₂ や GaAs 等に代表される半導体の不純物や欠陥濃度の極限制御と、高集積、3次元化を含む極限微細構造制御により支えられている。一方、機能の多様性および巨大物性の観点から、酸化物は魅力的な物質群である。High-k 材料としての高誘電体や、記憶保持機能を担う強誘電体や磁性体、さらには強誘電性—磁性が共存している強磁性強誘電体など、多数の興味深い物質が存在する。これらの物質を“物性の対象として面白いもの”から、“役に立つデバイス”へと変身させるためには、シリコン素子へのインテグレーションが不可欠であり、そのポイントはこれらヘテロ材料を如何に繋ぐかという「極限の界面制御」にあるといえる。

我々は、ボトムアップのスキームに則り、我々は界面の高次制御を心掛けた強誘電体メモリーの開発を手掛けてきた。僅か 1 nm 厚の SiON バッファ層を挿入した Si 基板 BiT 強誘電体メモリーは良好な界面特性を示唆する電気特性データを示し、挿入による電特向上効果を明らかにした。SiON 層挿入効果は、BiT-Si 界面における化学反応の抑制にあり、わずか膜厚 1 nm 程度の SiON バッファ層が Si と強誘電体薄膜の界面特性を上させ、両物質の機能を高次に調和させることを明らかにした。機能性酸化物にとどまらず、バイオ分子等のシリコンへのインテグレーションにも積極的に展開していきたい。



・インテリジェント五感センサ

生体は、外部からの光、音、圧力などの情報を五感を通して検出し、その情報は、電気信号と化学反応の形で中枢へと伝達され、そこで、認識・判断が下されたあと、記憶として保存される。この様な光、磁場、温度など様々な情報を検知して、重要な情報を記憶しておける人間の脳のような情報処理が出来るインテリジェントセンサを、ナノメートルのスケールで有機、無機の機能材料を組み合わせる事により作製する事も一つの目標である。

人の目に対応するのは光センサであるが、これをメモリと一体化させた適応学習センサ・メモリを作製し、検出→不揮発性記憶→読み出しのデモンストレーションを行った。

この光(視覚:センサ)→学習記憶(脳:メモリ)の機能を模倣する具体的な素子構成は図7(a)の様である。可視域に優れた吸収特性をもち、高効率な光伝導特性を有する有機物質(銅フタロシアニン: CuPc)と、大きな分極特性を持つ無機強誘電体 ($\text{Pb}(\text{Ti}, \text{Zr})\text{O}_3$)、さらに強磁性半導体である ($(\text{La}, \text{Ba})\text{MnO}_3$) を集積した多層薄膜センサである。光照射により有機層内で生じた起電力で、強誘電体中の残留分極特性が誘起され保持される。(図7(b))。即ち光情報の記憶である。この強誘電体層は、トランジスタ構造のゲート部を担っているため、この分極の変化(電界効果)に対応して強磁性半導体のキャリア濃度が変化し電気伝導性が変化し、強誘電層に蓄えられた情報を読み出すことが出来る。図7(c)は光入力に対する磁性半導体層の変化を示す。素子への電圧

印加状態で光を照射する事により、ソースドレイン間抵抗が上昇する。光照射を止め、更に電圧印加を停止しても、ソースドレイン間抵抗は保持され光情報が記憶されている

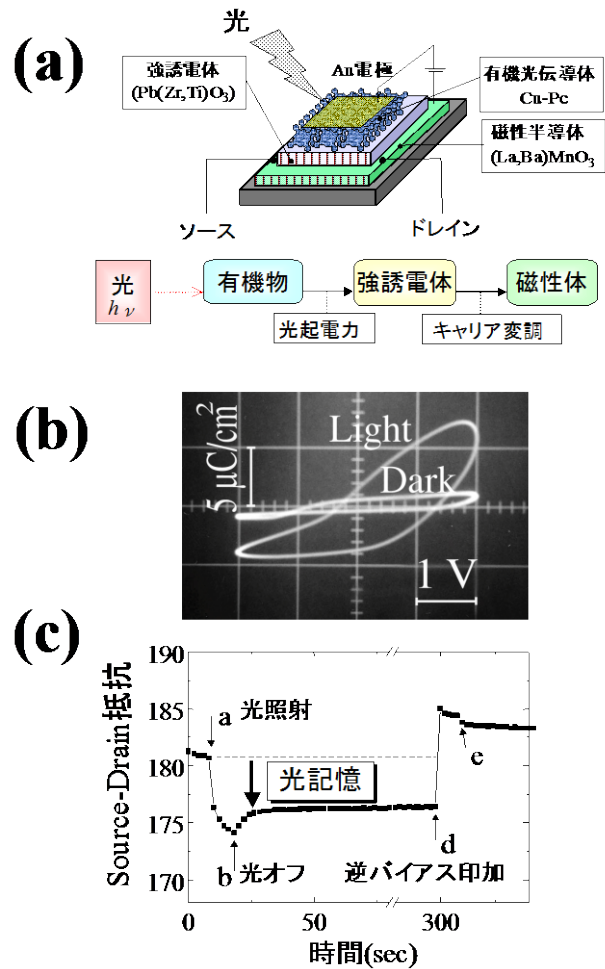


図7 光センサ脳型メモリ (a)デバイス構成図、(b)強誘電体($\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$)層への光情報記憶 (c)磁性半導体($(\text{La}, \text{Ba})\text{MnO}_3$)層からの情報読み出し

事が分かる。このように界面を通じて情報を伝達する、即ち、光の情報を分極情報として蓄え、伝導性変化の情報として取り出すセンサ・メモリが作製可能となる。

・ナノ磁性粒子-DNA ネットワーク

DNA は生体に重要な分子であるだけでなく、その塩基配列によってアドレスを持つ情報記憶分子と捉える事が出来る。またマイカ等の基板上に自己組織化により広範なネットワーク構造を作製する事が出来る。図 8 は DNA ネットワーク中に強磁性 Co ナノ粒子（直径 12nm）を導入したナノ磁性粒子-DNA ネットワークの AFM 像である。DNA ネットワーク中にナノ粒子が取り込まれていることが分かる。更に周波数シフト方式の非接触磁気力顕微鏡（NC-MFM）による磁気力像を観察する事に成功した。磁気力顕微鏡像中で白く（高く）画像化されている部分は磁力線の向きが上向きに、黒く（低く）画像化されている部分は下向きになっていると考えられる。

現在は未だ塩基配列を設計していない為、距離は遠く、間隔は不均一であるが、今後容易に大面積に DNA の塩基配列で決まる非常に短い距離(最小 0.4nm)を精確に制御したナノ粒子系やそれを利用したナノスケールでの磁気記録デバイスを構築する事が可能となると考えられる。

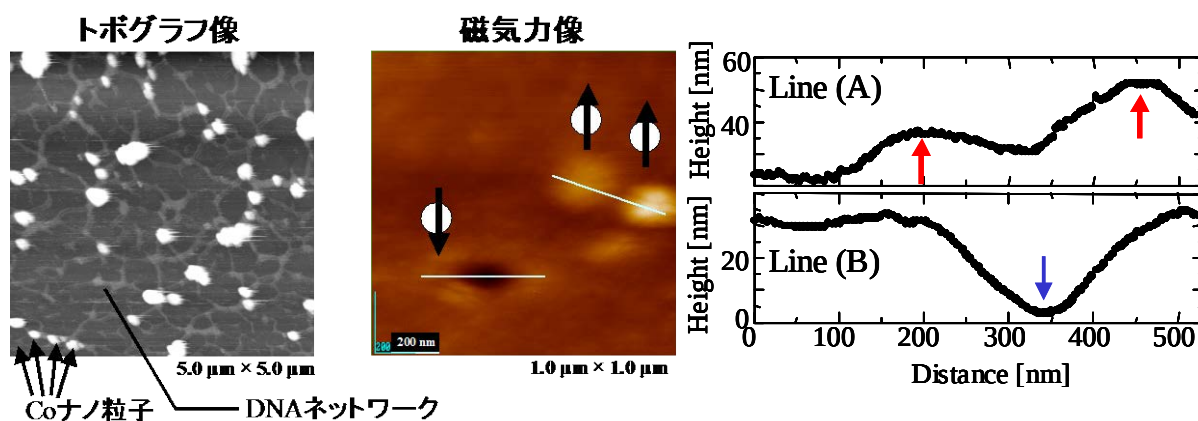


図 8 Co ナノ粒子—DNA ネットワーク複合体の AFM、MFM 像

論文

1. p-Type conduction in transparent semiconductor ZnO thin films induced by electron cyclotron resonance N₂O plasma
X.L.Guo, H.Tabata and T.Kawai
Optical Materials, 19 (2002) 229-233.
2. Determination of the optimal cation composition of ferroelectric (Zn_xCd_{1-x})S thin films for applications to silicon-based nonvolatile memories
Y.Hotta, E.Rokuta, J.-H.Choi, H.Tabata, H.Kobayashi and T.Kawai
Appl.Phys.Lett., 80 (2002) 3180-3182.
3. Self-assembled dye-DNA network and its photoinduced electrical conductivity
J.H.Gu, S.Tanaka, Y.Otsuka, H.Tabata and T.Kawai
Appl.Phys.Lett., 80 (2002) 688-690.
4. Influence of Humidity on the Electrical Conductivity of Synthesized DNA Film on Nanogap Electrode
Y.Otsuka, H.Y.Lee, J.H.Gu, J.O.Lee, K.H.Yoo, Hide.Tanaka, H.Tabata and T.Kawai
Jpn.J.Appl.Phys., 41 (2002) 891-894.
5. Enhancement of remanent polarization in epitaxial BaTiO₃/SrTiO₃ superlattices with “asymmetric” structure
T.Shimuta, O.Nakagawara, T.Makino, S.Arai, H.Tabata and T.Kawai
J.Appl.Phys., 91 (2002) 2290-2294.
6. Dependence of dielectric and ferroelectric behaviors on growth orientation in epitaxial BaTiO₃/SrTiO₃ superlattices
O.Nakagawara, T.Shimuta, T.Makino, S.Arai, H.Tabata, T.Kawai
Vaccum, 66 (2002) 397-401.
7. Electric conductivity of dye modified DNA films with and without light irradiation in various humidities
J.H.Gu, L.T.Cai, S.Tanaka, Y.Otsuka, H.Tabata and T.Kawai
J.Appl.Phys., 92 (2002) 2816-2820.
8. Photo-induced ferroelectric hysteresis curve in organic CuPc photoconductor/inorganic BaTiO₃ ferroelectric heterojunction photomemory
Y-G Park, H-Y Lee, Hide.Tanaka, H.Tabata and T.Kawai

Appl. Phys. Lett., 81 (2002) 1318-1320.

9. Epitaxial growth and optoelectronic properties of nitrogen-doped ZnO films on (11-20)Al₂O₃ substrate
X.L.Guo, H.Tabata and T.Kawai
J.Cryst.Growth, 237-239 (2002) 544-547.
10. Preparation of La_{0.9}Sr_{0.1}Ga_{0.85}Mg_{0.15}O_{2.875} thin films by pulsed-laser deposition and conductivity studies
M.Joseph, P.Manoravi, H.Tabata and T.Kawai
J.Appl.Phys., 92 (2002) 997-1001.
11. Characteristics of mechanically tunable superconductive resonators
S.Mine, M.Terakago, T.Sakatani, S.Hontsu, H.Nishikawa, A.Fujimaki, M.Nakamori, H.Tabata and T.Kawai
Supercond.Sci.Technol., 15 (2002) 635-638.
12. Preparation of directly stacked YBa₂Cu₃O_{7- δ} /oxide magnetic material thin films on Al₂O₃(0001) substrate
H.Nishikawa, S.Hontsu, T.Sakatani, M.Nakamori, M.Terakago, S.Mine, H.Tabata, T.Kawai
Supercond.Sci.&Tech., 15 (2002) 170-173.
13. Synthesis of Poly(dA) • Poly(dT) DNA without structural defects using enzymatic reaction; Tailored ligated Poly(dA) • Poly(dT)
S.Tanaka, S.Fujiwara, Hiro.Tanaka, M.Taniguchi, H.Tabata, K.Fukui and T.Kawai
Chem. Commun., (2002) 2330-2331.
14. Toward the DNA electronics
H.Tabata, L.T.Cai, J.-H.Gu, S.Tanaka, Y.Otsuka, Y.Sacho, M.taniguchi, T.Kawai
Synthetic Metals, 9480 (2002) 1-4.
15. Giant electric field modulation of double exchange ferromagnetism at room temperature in the perovskite manganite/titanate p-n junction.
Hide. Tanaka, J. Zhang and T. Kawai
Phys. Rev. Lett. 88, 027204 (1-4). (2002).
16. Control of electrical conduction in DNA using oxygen hole doping.
H. Y. Lee, Hide. Tanaka, Y. Otsuka, K. Yoo, J. Lee and T. Kawai
Appl. Phys. Lett. 80, 1670- 1672 (2002).

17. Rectifying characteristic in all-perovskite oxide film p-n junction with room temperature ferromagnetism.
J. Zhang, Hide. Tanaka and T. Kawai
Appl. Phys. Lett. 80, 4378-4380 (2002).

18. Photo-induced ferroelectric hysteresis curve in organic CuPc photoconductor/inorganic BaTiO₃ ferroelectric heterojunction photomemory.
Y. G. Park, Y. Lee, Hide. Tanaka, H. Tabata and T. Kawai
Appl. Phys. Lett. 81, 1318-1320 (2002).

19. Formation of Co nanoclusters in epitaxial Ti_{0.96}Co_{0.04}O₂ thin films and their ferromagnetism.
D. H. Kim, J. S. Yang, K. W. Lee, S. D. Bu, T.W. Noh, S. J. Oh, Y. W. Kim, J. S. Chung, Hide. Tanaka, H. Y. Lee and T. Kawai
Appl. Phys. Lett. 81, 2421-2423 (2002).

20. Enhanced luminescence and photomagnetic properties of surface-modified EuO nanocrystals.
Y. Hasegawa, S. Thongchant, Y. Wada, Hide. Tanaka, T. Kawai, T. Sakata, H. Mori and S. Yanagida
Angew. Chem. Int. Ed. 41, (2002) 2073-2075.

21. Perovskite alloying in SrTiO₃-(La,Sr)MnO₃ solid solution films and their electrical transport properties.
Hide. Tanaka, K. Betsuyaku, H. Katayama-Yoshida and T. Kawai
Solid State Commun. 122, 677-680 (2002).

22. Growth mode of (111) oriented spinel type ZnFe₂O₄ thin film by laser-molecular beam epitaxy technique.
Hide. Yahiro, Hide. Tanaka, Y. Yamamoto and T. Kawai
Solid State Commun. 123, 535-538 (2002).

23. Influence of microstructures on exchange bias behaviors of La_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃/La_{0.33}Ca_{0.67}MnO₃ bilayers.
D. -W. Kim, T. W. Noh, Hide. Tanaka and T. Kawai
Solid State Commun. 122, 305-309 (2002).

24. Effect of B-site substitution on the critical behavior in La_{0.7}Ca_{0.3}MnO₃.
X. J. Liu, Y. Moritomo, A. Nakamura, Hide. Tanaka and T. Kawai
J. Phys. Soc. Jpn. 71, 1648-1650 (2002).

25. Construction of $\text{ZnFe}_2\text{O}_4/\text{ZnGa}_2\text{O}_4$ spinel-type artificial superlattice by pulsed laser deposition.
H. Yahiro, Hide. Tanaka, Y. Yamamoto and T. Kawai
Jpn. J. Appl. Phys. 41, 5153-5154 (2002).
26. Influence of humidity on the electrical conductivity of synthesized DNA film on nanogap electrode.
Y. Otsuka, H. Y. Lee, J. -H. Gu, J. O. Lee, K. H. Yoo, Hide. Tanaka, H. Tabata and T. Kawai
Jpn. J. Appl. Phys. 41, 891-894 (2002).

国際会議抄録（プロシーディング）

1. Magnetism of transition-metal doped ZnO thin films
H.Saeki, H.Tabata, and T.Kawai
Proc. of the 8th Physics and application of spin-related phenomena in semiconductors, (2002) 65-68.
2. Effect of chemical doping with Ga and N on electrical and optical properties of ZnO thin films
H.Matsui, H.Tabata and T.Kawai,
Ext. Abstract of the 2002 Int. Conf. of SSDM, Nagoya, (2002) 362-363.

解説・総説

1. 極限界面制御による機能性材料—シリコン インテグレーション
田畑 仁、川合 知二
Semiconductor FPD World、5 (2002) 63-65.
2. DNA ナノテクノロジー
田畑 仁、川合 知二
応用物理、71 (2002) 1007-1013.

著書

1. マイクロマシン

田畑 仁、川合 知二（分担執筆）
産業技術サービスセンター、（2002） 294-303.

2. イオン工学ハンドブック
田畑 仁、川合 知二（分担執筆）
共立出版、（2002） 933-937.

国際会議

1. ★Physical properties of DNA molecules –Toward a DNA molecular device-
H.Tabata
Joint Japan-US Molecular Electronics Workshop (Arizona,USA) 2002.3.6-8
2. ★Magnetic ordering in transition metal doped ZnO
H.Tabata, H.Saeki, K.Ueda and T.Kawai
APS March Meeting 2002 (Indianapolis, USA) 2002.3.20
3. ★Control of the ordered-disordered state of B-site ions in ferroelectric relaxor superlattices
H.Tabata, Y.Hotta and T.Kawai
The 4th Japan-Korea Conference on Ferroelectrics (Osaka) 2002.8.22
4. ★Toward the DNA electronics
H.Tabata and T.Kawai
AVS 49th International Symposium (第 49 回アメリカ真空協会国際シンポジウム) (Denver, USA)
2002.11.7
5. Effect of ultra-thin(1nm) SiON buffer layers and/or TiN layers on epitaxial growth and electrical properties of Bi-based ferroelectric films on Si(100) and (111) surfaces
H.Tabata, E.Rokuta, Y.Hotta and T.Kawai
2002 MRS Fall Meeting (Boston, USA) 2002.12.2
6. Ferroelectric relaxor superlattices –control of the ordered- disordered state of B-site ions
H.Tabata, Y.Hotta and T.Kawai
2002 MRS Fall Meeting (Boston, USA) 2002.12.4
7. ★Functionally Harmonized Superlattices of Transition Metal Oxides and Their Hetero Epitaxy on Si Wafers
H.Tabata, Y.Hotta, E.Rokuta, H.Saeki, M.Seki, H.Matsui, H.Kobayashi and T.Kawai
International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2002 (Osaka)

2002.12.12

8. ★Functionally harmonized films and superlattices of metal oxides (ZnO and Perovskites) formed by a laser MBE technique
H.Tabata
Workshop on ZnO Thin Films (Korea) 2002.12.20
9. ★Creation of bio-mimetic sensors and brain type memories by function harmonized materials
Hide. Tanaka and T. Kawai
Second International Symposium on Biomimetic Materials Processing (Nagoya) 2002.1.19
10. ★Magneto-transport properties in the heterojunction diodes based on the perovskite manganites with room temperature ferromagnetism
Hide. Tanaka and T. Kawai
The 8th Colossal Magnetoresistance Workshop(Muju, Korea) 2002.2.19
11. ★Spintronic devices with room temperature ferromagnetism based on perovskite manganites
Hide. Tanaka and T. Kawai
The 9th Oxide Electronics Workshop (Florida, USA) 2002.10.21
12. ★DNA Nanotechnology: Application for Nanoscale Molecular Circuit and Genome Detection
H. Y. Lee, Hide. Tanaka, and T. Kawai,
Korean Physical Society-2002 Fall meeting (Seoul, Korea) 2002.10.24
13. Control of electrical conduction in DNA using hole doping
H. Y. Lee, M. Taniguchi, K. H. Yoo, Y. Otsuka, H. Tanaka, and T. Kawai
American Physical Society March meeting, (Indianapolis, USA) 2002.3.17.
14. Genome detection without Indicator and Electrochemical response
H. Y. Lee, Y. S. Choi,, Hide. Tanaka, and T. Kawai
American Physical Society March meeting (Indianapolis, USA) 2002.3.17
15. Genome Detection without Indicator and electrochemical response
H. Y. Lee, Y. S. Choi, Hide. Tanaka, and T. Kawai
Pep Talk, (San Diego, U.S.A.) 2002.1.10
16. Electric Field Modulation of Double Exchange Ferromagnetism At Room Temperature in the Perovskite Manganite Based Spintronic Device

Hidekazu Tanaka, Teruo Kanki, Jun Zhang, Tomoji Kawai
MRS Fall Meeting (Boston, USA) 2002.12.5

17. Development of the nano-scale magnetic domain in magnetoresistive (La,Ba)MnO₃ proved by non contact magnetic force microscope
Teruo Kanki, Yasuhisa Naitoh, Hidekazu Tanaka, Takuya Matsumoto and Tomoji Kawai
7th international conference on nanometer-scale science and technology (nano-7) and 21st European conference on surface science (ecoss-21) (Malmo, Sweden) 2002.1.24-28
18. Photoinduced ferroelectric hysteresis curve in organic photoconductor/inorganic ferroelectric heterojunction photomemory
Y. G. Park, H. Y. Lee, Hide. Tanaka, H. Tabata and T. Kawai
The 4-th Japan-Korean Conference on Ferroelectrics (Osaka) 2002.8.21
19. CuPc/PbZr_{0.2}Ti_{0.8}O₃/(La,Ba)MnO₃ FET heterojunction photomemory
Y. G. Park, T. Kanki, H. Y. Lee, Hide. Tanaka and T. Kawai
The 9th Oxide Electronics Workshop (Florida, USA) 2002.10.21
20. Nonvolatile and nondestructive photomemory in FET structure using organic CuPc photoconductor/inorganic PbZr_{0.2}Ti_{0.8}O₃ ferroelectric heterojunction gate
Y. G. Park, T. Kanki, H. Y. Lee, Hide. Tanaka and T. Kawai
Korean Physical Society Fall Meeting (Seoul, Korea) 2002.10.26
21. Electrochemical detection of non-labeling DNA using electronic array,
H. Y. Lee, Y. S. Choi, Hide. Tanaka, and T. Kawai,
Material Research Society Fall meeting (Boston, USA) 2002.12.4
22. DNA Directed Magnetic Network Formations with Ferromagnetic Nanoparticles,
H. Y. Lee, Y. Sacho, T. Kanki, Hidekazu Tanaka, H. Shirakawa, J. W. Cheon, J. H. Yoon, N. J. Kang, I. Park, and T. Kawai,
Material Research Society Fall meeting (Boston, USA) 2002.12.6

国内会議

1. ★遷移金属酸化物人工格子におけるスピン制御
田畑 仁
科学研究費特定領域「集積型金属錯体」若手講演会（熱海）2002. 2. 21-22
2. ★極限界面制御による機能性酸化物－シリコンインテグレーション

田畑 仁、川合 知二

2002 年春季第 49 回応用物理学関係連合講演会 シンポジウム講演（神奈川）
2002. 3. 28

3. ★高次機能調和スピンエレクトロニクスの可能性

田畑 仁

「物質科学とシステムデザイン」特別研究 量子スピンエレクトロニクス及び分子・有機エレクトロニクス合同分科会（京都）2002. 6. 22

4. ★薄膜・表面評価技術

田畑 仁

日本学術振興会薄膜第 131 委員会 第 19 回薄膜スクール（つくば）2002. 7. 5

5. ★ナノバイオデバイスの先端技術

田畑 仁

（株）島津製作所基盤技術研究所「ナノバイオデバイスの先端技術講演会」（京都）
2002. 7. 9

6. ★機能性セラミックス人工格子の磁性・強誘電特性

田畑 仁

東京工業大学 応用セラミックス研究所 客員教官講演会（横浜）2002. 7. 14

7. ★STM, AFM を利用した、バイオ関連分子（DNA 中心）のナノ構造、電子状態評価

田畑 仁

日本表面科学会関西支部セミナー（大阪）2002. 9. 12

8. ★五感センサーとナノテクノロジー

田中 秀和、川合 知二

第 19 回「センサ・マイクロマシンと応用システム」シンポジウム（京都）2002. 5. 30

9. Genome Detection Using Non-labeling Target DNA and Electrochemical

H. Y. Lee, Y. S. Choi, M. Taniguchi, A. Yao, Hide. Tanaka, H. Tanaka and T. Kawai
2002Spring Conference of Japan Society of Chemistry, (Tokyo) 2002. 3. 21

10. 強相関電子系 (La, Ba)MnO₃ における異常ホール効果を用いた磁気特性評価

神吉 輝夫、田中 秀和、川合 知二

第 49 回春季応用物理学関係連合講演会（神奈川・東海大学）2002. 3. 27-30

11. 雰囲気制御されたDNAネットワーク構造の電気特性測定

寺脇 歩、李 恵りょん、大塚 洋一、内藤 泰久、田中 秀和、松本 卓也

応用物理学会（神奈川・東海大学）2002. 3. 29

12. 光伝導体／強誘電体ヘテロ接合不揮発性光メモリの作製とその特性評価
朴 影根、李 恵りょん、田中秀和、田畑 仁、川合知二
春季応用物理学会（神奈川・東海大学）2002. 3. 30
13. スピネル型酸化物人工格子の磁気特性
八尋 博士
日本物理学会 2002 春季大会（滋賀・立命館大学草津キャンパス）2002. 3. 25
14. 強相関電子系 Mn 酸化物の FET 作製と評価
神吉 輝夫、朴 影根、田中 秀和、川合 知二
第 57 回秋季日本物理学会（愛知・中部大学）2002. 9. 6-9
15. 有機光伝導体／強誘電体／強磁性半導体不揮発性光メモリの作製（II）
朴 影根、神吉輝夫、李 恵りょん、田中秀和、川合知二
秋季応用物理学会（新潟・新潟大学）2002. 9. 24
16. 周波数シフト MFM による室温強磁性 (La, Ba) MnO₃ 薄膜のナノスケール磁性観察
神吉 輝夫、朴 影根、田中 秀和、川合 知二
第 63 回応用物理学会学術講演会（新潟・新潟大学）2002. 9. 24-27
17. 強相関電子系強磁性体 (La, Ba) MnO₃ 電界効果トランジスタの作製
田中秀和、神吉輝夫、朴 影根、川合知二
第 63 回応用物理学会学術講演会（新潟・新潟大学）2002. 9. 25
18. DNA/金属微粒子複合体の形成：表面電荷制御と電子特性
山田郁彦、佐長裕、田中秀和、松本卓也、川合知二
第 22 回表面科学講演大会講演（東京・早稲田大学）2002. 11. 26
19. レーザーアブレーション法によるシアン化合物の薄膜化
山本洋平、田中秀和、川合知二
日本化学会春季年会（東京・早稲田大学）2002. 3. 27
20. 電場による非標識 DNA による電気化学的な遺伝子検出
Lee HeaYeon, Choi YongSung, 田中 秀和、川合 知二
2002Fall Conference of Japan Society of Chemistry（大阪）2002. 9. 21

特許

【国内特許】

強磁性体半導体接合素子

田中 秀和、川合 知二

特願2002-86928

電界効果トランジスタ

田中 秀和、神吉 輝夫、朴 影根、川合 知二

特願2002-260536

【国際特許】（米国）

薄膜結晶の形成方法とそれを用いた半導体素子

国際出願番号：PCT/JP02/02685

田畑仁、川合知二

共同研究、学会活動

田畑 仁

【共同研究】

東京大学大学院 理学研究科 藤森教授

大阪府立大学 工学研究科 藤村助教授

東京工業大学 応用セラミックス研究所 吉本助教授

名古屋大学 工学研究科 田中教授、平野教授、坂本助教授

大阪大学 産研 吉田教授、谷口教授、弘津教授、小林教授、朝日教授

大阪大学大学院 工学研究科 福井教授

京都工芸繊維大学 工学部 播磨教授

広島大学大学院 歯学研究科 岡崎教授

近畿大学 生物理工学部 本津教授

【学会活動・委員等】

The 9th International workshop on oxide electronics(2002.10.20-23・フロリダ)・プログラム委員

The 4th Japan-Korea Conference on Ferroelectrics (2002.8.21-23・大阪)・オーガナイザー、プログラム委員

IUMRS-ICAM2003 第8回 IUMRS 先進材料国際会議 (Int. Conf. on Advanced Materials) (2003.10.8-13・横浜)・Contact Chair

The Seventh International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures (2003. 11. 16-20) ・セッションオーガナイザー、出版委員

農林水産省 プロジェクト研究「生物機能の革新的利用のためのナノテクノロジー・材料技術の開発」評価会委員

日本学術振興会 薄膜第 131 委員会企画委員

(社) 応用物理学会 JJAP 2002 年度 編集委員

(社) 応用物理学会 「応用物理」編集委員会委員

(財) 大阪科学技術センター 関西ナノテクノロジー推進会議「次世代バイオチップ開発研究会」委員

科学技術振興事業団 さきがけ研究 21 研究者 (兼務)

東京工業大学 応用セラミックス研究所 客員助教授

田中 秀和

【共同研究】

ソウル大学 Prof. T. W. Noh 「強磁性半導体薄膜の作製と評価」

延世大学 J. W. Cheon 「DNA 自己組織化を用いた強磁性ナノ粒子の配列制御」

名古屋大学 守友 浩 助教授「ペロブスカイトMn酸化物のポンプ&プローブ分光」

大阪大学 工学部 長谷川 靖 助手 「ナノ粒子の光誘起磁性」

【学会活動・委員等】

応用物理学会 講演会プログラム編集委員 (2002年～2006年)

(領域 8 “応用物性” および合同セッション E “スピントロニクス” 世話人)

科研費・助成金等

田畑 仁 科学研究費補助金 特定領域研究(2) (計画研究・代表)
「完全界面制御プロセスによる機能調和素子創成」

田畑 仁 科学研究費補助金 特定領域研究(2)
「人工格子 2 次元系における電界・光誘起超伝導」

田畑 仁 科学研究費補助金 基盤研究(C) (2)

「有機／無機ヘテロ格子を用いた情報伝達人工格子形成と
超五感センサ・脳型デバイス」

田畑 仁 科学研究費補助金 特定領域研究(B)
「新強誘電体薄膜の探索」

田畑 仁 科学技術振興事業団 個人研究推進事業（さきがけ研究 21）
「秩序－無秩序人工格子による新規誘電性の発現」

田畑 仁 文部科学省 科学技術振興調整費 先導的研究等の推進
『ナノスピントロニクスデザインと創製』
「酸化物磁性半導体ベースのデバイス創製に関する研究」

田畑 仁 NEDO 地域コンソーシアム研究開発事業
「ZnO 半導体薄膜デバイスの開発」

田畑 仁 住友精化株式会社 研究助成
「酸化窒素ガスを用いた酸化物半導体薄膜形成」

田中 秀和 科学研究費補助金、若手研究(B)
「金属酸化物人工格子による強相関電子デバイスの創成」

田中 秀和 科学技術振興事業団、さきがけ研究21、代表
「ナノスケール機能調和人工格子による強相関電子デバイスの創成」

田中 秀和 住友財団
「金属酸化物人工格子による強相関デバイスの創成」

田中 秀和 旭硝子財団
「酸化物人工格子による室温・超巨大磁気抵抗材料の創成」

田中 秀和 村田学術振興財団
「酸化物人工格子による室温・超巨大磁気抵抗材料の創成」

田中 秀和 島津科学技術振興財団
「磁気光学効果を用いた動的スピントロニクスデバイス評価装置の開発」

田中 秀和 ホソカワ粉体工学振興財団
「DNAプログラム自己組織化によるナノ粒子光磁気材料の創製」

単分子素子集積デバイス分野



川合 知二 (かわい ともし)

1946年神奈川県生まれ。

1969年東京大学理学部化学科卒業、

1974年東京大学理学系研究科博士課程
修了(理学博士)。

国立分子科学研究所助手、大阪大学産業科学研究所助教授を経て、現在、大阪大学産業科学研究所教授。産業科学ナノテクノロジーセンター長。

DNAナノテクノロジーの研究や、磁性、誘電性、超伝導性、及び、光機能を調和させた今までにない特性を発現できる新材料を酸化物人工格子法を用いて開発している。

“科学”をしているときは、いつでも幸せ。走査プローブ顕微鏡によるDNA機能の解明と分子レベルの加工、DNAバイオ分子デバイスの実現、プログラム自己組織化を用いたヒューマンミメティックバイオチップの創成、五感センサと脳型メモリ、神が創ったような“完全な機能調和材料”とヒューマンボディービルディングの創成を目指している。

著書に「消えないICメモリーFRAMのすべて」、ナノテクノロジー入門、ナノテクノロジーのすべてなどがある。

趣味はお寺巡り、真夏のハイキング。

産業科学ナノテクノロジーセンターが本格的に発足し、ボトムアップ・トップダウンが融合したナノサイエンス・ナノテクノロジーの推進に全力を尽くしている。



松本 卓也 (まつもと たくや)

1984年 大阪大学 工学部応用精密化学科卒業

1990年 大阪大学 理学研究科 無機及び物理
化学専攻 後期課程 修了
理学博士 (大阪大学)

1990年 大阪大学 産業科学研究所、教務職員

1991年 大阪大学 産業科学研究所、助手

1998年 大阪大学 産業科学研究所、助教授

2000年 独立行政法人 通信総合研究所 基礎
先端部門関西研究センター併任

専門分野 : 反応物理化学、表面科学、有機薄膜、
遷移金属酸化物

所属学会 : 日本化学会、日本物理学会、

応用物理学会、日本表面科学会、米国
材料学会
趣味： 音楽、民族学

谷口正輝 （たにぐち まさてる）

略歴

1996年 京都大学工学部石油化学科 卒業
1998年 京都大学大学院工学研究科分子工学専攻博士前期課程 修了
2001年 京都大学大学院工学研究科分子工学専攻博士後期課程 修了
工学博士

2001年 日本学術振興会特別研究員（大阪大学産業科学研究所）

2002年 大阪大学産業科学研究所附属産業科学ナノテクノロジーセンター助手

DNAをはじめとする分子の量子伝導を測定し、単一分子デバイスへの応用を目指して研究しています。ナノ領域での分子の電気的、磁氣的性質を測定するには、分子の設計・合成、測定、評価を系統的に行う他に、測定に適する電極や環境を作る必要があります。ナノ領域では、これまで見えなかった分子の新しい顔が見えるのではないかと期待しています。



研究分野

- ・ DNA・修飾DNAの合成と物性
- ・ 分子デバイスの開発
- ・ 微細加工技術を用いたナノ構造体の作製
- ・ 分子の量子伝導

専門分野

物性有機化学、有機伝導体、計算科学

所属学会

日本物理学会、日本化学会、応用物理学会、
高分子学会

趣味 旅行、水泳、車

研究概要

分子スケールデバイスの開発

現在の微細加工技術ではトップダウン方式により更なる微細化技術の研究が進められていますが、その先のサイズ領域における研究開発は不透明です。超高性能デバイスの開発には、数ナノメートルで動作する素子が必要であり、ナノサイズの分子を用いた分子スケールデバイスの開発にも期待が持たれています。また、単一あるいは少数有機分子の機能を利用する分子スケールデバイスは単に小さいというだけではありません。これまで、よく研究されてきた電荷移動錯体や共役高分子などのバンド構造を基礎とした有機導体とは異なり、バリスティック伝導(ballistic conduction)、離散的な分子準位が絡んだ共鳴トンネル(resonant tunneling)、電子強相関(electron correlation)などが重要となります。これらの過程では、振動・電子励起が結合した量子化伝導度(quantum conductance)や分子運動・コンフォメーション変化、酸化・還元が関与する伝導など、分子系特有の多彩な物性が期待できます。

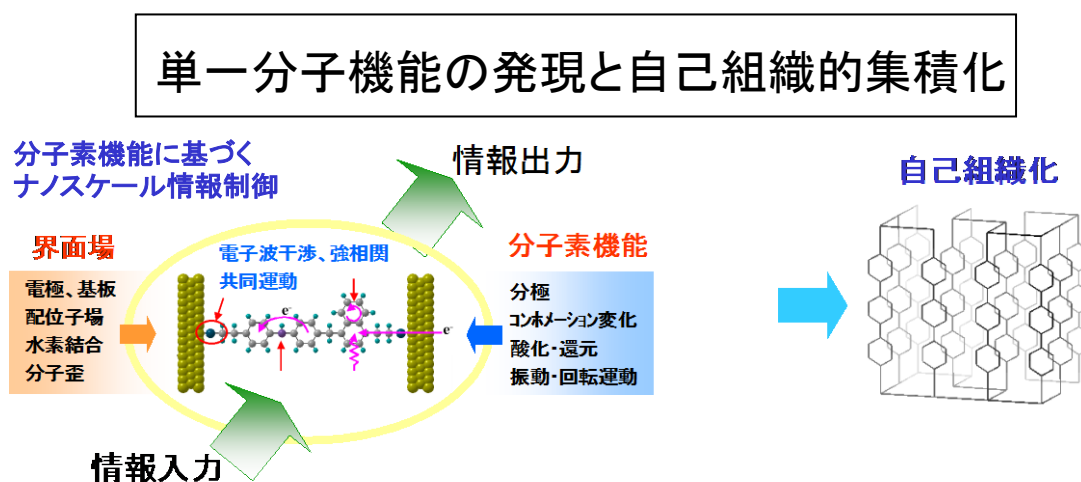


図1. 単分子素子集積デバイスの概念図

以上のように、分子スケールデバイスには、基礎から応用まで学問的に深い広がりを持つ魅力あるテーマですが、分子の機能を引き出すには、分子を組織化することが必要です。我々は、0.4nm 間隔のアドレスを持つ DNA 分子に着目し、その電子物性、構造をナノスケールで制御することで、ボトムアップ方式により分子エレクトロニクスデバイスへの展開を行っています。

さらに、ボトムアップ方式により作った分子組織体をマクロスコピックな電極に結合するためには、リソグラフィなどのトップダウンテクノロジーとの融合が必要になります。また、表面や電極上における分子の構造や電子状態を知るには、走査プローブ顕微鏡の技術が必要になります。我々のグループでは、分子そのものだけでなく、これらの周辺技術まで含めた研究を展開しています。

DNA の電気伝導

DNA は塩基配列により莫大な情報量を蓄えているばかりでなく、自己の生産、拡大および再生といった多彩な機能を持つ高分子であり、塩基対の組み合わせや新しい機能分子の付加が比較的容易に行われ、ナノデバイスの創製および探索に有用な高分子材料（プログラム自己組織化機能を持つ材料）として期待されます。本年度、我々は、DNA エレクトロニクスの可能性を検討するため、DNA の電気伝導特性やドーピングについて検討しました。

配列が制御された Poly(dA)・Poly(dT)、Poly(dG)・Poly(dC) DNA 薄膜を 30 から 50 nm の電極間距離を持つナノ電極の上に形成し、ヨウ素ドーピングを行いました。電流－電圧測定を行ったところ、ノンドープ DNA の電流値は 1 V で 0.1 pA 程度でしたが、その値はドーピング時間とともに増加し、Poly(dG)・Poly(dC) DNA では 100 分後に約 7 千倍に到達しました。ヨウ素ドーピングしたものを比較すると、Poly(dG)・Poly(dC) は Poly(dA)・Poly(dT) より高い伝導度を示しました。さらに、ヨウ素ドーピングした Poly(dG)・Poly(dC) DNA の比抵抗値の時間依存性を測定したところ、ホール伝導とイオン伝導の両方が伝導に寄与していることが明らかとなりました。適切なドーパントにより DNA の電子状態を制御することで、DNA はナノ配線およびナノデバイスへ応用されると期待されます。

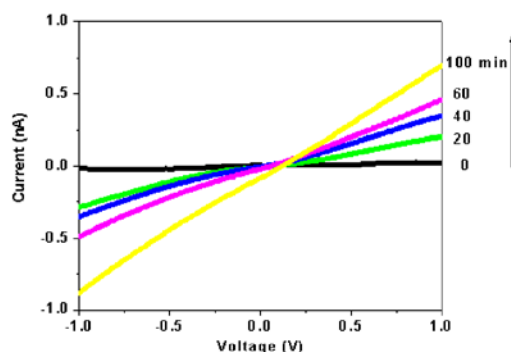


図 2 . ヨウ素ドーピングした Poly(dG)・Poly(dC) DNA の電流－電圧特性のドーピング時間依存性

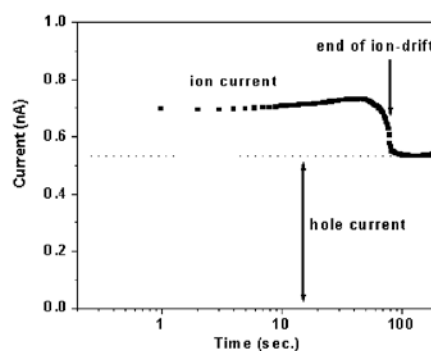


図 3. ヨウ素ドーピングした Poly(dG)Poly(dC) DNA の電流の時間変化

DNA の色素修飾

DNA は、超分子化学の概念に基づく組織体構築の骨組みとしても優れた特質をもっています。塩基部分ではパイスタッキングによるインターカレーションが可能です。また、リン酸部分は多様なカチオン性物質と結合をつくることができます。我々のグループでは、DNA の光機能化を目指して、DNA-ポルフィリン結合体形成を試みました。

ポルフィリンは HOMO-LUMO ギャップが小さいので、光誘起導電性をもつ自己組織的な構造の構築を期待できます。DNA のリン酸基に色素が結合すると、DNA 鎖に沿って全体を色素が覆った芯鞘構造 [芯：2 本鎖 DNA／鞘：色素] が形成されます。CD スペ

クトルをとると、ポルフィリンのQバンドに顕著な旋光性が確認され、ポルフィリンがDNAの周りを覆っていることがわかりました。また、Qバンドのピーク値がシフトしていることから、J-会合体のような遷移モーメント間の相互作用があることがわかり、DNA鎖を包み込むような励起子生成の可能性がある。

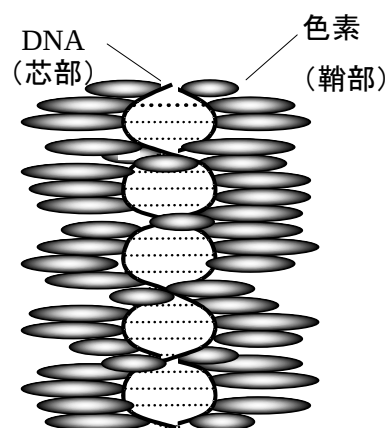


図4. DNA-色素結合体のイメージ

DNA をテンプレートとした金属微粒子の配列

DNA は塩基配列を制御することで、さまざまなナノスケール構造を形成することができます。これをテンプレートとして用いて、金属の微粒子を配列すれば、ナノスケールの回路を構築することが可能になります。そこで、図のように電子トンネルによる伝導性の付与を期待して、DNA に吸着した金微粒子の間を、炭素鎖の短いアルカンジチオールと金の微粒子でつないでいくことを試みました。

まず、マイカ基板上に DNA-金属微粒子混合溶液を滴下、ブローアップすることで金属微粒子を含んだ DNA ネットワークを形成します。次にジチオール溶液および金微粒子溶液を滴下しました。この操作により DNA 上に付着した金微粒子をアンカーとし、ジチオールを介してさらに金微粒子を結合しました。AFM で観察すると、下地の DNA ネットワークに沿って金微粒子が配列しているのが良くわかります。現在、この微粒子配列について電気的特性の測定を進めています。

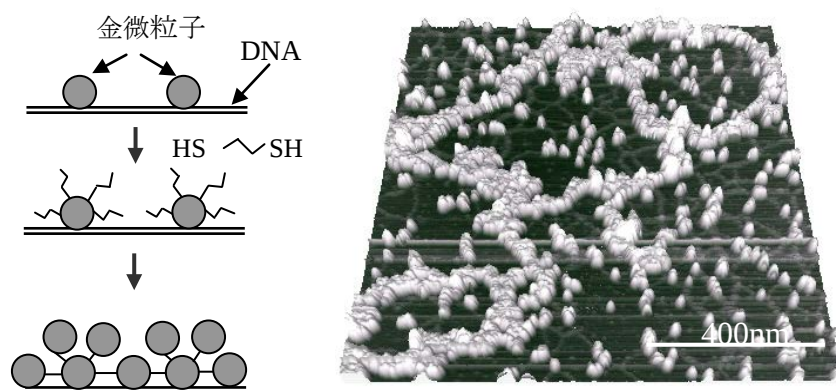


図5. (a) チオールを用いた金微粒子の配列形成、(b) DNA ネットワーク上に配列した金微粒子の AFM 像

微細加工技術を用いたナノ電極の作製

有機分子の自己組織化構造を損なわず、その電気的特性を詳細に評価するためには、絶縁基板面と電極面が同一面内にあるような埋め込み電極が必要です。そこで今年度、電子線リソグラフとクラスターイオンビームにより、 SiO_2 に 100nm 程度のギャップを持つ平坦電極の作製を行いました。

200nm の酸化膜付きシリコンウエハ上に ZEP520 を塗布し、電子線描画により電極パターンを形成します。次に、 CHF_3 を反応ガスとした RIE(Reactive Ion Etching)により、酸化膜に深さ 20-100nm のエッチングを行った後、酸素プラズマによりレジストを除去します。この後、RF マグネトロスパッタリングにより、Ti、Au 膜の順に作製しました。最後に、アルゴンクラスターをイオン源としたクラスターイオンビームを用いて、酸化膜上に堆積した金属のエッチングを行い、電極を平坦化しました。各ドーズ量における電極の AFM 像を図に示します。ドーズ量の増加と共に電極パターンが観測しづらくなることが分かり、 $6 \times 10^{17} \text{ ions/cm}^2$ では電極パターンは観測出来ませんでした。 $6 \times 10^{17} \text{ ions/cm}^2$ のドーズ量における電極の平坦性は 2nm でした。今後、平坦電極を用いて有機自己組織化単層膜 (SAM)、および DNA 等の高分子の電気測定を行っていく予定です。

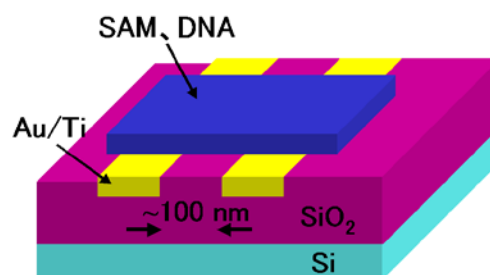


図6． 平坦電極の概念図

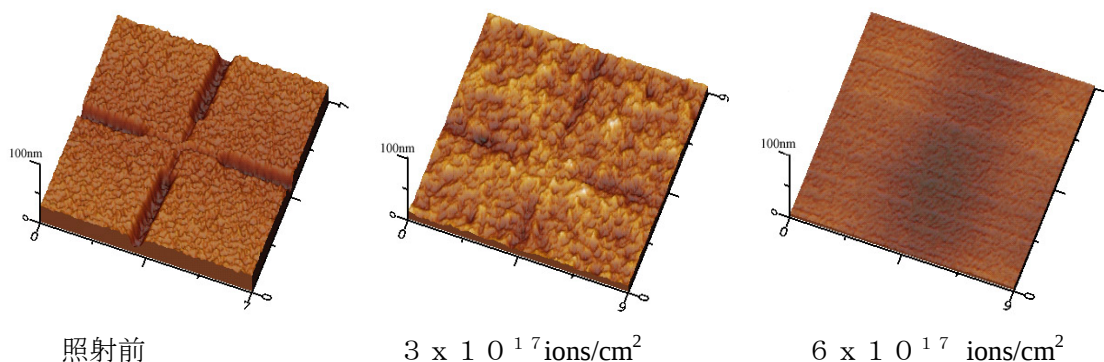


図7． 各ドーズ量におけるナノ電極のAFM像

新しい走査プローブ顕微鏡測定手法の開発

分子スケールデバイスの機能を測定するには、ナノスケールの分解能を持つ測定手法が必要です。走査トンネル顕微鏡は、単一分子を観察することができる強力な方法ですが、導体にしか適用できません。デバイス構造は、機能を持つ部分が絶縁体の上に配置され、電極に接続されてはじめて意味を持ちます。そこで、絶縁体でも走査可能な原子間力顕微鏡 (AFM) をベースとした新しい測定方法の開発を行っています。

(a) 点接触電流画像化原子間力顕微鏡

(Point-contact Current-Imaging Atomic Force Microscopy, PCI-AFM)

PCI-AFM は試料と探針のダメージを少なくし、高い分解能と十分な電氣的接触を兼ね備えた方法である。タッピングモード測定と、ポイントコンタクト測定をダイナミックに組み合わせることで実現した。図はカーボンナノチューブ試料に関する測定である。付着ナノチューブ部分はトポグラフィーでは明るく（高く）画像化されているが、電流像では暗くなっている。PCI-AFM は 2 端子測定であるが、詳細な解析を行うと探針と試料の接触抵抗に依存しない、物質本来の導電率やナノ構造に基づく効果を検出することが出来る。

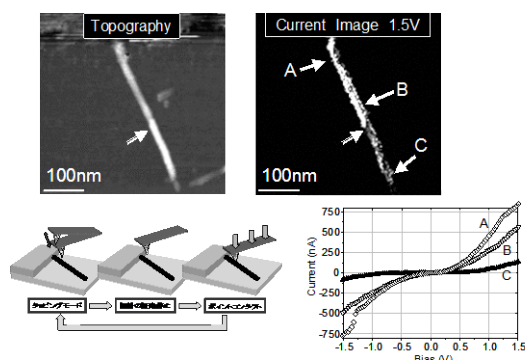


図8. PCI-AFM によるバンドルしたナノチューブ間の接触抵抗測定

(b) 電荷移動力顕微鏡／分光法

(Charge Transfer Force Microscopy/ Spectroscopy, CTFM/S)

電気伝導性を持つ探針にバイアスを印加すれば、試料の電子状態に依存した電荷移動力が働く。CTFM/S はこの力のバイアス依存性を測定することによって試料の局所電子状態の評価を行う測定手法である。この方法を用いれば、絶縁体が大部分を占める表面上の導体部分の電子状態を測定できる。

右図に絶縁体基板上で電極と接続して展開した針状結晶構造をとっているポルフィリン系分子 (TPPS) の AFM 像と同時に観測した CTFS の結果を示す。CTFS の結果から、約 1.7eV と HOMO-LUMO ギャップの大きさが約 2.0eV のポルフィリン分子の電子状態に対応したエネルギーギャップが測定できる。

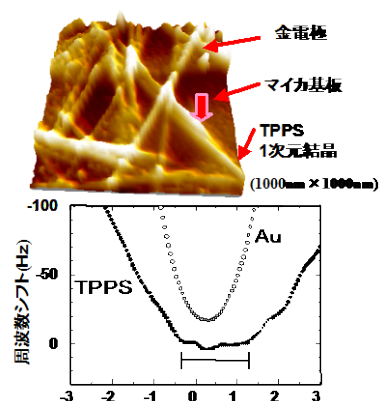


図9. CTFS による絶縁体上ポルフィリンの電子状態測定

論文

1. A Nano tester: A new technique for nanoscale electrical characterization by point-contact current-imaging atomic force microscopy.
Yoichi Otsuka, Yasuhisa Naitoh, Takuya Matsumoto, Tomoji Kawai,
Jpn. J. Appl. Phys. 41 L742-L744 (2002).
2. Synthesis of long Poly(dA)·Poly(dT) DNA without structural defects using enzymatic reaction.
S. Tanaka, S. Fujiwara, H. Tanaka, M. Taniguchi, H. Tabata, K. Fukui, and T. Kawai
Chem. Commun. 2330 (2002).

解説・総説

1. DNAのナノスケール構造と電子状態
松本卓也、前田泰、内藤泰久、川合知二
表面科学 23,(2002) 178-185.
2. 有機分子／金属界面における電子状態のアライメント
高木昭彦、古川雅士、田中裕行、松本卓也、川合知二
表面科学 23,(2002) 616-121.

著書

1. T. Matsumoto, T.Yokoyama, T.Kawai, “Supramolecular chemistry on solid surfaces”, in Chemistry of Nanomolecular systems – towards the realization of nanomolecular devices, eds. T.Nakamura, T.Matsumoto, H.Tada, K.-I.Sugiura, Springer-Verlag, Berlin Heiderberg 2002.
2. SPM によるナノ物質の電気伝導度測定
松本卓也、川合知二
化学フロンティア 6 「分子ナノテクノロジー」, (2002) 53-64

国際会議

- 1 . ★DNA nanotechnology
M. Taniguchi and T. Kawai
DNA-based Molecular Construction, International Workshop, May 23, (2002), Jena, Germany
- 2 . Charge Transfer Force Microscopy / Spectroscopy
Yasuhisa Naitoh, Takuya Matsumoto, Tomoji Kawai
7th International Conference on Nanometer-scale Science and Technology and 21th European Conference on Surface Science June 24-28, 2002 Malmö, Sweden
- 3 . Development of the nano-scale magnetic domain in magnetoresistive (La,Ba)MnO₃ probed by non contact magnetic force microscope
Teruo Kanki, Yasuhisa Naitoh, Hidekazu Tanaka, Takuya Matsumoto and Tomoji Kawai
7th International Conference on Nanometer-scale Science and Technology and 21th European Conference on Surface Science June 24-28, 2002 Malmö, Sweden
- 4 . Tunneling Junction in Bundled Single-Walled Carbon Nanotubes by Point Contact Current Imaging AFM Measurement
Yoichi Otsuka, Yasuhisa Naitoh, Takuya Matsumoto and Tomoji Kawai
7th International Conference on Nanometer-scale Science and Technology and 21th European Conference on Surface Science June 24-28, 2002 Malmö, Sweden
- 5 . Super Para-Magnetism of Fe Nano-Cluster Observed by Non-Contact Magnetic Force Microscopy
T. Matsumoto, Y.Naitoh, K.Sato, Y.Horotsu, and T.Kawai
7th International Conference on Nanometer-scale Science and Technology and 21th European Conference on Surface Science June 24-28, 2002 Malmö, Sweden
- 6 . Theoretical Study of Electronic Transport thorough Tape-Porphyrins
K. Tagami, T. Matsumoto, T.Kawai
Second International Conference on Porphyrins and Phthalocyanines
June 30-July 5, 2002, Kyoto Japan
- 7 . Development of the Nanoscale Magnetic Domain in Magnetoresistive (La,Ba)MnO₃ Probed by Non-Contact Magnetic Force Microscopy
Teruo Kanki, Yasuhisa Naitoh, Hidekazu Tanaka, Takuya Matsumoto, and Tomoji Kawai
5th International Conference on Noncontact Atomic Force Microscopy
August 11-14, 2002, Montréal, Canada

8. Super Para-Magnetism of Fe Nano-Cluster Observed by Non-Contact Magnetic Force Microscopy
T. Matsumoto, Y.Naitoh, K.Sato, Y.Horotsu, and T.Kawai
5th International Conference on Noncontact Atomic Force Microscopy
August 11-14, 2002, Montréal, Canada
9. Charge Transfer Force Microscopy / Spectroscopy
Yasuhisa Naitoh, Takuya Matsumoto, Tomoji Kawai
5th International Conference on Noncontact Atomic Force Microscopy
August 11-14, 2002, Montréal, Canada
10. Super Para-magnetism of Fe Nano-cluster Observer by Non-contact Magnetic Force Microscopy.
T.matsumoto, Y.Naitoh, K.Sato, Y.Hirotsu and T.Kawai
The 10th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy
October31-November2,2002,Hawaii
11. Structure of Adsorbed Porphyrin Chains
A.Takagi, Y.Yanagawa, T.matsumoto, T.Kawai
The 10th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy
October31-November2,2002,Hawaii
12. Charge Transfer Force Microscopy / Spectroscopy and their Application for Molecular Systems
Y.Naitoh, T.Matsumoto, T.kawai
The 10th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy
October31-November2,2002,Hawaii
13. Nanoscale Electrical Characterization by Point-contact Current-Imaging Atomic Force Microscopy.
Y.Otsuka, Y.Naitoh, T.Matsumoto, T.Kawai,
International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2002
December 12-13, 2002 Osaka, Japan
14. Fabrication of Flat Electrodes with Nano-Gaps Using Cluster Ion Beams
Masateru Taniguchi, Tomoji Kawai, Keiichirou Watanabe, Shinji Matsui, Noriaki Toyoda
Isao Yamada, Tohru Kubota, and Shinro Mashiko
International Microprocesses and Nanotechnology Conference, November 6, 2002,
Tokyo, Japan

15. Charge Transfer Force Microscopy/ Spectroscopy and Their Application for Molecular Systems.
Y.Naitoh, T.Matsumoto, T.Kawai,
International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2002
December 12-13, 2002 Osaka, Japan
16. ★Nanoscale Magnetism Observed by Non-contact Magnetic Force Microscopy
Takuya Matsumoto
International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2002
December 12-13, 2002 Osaka, Japan

国内会議

1. ★探針－有機分子－表面間の局所的電荷移動と分子エレクトロニクス
松本卓也、川合知二
分子科学研究所 SPM 研究会（岡崎）2002 年 2 月 13-14 日
2. ★走査プローブ顕微鏡を用いた DNA 及び鎖状有機分子の電子物性計測
松本卓也、川合知二
日本学術振興会ナノプローブテクノロジー第 167 委員会（東京）
2002 年 3 月 5 日
3. 電荷移動力顕微鏡/分光の開発
内藤泰久、大塚洋一、松本卓也、川合知二
第 49 回応用物理学関係連合講演会（神奈川）2002 年 3 月 27 日
4. 非接触磁気力顕微鏡による Fe ナノクラスターの超常磁性現象の観察
内藤泰久、松本卓也、佐藤和久、弘津禎彦、川合知二
第 49 回応用物理学関係連合講演会（神奈川）2002 年 3 月 27 日
5. テープポルフィリンの電気特性
田上勝規、松本卓也、川合知二
第 49 回応用物理学関係連合講演会（神奈川）2002 年 3 月 29 日
6. 雰囲気制御された DNA ネットワーク構造の電気特性測定
寺脇歩、李恵りょん、大塚洋一、内藤泰久、田中秀和、松本卓也、川合知二
第 49 回応用物理学関係連合講演会（神奈川）2002 年 3 月 29 日

7. DNA及び鎖状分子の分子内分極イメージング
梁川宜輝、高木昭彦、古川雅士、松本卓也、川合知二
第49回応用物理学関係連合講演会（神奈川）2002年3月29日
8. 原子間力顕微鏡によるナノスケール分子回路の電気伝導度測定
大塚洋一、内藤泰久、寺脇歩、松本卓也、川合知二
第49回応用物理学関係連合講演会（神奈川）2002年3月29日
9. 孤立垂直分子系の構築と単一分子電気伝導度測定
松本卓也、内藤泰久、田上勝規、川合知二
第49回応用物理学関係連合講演会（神奈川）2002年3月29日
10. ポルフィリンを用いたナノ回路特性の理論計算
田上勝規、松本卓也、川合知二
第57回日本物理学会年次大会 領域9、表面界面・結晶成長（滋賀県・草津）
2002年3月25日
11. 走査プローブ顕微鏡による単一分子電気伝導度の測定
松本卓也、内藤泰久、梁川宜輝、浜井知歩、大塚洋一、川合知二
第57回日本物理学会年次大会 領域9、表面界面・結晶成長（滋賀県・草津）
2002年3月25日
12. ★金属錯体の表面ナノスケール集積化
松本卓也、川合知二
日本化学会第81春季年会 ナノ金属錯体の化学 特別企画（東京・早稲田）
2002年3月27日
13. ナノギャップにおけるDNAの電氣的性質
谷口正輝・Lee Hea-Yeon・田中秀和・川合知二・Yoo Kyung-Hwa
日本化学会第81春季年会 （東京早稲田）2002年3月
14. ★DNA及び単一分子のナノスケール電子物性測定
内藤泰久、前田泰、松本卓也、川合知二
日本化学会第81春季年会 ナノ金属錯体の化学 特別企画（東京・早稲田）
2002年3月27日
15. ★分子内電荷分布と単一分子電気伝導
松本卓也

第一回単一分子エレクトロニクス研究会（京都）2002 年 4 月 7－8 日

16. 非標識検出によるバイオチップの開発

崔 龍成, 李恵りょん, 谷口正輝, 田中秀和, 田中裕行, 川合知二
電気化学会第 69 回大会（仙台）2002 年 4 月

17. 原子間力顕微鏡の新技术：ナノスケール分子回路の機能計測

松本卓也、川合知二

機能性分子の設計・合成戦略と計測技術の現在・未来（沖縄）2002 年 4 月 25-26

18. ★シンポジウム「AFM の新しい展開」磁気力顕微鏡による表面磁気状態の観察

松本卓也、内藤泰久、神吉輝夫、川合知二

日本電子顕微鏡学会第 58 回学術講演会（大阪）2002 年 5 月 14-16

19. DNA 薄膜の電氣的性質

谷口正輝・イヘイヨン・田中秀和・川合知二；ヨンセイ大 ユギュンファ
高分子学会（横浜）2002 年 5 月

20. 電荷移動力顕微鏡／分光の開発

内藤泰久、松本卓也、川合知二

第 63 回応用物理学会学術講演会（新潟・新潟大学）2002 年 9 月 25 日

21. 鎖状ポルフィリン多量体の表面吸着構造

高木昭彦、梁川宜輝、松本卓也、川合知二

第 63 回応用物理学会学術講演会（新潟・新潟大学）2002 年 9 月 25 日

22. 酵素法による特異的塩基配列を有する長鎖 DNA の合成

田中慎一, 田中裕行, 谷口正輝, 田畑 仁, 藤原伸介, 内山 進, 福井希一,
川合知二

第 63 回応用物理学会学術講演会（新潟・新潟大学）2002 年 9 月 25 日

23. クラスターイオンビームを用いたナノギャップ平坦電極の作製

谷口正輝、松本卓也、川合知二、渡辺啓一郎、松井真二、豊田紀章、山田公、久保田徹、
益子信郎

第 63 回応用物理学会学術講演会（新潟・新潟大学）2002 年 9 月 25 日

24. 共役ポルフィリン及び DNA の電気伝導計算

田上勝規、松本卓也、川合知二、塚田捷

第 63 回応用物理学会学術講演会（新潟・新潟大学）2002 年 9 月 25 日

25. SPMをベースとした、ナノ構造の電子物性測定法：ナノテスターと電荷移動力顕微鏡
松本卓也、川合知二
関西薄膜表面物理セミナー（奈良県生駒市）2002年11月8-9日
26. カルボニル結合とSi(100)の反応：温度依存性
浜井知歩、松本卓也、川合知二
第22回表面科学講演大会（東京）2002年11月26-28日
27. DNA/金属微粒子複合体の形成：表面電荷制御と電子特性
山田郁彦、佐長裕、田中秀和、松本卓也、川合知二
第22回表面科学講演大会（東京）2002年11月26-28日
28. DNA ネットワークへの色素修飾とSPMによる物性評価
高東智佳子、松本卓也、川合知二
第22回表面科学講演大会（東京）2002年11月26-28日
29. ポイントコンタクト電流画像化原子間力顕微鏡の開発
松本卓也、大塚洋一、川合知二
第22回表面科学講演大会（東京）2002年11月26-28日
30. 非接触原子間力顕微鏡による超常磁性ナノ時期構造の直接観察
内藤泰久、松本卓也、川合知二
第22回表面科学講演大会（東京）2002年11月26-28日
31. ★無機及び有機材料のSTM・MFM
松本卓也
日本顕微鏡学会関西支部特別企画「SPMセミナー」（京都）2002年12月3日
32. ★分子デバイスの電子物性と素子機能
松本卓也
京都大学VBL講義「先端電子材料学」（京都）2002年12月9日

特許

分子集積回路素子及びその製造方法

松本卓也、川合知二、小川琢治、松井真二、桑原裕司

特願 2002-064264

探針装置

松本卓也、内藤泰久、川合知二

特願 2002-245810

探針装置

松本卓也、大塚洋一、内藤泰久、川合知二

特願 2002-245811

学会活動

松本 卓也

1. 日本真空協会編集部会関西部会委員
2. 日本表面化学会編集委員

共同研究

松本 卓也

1. 「ナノスケールフラット電極の作製」 松井 真二（愛媛工業大学 高度産業科学技術研究所）・益子 信郎（通信総研）他
2. 「自立型分子の電気伝導度測定」 小川 琢治 （愛媛大学）
3. 「巨大ポルフィリンアレーの物性」 大須賀 篤弘 （京大理）

谷口 正輝

1. 「クラスターイオンビームを用いたナノギャップ平坦電極の作製」
松井真二（姫路工業大学）・益子信郎（通信総合研究所） 他
2. 「DNAの電子構造」 川合真紀（理化学研究所）他

科研費・助成金等

松本 卓也 科学技術研究費補助金、萌芽研究

「ナノスケール空間における個々の分子の光励起電子移動過程」

- 松本 卓也 科学技術研究費補助金、基盤研究(B)(2)
「有機分子の単一電気伝導度測定」
- 松本 卓也 科学技術研究費補助金、特定領域研究「光機能界面の学理と技術」
「光電子移動の分子スケールイメージング」
- 松本 卓也 科学技術振興事業団、戦略的基礎研究
「巨大ポルフィリンアレーメゾスコピック構造デバイス」
- 谷口 正輝 科学研究費補助金 特別研究員奨励費
「DNAを用いたナノデバイスの創製と分子操作技術の開発」
- 谷口 正輝 21 世紀 COE 若手研究 A
「集束イオンビームを用いたナノ立体配線の作製」

超分子プロセス分野

超分子プロセス分野は機能分子科学研究部門よりの兼任教授 1、機能分子科学研究部門より振り替えの助教授 1、助手 1 で構成されている。現在は、励起分子化学研究分野の真嶋哲朗（兼任教授）、励起分子化学研究分野から遠藤政幸（助手）、分子合成化学研究分野から滝澤忍（助手）の 3 名が所属している。

真嶋哲朗（まじま てつろう）

略歴

1952 年 広島県生まれ
1975 年 大阪大学工学部石油化学科卒業
1977 年 大阪大学大学院工学研究科前期課程修了
1980 年 大阪大学大学院工学研究科後期課程修了
1980 年 テキサス大学ダラス校助手
1982 年 理化学研究所流動研究員
1983 年 理化学研究所研究員（この間 Hahn-Meitner
研究所 Berlin、Max-Planck 研究所 Muelheim にて共同研究）
1992 年 理化学研究所先任研究員
1994 年 大阪大学産業科学研究所助教授
1997 年 大阪大学産業科学研究所教授～現在に至る
2000 年 大阪大学教授産業科学研究所材料解析センター長（併任）～現在に至る
2002 年 大阪大学教授産業科学研究所産業科学ナノテクノロジーセンター超分子
プロセス分野教授（兼任）～現在に至る



現在の研究テーマ（励起化学研究分野：藤塚守助教授、藤乗幸子助手、川井清彦助手、蔡喜臣博士研究員、杉本晃研究支援推進員と共同）：ビーム機能化学に関する研究（修飾 DNA の合成と組織化による DNA 分子ワイヤの分子設計、バイオイメージング用光化学プローブ分子の合成と機能化、人工タンパクの創製と光による機能制御、ラジカルイオンの化学、光化学、多光子化学(2 光子イオン化、レーザー同位体分離、マルチレーザー化学、光機能界面の光化学：TiO₂ 光触媒反応、DNA の一電子酸化損傷、DNA 中の電荷移動、光照射による DNA 遺伝子機能発現、光による DNA の B-Z 構造転移、光機能性人工タンパク、単一分子イメージング計測)

学生（励起化学研究分野）：D3 原道寛（はら みちひろ）、D2 高田忠雄（たかだ ただお）、D1 中山公志（なかやま こうじ）、D1 岡田亜弓（おかだ あゆみ）、M2 貝田有佳（かいだ ゆか）、M2 木村巧（きむら たくみ）、M1 城山郁枝（しろやま いくえ）、M1 城山高志（しろやま たかし）、B4 永井孝佳（ながい たかよし）、B4

吉田浩子（よしだ ひろこ）



遠藤政幸（えんどう まさゆき）

略歴

1968 年 千葉県生まれ

1992年 京都大学工学部合成化学科卒業

1997年 東京大学大学院工学系研究科博士課程修了

1997 年 東京医科歯科大学 日本学術振興会特別研究員

1998 年 ハーバード大学化学化学生物学科 博士研究員

2000 年 理化学研究所ゲノム科学総合センター 基礎科学特別研究員

2001 年 大阪大学産業科学研究所助手～現在に至る

現在の研究テーマ：光反応性人工酵素の構築、架橋 DNA を用いた DNA ナノ構造の構築と新規分子集合系の開発

学生（励起化学研究分野）：D1 中山公志（なかやま こうじ）、M2 貝田有佳（かいだ ゆか）、M1 城山高志（しろやま たかし）

滝澤 忍（たきざわしのぶ）



略歴

1971年 神奈川県生まれ

1995年 富山医科薬科大学薬学部薬科学科卒業

1997年 富山医科薬科大学大学院薬学研究科修士課程修了

2000年 大阪大学大学院薬学研究科博士課程修了（薬学博士）

2000年 大阪大学産業科学研究所助手～現在に至る

現在の研究テーマ：多機能性 dendrimer の開発、界面活性剤の自己組織化による球状ナノ粒子の効率的合成法と機能評価、金属クラスター担持型触媒の応用研究、機能性キラルナノワイヤーの合成

学生：D1 丸林千能（まるばやし かずよし）、M1 川楠哲生（かわくす てつお）、M1 川瀬敬啓（かわせ たかひろ）

研究概要

単一分子を超えた機能を有する人工DNA、人工タンパク、人工光合成分子、ナノ粒子などの超分子の設計と合成を行い、多機能性、複合性、複合機能性を持つ分子システムの構築を行う。これら超分子の集合化・組織化を行い、人工細胞や固体素子など均一溶液系を超えた形の機能発現を行う。

〔研究課題〕

1. 修飾DNAの合成と組織化によるDNA分子ワイヤの分子設計
2. バイオイメージング用光化学プローブ分子の合成と機能化
3. 人工タンパクの創製と光による機能制御
4. 自己組織化によるナノ粒子の創製
5. 機能性高分子合成と機能化による分子デバイス創製

以下に本年度の研究状況を記す。

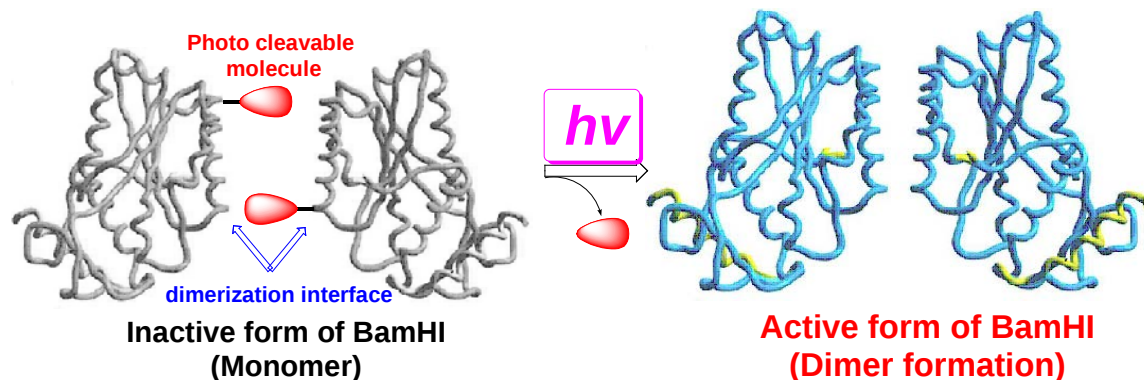
（１）人工DNAおよび人工タンパクに関する研究

生体分子であるタンパクの持つ酵素活性を光反応によって操作可能にし、生体内スイッチを構築すること、並びに架橋DNA分子の力を利用した、超分子化、さらにナノ構造の構築や分子集合の制御などの新たな分野の開拓を行っている。

1. 光反応性人工酵素の構築

多くのタンパクは機能がその構造によって制御されているため、その機能発現はタンパクの構造変化を操作することで、調節することができる。タンパク中に導入した光反応性分子を、光反応による構造変化やペプチド鎖の切断を制御するスイッチとして働かせ、光反応後にタンパクを活性型の構造に誘導し、タンパクの持つ酵素活性および光反応による生体内反応の発現と制御を目指した研究を行っている。

光照射によって操作可能なタンパク及び酵素の分子設計には、最も一般的なタンパクタンパクの2量体を制御するため、DNAを特異的配列で加水分解する制限酵素BamHIの2量体インターフェイスを用いた。この分子の水素結合の形成に関与するアミノ酸側鎖に位置選択的に光脱離性分子（2-nitroveratryl基）を生化学的手法で導入し、光機能化した。この光反応性酵素BamHIは光照射しない場合は全く活性を示さ



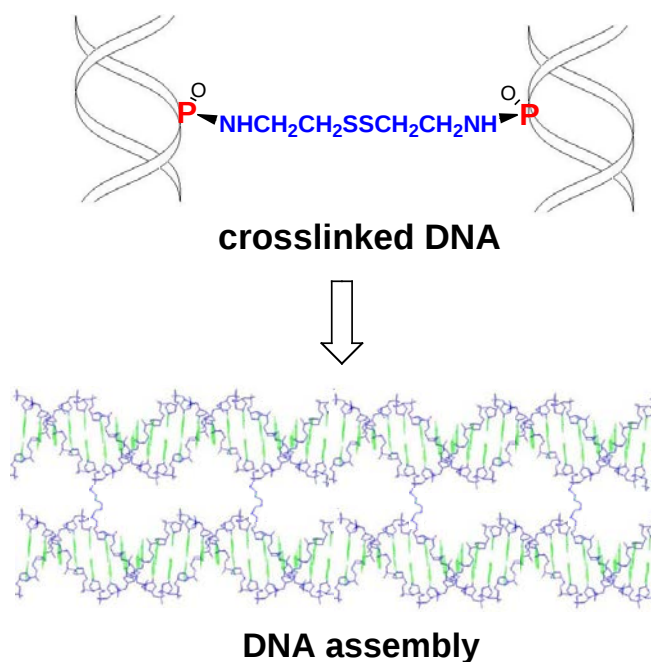
なかったが、光照射を行うことによって酵素活性を完全に回復させることに成功した。このことは生体分子であるタンパクの2分子間の相互作用を光反応で操作することで酵素活性を制御できることを意味している。

生体中の細胞内情報伝達及び機能発現を光反応によって操作するため、プロテアーゼ Caspase-3 の酵素活性の光制御を行った。生体は癌細胞のような修復不能な細胞を除去するため、情報伝達を通じてアポトーシス（細胞死）の誘導を行い、Caspase-3 がその実行を行う。光照射によって Caspase-3 の酵素活性を発現できるようにペプチド結合を光切断できる 2-nitrophenylglycine をペプチド鎖内の特異的な位置に導入し、光照射を行うことでこの酵素の活性の発現に成功した。これらタンパクの酵素活性の光反応による制御は細胞内への導入と光照射による生体機能の操作を行うことが可能になる。

2. 架橋 DNA を用いた DNA ナノ構造の構築と新規分子集合系の開発

DNA は情報を貯蔵し、生体の遺伝形質をつかさどる生体分子という性格だけでなく、優れた自己組織化分子であり、周期的な構造を有する。また、DNA は有機合成ができ、酵素によって切断と結合を行え、さらにその塩基配列を容易に解読することができる。この DNA の持つ自己組織化能及び周期的な構造を使い、さらに DNA 2 本鎖間を架橋した分子を合成し用いることによって、2 本鎖 DNA が複数並列した構造を有する超分子の合成を行った。2 本鎖 DNA が 2 本並列した状態でも、安定な構造になることが明らかになった。また、複数の架橋 DNA を用いることでより長鎖の並列した DNA 構造を組み上げることに成功した。2 重らせん軸の縦方向だけでなく架橋 DNA によって横方向への構造の拡張も容易であることと、架橋 DNA 分子間に機能性分子の導入も行えることから、周期性と規則性を持たせた新規機能性材料の創生や反応場の構築を行うことが可能である。

この架橋 DNA と DNA の持つ自己組織化能を使って、生体内の転写－翻訳系を模倣した分子集合系の構築を行っている。架橋 DNA を使って鋳型 DNA からの塩基配列情報を一方の DNA 鎖から他方の DNA 鎖に転移させることに成功した。この方法を用いて、架橋 DNA を生体中の tRNA の代わりとして、架橋 DNA の一方の鎖に機能性分子を導入した DNA と相補鎖を組ませ（アミノアシル化に相当）、鋳型 DNA からの塩基配列を架橋 DNA の他方の鎖で認識させ（アンチコドン－コドン相互作用に相当）、アミノアシル tRNA の機能を持たせる。これによって、鋳型 DNA の任意の塩基



配列情報に従って、機能性分子の配列を一次的に決めることができ、機能性分子の自己集合化を選択的に行うことが可能である。

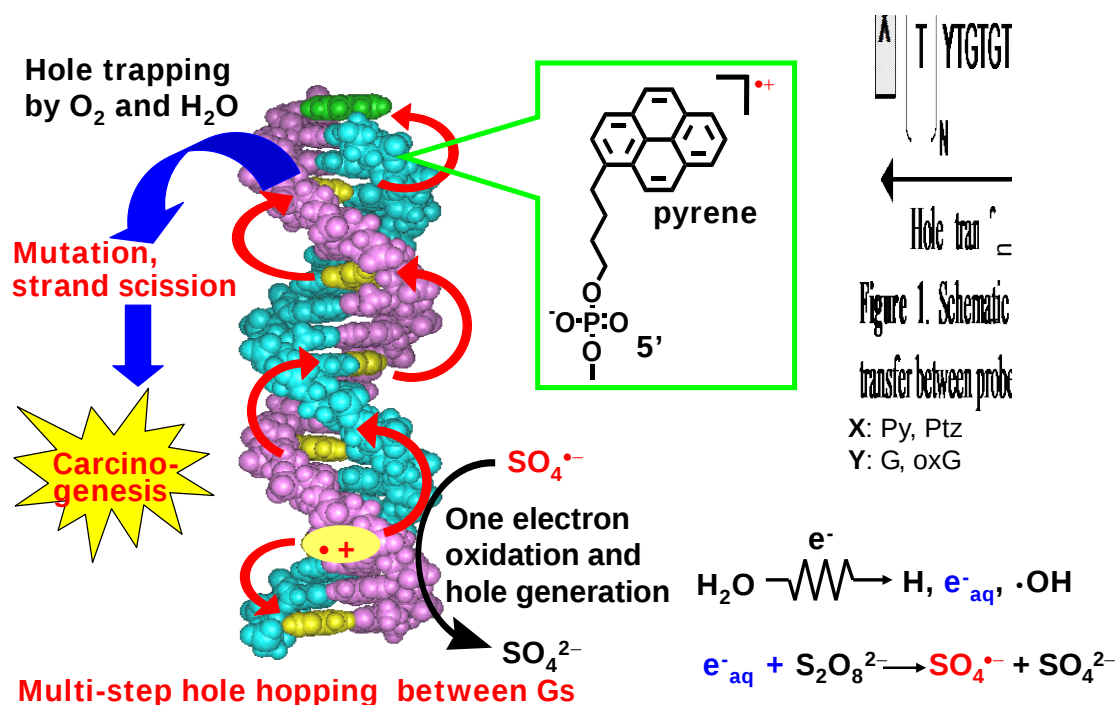
(2) DNA のビーム化学

多種多様な性質のビームを物質に照射することによって、ビーム特有の化学反応を空間的・時間的に制御して起こすことができる。物質が生体の場合はビーム治療に関係し、既に放射線治療、レーザー治療などが実用化されている。我々は DNA の酸化損傷による発癌の機構解明に関して、生体関連分子である DNA の一電子酸化 (DNA から一電子が取り出されて DNA が酸化されること) および一電子還元 (DNA に一電子が付着して DNA が還元されること) による DNA 中へのホール、電子の発生とそれらの DNA 中の移動について、レーザーフラッシュフォトリシス法あるいはパルスラジオリシス法を使用して、過渡吸収スペクトル測定より特にそれらの速度の解明に焦点をあてて研究を行っている。ここでは、紙面の関係で、DNA 中のホール移動—「DNA ワイヤ」の可能性について以下に紹介する。

6 年ほど前に DNA の一電子酸化損傷の生成物分析から DNA 中の 4 つの核酸塩基 (グアニン、アデニン、シトシン、チミン) の中で酸化電位 (E°) の最も低いグアニン (G) で解裂が起こること、DNA の光増感一電子酸化反応において光増感剤近傍の G から 200 Å (60 塩基対) 以上も離れた G で解裂が起こることが報告された。すなわち、DNA 中に発生したホールは G に捕捉されて G ラジカルカチオン (G から一電子が取り出された状態の $G(G^{\bullet+})$) となり、G 間でのホール移動が 200 Å (60 塩基対) 以上も起こり、最終的にホールが捕捉された G で解裂が起こると理解された。ホールが長距離を移動することから DNA 中をホールが流れる「DNA ワイヤ」の可能性が提案され、最近特にナノテクノロジーとの関連から幅広い関心を集めている。DNA は 4 つの核酸塩基が π スタックした一次元配列の特殊な構造であるため、ホールがキャリアーとなって DNA 中の核酸塩基を移動するならば、DNA をワイヤとして応用できるのではないかという提案である。DNA 中のホール移動は、化学的に不活性である DNA が一電子酸化によって容易に分解し発癌へと進展する DNA の酸化損傷機構解明に関連して、多くの研究が行われている研究課題である。

この研究は主に生成物分析、蛍光消光測定、電気伝導度測定によって行われ、DNA 中のホール移動を直接観測した例はなかった。その理由は主に、DNA 中のホールの生成量が少ないこと、ホールが G に捕捉されて生成する $G^{\bullet+}$ の吸収係数が小さいこと、DNA 中の $G^{\bullet+}$ の位置が特定出来ないことなどのためであった。そこで我々は、ホールの生成量が十分高いパルスラジオリシス法を用い、ホールのプローブ分子 (レポーター分子) として G よりも酸化電位 E° が低く (1.40 V)、かつ吸光係数が大きく特徴的な吸収を有するピレン (Py) を DNA の特定位置に結合させた Py 修飾 DNA を使用して、DNA 中のホールの生成と DNA 中を流れるホールの動的挙動を直接観測することに成功した。なお、DNA の一電子酸化によるホールの生成において、水の放射線分解により生成した水和電子が、水溶液中に存在する過硫酸イオン ($S_2O_8^{2-}$) を還元して生成する硫酸イオンラジカル ($SO_4^{\bullet-}$) が DNA の一電子酸化剤として作用している。

DNA 中に生じたホールは一旦 G に捕捉されて $G^{\bullet+}$ となるが、 E^{ox} の低い Py への発熱的ホール移動が起こる。このホール移動速度の距離依存性を調べるために、Py 部位と G 領域 (5' -GTGTGTG-3') との間の AT 塩基対の数 ($n = 1-5$) を変化させた Py 修飾オリゴデオキシヌクレオチド (PyODNn) のパルスラジオリシスを行った。その結果、G 領域から Py 部位へのホール移動による $\text{Py}^{\bullet+}$ 生成、ホール移動速度定数 k_{ht} は $10^4 - 10^5 \text{ s}^{-1}$ で、Py 部位と G 領域との間の距離の増加に伴って減少し、 $100 \mu\text{s}$ の時間領域でホール移動が起こることが明らかになった。なお、DNA 中の $G^{\bullet+}$ から Py へのホール移動は、G 間の多段階ホールホッピング過程 (ホールが G の間を飛ぶように動いていく過程) を含んでいる。 k_{ht} の G 領域と Py 部位との距離依存性は $0.3 \text{ \AA}^{-1}$ と小さく、 k_{ht} が G 間の多段階間ホールホッピング過程に対応することを示す。DNA を媒体とした長距離ホール移動を直接観測した例は本研究が最初である。その速度は $10-100 \mu\text{s}$ の時間領域と遅いことがわかった。



PyODNn における G 領域の一つの G を、Py よりも E^{ox} が低い 7,8-dihydro-8-oxo-guanine (oxG) に置き換えた、Py および oxG 修飾オリゴデオキシヌクレオチド (PyODNoxn ($n = 1-5$)) の場合、 $\text{Py}^{\bullet+}$ から DNA 鎖中の oxG への一段階のホール移動が起こる。 $\text{Py}^{\bullet+}$ から oxG へのホール移動速度定数は $n = 2, 3, 4$ に関してそれぞれ $k_{\text{ht}} = 15 \times 10^4, 3 \times 10^4, 0.2 \times 10^4 \text{ s}^{-1}$ と求められ、 β 値は $0.6 \text{ \AA}^{-1}$ であり、 $\text{Py}^{\bullet+}$ から oxoG への一段階のホール移動の距離依存性が明らかとなった。この結果は、 k_{ht} の距離依存性を示した最初の例であり、基底状態の $\text{Py}^{\bullet+}$ から oxG への k_{ht} の距離依存性が光電子移動系と一致することがわかり、 $\beta = 0.6 \text{ \AA}^{-1}$ という値が DNA 中の電荷移動速度に対して統一的に得られた。

以上のように、PyODNn および PyODNoxn 中にホールを発生させた場合、ホール移動が $10-100 \mu\text{s}$ の時間領域で起こることを $\text{Py}^{\bullet+}$ の過渡吸収の時間変化から観測すること

に成功した。そのホール移動速度が $10\text{--}100\ \mu\text{s}$ と遅いことは DNA の特徴である。また、ホール移動の距離依存性は、2 つのクロモファー間の連結基としては DNA が他の有機分子と類似の性質であり、DNA が特別な伝導性を示す有機化合物ではないことを意味している。すなわち、DNA 自身は良伝導性を示さないことがわかったので、化学的に種々の有機分子を DNA 中に配列させて、有機分子間のホール移動を起こすことによって DNA ワイヤを構築することが可能である。また、有機分子のラジカルカチオンを光励起してホール移動を熱化学過程と逆に起こすことによって（光化学的ホール移動）、DNA 中のホール移動の方向を制御すること（DNA 中のホール移動の光スイッチング）が可能になる。このような観点から、現在、我々は以下のような DNA 中のホール移動の研究を行っている。

1) DNA 中に修飾した 2 分子間のホール移動速度：DNA が足場としてどのように影響するかについて、Py およびフェノチアジン (Ptz) 修飾 DNA (PyPtzODN) 中の、Py から Ptz へのホール移動速度の距離および配列依存性を見出した。

2) DNA 中に修飾した 2 分子間のホール移動の光スイッチング：Ptz および oxG を修飾した DNA の電子線・レーザー複合照射において、DNA 中のホールは Ptz に捕捉されて $\text{Ptz}^{\bullet+}$ が生成するが、これを 532 nm レーザー光励起すると、 $\text{Ptz}^{\bullet+}$ の過渡吸収の消失および回復と、 $\text{oxG}^{\bullet+}$ または $\text{oxG}^{\bullet+}$ からプロトンが脱離して生成した oxG のラジカル ($\text{oxG}^{\bullet}$) の過渡吸収の生成と減衰が観測された。この結果は、 $\text{Ptz}^{\bullet+}$ の光励起状態から oxG へホールが移動して $\text{oxG}^{\bullet+}$ が生成し、 $\text{oxG}^{\bullet+}$ から Ptz への熱的ホール移動が起こって $\text{Ptz}^{\bullet+}$ が再生されることを示す。換言すると Ptz 上のホールが光照射によって oxG へと移動した後、oxG から Ptz へホールが熱的移動して元に戻ることがわかった。

さらに、DNA に修飾する分子とその位置を様々に変化させて分子間のホール移動を任意に起こす方法による DNA ワイヤの構築について検討している。

（3）機能性球状ナノ粒子の合成

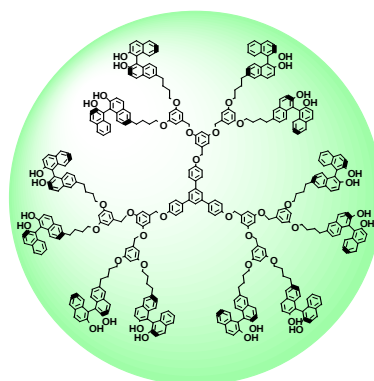
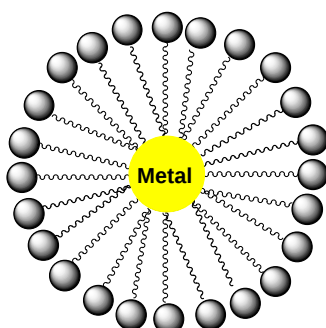
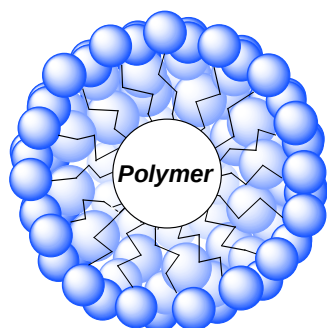
近年、様々な分野で機能発現サイズの極小化（ボトムダウン）が推進され、また、機能性単分子を組織化（ボトムアップ）して、個の機能を凌駕する機能性ナノ超分子の開発も活発に研究されている。ナノ超分子の機能は、親和性、イオン性、及び、水素結合等による分子認識研究にとどまらず、最近では、光や熱に応答し機能形態が変化するナノマシンやデンドリマー、フラーレン、そしてナノチューブが報告されている。そこで、単分子の自己組織化に着目し、これまで合成が煩雑であったナノサイズの超分子構造を短工程、高収率、かつ容易に合成する手法の開発を行っている。単分子を凌ぐ機能性材料の創製、新規材料の開発を目指している。

1. 機能性球状ナノ粒子の効率的合成

不斉触媒能を有する球状ナノ粒子

表層に機能性部位が露出した球状ナノ粒子の効率的合成法として、球状ミセルの固定化、及び、金属クラスター表層の機能化を検討している。本手法により合成した固定化不斉触媒は、数十～数百ナノメートルの球状粒子であることを走査型プローブ顕微鏡、及び、動的光散乱測定により確認した。また得られた球状粒子から不斉触媒を

調製して活性試験を行ったところ高い不斉誘起能を有していることが明らかとなった。これら新規合成法の合成効率、及び、機能評価のために、球状高分子である多機能性 dendrimer の開発研究も行っている。



球状ナノ粒子

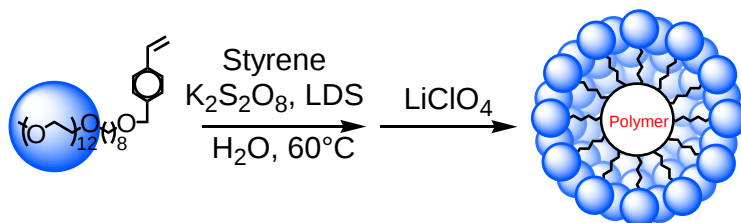
- ・ミセル固定化による球状ナノ粒子の創製
- ・金属クラスターの機能化

新規多機能性 dendrimer (ナノ粒子)

ミセル形成能を利用する固体電解質の効率的構築法の開発

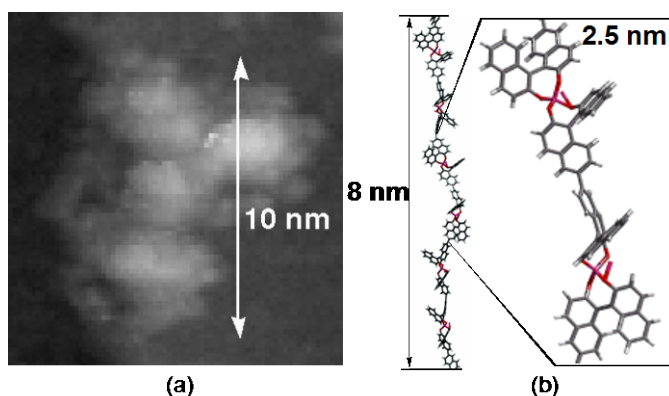
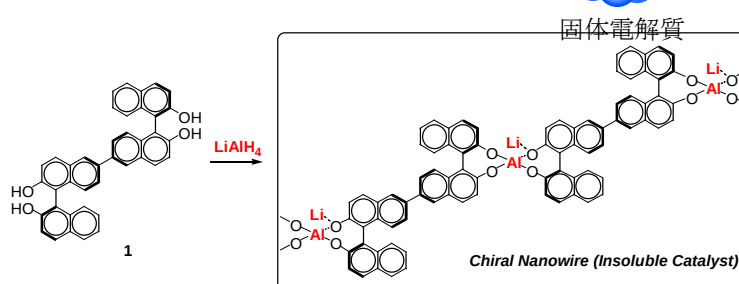
機能性部位にポリエチレングリコール鎖を有する球状ナノ粒子の合成もミセル法で可能である。合成した球状ナノ粒子の Li 塩は、30℃でも高い伝導度 ($\sigma \cong 1 \times 10^{-4}$ S/cm) を示す事が明らかとなった。

安全性が高く、軽量化、高エネルギー密度化が可能な次世代の二次電池材料として期待される。



キラルナノワイヤーの合成

多数の不斉配位子の自己鎖状集合体架橋金属部位を利用した触媒能を有するキラルナノワイヤーの効率的に合成に成功した。不斉触媒の形成と同時に高分子化する固定化触媒である。複数の配位子から構成される触媒の汎用的固定化法となり、さらにポリマー固相担体を必要としない新しい方法である。合成した固定化触媒は、高い不斉誘起能を持つだけでなく、リサイクルも行え、実用的な環境調和型プロセスへの可能性を見出した。



(a) STM image of Al-Li-1 complex (13 x 13 nm). (b) Model of chiral nanowire, Al-Li-1 complex (Universal Force Field (UFF) on Cerius 2).

論文

1. Hole transfer through DNA monitored by transient absorption of phenothiazine radical cation
K. Kawai, T. Takada, S. Tojo, and T. Majima
Tetrahedron Lett. **43**, 89–91 (2002).
2. Modulation of One-Electron Oxidation Rate of 8-Oxoguanine by Base-Pairing with Cytosine Derivatives
K. Kawai, Y. Wata, M. Hara, S. Tojo, and T. Majima
J. Am. Chem. Soc., **124**, 3586-3590 (2002).
3. On the Electronic Character of Localized Singlet 2,2-Dimethoxycyclopentane-1,3-diyl Diradicals: Substituent Effects on the Lifetime
M. Abe, W. Adam, M. Hara, M. Hattori, T. Majima, M. Nojima, K. Tachibana, and S. Tojo
J. Am. Chem. Soc., **124**, 6540-6541 (2002).
4. Synthesis of ODN containing 4-methylamino-1,8-naphthalimide as a fluorescence probe in DNA
K. Kawai, K. Kawabata, S. Tojo and T. Majima
Bioorg. Med. Chem. Lett., **12**, 2363-2366 (2002).
5. Regulation of one-electron oxidation rate of guanine and hole transfer rate in DNA through hydrogen bonding
K. Kawai, T. Takada, S. Tojo, and T. Majima
Tetrahedron Lett., **43**, 8083-8085 (2002).
6. Properties of Chrysene in the Higher Triplet Excited State
X. Cai, M. Hara, K. Kawai, S. Tojo, and T. Majima
Chem. Phys. Lett., **368**, 365–369 (2002).
7. A Dendrimer-supported Heterobimetallic Asymmetric Catalyst
T. Arai, T. Sekiguti, Y. Iizuka, S. Takizawa, S. Sakamoto, K. Yamaguchi, and H. Sasai
Tetrahedron: Asymmetry **13**, 2083-2087 (2002).
8. Facile and Clean Oxidation of Alcohols in Water Using Hypervalent Iodine(III) Reagents

H. Tohma, T. Maegawa, S. Takizawa, and Y. Kita, Y.
Adv. Syn. Cat., **344**, 328-337 (2002).

解説・総説

1. パルスラジオリシスによる DNA 中のホール移動
川井清彦・真嶋哲朗
放射線化学, **73**, 28-31 (2002).
2. Effect of hydrogen bonding on the photo-oxidation of DNA
K. Kawai and T. Majima
J. Photochem. Photobiol. C, **3**, 53-66 (2002).
3. ビーム機能化学
真嶋哲朗
Materials Integration Intermaterial, **15**, 15-20 (2002).
4. DNA 中のホール移動
真嶋哲朗
大阪大学低温センターだより, **120**, 1-4 (2002).

著書

1. T. Majima
Applications to Reaction Mechanism Studies of Organic System”in "Charged Particle and Photon Interactions with Matter. Chemical, Physicochemical, and Biological Consequences with Applications", ed by A.Mozumder and Y. Hatano, Marcel Dekker, Inc., New York, NY.

国際会議

1. ★T. Majima
Hole Transfer in DNA
Symposium on Photochemistry and Radiation Chemistry, April 4, 2002, Muelheim, Germany.

2. ★T. Majima
Hole Transfer through DNA Studied by Pulse Radiolysis
Gordon Research Conf. on Radiation Chemistry, June 23-28, 2002, Colby College, USA.
3. K. Kawai and T. Majima
Hydrogen Bonding Modulation of Photoinduced Electron Transfer Rate of DNA
XIXth IUPAC Conference on Photochemistry, July 14-19, 2002, Budapest, Hungary.
4. ★T. Majima
Beam Chemistry
Symposium on Laser Photochemistry, July 19-20, 2002, Prague, Czech.
5. K. Kawai, T. Takada, S. Tojo, and T. Majima
Possibility of DNA molecular wire
14th International Conference on Photochemical Conversion and Storage of Solar Energy (IPS-14), August 4-9, 2002, Sapporo, Japan.
6. K. Marubayashi, S. Takizawa, H. Sasai
The First Monolayer-protected Au Cluster Bearing Chiral Ligand
14th International Symposium on Chirality (ISCD-14) September 8–12, 2002, Hamburg, Germany
7. K. Yonezawa, S. Takizawa, and H. Sasai
Novel Quaternary Ammonium Salts with Spiro Chirality
14th International Symposium on Chirality (ISCD-14) September 8–12, 2002, Hamburg, Germany
8. S. Somei, S. Takizawa, and H. Sasai
Novel Bisoxovanadium(IV) Complexes and Application to Catalytic Asymmetric Oxidative Coupling of 2-Naphthols
14th International Symposium on Chirality (ISCD-14) September 8–12, 2002, Hamburg, Germany
9. ★K. Kawai and T. Majima
Hydrogen Bonding Modulation of Photoinduced Electron Transfer Rate of DNA

9th Symposium of Intelligent Electrophotonic Materials and Molecular Electronics (SIEMME'9), Oct. 17- 18, 2002, Beijing, P. R. China.

10. ★T. Majima
Hole transfer in DNA
International Symposium on Recent Advances in Protein Structure, Catalysis, and Drug Discovery, Research, November 15, 2002, Soeul, Korea.
11. K. Masago, T. Arai, S. Takizawa, and H. Sasai
Asymmetric Synthesis on the Surface of Chiral Crystals
International Symposium on Innovative Materials Processing by Controlling Chemical Reaction Field (IMP-2002) November 27–29, 2002, Miyagi, Japan
12. ★T. Majima
Hole Transfer in DNA
10th Anniversary RIES-Hokudai International Symposium, December 10-11, 2002, Sapporo, Japan.
13. ★T. Majima
Photochemical Control of Protein Activity
International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2002 (ISSIN-2002), December 12-13, 2002, Suita, Osaka, Japan.
14. S. Tojo and T. Majima
Direct Observation of Oxidation Kinetics in Photoexcited Semiconductor Nanoparticles by Laser Flash Photolysis
International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2002 (ISSIN-2002), December 12-13, 2002, Suita, Osaka, Japan.
15. F. Takei, K. Onitsuka, S. Tojo, T. Majima, S. Takahashi
Synthesis and Photochemical Properties of Polyisocyanides Having Porphyrin as Pendants
International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2002 (ISSIN-2002), December 12-13, 2002, Suita, Osaka, Japan.
16. M. Hara, X. Cai, S. Tojo, T. Majima
Lifetime Measurement of Excited Radical Cation by Two-step Irradiation with Ns and Ps Lasers

International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2002 (ISSIN-2002), December 12-13, 2002, Suita, Osaka, Japan.

17. K. Nakayama, M. Endo, and T. Majima

Photochemical Regulation of Cleavage of DNA by *Bam*HI Having Photocaged Molecules

International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2002 (ISSIN-2002), December 12-13, 2002, Suita, Osaka, Japan.

18. K. Kawai, T. Nagai, A. Sugimoto, T. Takada, S. Tojo, T. Majima

Electron Transfer in DNA: DNA as a Scaffold for Electron Transfer between Organic Molecule.

International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2002 (ISSIN-2002), December 12-13, 2002, Suita, Osaka, Japan.

19. T. Takada, K. Kawai, S. Tojo, T. Majima

Hole Transfer in DNA: DNA as a Scaffold for Hole Transfer between Two Organic Molecules

International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2002 (ISSIN-2002), December 12-13, 2002, Suita, Osaka, Japan.

20. M. Endo and T. Majima

Construction of the novel DNA structures using crosslinked oligonucleotides

International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2002 (ISSIN-2002), December 12-13, 2002, Suita, Osaka, Japan.

21. K. Marubayashi, T. Kawakusu, S. Takizawa, T. Arai, and H. Sasai

The First Monolayer-Protected Au Cluster Bearing Chiral BINOL Moieties

International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2002 (ISSIN-2002), December 12-13, 2002, Suita, Osaka, Japan.

22. S. Takizawa, H. Somei, D. Jayaprakash, T. Arai, H. Tanaka, T. Kawai, and H. Sasai

Organic-inorganic Hybrid Polymers as Enantioselective Catalysts

International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2002 (ISSIN-2002), December 12-13, 2002, Suita, Osaka, Japan.

23. S. Somei, Y. Asano, S. Takizawa, and H. Sasai

Novel Oxovanadium(IV) Complexes for Enantioselective Oxidative Coupling of 2-Naphthols

International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2002
(ISSIN-2002), December 12-13, 2002, Suita, Osaka, Japan.

24. K. Yonezawa, A. Shimomoto, S. Takizawa, and H. Sasai
Novel Quaternary Ammonium Salts with Spiro Chirality
International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2002
(ISSIN-2002), December 12-13, 2002, Suita, Osaka, Japan.

25. K. Masago, S. Takizawa, T. Arai, and H. Sasai
Asymmetric Synthesis on the Surface of Chiral Crystals.
International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2002
(ISSIN-2002), December 12-13, 2002, Suita, Osaka, Japan.

国内会議

1. 真嶋哲朗
光機能界面の反応機構
光機能界面の学理と技術シンポジウム（名古屋）2002年6月28-29日
2. 川井清彦、真嶋哲朗
DNA中の電子移動
第24回日本光医学・光生物学会（浜松）2002年7月26-27日
3. 滝澤忍、飯塚欣正、丸林千能、荒井孝義、笹井宏明
機能性ナノ粒子の創製
第81回有機合成シンポジウム（東京）2002年7月
4. 藤乗幸子、真嶋哲朗
TiO₂光触媒反応における中間体の検出
光化学討論会（京都）2002年9月11-14日
4. 川井清彦、横大路綾、真嶋哲朗
水素結合を介した核酸塩基の光一電子還元への制御
光化学討論会（京都）2002年9月11-14日
5. 高田忠雄、川井清彦、藤乗幸子、真嶋哲朗
DNA中のホール移動の光化学制御

光化学討論会(京都) 2002 年 9 月 11－14 日

6. 中山公志、遠藤政幸、真嶋哲朗
光機能性人工タンパクによる DNA 切断の光化学的制御
光化学討論会(京都) 2002 年 9 月 11－14 日
7. 原道寛、藤乗幸子、真嶋哲朗
ナノ秒ーピコ秒 2 レーザー照射によるラジカルカチオン光励起状態
光化学討論会(京都) 2002 年 9 月 11－14 日
8. 蔡 喜臣、原道寛、川井清彦、藤乗幸子、真嶋哲朗
ベンゾフェノン高励起三重項状態の光化学
光化学討論会(京都) 2002 年 9 月 11－14 日
9. 和田雄二、内山克博、長谷川靖哉、藤乗幸子、真嶋哲朗、柳田祥三
ナノゼオライト細孔内における Eu(III) の光増感発光
光化学討論会(京都) 2002 年 9 月 11－14 日
10. 橋本信二、秋山公男、手老省三、藤乗幸子、真嶋哲朗
キサンテン系色素-酸化チタン間の光誘起電子移動反応で観測される EPR
光化学討論会(京都) 2002 年 9 月 11－14 日
11. 川井清彦、藤乗幸子、真嶋哲朗
DNA の光増感酸化反応における水素結合を介した核酸の酸化電位の調節
日本化学会第 82 秋季年会(豊中) 2002 年 9 月 25－28 日
12. 遠藤政幸、中山公志、真嶋哲朗
タンパク質活性の光化学的制御
日本化学会第 82 秋季年会(豊中) 2002 年 9 月 25－28 日
13. 高田忠雄、川井清彦、藤乗幸子、真嶋哲朗
有機分子修飾による DNA ナノワイヤーの可能性
日本化学会第 82 秋季年会(豊中) 2002 年 9 月 25－28 日
14. 藤乗幸子、真嶋哲朗
パルスラジオリシスによる TiO₂ ナノ粒子上のヒドロキシラジカルの反応性
日本化学会第 82 秋季年会(豊中) 2002 年 9 月 25－28 日

15. 木村巧、川井清彦、真嶋哲朗
ブロモグアニンの電子付着反応の DNA B-Z 構造依存性 3PA-004
日本化学会第 82 秋季年会(豊中) 2002 年 9 月 25-28 日
16. 関口哲也、飯塚欣正、Doss Jayaprakash、滝澤忍、荒井孝義、笹井宏明
触媒アナログの共重合を利用する複合金属不斉触媒の固定化
日本化学会第82秋季年会(豊中) 2002年9月25-28日
17. 滝澤忍、Doss Jayaprakash、笹井宏明
自己分子集合によるナノワイヤー型不斉触媒の創製
日本化学会第82秋季年会(豊中) 2002年9月25-28日
18. Mahesh L. Patil、滝澤忍、米澤文子、島谷満、笹井宏明
ミセル形成能を利用した機能性ナノ粒子の合成
日本化学会第82秋季年会(豊中) 2002年9月25-28日
19. 染井秀徳、浅野泰明、滝澤忍、笹井宏明
新規バナジウム二核錯体を用いる触媒的不斉酸化カップリング反応
日本化学会第82秋季年会(豊中) 2002年9月25-28日
20. 米澤浩司、下元愛、滝澤忍、笹井宏明
スピロ不斉を有する新規第四級アンモニウム塩の合成と応用
日本化学会第82秋季年会(豊中) 2002年9月25-28日
21. 丸林千能、川楠哲生、滝澤忍、荒井孝義、笹井宏明
新規金属クラスター担持型不斉触媒の開発
日本化学会第82秋季年会(豊中) 2002年9月25-28日
22. 村井和憲、滝澤忍、荒井孝義、笹井宏明
触媒的不斉タンデム型ニトロアルドール反応による二環式化合物の簡便合成
日本化学会第82秋季年会(豊中) 2002年9月25-28日
23. 松井嘉津也、滝澤忍、荒井孝義、笹井宏明
新規ボロン-BINOL錯体の開発及び不斉反応への応用
日本化学会第82秋季年会(豊中) 2002年9月25-28日
24. 川瀬敬啓、滝澤忍、荒井孝義、笹井宏明
ジケテンを用いる不斉アルドール型反応の開発

日本化学会第82秋季年会(豊中) 2002年9月25-28日

25. 染井秀徳、浅野泰明、滝澤忍、笹井宏明
Synthesis of Novel Dinuclear Oxovanadium(IV) Complexes for
Enantioselective Oxidative Coupling of 2-Naphthols
第49回有機金属化学討論会 (兵庫) 2002年9月
26. 丸林千能、川楠哲生、滝澤忍、荒井孝義、笹井宏明
Development of New Asymmetric Catalyst Immobilized on Metal Cluster
第 49 回有機金属化学討論会 (兵庫) 2002 年 9 月
27. 藤乗幸子、真嶋哲朗
TiO₂ 光触媒反応による有機化合物の酸化機構
基礎有機化学討論会 (東京) 2002 年 10 月 3-5 日
28. 藤乗幸子、真嶋哲朗
パルスラジオリシスによる TiO₂ ナノ粒子上のヒドロキシラジカルを検出と反応性
放射線化学討論会 (大野城) 2002 年 10 月 9-11 日
29. 川井清彦、宮本圭、藤乗幸子、真嶋哲朗
パルスラジオリシスによるピレンダイマーラジカルカチオンの形成を利用した
DNAダイナミクスの解析
放射線化学討論会 (大野城) 2002 年 10 月 9-11 日
30. 染井秀徳、浅野泰明、滝澤忍、笹井宏明
新規二核バナジウム錯体の合成と触媒的不斉酸化カップリング反応への適用
第28回反応と合成の進歩シンポジウム(東京)2002年11月
31. 米澤浩司、下元愛、滝澤忍、笹井宏明
スピロ不斉を有する新規第四級アンモニウム塩の開発
第28回反応と合成の進歩シンポジウム (東京) 2002年11月
32. 米澤浩司、下元愛、滝澤忍、笹井宏明
スピロ不斉を有する新規第四級アンモニウム塩の開発
有機合成若手セミナー (兵庫) 2002年12月
33. 丸林千能、川楠哲生、滝澤忍、荒井孝義、笹井宏明

金属クラスターを用いる新規不斉固定化触媒の開発
有機合成若手セミナー(兵庫) 2002年12月

特許

1. 荒川守正、牧 弘道、真嶋哲朗
 ^{18}O の濃縮方法
特願 2002-069670
2. 真嶋哲朗、荒川守正、牧 弘道、林正道
2-デオキシ-2-[^{18}F]フルオロ-D-グルコースの製造方法
特願 2002-69969
3. 遠藤政幸、真嶋哲朗
光機能性を有する変異タンパク質、及びそれを含むガンの治療薬剤
特願 2002-129172

共同研究

真嶋哲朗

1. 酸素 18 のレーザー同位体分離、住友精化 (株)
2. 酸素 18 のレーザー同位体分離、(株) 日立製作所原子力事業部
3. 酸素18のレーザー同位体分離、ナード研究所 (株)

滝澤忍

1. ミセルナノ粒子の固体高分子電解質への応用、日本曹達(株)高機能材料研究所

学会活動

真嶋哲朗

日本放射線化学会理事 平成 13. 1. 1～
光化学協会理事 平成 14. 1. 1～
未踏科学技術協会「ナノ粒子研究会」幹事 平成 11. 8～
日本化学会近畿支部代議員 平成 11～
日本学術振興会特別研究員等審査会専門委員 平成 11. 6. 1～

科研費・助成金等

1. 真嶋哲朗

光機能界面の反応機構

平成 14 年度 特定領域研究 (A) (2) A05 班長

2. 真嶋哲朗

修飾 DNA の機能化による分子デバイス

平成 14 年度 基盤研究 (A) (2)

3. 滝澤忍

ミセル形成能を利用するデンドリマー型不斉触媒の創製

平成 14 年度 奨励研究 A

4. 真嶋哲朗 住友精化 (株) 奨学寄附金 レーザー同位体分離

5. 真嶋哲朗 (株) 日立製作所原子力事業部奨学寄附金 レーザー同位体分離

6. 滝澤忍 科学技術振興調整費 若手任期付研究員支援、自己組織化による機能性ナノマテリアルの創製

7. 滝澤忍 旭硝子財団 奨励研究助成、新規光学活性イオン性液体の開発と環境超低負荷型反応への展開

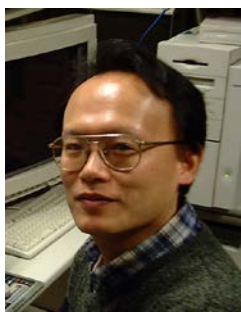
ナノバイオデバイス分野

二井 將光 (ふたい まさみつ)



1940 年 東京都生まれ
1964 年 東京大学薬学部 卒業
1966 年 東京大学大学院化学系研究科製薬化学専門
課程修士課程修了
1969 年 東京大学大学院薬学系研究科製薬化学専門
課程博士課程修了
1969 年 東京大学薬学部助手 (微生物薬品化学教室)
1970 年 米国ウィスコンシン大学 McArdle ガン研究
所博士研究員
1972 年 コーネル大学生化学・分子生物学教室
博士研究員
1974 年 東京大学薬学部助手 (微生物薬品化学教室)
1976 年 東京大学理学部助手 (植物学教室)
1977 年 岡山大学薬学部 教授 (微生物薬品化学教室)
(1977 年はコーネル大学 生化学・分子生物学教室 客員教授)
1985 年 大阪大学 産業科学研究所 教授
2001 年 大阪大学 産業科学研究所 所長
専門分野 生体膜分子学、生化学、分子生物学
所属学会 日本生化学会、日本薬学会、米国生化学・分子生物学会、米国細菌学会 他
趣味 昆虫採集 (最近は忙しさの為に標本の整理もままなりません)、音楽鑑賞 (バ
ッハ、シューベルト、ブルックナーなどいろいろ)
自己紹介: ATP 合成酵素の精微な機構、哺乳動物の持つ多彩なプロトンポンプ、そし
て細胞内外の酸性環境の美しさに心を奪われています。最近になってやっと、このあ
たりに創薬の大きなヒントがあることがわかってきました。

岡島 俊英 (おかじま としひで)



1963 年 北海道生まれ
1987 年 東京理科大学理工学部応用生命科学科 卒業
1989 年 大阪大学大学院理学研究科生物化学専攻
博士前期課程修了
1992 年 大阪大学大学院理学研究科生物化学専攻
博士後期課程修了
博士 (理学) (大阪大学)

近畿大学農学部助手、同講師を経て 2000 年より大阪大学産業科学研究所助手。2002
年助教授、現在に至る。この間、1998 年米国カリフォルニア大学バークレー校博士研
究員、スクリプス研究所博士研究員として、P.G.Schultz 教授の研究室に留学。
専門分野 タンパク質化学、酵素化学、抗体工学
所属学会 日本生化学会、日本蛋白質科学会、日本農芸化学会、米国蛋白質学会
趣味 旅行

研究概要

生体に由来するタンパク質、核酸、及びその複合体の大きさはすべてナノスケールの構造体であり、これら生体素子やその集合体はナノバイオデバイスと位置付けられる。例えば、タンパク質は、生体内で遺伝情報にもとづいて、20種類のアミノ酸が一定の配列で重合されて生成される。基本的にその配列にしたがって、一定の立体構造を自発的に形成し、必要があればタンパク質同士やDNA・RNAと複合体を形成する。酵素などの化学反応を触媒するタンパク質の多くは、金属イオンや補酵素と呼ばれる低分子有機化合物を自発的に結合する。すなわち、どのように立体構造と複合体が形成されるのかは、基本的にアミノ酸配列という“設計書”に書きこまれているといえる。それによって、化学反応の触媒ばかりでなく、分子の回転などの機械的な運動などの多様な機能性を実現している。また、抗体やレセプタータンパク質は、ときに極めて高い分子認識能を有する。しかし、このような自己形成能と機能性を兼ね備えたナノデバイスを設計し人工的に作り出すことは、未だに困難である。当分野において、自然が作り出したナノバイオデバイスのナノ構造と機能の解析を詳細に行い、その精緻な作用メカニズムと設計指針を解明している。さらに、その成果にもとづいて、ナノバイオデバイスを用いる超高感度バイオセンサーの開発や分子モーターを含むナノマシンの創製などを目指している。



図1. ナノバイオデバイスの大きさ

1. ナノモーターとしてのプロトンポンプ

F-ATPase (ATP合成酵素) はプロトンの濃度勾配にもとづいて、生体エネルギーの基本通貨であるATPを合成する酵素である。このとき、反応に共役してサブユニットが回転することが明らかにされている。一方、真核生物には液胞やリソソームなどの酸性オルガネラが存在するが、その内部を酸性に保つために、ATPを分解して、プロトンを輸送する液胞性ATPase(V-ATPase)が存在している。2つのプロトンポンプはサブユニット構成は類似しているが、生理的機能とサブユニット数が異なっているため、V-ATPaseにおいても回転しているかは大きな問題であった。しかしながら、最近V-ATPaseも同じように反応とともに回転していることが明らかにされ、ナノモーターとして回転運動を行うことの普遍性が裏付けられた。ATP合成における共役機構、特にサブユニット回転の機構に着目し研究を進めている。

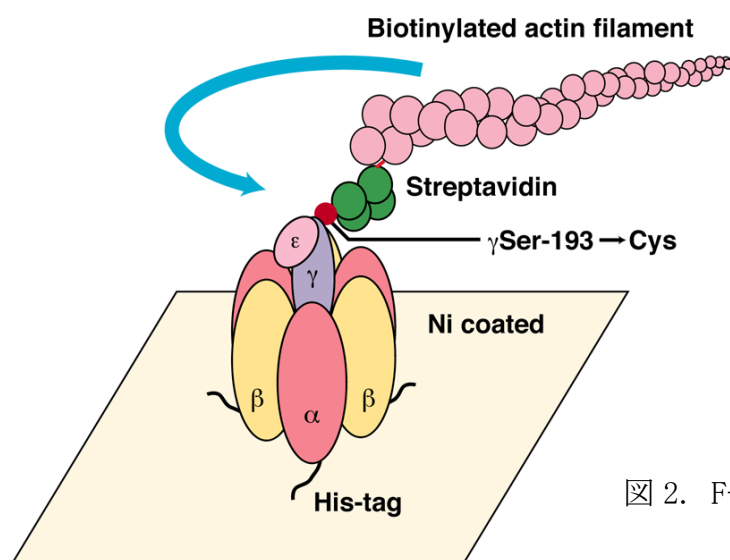


図 2. F-ATPase の回転

2. 触媒ナノマシンとしての酵素タンパク質

銅含有アミン酸化酵素とキノヘムプロテイン・アミン脱水素酵素という2種類のビルトイン型キノン補酵素を含んだ複合型酵素を対象として、触媒ナノマシンである酵素がどのようなメカニズムで、化学反応を触媒するのか解明している。特に銅含有アミン酸化酵素の補酵素トパキノンは、銅イオンと分子状酸素が存在すると、自発的に酵素タンパク質自身によって特定のチロシン残基から作り出される。どのような自己触媒的な機構によるものか興味を持たれる。X線結晶解析によるナノ構造解析を基盤として、反応速度論的な解析を行い研究を進めている。

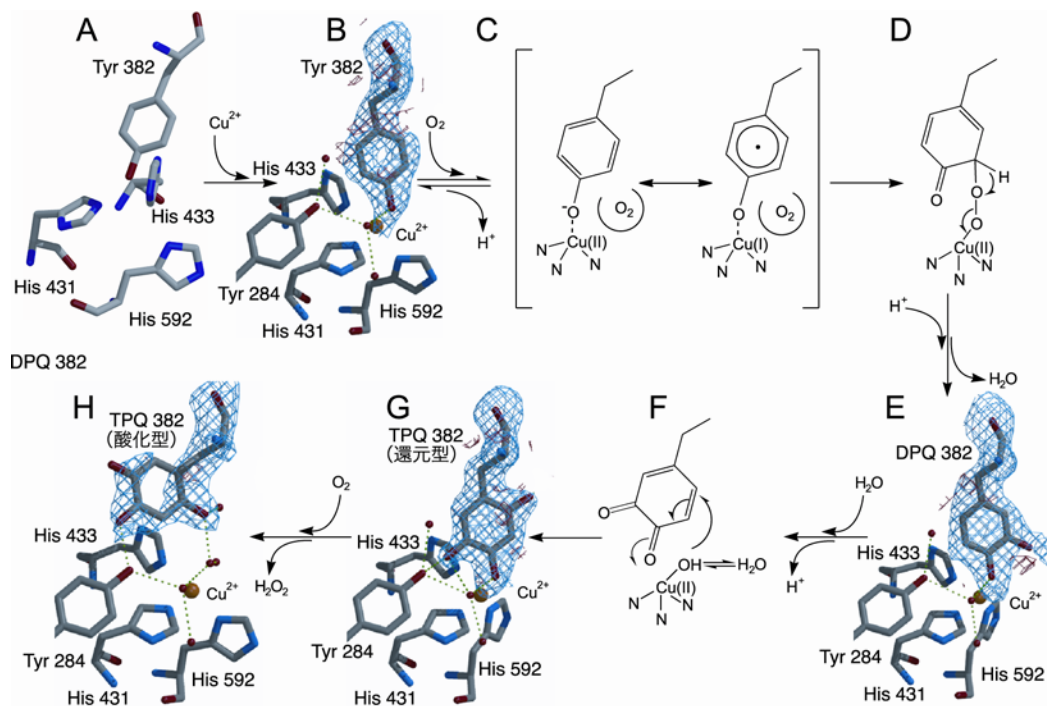


図 2. ナノスケールで捉えたトパキノン生成反応

3. ナノバイオデバイスを利用した高感度バイオセンサーの開発

抗体やサイトカインをシリコン基板上に固定化し、それに対して相互作用する分子を加えると、分子の結合によりナノレベルで膜厚が増加する。このナノレベルの膜厚の変化を分光エリプソメトリーによって検出することができる。シリコン基板上では、リガンドの微細なパターンニングも可能である。SPRイメージングなどの検出手法についても検討する一方、ファージディスプレイ法による抗体分子の高機能化についても研究を進めている。これらの手法の組み合わせにより、高感度バイオセンサーの開発を目標としている。また、中空タンパク質ナノ粒子による特異的な遺伝子・薬剤導入システムに用いるため、ファージディスプレイ法によってヒト肝臓以外の組織細胞特異的な抗体分子の開発についても研究を行っている。

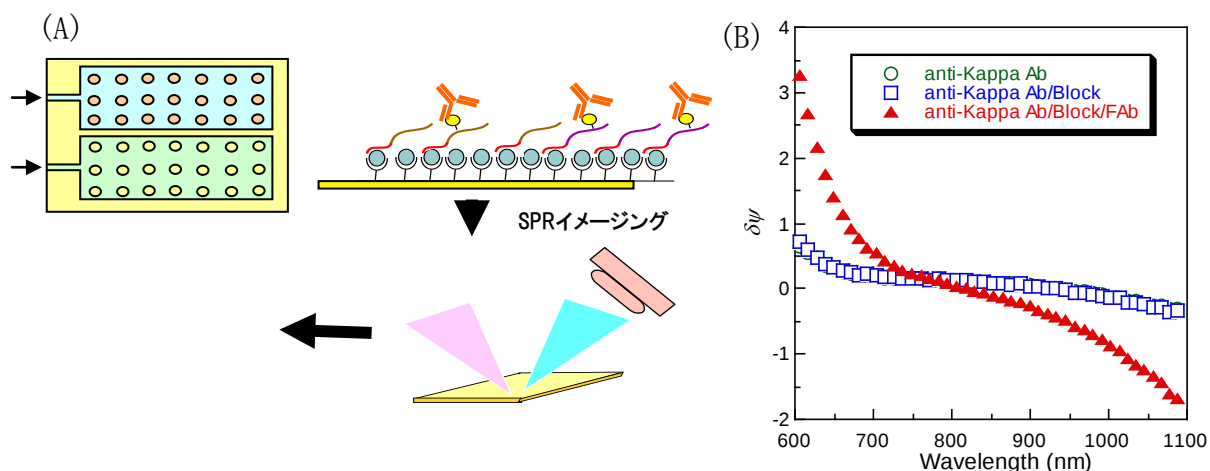


図 4. 高感度バイオセンサーの概念 (A) と分光エリプソメトリーにより検出されたファージ粒子 (B)

論文

1. Sodium and sulfate ion transport in yeast.
T. Hirata, Y. Wada, and M. Futai.
J. Biochem. **131**, 261-265 (2002).
2. A proton pump ATPase with testis-specific E1 subunit isoform required for acrosome acidification.
G. -H. Sun-Wada, Y. Imai-Senga, A. Yamamoto, Y. Murata, T Hirata, Y Wada and M. Futai
J. Biol. Chem., **277**, 18098-18105 (2002).
3. A novel water-soluble hantzsh 1, 4-dihydropyridine compound that functions in biological processes through NADH regeneration.
Y. Sambongi, H. Nitta, K. Ichihashi, M Futai, and I. Ueda.
J. Org. Chem., **67**, 3499-3501 (2002).
4. A human gene, ATP6E1, encoding a testis-specific isoform of H⁺-ATPase subunit E.
Y. Imai-Senga, G. -H. Sun-Wada, Y. Wada and M. Futai.
Gene, **289**, 7-12 (2002).
5. Differential localization of V-type H⁺ pump with G subunit isoforms (G1 and G2) in mouse neurons.
Y. Murata, G.-H. Sun- Wada, T. Yoshimizu, A. Yamamoto, Y. Wada and M. Futai.
J. Biol. Chem. **277**, 36296-303 (2002).
6. Subunit rotation of ATP synthase embedded in membranes: *a* or ϵ subunit rotation relative to the c subunit ring.
K. Nishio, A. Iwamoto-Kihara, A. Yamamoto, Y. Wada, and M. Futai.
Proc. Natl. Acad. Sci. USA, **99**, 13448-13452 (2002).
7. Diversity of mouse proton-translocating ATPase: Presence of multiple isoforms of the C, *d* and G subunits
G. -H. Sun-Wada, T. Yoshimizu, Y. Imai-Senga, Y. Wada and M. Futai.
Gene, **302**, 147-153 (2002).
8. Crystal Structure of Quinohemoprotein Amine Dehydrogenase from *Pseudomonas putida*. Identification of a Novel Quinone Cofactor Encaged by Multiple Thioether Cross-bridges.

- A. Satoh, J. K. Kim, I. Miyahara, B. Devreese, I. Vandenberghe, A. Hacisalihoglu, T. Okajima, S. Kuroda, O. Adachi, J. A. Duine, J. Van Beeumen, K. Tanizawa, and K. Hirotsu
J. Biol. Chem., **277** (2002), 2830-2834.
9. Scanning Tunnelling Microscopy Images of the Copper-Containing Amine Oxidase from *Arthrobacter globiformis* in the Holo and Apo Forms Adsorbed on Gold under Ambient Conditions.
S. A. Contera, T. Okajima, and H. Iwasaki
Jpn. J. Appl. Phys., **41** (2002), 3916-3921.
10. X-ray Snapshots of Quinone Cofactor Biogenesis in Bacterial Copper Amine Oxidase.
M. Kim, T. Okajima, S. Kishishita, M. Yoshimura, A. Kawamori, K. Tanizawa, and H. Yamaguchi
Nature Struct. Biol., **9** (2002), 591-596.
11. A Novel Trimeric Adenylate Kinase from an Extremely Thermoacidophilic Archaeon *Sulfolobus solfataricus*: Molecular Cloning, Nucleotide Sequencing, Expression in *Escherichia coli*, and Characterization of the Recombinant Enzyme.
T. Okajima, D. Kitaguchi, K. Fujii, H. Matsuoka, S. Goto, S. Uchiyama, Y. Kobayashi, and K. Tanizawa
Biosci. Biotechnol. Biochem., **66** (2002), 2112-2124.

解説・総説

1. バイオナノ粒子を用いる新しい遺伝子導入法の開発と先端医療への応用
黒田俊一、岡島俊英、谷澤克行
マテリアルインテグレーション、7月号（2002）、12-17
2. プロテインキナーゼ C 結合タンパク質を介する新しい細胞内シグナル伝達機構とその応用
立松健司、岡島俊英、谷澤克行、黒田俊一
マテリアルインテグレーション、7月号（2002）、18-22
3. ペプチド・ビルトイン型キノン補酵素の生成機構
岡島俊英、黒田俊一、谷澤克行
マテリアルインテグレーション、7月号（2002）、23-27

国際会議

1. ★VoV1 subunit isoforms in mouse vacuolar proton ATPase,
M. Futai, Experimental Biology, 2002, April. 19-24, 2002
2. Pinpoint gene delivery and in vitro viral infection model using genetically engineered hepatitis B virus envelope L particles
T. Okajima, D. Kitaguchi, T. Yamada, A. Kondo, M. Seno, M. Ueda, S. Kuroda, K. Tanizawa
The Awaji International Forum on Infection and Immunity
August 24-27, 2002, Awaji Island, Hyogo, Japan
3. Gene and Three-dimensional Structures of Quinohemoprotein Amine Dehydrogenase from *Paracoccus denitrificans*.
Y. Mori, S. Datta, K. Takagi, K. Kawaguchi, Z. W. Chen, T. Okajima, S. Kuroda, T. Ikeda, K. Kano, F. S. Mathews, and K. Tanizawa
Gordon Research Conference on Protein Derived Cofactors, Radicals and Quinones, Jan. 13-18, 2002, Ventura, California, U.S.A.
4. Metal Ion Specificity in TPQ Biogenesis of Bacterial Copper Amine Oxidase.
T. Okajima, S. Kishishita, Y.-C. Chiu, and K. Tanizawa
Gordon Research Conference on Protein Derived Cofactors, Radicals and Quinones, Jan. 13-18, 2002, Ventura, California, U.S.A.

国内会議

1. Dynamic subcellular Localization of V-ATPase in mammalian cells
和田 洋、二井 将光
第 75 回日本生化学会大会、2002 年度 5 月 21 日
2. エンドソーム、リソソームの多様性
和田 洋、二井 将光
第 75 回日本生化学会大会、2002 年度 10 月 17 日
3. Subunit Rotation of ATP Synthase Emnedded in Membrane
西尾 和晃、岩本（木原）昌子（東大・総文）、山本 章嗣（関西医大・第一生理）、

和田 洋、二井 將光

第8回けいはんな分子生物物理学国際会議、2002年9月19日

4. 膜に存在するATP合成酵素 (FoF1) の回転

西尾 和晃、岩本 (木原) 昌子 (東大・総文)、伊香 祐子、和田洋、
二井 將光

第75回日本生化学会大会、2002年10月17日

5. ATP合成酵素 (FoF1) のエネルギー共役とH⁺輸送に重要なサブユニット間相互作用の解析

岩本 (木原) 昌子 (東大・総文) 田辺 幹雄、孫 戈虹、川口 明彦、
伊香 祐子、和田 洋、二井 將光

第75回日本生化学会大会、2002年10月17日

6. V-ATPase Gサブユニット (G1,G2) とG2イソフォームのシナプス小胞特異的な発現

村田 佳子、吉水 孝緒、孫 戈虹、山本 章嗣 (関西医大・第一生理)
和田 洋、二井 將光

第75回日本生化学会大会、2002年10月17日

7. V-ATPase EサブユニットのイソフォームE1,E2の同定と精巢特異的な発現

千賀 陽子、孫 (和田) 戈虹、村田 佳子、和田 洋、二井 將光

第75回日本生化学会大会、2002年10月17日

8. 腎臓に特異的なV-ATPaseサブユニット・イソフォームの構成

孫 戈虹、村田 佳子、山本 章嗣 (関西医科大・第一生理)、
和田 洋、二井 將光

第75回日本生化学会大会、2002年10月17日

9. *Arthrobacter globiformis* 由来銅アミンオキシダーゼ反応における立体選択性

大谷 晃文、内田 真由美、岡島 俊英、谷澤 克行、山本 行男

日本農芸化学会 2002 年度大会、仙台、2002 年 3 月 24-27 日

10. 新規酸化還元補酵素及びチオエーテル架橋構造を含有する *Paracoccus denitrificans* 由来キノヘムプロテイン・アミン脱水素酵素の構造解析

岡島 俊英、森 陽一、黒田 俊一、加納 健司、S. Datta, S. Mathews,
谷澤克行

第2回日本蛋白質科学会年会 名古屋、2002年6月13-15日

11. 銅含有アミン酸化酵素の TPQ 生成反応における時分割構造
金 美沙、岡島 俊英、谷澤 克行、山口 宏
第 2 回日本蛋白質科学会年会 名古屋、2002 年 6 月 13-15 日
12. HepG2 細胞表面レセプター特異的抗体の機能スクリーニング
北口 大輔、岩路 秀彦、山田 忠範、立松 健司、黒田 俊一、
岡島 俊英、谷澤 克行
第 75 回日本生化学会大会 京都、2002 年 10 月 14-17 日
13. 無血清培養により大量発現させた新規骨形成因子 NELL1 の生化学的解析
朴井 伸行、Kang Ting、金山 範洋、岩路 秀彦、立松 健司、岡島 俊英、
谷澤 克行、黒田 俊一
第 75 回日本生化学会大会 京都、2002 年 10 月 14-17 日
14. Role of Asp298, a Putative Catalytic Base, in the Reductive Half-reaction of Bacterial
Copper Amine Oxidase
Yen-Chen Chiu, Toshihide Okajima, Shun'ichi Kuroda, Hiroshi Yamaguchi,
Katsuyuki Tanizawa
第 75 回日本生化学会大会 京都、2002 年 10 月 14-17 日
15. 銅トパキノン含有アミン酸化酵素による還元的半反応の立体化学と触媒機構
岡島 俊英、内田 真由美、邱 彦成、大谷 晃文、林 秀行、山本 行男、
黒田 俊一、谷澤 克行
第 75 回日本生化学会大会 京都、2002 年 10 月 14-17 日
16. Ring-finger を有する新規転写因子 RPY1 の低浸透圧下における Mpk1 との相互作用
八尾 修平、小柳 智義、立松 健司、金子 嘉信、原島 俊、岡島 俊英、
谷澤 克行、黒田 俊一
第 75 回日本生化学会大会 京都、2002 年 10 月 14-17 日
17. RING-IBR タンパク質 RBCK1 の細胞内局在性に対するスプライス変異体 RBCK2
の制御
良元 伸男、立松 健司、八尾 修平、岡島 俊英、谷澤 克行、黒田 俊一
第 25 回日本分子生物学会年会 横浜、2002 年 12 月 11-14 日
18. 心筋・骨格筋特異的足場タンパク質 ENH1 を介する心肥大化機構の解析
岩田 美紀、立松 健司、岡島 俊英、谷澤 克行、黒田 俊一

第 25 回日本分子生物学会年会 横浜、2002 年 12 月 11-14 日

19. 神経軸索誘導関連タンパク質 FEZ1 と同ホモログ FEZ2 の比較

藤田 敏次、生田 潤子、立松 健司、岡島 俊英、谷澤 克行、黒田 俊一

第 25 回日本分子生物学会年会 横浜、2002 年 12 月 11-14 日

特許

1. 岡島 俊英

抗体を提示するタンパク質中空ナノ粒子を用いる治療薬剤

特願 2002-97424

共同研究

岡島 俊英

1. 「銅含有アミン酸化酵素の構造機能解析」

谷澤 克行（大阪大学産業科学研究所）、山口 宏（関西学院大学）、
山本 育男（京都大学大学院）、林 秀行（大阪医科大学）、廣田 俊（京都薬科大学）

2. 「機能性抗体分子の開発」

古川 功治（産業技術総合研究所）

3. 「キノヘムプロテイン・アミン酸化酵素の補酵素生成機構の解明」

谷澤 克行（大阪大学産業科学研究所）、V. Davidson（Univ. of Mississippi, USA）、
S. Mathews(Washington Univ.)

4. 「分光エリプソメトリーによるバイオセンサーの開発」

吉信 達夫、谷澤 克行、岩崎 裕（大阪大学産業科学研究所）

学会活動

二井 將光

所属学会：日本生化学会、日本薬学会、米国生化学・分子生物学会、
米国細菌学会 他

学会活動：Arch. Biochem. Biophys. (USA, 編集委員)
J. Bioenerg. Biomemb. (USA, 編集委員)
J. Biol. Chem. (USA, 編集委員)
Biological Chemistry (Germany, 編集員)

岡島 俊英

所属学会：日本生化学会、日本蛋白科学会、日本農芸化学会、
米国蛋白質学会

科研費・助成金等

1. 二井 将光

科学研究費・特定領域研究（2）

「生物ナノ・モータープロトンポンプATPaseの作動機構」

2. 二井 将光

科学研究費・基盤研究（B）

「ATP合成酵素：サブユニットの複合体の回転を伴う反応機構」

3. 二井 将光

科学技術振興事業団（平成9年—14年）

戦略的基礎研究推進事業

「酸性オルガネラの形成とその機能の研究」

4. 岡島 俊英

科学研究費・特定領域研究（2）

「触媒抗体による新しい感染制御手法の開発」

5. 岡島 俊英

科学研究費・基盤研究（C）（2）

「ビルトイン型キノン補酵素生成機構の解明と複合型触媒抗体への応用」

ナノシステム設計分野

平成 14 年 5 月 1 日～7 月 31 日

客員教授

氏名：石黒正路（いしぐろ まさじ）

所属：（財）サントリー生物有機科学研究所

略歴：

昭和 47 年 3 月 東京工業大学 理学部 化学科卒

昭和 49 年 3 月 東京工業大学大学院 理工学研究科修士課程修了

昭和 52 年 3 月 東京工業大学大学院 理工学研究科博士課程修了 理学博士

昭和 52 年 9 月～54 年 8 月 Postdoctoral Fellow (Harvard 大)

昭和 55 年 3 月～平成 7 年 3 月 サントリー（株）生物医学研究所

平成 7 年 4 月～現在 （財）サントリー生物有機科学研究所 部長研究員

専門分野：

生体高分子とリガンドの相互作用解析およびリガンドのデザイン。

リガンドとの相互作用によって生じる蛋白質の構造変化をコンピュータを用いてシミュレートし、その結果をもとにしてデザインしたリガンドを用いて、有機科学的な構造と機能解析を行う。

所属学会：日本薬学会、日本生物物理学会、日本化学会、アメリカ化学会

趣味：山歩き、読書、スポーツ観戦



客員助教授

氏名：後藤直正（ごとうなおまさ）

所属：京都薬科大学・微生物学教室

略歴：

1970 年 3 月 大阪府立市岡高等学校普通科卒業

1976 年 3 月 京都薬科大学 薬学部 製薬化学科卒業

1978 年 3 月 京都薬科大学大学院 薬学研究科修士課程修了

1978 年 4 月 京都薬科大学 薬学部 助手

1990 年 5 月～1991 年 5 月 カルガリー大学（カナダ）Visiting Scientist

1992 年 2 月 京都薬科大学 薬学部 講師

1997 年 4 月 京都薬科大学 薬学部 助教授

現在に至る

学位 1990 年 3 月 薬学博士（京都薬科大学）

受賞 1997 年 6 月 上田泰記念感染症・化学療法研究奨励賞受賞（日本化学療法学会）

専門分野：病原細菌における抗菌薬耐性機構：病原細菌の多剤耐性の克服を目指して、細菌の異物排出タンパク質の基質認識の機構および生理的意義の解明のための研究を行っている。

所属学会：日本薬学会、日本細菌学会、日本化学療法学会、日本生化学会、米国微生物学会（American Society for Microbiology）

趣味：日本酒文化の探求



平成 14 年 10 月 1 日～12 月 31 日

客員教授 白井正文

私は、1980 年に大阪大学基礎工学部に入学して以来、工学博士の学位を授与され、その後も同学部の助手そして助教授として勤務し、学生時代から通算すると 20 年以上の歳月を大阪大学で過ごしました。2002 年 4 月より東北大学電気通信研究所の教授として転任し、現在は仙台市に在住しています。研究に関しては、第一原理計算に基づいた新材料及びデバイスの設計と、その機能の原子・分子レベルでの解明を通して、情報通信分野に新しい進展をもたらすことを目標としています。特に、電子スピンの自由度を活用した電子工学（いわゆるスピントロニクス）関連の研究に力を注いでいます。この研究分野においても、ナノメートルスケールの超構造から新しい機能が発現することが期待され、計算機による新材料及びデバイス設計が重要な役割を果たしうると考えています。縁あって 2002 年 10 月から 12 月までの 3 ヶ月間にわたり大阪大学産業科学研究所ナノテクノロジーセンターの客員教授を勤めましたが、客員として同センターに来所した際、最新の研究成果についてセミナーをするとともに、教官および大学院生との議論を通して新たな共同研究の芽も生まれ、大変有意義な時間をもつことができたと感じています。



客員助教授 金田寛

私は東北大学大学院理学研究科・博士前期課程において強誘電体構造相転移の実験的研究を行った後、同・後期課程では、イオン性結晶中のトンネル不純物による低温異常物性（光学的、誘電的、弾性的性質）を理論の立場から研究しました。この研究は一応の結末を見ましたが、在学期間が満了となってしまったため、同課程を退学し、富士通株式会社へ入社しました。富士通では、シリコン結晶中の不純物物性の研究に従事することになりました。これが 1985 年のことです。当時、国内の電子デバイス産業は隆盛をきわめ、企業にける研究環境も非常に良好でした。加えて、非常に幸いであったことは、実用面で重要視されていたシリコン結晶中の不純物酸素がトンネル不純物の典型であったことです。私は、早速、実験と理論の両面から、この研究に取り組みました。更に幸いなことに上司の理解にも恵まれ、ほとんど社内の仕事はそっちのけで、自分の研究に没頭することができました。このような状態が 10 年くらい続きました。現在の国内企業における研究環境と較べれば、ずいぶんと恵まれていたものです。この時の研究の成果と、大学院後期課程における研究の成果に対して、東北大学より、博士（理学）の学位を授与されるはこびとなりました。この学位取得にあたっては、吉田博先生が審査員に加わってくださり、大学院時代に一度経験したものとは反対の「追い風審査」でした（ただし、不可逆過程であるという強い緊張感があったことは述べておかねばなりません）。社内でも、自分の研究チームを率いるようになると、さすがに自分の研究に費やす時間がじょじょに減り、同時に、チームメンバーの研究指導のために、広範囲の仕事に関わらなければならなくなりました。まあ、当然の成り行きです。このおかげで、色々な専門分野の人と出会うことができましたし、何より良



かったことは、入社当時はけげらいしていた電子デバイスが、物理学の観点から見ても実は非常に面白い要素をたくさん含んでいる、ということに気づいたことです。一方で、大学院時代に指導してくださいました萱沼洋輔先生（現・大阪府立大教授）の口癖であった「理論屋の仕事は手作りでなければいけない」、という言葉大切にしたいと思っています。現在の趣味は飲酒とドライブ。ただし同時には行いません。

平成 15 年 1 月 1 日～3 月 31 日

客員教授

彌田 智一（いよだ ともかず）

（現職 東京工業大学資源化学研究所）



1956 年生まれ。

1979 年京都大学工学部石油化学科を卒業、1981 年京都大学大学院工学研究科石油化学専攻修士課程修了、1983 年同博士後期課程に進学、1984 年単位認定退学。工学博士。

1984 年日本学術振興会奨励研究員、1984 年京都大学大学院工学研究科助手。1991 年米国アルゴンヌ国立研究所化学科研究員、1994 年神奈川科学技術アカデミー専任研究員。1996 年東京都立大学大学院工学研究科応用化学科教授。2002 年から現職の東京工業大学資源化学研究所教授。専門は、分子機能材料、高分子化学、材料電気化学。趣味は、ハイキング。

センターにおける共同研究課題は「ナノサイズ有機高分子の分子形態と機能研究」。

客員助教授

野崎 京子（のざき きょうこ）

略歴

昭和 61 年 京都大学工学部工業化学科卒業

昭和 63 年 京都大学大学院工学研究科修士課程修了

平成 3 年 京都大学大学院工学研究科
博士課程修了（工学博士）

平成 3 年 京都大学助手 工学部工業化学科

平成 8 年 京都大学大学院助手 工学研究科

平成 11 年 京都大学大学院助教授 工学研究科材料化学専攻

平成 14 年 東京大学大学院助教授 工学系研究科化学工学生命工学専攻



受賞

平成 4 年 井上研究奨励賞

平成 6 年 有機合成化学協会研究企画賞

平成 10 年 日本化学会進歩賞

専門分野 有機合成化学、均一系触媒化学、有機金属化学、高分子合成化学

ナノ量子ビーム研究部門

量子ビームナノファブリケーション分野



吉 田 陽 一 （よしだよういち）

所属：

産業科学研究所産業科学ナノテクノロジーセンター
ナノ量子ビーム研究部門 量子ビームナノファブリケーション分野

専門分野：量子ビーム化学、加速器科学

（略歴）

昭和 57.3	東京大学工学部原子力工学科卒業
昭和 59.3	東京大学大学院工学系研究科原子力工学専攻修士課程修了
昭和 62.3	東京大学大学院工学系研究科原子力工学専攻博士課程修了
昭和 62.4	アメリカミネソタ州立大学助手化学科
昭和 63.5	東京大学助手工学部
平成 5.9	大阪大学助手産業科学研究所
平成 7.6	大阪大学助教授産業科学研究所
平成 14.12	大阪大学教授産業科学研究所

（研究内容）

量子ビームによる極限ナノファブリケーションの確立が目標です。これは、半導体の微細加工寸法を現在の10分の1以下にする次世代の技術ですが、早急に解決すべき多くの問題に直面しています。量子ビーム誘起反応の時間・空間反応解析と呼ばれる手法を駆使して、それらの解決を図る予定です。現在、加速器の性能向上に伴い、アト秒・フェムト秒と呼ばれる時間領域の現象を探索する計画が進行中です。これにより、全く新しい世界が開けることと確信しております。

（家庭・趣味）

妻と一女一男。最近は、運動不足なので、スキーやソフトボールに力を入れようかと思っています。

学生

竹谷孝司	工学研究科原子力工学専攻 M1
友定 寛、	工学部原子力工学科 B4

島田 巧

工学部原子力工学科 B4

研究概要

時間空間反応解析と極限ナノファブ리케이션

1. 極限ナノファブ리케이션

現在の半導体等の微細加工は、現在光（レーザー）により行われている。その最小加工寸法は、現在 130nm であるが、ごく近い将来、90nm の加工が行われようとしている。さらに、2005 年には 65nm の加工が計画されている。微細加工技術では、回路等のパターンをシリコン上に作成するために、レジストプロセスが使用される。そのレジスト材料に要求される基本的な性能として解像度、感度、コントラスト、耐ドライエッチング性がある。レーザーを使用したプロセスでは、スループットを向上させるために感度を高くする必要があり、連鎖反応を利用した化学増幅系レジストが使用されている。

解像度を決めている要因は、レーザーの波長である。現在、最先端では ArF エキシマーレーザー（193nm）が使用されている。次世代プロセスでは、F₂ エキシマーレーザー（157nm）が使用される予定である。現在の微細加工技術では、波長の半分程度までの寸法の加工が可能になっている。そこで、65nm までの加工は、レーザーを使用することが可能である。半導体加工のロードマップでは、さらにその先に 45nm、32nm、22nm、16nm の最小加工寸法が予定されている。しかしながら、その寸法に対応したレジストプロセス用のレーザーは世の中に存在しない。そこで、レーザーにかわって X 線や電子線などの量子ビームを使用することが必須となる。利用が予定されている極短紫外光の波長は 13nm であり、X 線では 1nm である。また、電子線の波長は 1pm であり、事実上、波長は無視できる。

X 線や電子線の発生装置は、レーザーに較べて大規模になる。また、その線源を増大させることは非常に困難となる。そこで、スループットを維持するためには、化学増幅系レジストを使用せざるをえない。これまでに、化学増幅型レジスト[1]を使用したファブ리케이션での問題点は、レジスト中での電子線の散乱や連鎖反応時の酸の拡散の問題が指摘されていた。これらの問題については、電子線のエネルギー、レジストの膜厚、連鎖反応の制御の点から、研究が進められている。しかしながら、これらの問題が解決されても、スパーク効果と呼ばれる大きな問題が生じることをこれまでに指摘した。

図 1 に、レーザーと量子ビームが化学増幅系レジスト内で誘起する反応を模式的に示した。一般に、量子ビームと呼ばれる X 線や電

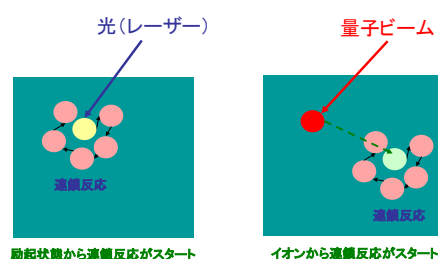


図1 化学増幅系レジスト内におけるレーザーおよび量子ビーム誘起反応

子線の物質に及ぼす化学的影響は、二次電子によるイオン化の影響が大部分であり、その意味では、X線と電子線の効果はほぼ同じと考えてよい。さて、レーザーでは、レジスト内の酸発生剤を直接的に励起し、酸を発生させる。その後熱を加えることにより連鎖反応をひきおこさせる。一方、量子ビームは、直接的に酸発生剤に作用することではなく、レジストマトリックスをイオン化する。その際、放出された電子が酸発生剤と反応し、酸が生成する。従って、量子ビームが作用した場所から離れた所に酸が生成する。この距離は、スパーとよばれる領域にほぼ等しいことが今までの研究で明らかにしてきた。この距離が大きければ、必要とする解像度が得られないことになる。そこで、この問題をスパー効果として問題提起した。[2]

極限ナノファブリケーションを実現するためには、スパー効果の問題を解決する必要がある。現在、その方法として、

- 1) スパーサイズを制御する。
- 2) スパーサイズに影響されない反応系を開発する。

の二つの方法が考えられる。これらの問題を克服するためには、時間空間反応解析を通して、量子ビーム誘起初期過程の本質を明らかにし、この問題に対応する必要がある。

2. 極限ナノファブリケーションにおけるカチオンラジカルの挙動

スパー内でカチオンラジカルの挙動を知ることは、極限ナノファブリケーションにおける新しい反応系を構築する上で重要な情報を与える。ここでは、カチオンラジカルと溶質との反応性について調べた。

低 LET の放射線が液体溶媒中に入射すると、その軌道と二次電子の軌道に沿ってスパーと呼ばれる領域で、イオン化によってカチオンラジカルと電子が生成される。イオン化の後、電子は周りの溶媒分子と相互作用することによって、その運動エネルギーを失い、やがてフェムト秒の時間スケールで熱平衡化する。その後、電子およびカチオンラジカルは拡散とクーロン力によって移動する。液体アルカンのように比誘電率が小さい溶媒中では、クーロン力が長距離まで及ぶので、電子は時間の経過とともに、大部分が親カチオンと再結合反応する。この反応はジェミネートイオン再結合と呼ばれ、放射線化学初期過程として重要な反応の一つである。[3, 4]

サブピコ秒パルスラジオリシス法を用い、*n*-ドデカンに TEA を添加して測定を行った。励起源に L-バンドライナックからの電子線 (28 MeV、最短 125 fs)、分析光にフェムト秒レーザーからの基本波 (790 nm、最短 60 fs) を用いた。サンプルは Ar バブリングを行った。得られた実験結果を図 2 に示す。TEA の濃度が濃くなるごとに、*n*-ドデカンカチオンラジカルの初期値が大きく減少することが観測された。反応速度定数一定の疑一次反応では、このように初期値が大きく下がることは説明できない。初期値が減少する原因として 2 つの効果考えた。溶質が入ることによって、溶媒分子の数が減少する。したがって、イオン化によって生成する溶媒分子カチオンラジカルの数が減少する。この効果を排除効果とする。また、高濃度であれば、溶質分子は反

応初期において溶媒カチオンラジカルと隣接している可能性が高くなる。この場合、拡散を必要とせずに反応することができ、通常の1次の速度定数で表すことは適切でない。この効果を隣接効果とする。両者の効果を取り入れることにより、スキャベンジングを良く説明できることが明らかとなった。

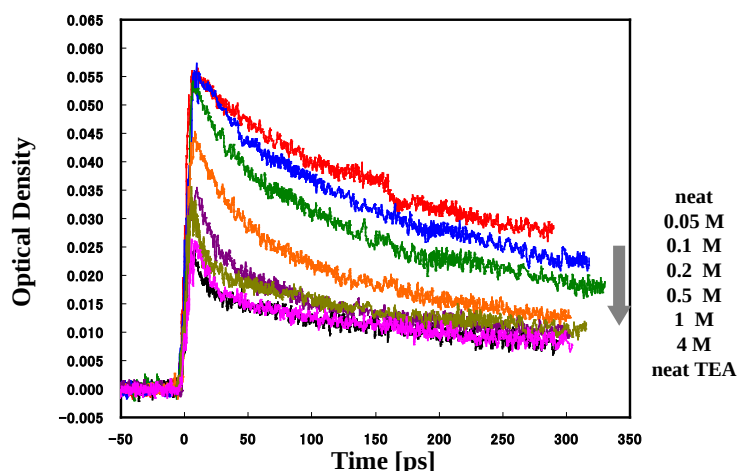


図2 TEAの濃度を変えて測定したn-ドデカン中のカチオンラジカルの挙動

3. 極限ナノファブリケーションにおけるよるハロカーボンの役割

放射線化学の分野では、四塩化炭素 (CCl_4)、クロロホルム (CHCl_3)、塩化メチレン (CH_2Cl_2) 等のハロカーボンが溶媒として又電子捕捉剤として使用されている。最近、これらのハロカーボンが、イオン化後の電子の減速過程に影響を及ぼす可能性、即ち、スパーサイズが変化することを指摘した。そこで、サブピコ秒パルスラジオリシスを用いて、ハロカーボンの量子ビーム誘起初期過程に関する研究を行った。

過去、これらの放射線照射下における反応機構は、放射線化学初期過程における重要なプロセスとして多くの研究がなされてきた[5]。例えば、 CCl_4 では、330nmと480nmに吸収ピークが観測され、480nmの吸収はジェミニートイオン再結合から生成する中間活性種であることが知られている。ナノ秒パルスラジオリシスを用いてこれらのハロカーボンの過渡吸収スペクトルを測定した。図3にナノ秒パルスラジオリシスで得られた CH_2Cl_2 の過渡吸収スペクトルを示す。330nmにピークを持ち長波長側にブロードな吸収が測定された。 CCl_4 では330nm、480nmにピークを持つ吸収が測定された。 CHCl_3 は320nmにピークを持ち、長波長側にブロードな吸収が測定された。

そこでこれらのハロカーボンについてサブピコ秒パルスラジオリシスにより波長790nmで過渡吸収時間プロファイルの測定を行った。図3にサブピコ秒パルスラジオリシスで得られた CH_2Cl_2 の過渡吸収時間プロファイルを示す。波長790nmの赤外領域においてはFig. 2に示すように極めて減衰速度の速い吸収が測定された。 CCl_4 、 CHCl_3 についても波長790nmの赤外領域において非常に速い減衰を示す吸収が測定された。 $\text{CCl}_4 \rightarrow \text{CHCl}_3 \rightarrow \text{CH}_2\text{Cl}_2$

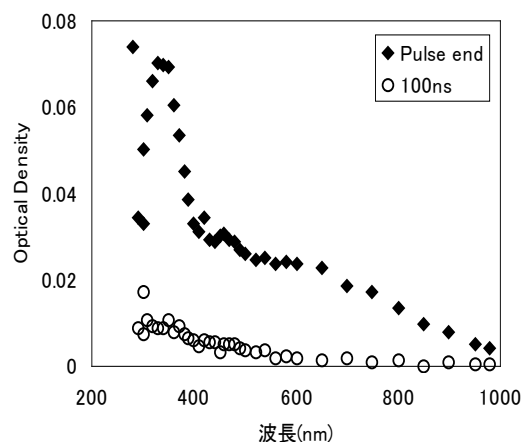


図3 ナノ秒パルスラジオリシスで得られた CH_2Cl_2 の過渡吸収スペクトル

となるに従って、赤外領域で測定される中間活性種の寿命が延びることが分かった。この減衰をジェミネートイオン再結合を表す拡散理論に基づいた Smoluchowski 方程式を用いて解析し、得られた挙動とのフィッティングを行ったところ、両者はよい一致を示した。このことより赤外で測定された中間活性種はジェミネートイオン再結合による減衰 (geminate decay) しているものと思われる。従って、測定している時間領域を考慮するとカチオンラジカルか電子である可能性が高いと考えられる。

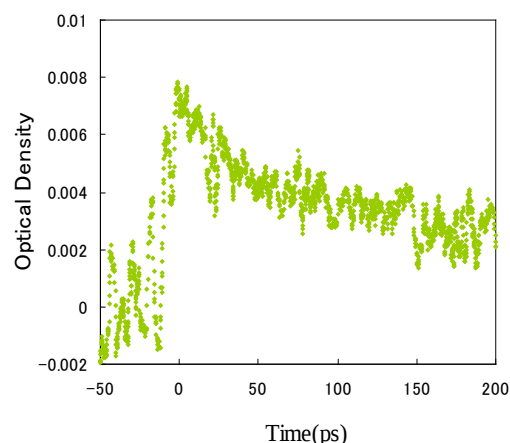


図4 サブピコ秒パルスラジオリシスで得られた CH_2Cl_2 の過渡吸収時間プロフィール (波長790nm)

4. アト秒パルスラジオリシスの可能性

極限なファブリケーションでは、レジストにおけるスパー内反応を制御する必要がある。ナノ空間反応解析は、パルスラジオリシスにより得られる時間情報を空間情報に変換して、ナノ空間内の反応を追跡する手法である。アト秒パルスラジオリシスで得られる情報は、ナノ空間反応解析[4]にとって非常に重要なものとなる。そこで、アト秒パルスラジオリシスをどのように実現するか検討を行った。

ストロボスコピック方式のアト秒パルスラジオリシスを構成する要件として

- A) アト秒電子線パルス (もしくは短パルス放射線) の発生
- B) アト秒分析光パルスの発生
- C) 時間ジッターレスの分光システム

が重要である。

最近ではX線レーザーの開発も進んでおり、近い将来その利用が可能になると思われるが、現実的には、短パルス電子線を発生させる手法としては、電子線形加速器を使うのが妥当である。現在、阪大産研のL-バンド加速器と磁気パルス圧縮を組み合わせることにより100フェムト秒程度の電子線パルスの発生に成功している[6]。短いパルスを得るためには、電子ビームのエミッタンスを向上させることがポイントとなる。一般的な熱電子銃を用いた加速器に比べ、レーザーフォトカソードRF電子銃はエミッタンスが2桁ほど良くなる。これを利用して、1フェムト秒以下の電子線パルスの発生を目指すことは可能である。その際、パルス当りの電荷量は減少し、吸収強度が低下するおそれがあるので、分光システムに工夫が必要となる。

アト秒分析光パルスの発生は、レーザー[7]では不可能となる。そこで、チェレンコフ光を利用する。アト秒電子線パルスが生成するチェレンコフ光は、コヒーレントチェレンコフ光となる。一般のチェレンコフ光の強度はパルス内の電子数に比例するが、コヒーレントチェレンコフ光は、電子数の2乗に比例する。従って、レーザー以上の大強度の分析光パルスが得られる。その他、コヒーレントOTR光や、スミス・パ

ーセル放射を利用することも検討している。スミス・パーセル放射の発生は、フォトニクス結晶や微細加工構造体を使用し、格子定数により任意の光を発生できるので、紫外や赤外領域の分析光パルス発生に利用する。

1つの電子線パルスを励起源と分析光パルスに使用しようとする、電子ビームの遅延が不可欠となる。ピコ秒の時間領域では270度マグネッ

トを利用したビーム遅延が可能であったが、アト秒領域ではパルス幅を維持できなくなるのでこの方法は使えない。ツインライナック方式[8]では、ビーム遅延が不要となるが、いくつかの問題が生じる。アト秒領域では2台のライナック間の時間ジッターが無視できないと予想される。阪大サブピコ秒パルスラジオリシスで採用したストリークカメラによる時間補正法[9, 10]はストリークカメラの時間分解能の不足からアト秒の時間領域では使用できない。それ以上に、2台のライナックを安定して運転するための技術的困難さや建設コストの問題がある。そこで、図5に示すような1台のライナックで、ツインライナックを実現する新しい方法を考案した。これらのシステムの性能については、現在検討中であり、別の機会に詳細を紹介する。

(参考文献)

- [1] T. Kozawa, et al., Jpn. J. Appl. Phys. Pt. 1, **31** (1992) 4301.
- [2] A. Saeki, et al., Jpn. J. Appl. Phys. Pt. 1, **41** (2002) 4213.
- [3] Y. Yoshida, et al., Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. A, **327** (1993) 41.
- [4] A. Saeki, et al., Phys. Chem., **62** (2001) 319-322.
- [5] M. Washio, et al., Radiat. Phys. Chem. 81 (1983) 25.
- [6] T. Kozawa, et al., Nucl. Instrum. Meth. A429 (1999) 471.
- [7] Y. Yoshida, et al., Radiat. Phys. Chem. 60 (2001) 313.
- [8] Y. Tabata, et al., Radiat. Phys. Chem., **26** (1985) 473-479.
- [9] T. Kozawa, et al., Nucl. Instrum. Meth. A440 (2000) 251.
- [10] T. Kozawa, et al., Jpn. J. Appl. Phys. 41 (2002) 4208.

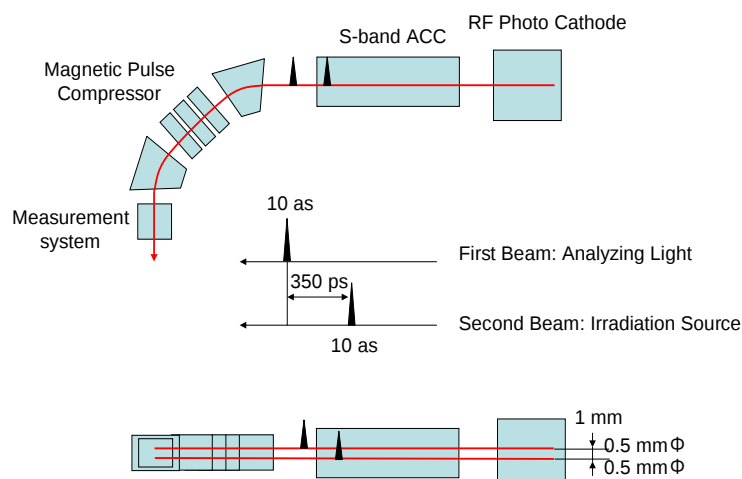


図5 RF電子銃ダブルデッカーライナック

論文

1) Study on Radiation-Induced Reaction in Microscopic Region for Basic Understanding of Electron Beam Patterning in Lithographic Process (I)

T. Kozawa, A. Saeki, Y. Yoshida and S. Tagawa

Jpn. J. Appl. Phys., 41 (2002) 4208-4212.

2) Study on Radiation-Induced Reaction in Microscopic Region for Basic Understanding of Electron Beam Patterning in Lithographic Process (II)

A. Saeki, T. Kozawa, Y. Yoshida and S. Tagawa

Jpn. J. Appl. Phys., 41 (2002) 4213-4216.

3) Pulse Radiolysis Study on Reactions of a Hydrated Electron with Europium(III)-Aminopolycarboxylate Complexes in Aqueous Perchlorate Media

R. Nagaishi, T. Kimura, Y. Yoshida, T. Kozawa and S. Tagawa

J. Phys. Chem., A106 (2002) 9036-9041.

4) A Direct Observation of Intra-molecular Electron Transfer from Excess Electrons in σ -conjugated Main Chain to Porphyrin Side Chain in Polysilanes Having Tetraphenylporphyrin Side Chain by Pulse Radiolysis Technique

Y. Matsui, K. Nishida, S. Seki, Y. Yoshida, S. Tagawa, K. Yamada, H. Imahori, A. Sakata
Organometallics, 21 (2002) 5144-5147.

5) Dynamics of Charge Carriers on Poly[bis(p-alkylphenyl)silane]s by Electron Beam Pulse Radiolysis

S. Seki, Y. Matsui, Y. Yoshida, S. Tagawa, J. R. Koe, M. Fujiki

J. Phys. Chem. B 106 (2002) 6849-6852.

6) ナノ量子ビームによるナノ微細構造の創出と探索

古澤孝弘、菅田義英、木村徳雄、吉田陽一、田川精一

マテリアルインテグレーション、第15巻、第10号 (2002) 36-39.

国際会議

1) New Femtosecond Pulse Radiolysis and Nanofabrication Systems of Radiation Laboratory and Nanoscience and Nanotechnology Center at The Institute of Scientific and Industrial Research, Osaka University

S. Tagawa, Y. Yoshida, T. Kozawa, S. Seki

Gordon Research Conference in Radiation Chemistry, Jun. 23-30, Waterville, Maine, USA.

2) Study on primary processes of radiation chemistry by subpicosecond pulse radiolysis

T. Kozawa, A. Saeki, K. Okamoto, K. Takeya, Y. Yoshida and S. Tagawa

Gordon Research Conference in Radiation Chemistry, Jun. 23-30, Waterville, Maine, USA.

3) Selective Adhesion of Nanowires on Substrates by Single Ion Track Reaction in Polysilanes

S. Seki, S. Tsukuda, Y. Yoshida, T. Kozawa, S. Tagawa, M. Sugimoto, S. Tanaka

Microprocess and Nanotechnology Conference '02, Nov. 6-8, Tokyo.

4) Oriented Nano-wire Formation by Single Ion track Reaction in Polysilanes

S. Seki, S. Tsukuda, Y. Yoshida, S. Tagawa, M. Sugimoto, S. Tanaka

International Nuclear Conference'02, Oct. 15-18, Kuala Lumpur, Malaysia.

5) Nano-wire Formation in Polymer Thin Films by High Energy Ion Beams

S. Seki, Y. Yoshida, S. Tagawa, M. Sugimoto, Y. Morita, S. Tanaka

Gordon Research Conference in Radiation Chemistry, Jun. 23-30, Waterville, Maine, USA.

6) Nano-wire Formation by High Energy Ion Beams

S. Seki, Y. Yoshida, S. Tagawa, M. Sugimoto, Y. Morita, S. Tanaka

Asian Photochemistry Conferences, Jan. 6-11, Mumbai, India.

共同研究

- 1) ナノストラクチャー内放射線誘起反応高時間分解測定
理化学研究所 東京大学
- 2) パルスラジオリシス法を用いた二価ランタノイドの溶液化学的研究
日本原子力研究所 東海研究所
- 3) フェノール水溶液への電子線照射による微粒子生成メカニズムの解明
日本原子力研究所 高崎研究所
- 4) 新規抽出剤の放射線損傷過程
日本原子力研究所 東海研究所
- 5) ナノ材料分光評価のための新しいTHz放射光源の整備
大阪府立大学
- 6) ナノフォトニック結晶放射光
広島大学
- 7) イオンパルスラジオリシス法による中間活性種の挙動の解明
日本原子力研究所 高崎研究所

- 8) イオンビームによる超微細構造体の形成
日本原子力研究所 高崎研究所

科研費、助成金等

科学研究費補助金(基盤研究(A)(2))
フェムト秒パルスラジオリシス法によるナノ構造内反応機構の解明
15,800千円
吉田陽一(分担者)

ナノ量子ビーム開発分野



磯山悟朗（いそやま ごろう）

略歴

- 1973年 東北大学理学部物理第二学科卒業
- 1978年 東北大学大学院理学研究科原子核理学専攻博士後期課程修了
- 1978年 日本原子力研究所東海研究所核融合特別研究生
- 1979年 東京大学物性研究所軌道放射物性研究施設助手
- 1989年 岡崎国立共同研究機構分子科学研究所極短紫外光実験施設助教授
- 1994年 大阪大学産業科学研究所教授

専門分野 : 加速器物理学

所属学会 : 日本物理学会、放射光学会、レーザー学会、放射線安全管理学会

私の専門分野は、加速器科学と、放射光や自由電子レーザーなどの新しい量子ビームの開発研究です。加速器量子ビーム実験室の加速器と、低速陽電子ビームや遠赤外自由電子レーザーなどの高輝度量子ビームの開発研究を通じて、産業科学ナノテクノロジーセンターに貢献したいと思います。

趣味： 身体を動かすこと



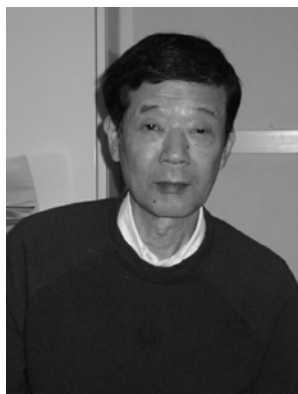
誉田義英（ほんだ よしひで）

略歴

- 1981年 名古屋大学理学部物理学科卒業
- 1983年 大阪大学大学院工学研究科電磁エネルギー工学専攻博士前期課程修了
- 1988年 大阪大学大学院工学研究科電磁エネルギー工学専攻博士後期課程退学
- 1988年 大阪大学産業科学研究所助手
- 1989年 工学博士（大阪大学）
- 2003年 大阪大学産業科学研究所助教授

専門分野 : 放射線科学

所属学会 : 日本物理学会、応用物理学会、日本原子力学会



木村徳雄 (きむら のりお)

略歴

1971年	近畿大学理工学部応用化学科卒業
1971年	大阪大学産業科学研究所、教務職員
1979年	大阪大学産業科学研究所、助手
1996年	博士(工学)(大阪大学)

専門分野 : 物理有機化学、有機薄膜

所属学会 : 日本化学会

趣味 : 山歩き

研究概要

1. 電子線形加速器の高性能化とナノ量子ビームの研究

加速器量子ビーム実験室の電子線形加速器は、ナノサイエンスやナノテクノロジー分野での基礎研究と応用研究やビーム科学の研究に活発に利用されている。これらの研究を画期的に進展させるために、輝度の高い量子ビームが必要不可欠である。高輝度量子ビームを発生するために用いる電子加速器に高い安定性が要求される。

L バンド電子ライナックは、加速器量子ビーム実験室の主要な装置の一つであり、パルスラジオリシスによるサブピコ秒・ナノメートル領域の時空間反応解析や遠赤外自由電子レーザー (FEL) の研究に利用されている。3 台の RF 空洞から構成されるサブハーモニックバンチャー (SHB) システムを装備して最大電荷量 92 nC の単バンチ電子ビームを発生することが出来る世界有数の性能を持つ加速器であるが、昭和 53 年の完成以来 25 年が経過しており、電源類を中心とする機器の老朽化と、建設以来の時間経過による装置性能の陳腐化が問題になっていた。産業科学ナノテクノロジーセンターの設置を機会にして、この L バンド電子ライナックの大規模な改造と性能向上の作業を進めている。改造の主題は、高い安定性の実現であり、ほとんど全ての電源類を更新する。改造は 2 期に分けて行っている。第 1 期は、加速用 RF パワーを供給するクライストロンと、その高圧電源であるパルスモジュレーター電源、RF パワー伝送路、SHB 電源であり、第 2 期はこれら以外の電源類である。これに加えて、誰もが利用しやすい加速器とするために、計算機制御システムの導入を行っているところである。

2. 陽電子を用いた高分子内自由体積の研究

高分子材料中におけるナノスケールサイズの自由体積は高分子の性質に大きく寄与するため、自由体積サイズや分布を評価することは、高機能高分子材料を設計・製作する上で重要である。多くの高分子材料内では入射陽電子の一部は周囲の電子とともに水素様のポジトロニウム (Ps) と呼ばれる原子を形成する。特にお互いのスピンの平行のものはオルソポジトロニウム (o-Ps) と呼ばれ、後述するように、高分子内の自由体積評価に利用されている。

従来から行われてきている陽電子を用いた自由体積評価のための測定法として o-Ps の寿命測定や S パラメーター測定がある (3 節を参照)。これらの内、o-Ps の寿命は自由体積を構成する空隙の大きさの評価に用いられているため、特に重要なパラメーターとなっている。一般に o-Ps の寿命はその周辺の電子密度に依存しているため、欠陥等では寿命が長くなる。これまで井戸型ポテンシャル中での o-Ps の消滅時間の計算結果 (一部のパラメーターはゼオライトでの実験結果を用いている) を用いて、o-Ps の寿命から自由体積の大きさ (ここでは自由体積は粒状の空間で構成されていると仮定) の評価がなされてきているが、特に反応性の高い高分子材料内でのポジトロニウ

ムの消滅過程は、様々な官能基の存在や分子構造の複雑さのためこのような単純なモデルでは考え難い。更に最近では入射陽電子が生成する2次電子が生成されることによる、捕捉電子やラジカル電子の存在が陽電子や $o\text{-Ps}$ の消滅過程に大きな影響を及ぼすこともわかってきており、この消滅過程を詳しく調べる事が重要な課題となっている。

$o\text{-Ps}$ の消滅過程をより詳しく調べるために、陽電子寿命・ドップラー同時測定 (AMOC ; Age Momentum Correlation) や2本の消滅 γ 線の同時測定などを行っている。前者では陽電子の自由消滅や $o\text{-Ps}$ のピックオフ消滅、スピン交換反応によるパラポジトロニウムとしての消滅などをできるだけ区別し、これらからの寄与を考慮し電子の運動量を測定しようとするものである。また後者は消滅に寄与する電子の運動量測定を行う方法で運動量の分解能は AMOC に比べ高いが、消滅ガンマ線がどの消滅過程からのものなのか区別できないという問題もある。いずれにしても、複数の計測手法を用いて陽電子の消滅過程を調べていく必要がある。このような実験では γ 線の検出効率が著しく低下するため、高強度陽電子源が必要であり、また、自由体積の空間分布を調べるためには、高強度短パルス陽電子ビームが必要である。

2.1 本研究分野における研究課題（装置開発を中心として）

本研究分野では低速陽電子ビームの発生と利用を主として行っており、装置・計測関連の研究課題をここでは示し、利用については3節で示す。

モデレーターの改良による高強度陽電子ビームの生成

AMOC や同期したドップラー拡がり計測など、同期回路を多く持つ計測法が重要となってきたが、このような測定系では γ 線の検出効率が著しく低下するため、高強度短パルス陽電子ビームが不可欠である。ライナックを用いた陽電子発生では、低速陽電子を生成するための、モデレーターと呼んでいる部分の効率を、如何に上げるかが重要な研究課題である。また、後述する陽電子回折実験を効率よく行うためには、陽電子ビーム径もできるだけ小さいほうがよい。現在使用しているモデレーターは設置後すでに5年以上経過しており、陽電子の発生効率も設置当初に比べ1桁以上下がっている現状であるため、新たにモデレーターを設置することにした。そこで、上記の条件をできるだけ満足するようなモデレーターの設計を数値計算により行った。これをもとに新モデレーターの試作を行い、実験を通して数値計算との比較を行っていく予定である。

陽電子ビームを用いた AMOC 測定

AMOC とはすでに記したように、消滅ガンマ線のエネルギースペクトルと陽電子 ($o\text{-Ps}$) の寿命を同時に測定し、各寿命成分に対応するエネルギースペクトルを計測する計測法である。パルス化された陽電子ビームを用いて寿命測定を行う場合、高計数効率（毎秒 1000 カウント程度）を得るために検出器 (BaF_2 シンチレーター) をできるだけ試料に近づけて計測しているが、本計測法では対向して BaF_2 シンチレータ

ーと高純度ゲルマニウム検出器を配置する必要がある、このためチェンバーを含めた改造が必要となる。また、高純度ゲルマニウムに代わり位置検出型の BGO シンチレーターを用いて角相関も寿命と同時測定する方法を準備している。このシステムを用いて官能基の異なる高分子材料における陽電子や $o\text{-Ps}$ の消滅過程を調べることで、高分子内のナノ空間構造との関係を見出すことを目的としている。

放射性同位元素 (RI) を用いた陽電子ビームのパルス化

陽電子寿命の測定では一般にタイミングパルスと消滅 γ 線との時間差を測定するため、パルス化された陽電子ビームか β^+ 崩壊を行う RI が線源として用いられている。前者については現在電子ライナックを用いた陽電子ビームラインを用いて実験が行われている。後者については線源を試料ではさみ測定する方法が普通であり、本研究分野においてもこのような方法で測定を行っているが、この場合、陽電子のエネルギーを選択することはできない。そこで陽電子ビームを単色化し、陽電子ビームとした後、チョッパーで短時間のパルスとして切り出す手法を開発中である。電子ライナックを用いた実験は、電子ライナックの運転時間に制限があるのに対し、RI を用いた方法ではこのような制限も無く実用上の利点も多い。

陽電子回折実験系の整備

陽電子回折実験を行うためには高輝度陽電子ビームが必要となる。すでに陽電子ビームの高輝度化の実験は行ってきたが、ビーム径が大きいために輸送効率が悪く、回折実験を行なうまでには至っていない。そこで上記の新しいモデレーターを用いた陽電子ビーム生成を行い、陽電子ビームの高輝度化、及び陽電子回折実験（現在考えているのは反射高エネルギー陽電子回折）を行う予定である。

3. 陽電子ビームのナノリソグラフィ用薄膜の評価に対する応用

情報化時代における情報処理量および情報伝達速度の向上には電子、光デバイスの高密度化と高容量化が必須である。一方、物質を原子、分子レベルで制御するナノテクノロジー分野においては、ナノスケールの解像度を有する制御技術が必要である。この目的で、光リソグラフィのように波長による解像度限界のないイオンや電子ビームを用いた放射線微細加工技術がますます重要になってくる。しかし、有機薄膜の微細加工では、細線の解像度、すなわちラインエッジラフネスが問題となる。このラフネスは、露光装置の性能のほかに、薄膜の性質に大きく依存し、その一つとして、薄膜の形成過程に生ずるナノ空隙の影響がある。したがって、ナノ空隙のサイズとその分布を知り、空隙の形成を抑える工夫を講ずることが重要である。高分子材料の表面、内部、界面のナノ空隙評価の方法としては、原子間力顕微鏡、電子顕微鏡、中性子散乱などがあるが、近年、高分子材料中のナノ空隙を直接観測できる計測方法として、陽電子を用いた陽電子消滅寿命測定法が強力なプローブとなっている。したがって、本研究分野では、低速陽電子ビームの開発とそれを用いた高分子等のリソグラフ

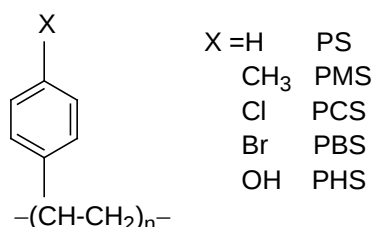
ィー用薄膜を評価し、細線の解像度との関係を検討している。以下に陽電子消滅寿命測定法から得られる各種パラメーターの意味とそのリソグラフィー用薄膜の評価への応用について述べる。

ポジトロニウムの形成

陽電子と電子の結合によって生成するポジトロニウム (Ps) の形成には二つの過程がある。一つは、物質中に入射した陽電子による物質中の電子のピックアップによる形成と、陽電子によるイオン化によって生成した電子との再結合によって形成される。Ps には電子と陽電子のスピンの配向により三重項の *o*-Ps と一重項のパラポジトロニウム (*p*-Ps) がある。*o*-Ps と *p*-Ps は通常 3 対 1 の割合で生成する。*o*-Ps はスピン平行な e^- をピックアップして二光子消滅し 511keV の γ 線を放出する。有機化合物中での平均寿命は 1 から 3ns である。*o*-Ps のピックアップ消滅寿命を測定して自由体積や空隙の大きさを算出する。

S パラメーター

消滅 γ 線のエネルギー分布や 2 光子消滅における 2 本の γ 線の相対放出角度には陽電子の消滅相手である電子の運動量の情報が含まれており、相手の電子のエネルギーが低ければ、消滅 γ 線の光電ピークにおけるエネルギー広がり小さく、また、対消滅 γ 線の放出角度の 180 度からのずれも小さくなる。これらを識別するために用いられてきているものが S パラメーターと呼ばれる値で、消滅 γ 線エネルギースペクトルの光電ピーク全体の面積に対する中心近傍面積の比で表される。空隙などにトラップされた後に消滅した陽電子は、外殻電子と消滅する確率が高いので、空隙などを多く含んだ物質中で S パラメーターは大きくなる。ポリスチレン誘導体について測定した結果、以下の順で S パラメーターの減少が観測された。この結果、PHS では空隙の数や大きさが非常に小さいとみなすことができ、このような空隙の低下は、PHS がフェノール性水酸基を有していることから、水素結合によるポリマー分子間の強い結合に起因すると考えられる。



電子の消滅寿命測定

高分子材料において陽電子の消滅寿命を測定し解析すると、消滅過程の違いによ

り 3 成分あるいは 4 成分に分割される場合が多い。一般に短い寿命成分から順に第 1 成分、第 2 成分、・ ・ と名づけられている。第 1 成分は *p*-Ps の消滅を、第 2 成分は陽電子が物質の電子と *o*-Ps を形成することなく消滅する成分をそれぞれ表しているのに対し、第 3、第 4 成分は、自由体積や空隙などの空間での消滅に基づいて現れ、*o*-Ps が消滅した点の空間の大きさに対応した分布となる。ポリスチレン誘導体中での消滅寿命は、以下に示すように、S パラメーターの結果と類似した置換基依存性を示した。



o-Ps 収率

陽電子は電子と同じ 500 eV くらいまでエネルギーを失うと、数十 nm 程度のきわめて狭い領域に固まっていくつかのイオン化を起こすと考えられている。これは陽電子が作る最後のスパーである。スパー内での反応には、Ps 形成、電子と陽イオンとの再結合、電子のスキャベンジング、陽電子のスキャベンジング等がある。Ps 形成以外の反応は、*o*-Ps 収率の低下をもたらす。ポリスチレン誘導体中で測定した *o*-Ps 収率は以下に示す順番で減少した。PBS の場合は、Br⁻とフェニルラジカルを与える解離型電子補足反応によって電子がスキャベンジされる。PHS の場合は、水素結合による O-H 結合の解離が起こり (PhO⁻H⁺)、電子が H⁺に捕捉され、陽電子が PhO⁻に捕捉されるためと考えられる。なぜならば、Ps は電子と陽電子の再結合によって形成されるからである。



論文

1. Study of Interfaces in Polymer Bilayers Using Slow Positron Beam
M. Tashiro, Y. Honda, Y. Terashima, M. Watanabe, P. K. Pujari and S. Tagawa
Appl. Surf. Sci. **194** (2002) 182-188.
2. 高速電子に対するイメージングプレート之感度較正
高橋輝吉、佐藤隆史、藪内俊毅、兒玉了祐、北川米喜、菅田義英、池田稔治、
奥田修一、田中和夫
放射線 **28**(2002)203-213.

国際会議

1. Influence of radiation-induced species on positronium formation in poly (methylmethacrylate) at low temperature
M. Tashiro, C.Y. Tseng, S. Seki, Y. Honda, S. Tagawa
7th International Workshop on Positron and Positronium Chemistry, July 7-12, 2002, Knoxville, Tennessee, USA
2. The study of nano-space in PHS/PS bilayer by slow positron beam
Y. Terashima, M. Tashiro, K. Miyamoto, Y. Honda, S. Tagawa
7th International Workshop on Positron and Positronium Chemistry, July 7-12, 2002, Knoxville, Tennessee, USA
3. Behavior of positronium in polystyrene and its derivatives
Y. Honda, M. Watanabe, M. Tashiro, Y. Terashima, K. Miyamoto, N. Kimura, S. Tagawa
7th International Workshop on Positron and Positronium Chemistry, July 7-12, 2002, Knoxville, Tennessee, USA
4. The Effects of Free Volumes on Charge Carrier Transport in Polysilanes Probed by Positron Anihilation
S. Seki, Y. Terashima, K. Kunimi, T. Kawamori, M. Tashiro, Y. Honda, S. Tagawa
7th International Workshop on Positron and Positronium Chemistry, Jul.7-12, 2002, Knoxville, Tennessee, USA.

国内会議

1. ポリスチレン誘導体中での陽電子消滅過程の計測
 菅田義英、宮本浩次、田代 睦、木村徳雄、磯山悟朗、田川精一
 日本原子力学会，2002 年 3 月 27-29 日，神戸商船大学
2. 低温 PMMA における Ps 形成について－光学吸収分光測定による検討
 田代 睦、曾 正義、関 修平、菅田義英、田川精一
 第 39 回理工学における同位元素・放射線研究発表会，2002 年 7 月 4 日，日本青年館，東京
3. 低速陽電子ビームによる高分子薄膜ナノ空隙評価
 寺島孝武、渡辺元嗣、宮 本浩次、田代睦、菅田義英、田川精一
 第 39 回理工学における同位元素・放射線研究発表会，2002 年 7 月 4 日，日本青年館，東京
4. 阪大産研陽電子ビーム装置の現状
 菅田義英、山口倫宏、田代睦、寺島孝武、木村徳雄、磯山悟朗、田川精一
 第 39 回理工学における同位元素・放射線研究発表会，2002 年 7 月 4 日，日本青年館，東京
5. 阪大産研 L バンド及び S バンドライナックの現状
 吉田陽一、木村徳雄、菅田義英、古澤孝弘、 山本 保、磯山悟朗、田川精一
 Proc. of the 27th Linear Accelerator Meeting in Japan, August 7-9, 2002, Kyoto, Japan, pp.7-8.
6. 自己回帰モデルによる電子ライナックの変動要因解析
 猪坂 智、加藤龍好、小西敏文、榊泰直、磯山悟朗
 Proc. of the 27th Linear Accelerator Meeting in Japan, August 7-9, 2002, Kyoto, Japan, pp.88-90.
7. 阪大産研 L バンドライナックの改造
 磯山悟朗、加藤龍好、菅田義英、山本 保、吉田陽一、古澤孝弘、 末峰昌二、関 修平、田川精一
 Proc. of the 27th Linear Accelerator Meeting in Japan, August 7-9, 2002, Kyoto, Japan, pp.115-117.

8. 低速陽電子ビームの高輝度化
山口倫宏、菅田義英、田代睦、磯山悟朗
Proc. of the 27th Linear Accelerator Meeting in Japan, August 7-9, 2002, Kyoto, Japan,
pp.207-209.
9. 低速陽電子ビームによる高分子多層膜のナノ空隙評価
寺島孝武、田代睦、宮本浩次、菅田義英、田川精一
Proc. of the 27th Linear Accelerator Meeting in Japan, August 7-9, 2002, Kyoto, Japan,
pp.210-212.
10. 電子線形加速器ベース低速陽電子ビームの短パルス化による 陽電子寿命測定シ
ステムの開発
田代 睦、菅田義英、山口倫宏、寺島孝武、宮本浩次、田川精一
Proc. of the 27th Linear Accelerator Meeting in Japan, August 7-9, 2002, Kyoto, Japan,
pp.222-224.
11. 阪大産研Lバンドライナックを用いた短パルス陽電子ビームの生成
菅田義英、神野和哉、田代 睦、寺島孝武、磯山悟朗、田川精一
Proc. of the 27th Linear Accelerator Meeting in Japan, August 7-9, 2002, Kyoto, Japan,
pp.228-230.
12. 阪大産研Lバンド電子ライナックの制御系改造
加藤龍好、磯山悟朗、吉田陽一、菅田義英、古澤孝弘、山本 保、末峰昌二、
関 修平、田川精一
Proc. of the 27th Linear Accelerator Meeting in Japan, August 7-9, 2002, Kyoto, Japan,
pp.365-36.
13. 低速陽電子ビームを用いた Au/Polysilane における欠陥構造形成の研究
寺島孝武、関修平、田代睦、菅田義英、古澤孝弘、田川精一
応用物理学会, 2002 年 9 月, 新潟大学
14. 低速陽電子ビームによる高分子薄膜中の陽電子拡散とナノ空隙評価について
宮本浩次・寺島孝武・田代睦・菅田義英・田川精一
第 4 5 回 放射線化学討論会, 2002 年 10 月 9 日, 九州大学
15. 低速陽電子ビームを用いた Au/Polysilane における欠陥構造形成の研究
寺島孝武、関修平、田代睦、菅田義英、古澤孝弘、田川精一
京都大学原子炉実験所専門研究会, 2002 年 11 月 15 日, 京都大学原子炉実験所

16. 低速陽電子ビームによる高分子薄膜中の陽電子拡散とナノ空隙評価について
宮本浩次・寺島孝武・田代睦・誉田義英・田川精一
京都大学原子炉実験所専門研究会，2002 年 11 月 15 日，京都大学原子炉実験所

ナノビームプロセス分野



田川 精一 (たがわ せいいち)

略歴

1969年 東京大学工学部原子力工学科卒業

1973年 東京大学工学系研究科博士課程中退

1973年 東京大学工学部助手

1981年 東京大学原子力総合センター助教授

1993年 大阪大学産業科学研究所教授

2002年 加速器量子ビーム実験室室長

現在 日本放射線化学会会長・日本学術会議原子力基礎研究専門委員会委員長・アイソトープ協会量子ビーム専門委員会委員長

専門分野 放射線化学、放射線利用、ビーム工学、分子工学

受賞 日本放射線化学会賞

趣味 スキーと読書



関 修平 (せき しゅうへい)

略歴

1991年 東京大学 原子力工学科卒

1993年 東京大学大学院 システム量子工学専攻 修士課程 修了

1994年 米国アルゴンヌ国立研究所

1995年 東京大学大学院 システム量子工学専攻 博士課程 中退

1995年 大阪大学産業科学研究所 助手

2000年 大阪大学工学博士

2001年 オランダデルフト工科大学 研究員

2002年 大阪大学産業科学研究所 産業科学ナノテクノロジーセンター 助手

2003年 大阪大学産業科学研究所 産業科学ナノテクノロジーセンター 助教授

専門分野 放射線化学、高分子化学、材料物性・化学

所属学会 日本化学会、米国化学会、応用物理学会、放射線化学会

趣味 スキー、釣り、登山（登山家としても、まだまだ全然です。）



古澤 孝弘 （こざわ たかひろ）

略歴

1990年 東京大学 原子力工学科卒

1992年 東京大学大学院 工学系研究科原子力工学専攻 修士課程 修了

1993年 東京大学大学院 工学系研究科原子力工学専攻 博士課程 中退

1993年 東京大学工学部 助手

1996年 大阪大学産業科学研究所 助手

2003年 大阪大学工学博士

専門分野 リソグラフィ、レジスト反応機構、応用ビーム工学

所属学会 応用物理学会、原子力学会、放射線化学会

趣味 読書、智辯フリーク（智辯学園・智辯学園和歌山校野球部の大ファンです。）

研究概要

1. 単一粒子が引き起こす化学反応の特殊性とナノテクノロジー (関修平・田川精一)

イオントラックと呼ばれる非常に高い濃度の活性種が存在する化学反応場について、従来の化学反応場とは決定的に異なった化学反応様式を与えることを明らかにした[1-3]。イオントラック内の活性種密度及びその分布は、LET 等の入射するイオンの線質を変化させることにより制御が可能であり、ここではイオン照射に対し大きな線質効果を示すポリシランを用いて新しいエネルギー付与モデル及び高分子ゲル化理論を構築した。イオントラック内での高分子架橋反応は、ナノメートルスケールの量子細線を与え、さらにそのサイズが入射イオンの線質を変化させることにより精密に制御可能である。これらイオン照射により形成されたナノワイヤーを実際の伝導性ワイヤーや電界発光素子等として応用を図るためには、その空間的位置決め・配列技術が不可欠の要素となると考えられる。ここでは、実際に位置決め・配列を行う上で重要なキーテクノロジーとなるナノワイヤーの表面固定技術と形成されたワイヤー自身の凝集性について紹介する。

ケイ素骨格高分子：ポリシランのビーム誘起反応は照射イオンの線質に非常に強く依存し、LET にして約 1 eV/nm を Threshold として主鎖分解主導型から架橋主導型へと変化する[4]。イオン照射におけるポリシラン架橋反応の追跡は、特異な高分子ゲル化の様式を示し、照射による化学コア占有面積の確率論的取り扱いから次式を与える。

$$g=1-\exp(-\sigma n) \quad (1)$$

ここで g はゲル分率、 n は単位面積あたりのイオントラック数 (照射線量)、 σ は単一化学コア面積を示す。(1)式は生成したゲルの分率に対し一致を示し、ポリシラン薄膜での高分子ゲル化が、入射したイオントラック内において起こることを強く示唆している[5]。また、生成ゲル量の上式による取り扱いは、唯一の最適化因子である単一化学コア面積 (半径) を与える。ナノワイヤーの半径は(1)式により求められた化学コア半径によく一致し、さらにその数密度は照射線量を、長さはターゲット薄膜の厚さを完全に反映する。

イオントラック内部における理論的取扱[6]から導出される付与エネルギー密度との関連において、実測された化学コア半径は、それぞれ用いたポリシランの

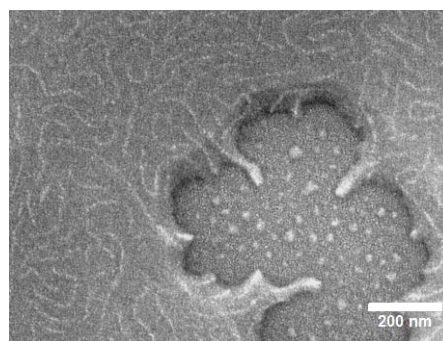


Figure. 1 A SEM image of nano-wires adhered on a Si substrate observed on the way of development procedure. The nano-wires were formed by the $450 \text{ MeV } ^{128}_{54}\text{Xe}^{23+}$ irradiation to a PS3 thin film ($1 \mu\text{m}$ thick) at $5.0 \times 10^8 \text{ ions/cm}^2$. The development was performed b-97- using hexane, and stopped at the proper time.

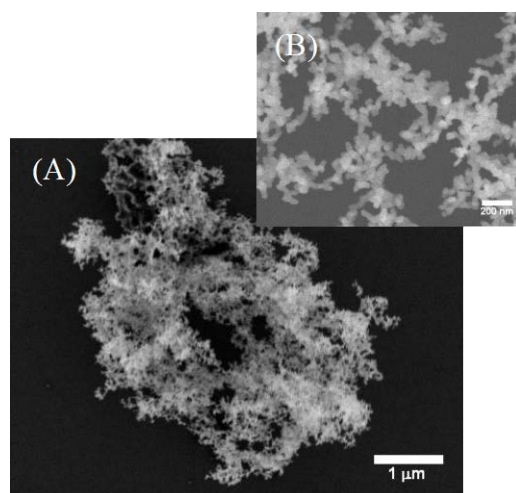


Figure. 2 A SEM image of condensed nano-wires on a Si substrate after a development procedure. The nano-wires were formed by the $450 \text{ MeV } ^{128}_{54}\text{Xe}^{23+}$ irradiation to a PS1 thin film ($0.45 \mu\text{m}$ thick) at $1.0 \times 10^{11} \text{ ions/cm}^2$. A superimposed figure indicates the enlarged view of the nanowire entanglements.

ゲル化線量になると見積もられる軌道中心からの距離に一致しており、ナノワイヤー表面付近では PMPS の単純ゲル化が進行していると予測される[7]。一方で溶媒現像過程後も、基板上に観測されるナノワイヤー数密度が入射する粒子数を反映する事は、形成されたナノワイヤーの一端が基板上に化学結合していることを示唆している。図 1 に表面処理を行った基板を用い、照射後の現像途中で基板表面を一部露出させた試料の SEM 像を示す。露出した基板表面に対しナノワイヤー端は半島状構造を示すように観測されることから、基板へのワイヤー接着が起こっている事が明らかである。また、形成されたナノワイヤーと未反応ポリシラン部位との間に明確なコントラストが観測され、既に報告したコア部分の SiC 転化を直接的に示唆している。

一方で Si 基板の適当な表面処理を行わなかった場合、これらナノワイヤーは基板上で図 2 のように観測される。即ち、ナノワイヤーはもはや基板上に分散して観測されず、現像過程においてお互いに凝集し、集合体となってしまいう事が確認された。その微細構造はお互いを巻き込むように凝集しており、網目構造を形成しているが、特に規則性構造は見られない。

ポリシランに対するイオンビーム照射法により形成されたナノワイヤーは、適当な基板表面処理を行う事でその一端が基板表面に固定され、孤立ナノワイヤーを形成することが明らかとなった。この技術は、形成されたナノワイヤーの空間的位置決め法として極めて有効であると考えられる。

2. 量子ビーム誘起反応を利用した単一分子物性の評価 (関修平・田川精一)

$\sigma \cdot \pi$ 共役有機高分子材料は光電子機能性プラスチック材料、特にエレクトロルミネッセンス (EL) 素子における正孔・電子輸送、発光層としての応用が強く期待されており[8]、将来のこれら材料のフレキシブル・軽量・低消費電力化を一挙に実現し得る技術として極めて有望である。これら高分子材料中の電荷移動過程を明らかにするに上る上で、その阻害要因となる因子はあまりにも多く、統計的な取扱い若しくは不純物や構造不整の影響をそれぞれ個別に議論するといったアプローチが主として取られてきた[9]。本研究では、上記様々な因子を排除して議論すべく、溶液中に孤立して存在する高分子鎖上に付与された過剰電荷に対し、その伝導度を時間分解マイクロ波吸収法から明らかにした。また、同時に過渡分光法を組み合わせる事で、初めて定量的な移動度の評価が可能となり、1 次元高分子鎖上の電荷移動度における分子サイズ依存性についても合わせて考察する。

poly(*n*-alkylphenylsilane) (PSn: *n* は側鎖アルキル基炭素数) を主として濃度 0.2~2.0 mmol dm⁻³(base mol unit) のベンゼン(Bz)溶液とし、電子線パルス照射及び添加物の有無によって PSn 骨格上に電子・正孔を選択的に付与する。33~35 GHz Q-band Microwave の導入下、幅の電子線パ

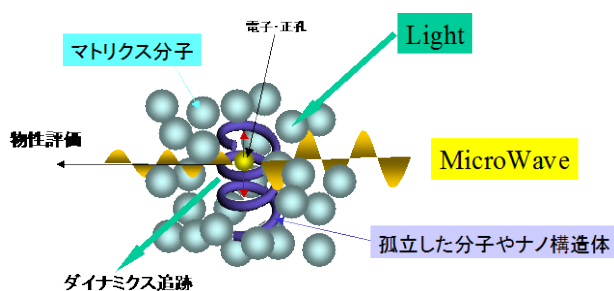


Figure3. Schematic image of the PR-TRMC and TAS measurement technique.

ルスを照射し、生成された活性種による Microwave 吸収の時間分解測定 (PR-TRMC)[11]を行った。全活性種生成量の定量は、同じ溶液系にて過渡吸収測定法(TAS) [12]により定量した。装置全体のコンセプトを図3に示す。

PR-TRMC 法による Microwave 吸収測定は、溶液中に生成されたイオン性活性種による系全体の伝導度変化: $\Delta\sigma$ を与えるが、これと各分子鎖に沿った1次元方向の分子内電荷移動度、isotropic mobility: μ_{1D} との間には、次式のような関係が存在する:

$$\Delta\sigma = F [\text{PSn}^{\bullet+}] \frac{\mu_{1D}^+}{3} \quad (3)$$

ここで、F はファラデー定数である。(2)式に示した反応により、系全体に電子線照射によって形成されたポリシランカチオンラジカルの濃度 $[\text{PSn}^{\bullet+}]$ は、TAS 法を用いた反応解析により決定される[13]。様々な分子量の異なる **PS1** 及び **PS6** について TRMC 法により観測された伝導度の時間依存性を図4に示した。用いられた分子量範囲は **PS1** が **PS6** をはるかに凌

駕するにもかかわらず、**PS1** では殆ど分子量による影響が見られない。一方で、**PS6** においては明確な分子量依存性を示し、数平均分子量においておよそ 1.0×10^4 で飽和に至る。ポリシランの基底状態における近紫外吸収と固有粘度指数との相関、並びに高分子鎖持続長—粘度に関する Kuhn の式について、分子量基準となる polystyrene と **PS6** との骨格構造の違いを考慮すると、上記飽和分子量は **PS6** の重合度にして約 60 units となり、**PS6** 上の正孔はおよそ 60 Si 原子ユニット程度に非局在化していると思積られる。

また、(3)に基づいて算出される **PS1** 及び **PS6** の isotropic mobility は、各々の最大値として、それぞれ $\mu_{1D}^+ = 0.03$ 及び $0.23 \text{ cm}^2 \text{Vs}^{-1}$ が得られた。特に **PS6** における μ_{1D}^+ の値は、アモルファスシリコンのそれに肉薄するものであり、剛直鎖を有するポリシランでは従来の高分子電荷輸送材料の概念を打ち破る、極めて高い正孔輸送能を実現し得る可能性が示唆された。

Reference

1)S. Seki, et al., *Radiat. Phys. Chem.* **50** (1997) 423, 2)S. Seki, et al., *J. Phys. Chem.* **B103** (1999) 3043, 3)S. Seki, et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **36** (1997) 5361, 4) Seki et al., *Radiat. Phys. Chem.* **49** (1997) 410, 5)K. Maeda, et al., *Nucl Instr. Meth. Phys. Res.* In press, 6) J. L. Magee and A. Chattarjee. *Kinetics of Nonhomogenous Processes*; G. R. Freeman Ed.; Chapter 4;

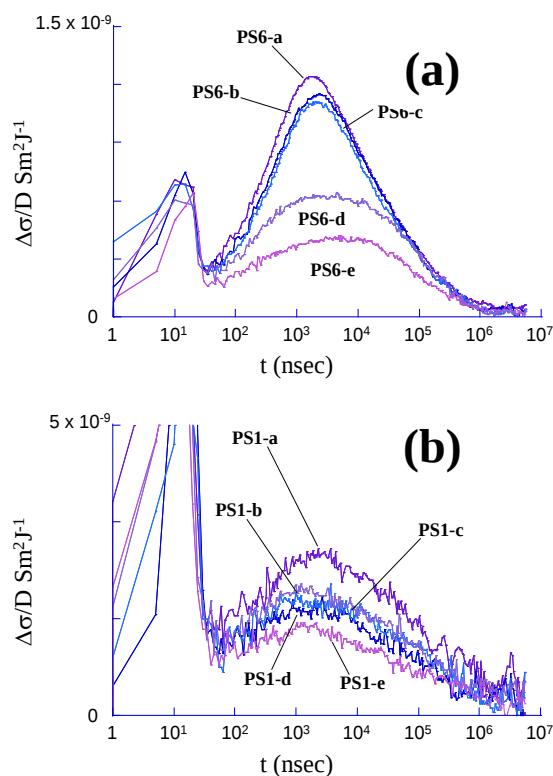


Figure4. Conductivity transients of **PS6** (a) and **PS1** (b) cation radicals in **Bz** at 2.0 mM conc.(base mol unit) observed by ~56 Gy electron irradiation. The molecular weights of **PS6-a ~ e** are $M_n = 58, 32, 8.3, 6.1, \text{ and } 4.2 (\times 10^3)$, $M_w = 98, 57, 18, 12, \text{ and } 9.4 (\times 10^3)$, respectively. Those of **PS1-a ~ e** are $M_n = 220, 75, 32, 11, \text{ and } 8.0 (\times 10^3)$, $M_w = 490, 170, 49, 17, \text{ and } 9.6 (\times 10^3)$, respectively.

(1987) 171, 7) S. Seki, et al., *Adv Mater.* **13** (2001) 1663. 8) for a review, Conwell, E. M. in *Handbook of Organic Conductive Molecules and Polymers* (ed. Nalwa, H. S.) 1–45 (Wiley, New York, 1997). 9) S. Seki, et al., *Phil. Mag. B* 1999, **79**, 1631. 10) Y. Kunimi, et al., *Solid State Commun.* 2000, **114**, 469. 11) R.J.O.M. Hoffman, et al., *Nature*, 198, **392**, 54. 12) S. Seki, et al., *Macromolecules*, 1999, **32**, 1080. 13) S. Seki, et al., *Adv. Mater.* **14** (2002) 228.

3. 極限ナノビームプロセスの追求と展開

ーレジストプロセスの極限解像度と反応機構 (古澤孝弘・田川精一)

トップダウン型ナノテクノロジーの代表であるリソグラフィ技術は、1957年にフォトリソグラフィが登場して以来、半世紀近くにわたって半導体・通信産業を支え続けてきました。その間、レジストに代表されるプロセス技術は数多くの改良が加えられ、現在では大量生産ラインで100 nm前後のパターン転写が可能になっています。現在、露光源の主力は光であり、位相シフトマスク技術を用いることにより、描画パターンの制限を受けますが波長の4分の1のサイズの加工が可能になっています。しかし、このような技術を駆使しても、描画対象の微細化に伴い光による加工は限界に近づきつつあります。特に、ナノ構造物の大量生産という観点からは、フォトリソグラフィは力不足であると考えられており、代わって、電子ビームやX線といった量子ビームがトップダウン型ナノテクノロジーにおける主要な露光源として期待されています。本研究では、このような量子ビーム用、特に電子ビーム用の極限プロセス技術の確立を最終目標としております。

リソグラフィではパターン転写用にレジストと呼ばれる有機または無機材料が利用され、重要な役割を担っています。レジストには解像度、感度、エッチング耐性、コントラスト、基盤密着性等様々な機能が要求されますが、本年度の研究ではナノテクノロジーにとって最も重要である解像度に着目し、研究を進めました。レジストプロセスの解像度は主に露光装置とレジスト性能で決まります。露光装置側の問題では、例えばフォトリソグラフィの限界解像度が光の波長に依存しているのはその典型ですが、その他にレンズ系の収差、焦点深度、位相シフトマスクの加工精度等様々な条件に依存します。フォトリソグラフィに対して直描型電子ビームリソグラフィにおいても波長、レンズ系の収差等の問題は光と同じですが、電子ビームは0.1 nm以下に収束させられることが示されており、一般的にも直径2 nm以下の電子ビームが利用可能になっています。一方、レジストの解像度に関しては、ポジ型レジストを例にとりますと、まず、如何に微細な領域内で反応を起こせるかという問題と、その後、その微細な領域から分子を溶解させられるかという問題があります。これらの2つの問題は、レジストの組成だけでなくその反応機構に大きく依存します。従って、極限プロセス技術を確立するためには、レジストへの電子ビームのエネルギー付与過程から現像過程までの反応機構を詳細に解明することが必要不可欠になります。

従来型のポジ型電子ビームレジスト (ZEP520、日本ゼオン社) では図1に示すようにすべてのプロセス条件を最適化すること¹⁾により10 nmを十分に上回る解像が可能であることがわかりました。これは、露光に使用した描画装置(Elionix ELC-7700)のビーム径が2nmあり、レジスト内での2次電子の散乱を考えると、ほぼこの両者で解像

度が決まっていると考えられます。しかし、大量生産という観点からは、従来型のポジ型レジストでは感度やエッチング耐性が不十分であると考えられており、高解像度に加え、高感度、高エッチング耐性を備えた電子ビームレジストが必要とされています。そこで、現在注目されているのが酸による触媒反応を利用して高感度化を行っている化学増幅型と呼ばれるレジストです。化学増幅型レジストは増幅機構で高感度を達成しただけでなく、現在の生産基準である 100 nm 以下の高解像度を達成しています。化学増幅型レジストは高感度化のための酸の発生に、電子ビームの露光時に生じるベース樹脂のカチオンラジカルと電子を必要としていますが、²⁾これは解像度の観点からは好ましくないと考えられます。このときの高解像性の機構をサブピコ秒パルスラジオリシス法^{3,4)}により調べた結果が図 2 です。化学増幅型レジストでは、酸発生剤と呼ばれる添加剤がイオン化で生じた電子を効率よく捕捉することにより、電子がレジスト中を拡散することを防ぎ、高解像度性を示していると考えられます。⁵⁾この高解像性の機構は数十 nm 前後の解像度ではうまく機能すると考えられますが、さらなる高解像化の為には積極的に取り組まなければならない問題となると考えられます。

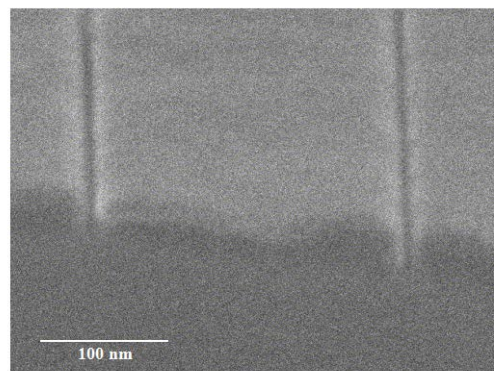


Figure. 1 A SEM image of lines written in ZEP520 resist (Zeon Corp.) at 75 kV.

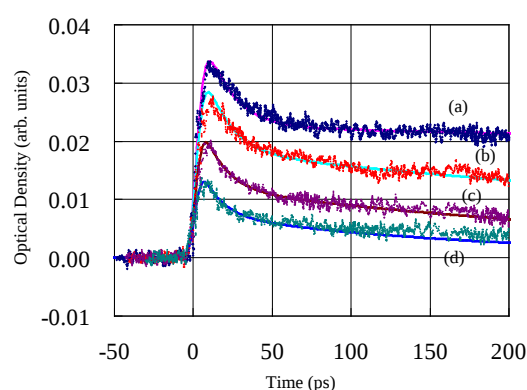


Figure. 2 The time-dependent behavior of presolvated electron and solvated electron obtained in the subpicosecond pulse radiolysis of methanol with (a) 0 mM, (b) 50 mM, (c) 100 mM and (d) 200 mM, triphenylsulfonium-triflate. The dots represent experimental data and the solid line represents a kinetic trace.

References

- 1) T. Kozawa et al., to be submitted.
- 2) T. Kozawa, S. Nagahara, Y. Yoshida, S. Tagawa, T. Watanabe and Y. Yamashita, J. Vac. Sci. Technol. B15 (1997) 2582.
- 3) T. Kozawa, Y. Mizutani, K. Yokoyama, S. Okuda, Y. Yoshida and S. Tagawa, Nucl. Instrum. Meth. A429 (1999) 471.
- 4) T. Kozawa, Y. Mizutani, M. Miki, T. Yamamoto, S. Suemine, Y. Yoshida and S. Tagawa, Nucl. Instrum. Meth. A440 (2000) 251.
- 5) T. Kozawa, A. Saeki, Y. Yoshida and S. Tagawa, Jpn. J. Appl. Phys. 41 (2002) 4208.

論文

- 1) The Effects of Free Volumes on Charge Carrier Transport in Polysilanes Probed by Positron Annihilation
S. Seki, Y. Terashima, K. Kunimi, T. Kawamori, M. Tashiro, Y. Honda, S. Tagawa
Radiat. Phys. Chem., 65 (2002) 452-458.
- 2) A Direct Observation of Intra-molecular Electron Transfer from Excess Electrons in σ -conjugated Main Chain to Porphyrin Side Chain in Polysilanes Having Tetraphenylporphyrin Side Chain by Pulse Radiolysis Technique
Y. Matsui, K. Nishida, S. Seki, Y. Yoshida, S. Tagawa, K. Yamada, H. Imahori, A. Sakata
Organometallics, 21 (2002) 5144-5147.
- 3) Dynamics of Charge Carriers on Poly[bis(p-alkylphenyl)silane]s by Electron Beam Pulse Radiolysis
S. Seki, Y. Matsui, Y. Yoshida, S. Tagawa, J. R. Koe, M. Fujiki
J. Phys. Chem. B 106 (2002) 6849-6852.
- 4) Direct Observation of Intra-molecular Energy Migration in s -conjugated Polymer by Femto-second Laser Flash Photolysis
Y. Matsui, S. Seki, and S. Tagawa
Chem. Phys. Lett. 357 (2002) 346-350.
- 5) Hole Conduction along Molecular Wires: s -Bonded Silicon versus p -Bond-Conjugated Carbon
F. C. Grozema, L. D. A. Siebbeles, J. M. Warman, S. Seki, S. Tagawa, and U. Scherf
Adv. Mater. 14 (2002) 228-231.
- 6) Dynamics of Silylenes in Polysilylenes with Structural Defects by Excimer Laser Flash Photolysis
S. Seki, S. Tsuji, Y. Matui, and S. Tagawa
Chem. Lett. (2002) 1208-1209.
- 7) 高エネルギーイオンビームを用いたナノワイヤーの形成～イオンビームの可能性の一端～
関 修平
放射線と産業 93 (2002) 29-37.

- 8) Study on Radiation-Induced Reaction in Microscopic Region for Basic Understanding of Electron Beam Patterning in Lithographic Process (I)
T. Kozawa, A. Saeki, Y. Yoshida and S. Tagawa
Jpn. J. Appl. Phys., 41 (2002) 4208-4212.
- 9) Study on Radiation-Induced Reaction in Microscopic Region for Basic Understanding of Electron Beam Patterning in Lithographic Process (II)
A. Saeki, T. Kozawa, Y. Yoshida and S. Tagawa
Jpn. J. Appl. Phys., 41 (2002) 4213-4216.
- 10) Pulse Radiolysis Study on Reactions of a Hydrated Electron with Europium(III)-Aminopolycarboxylate Complexes in Aqueous Perchlorate Media
R. Nagaishi, T. Kimura, Y. Yoshida, T. Kozawa and S. Tagawa
J. Phys. Chem., A106 (2002) 9036-9041.
- 11) ナノ量子ビームによるナノ微細構造の創出と探索
古澤孝弘、菅田義英、木村徳雄、吉田陽一、田川精一
マテリアルインテグレーション、第15巻、第10号 (2002) 36-39.

国際会議

- 1) Selective Adhesion of Nanowires on Substrates by Single Ion Track Reaction in Polysilanes
S. Seki, S. Tsukuda, Y. Yoshida, T. Kozawa, S. Tagawa, M. Sugimoto, S. Tanaka
Microprocess and Nanotechnology Conference '02, Nov. 6-8, Tokyo.
- 2) Dependence of Outgassing Characters at a 157 nm on Resist Structures.
Y. Matsui, S. Umeda, S. Matsui, S. Seki, S. Tagawa, S. Ishikawa, T. Itani
Microprocess and Nanotechnology Conference '02, Nov. 6-8, Tokyo.
- 3) Sub-picosecond Pulse Radiolysis and Ion Beam Induced Nanowire Formation for Nanolithography and Nanotechnology
S. Tagawa, T. Kozawa, and S. Seki
International Nuclear Conference'02, Oct. 15-18, Kuala Lumpur, Malaysia.
- 4) Oriented Nano-wire Formation by Single Ion track Reaction in Polysilanes

S. Seki, S. Tsukuda, Y. Yoshida, S. Tagawa, M. Sugimoto, S. Tanaka
International Nuclear Conference'02, Oct. 15-18, Kuara Lumpur, Malaysia.

- 5) Influence of Radiation-induced Species on Positronium Formation in PMMA.
M. Tashiro, C.Y. Tseng, S. Seki, Y. Honda, S. Tagawa
Positron and Positronium Chemistry 7, Jul.7-12 , Knoxville, Tennessee, USA.
- 6) The Effects of Free Volumes on Charge Carrier Transport in Polysilanes Probed by Positron Anihilation
S. Seki, Y. Terashima, K. Kunimi, T. Kawamori, M. Tashiro, Y. Honda, S. Tagawa
Positron and Positronium Chemistry 7, Jul.7-12 , Knoxville, Texas, USA.
- 7) Nano-wire Formation in Polymer Thin Films by High Energy Ion Beams
☆S. Seki, Y. Yoshida, S. Tagawa, M. Sugimoto, Y. Morita, S. Tanaka
Gordon Research Conference in Radiation Chemistry, Jun. 23-30, Waterville, Maine, USA.
- 8) New Femtosecond Pulse Radiolysis and Nanofabrication Systems of Radiation Laboratory and Nanoscience and Nanotechnology Center at The Institute of Scientific and Industrial Research, Osaka University
S. Tagawa, Y. Yoshida, T. Kozawa, S. Seki
Gordon Research Conference in Radiation Chemistry, Jun. 23-30, Waterville, Maine, USA.
- 9) Study on primary processes of radiation chemistry by subpicosecond pulse radiolysis
T. Kozawa, A. Saeki, K. Okamoto, K. Takeya, Y. Yoshida and S. Tagawa
Gordon Research Conference in Radiation Chemistry, Jun. 23-30, Waterville, Maine, USA.
- 10) Nano-wire Formation by High Energy Ion Beams
☆S. Seki, Y. Yoshida, S. Tagawa, M. Sugimoto, Y. Morita, S. Tanaka
Asian Photochemistry Conferences, Jan. 6-11, Munbai, India.

共同研究

- 1) イオンビームによる超微細構造体の形成
日本原子力研究所 高崎研究所

- 2) 極低速イオンビームによる高分子薄膜のエッチング機構
超先端電子技術開発機構
- 3) バイオレットレーザーによる光酸発生反応の増感システムの開発
三菱化学㈱
- 4) フッ素レーザー照射時におけるレジスト材料からのガス発生メカニズム
半導体先端テクノロジーズ

科研費、助成金等

科学研究費補助金(基盤研究(A)(2))
フェムト秒パルスラジオリシス法によるナノ構造内反応機構の解明
15,800千円
田川精一

科学研究費補助金(基盤研究(B)(2))
高エネルギー粒子線による伝導性高分子のナノワイヤー形成
3,200千円
関 修平

科学研究費補助金(若手研究(B)(2))
孤立SiCナノワイヤーの物性評価
1,200千円
関 修平

科学研究費補助金(若手研究(B)(2))
サブピコ秒パルスラジオリシス法によるナノリソグラフィ材料の反応機構の解明と
開発
1,000千円
古澤孝弘

超高速ナノ構造分野 (Department of Ultrafast Spectroscopy of Nanostructures)



王 文峰 (Wang Wenfeng)

Birth at Aug. 1965 in Fujian, P. R. China

1982.9-1987.7: University of Science and Technology of China,
Department of Applied Chemistry
Majored in Radiation Chemistry

1987.8-1992.11: Research Assistant, Laboratory of Radiation
Chemistry, Shanghai Institute of Nuclear
Research (SINR), Chinese Academy of Sciences.

1992.11-1996.12: Assistant professor, SINR, Chinese Academy of Sciences
vice director of Laboratory of Radiation Chemistry since Sep. 1995

1994.2-1995.8: visiting researcher at Max-Planck Institute of Radiation Chemistry,
Germany.

1996.12-2001: Associate professor and vice director of Laboratory of Radiation Chemistry,
SINR

1997.3-1997.9: Scientific visitor at North-East Wales Institute of Higher Education and
Paterson Institute of Cancer Research, UK.

1999.8-2000.12: Max-Planck Institute of Radiation Chemistry, Germany.

2001-present: Professor and director of Radiation Chemistry at SINR, Chinese Academy
of Sciences

2003.1-3: visiting professor at Osaka University

Introduction

Since graduated from University of Science and Technology of China at 1987, he is an employee of Shanghai Institute of Nuclear Research (SINR), Chinese Academy of Sciences. (Shanghai Institute of Nuclear Research is a national research institute of non-power civil nuclear technology. At present the Institute is pursuing researches in fundamental and applied nuclear science and technique, inter-discipline researches and their

industrialization.). His research has mainly been focused on the radiation (included UV) induced free radicals and charge transfer reaction in biological interested molecule by using laser photolysis, pulse radiolysis, EPR techniques and other related spectroscopic methods. He got the Prize of Scientific Promotion of Chinese Academy of Sciences for his photolysis works about DNA base. Now he is professor and director of radiation chemistry at SINR, Chinese Academy of Sciences. He is in charge of to set up the ps pulse radiolysis and laser photolysis system in Shanghai this year. His research fields at recent are mainly involved in free radical reaction of small molecules; fast charge and energy transfer in biological system; synthesize the nanogel as drug release.

He is an editorial board of Journal of Radiation Research and Radiation Processing (China) and member of Europe Society of Photobiology and other chemical societies in China.

研究概要 (Current Research programs)

A linear accelerator, gamma ray source (Co-60) and lasers have been operated for investigation of radiation (include UV) induced phenomena in molecular especial biological interested molecular at SINR. The recent research topics focus at energy and charge transfer of intra- and inter-molecular. The mechanisms of free radicals reaction between bimolecular with photosensitizer and antioxidants have been studied. From that result, we may find out some useful message for cancer therapy or reduce the biological damage induced by radiation (UV). At this year, a new ps pulse radiolysis and photolysis system is been setting up for investigation of fast reaction such as singlet properties, intra-molecular energy and charge transfer process. We will develop the coherent THz (terahertz) ray (wavelength between 30 μ m to 3mm) system to study the interaction of macromolecule too.

Free radical reaction of small molecules

Products analysis combine with pulse radiolysis is a good method to study the free radicals reaction mechanism induced by ionizing radiation. We have carried our some free radicals reaction mechanism about small molecular such as thiourea and organic acid. Cause ionizing radiation is considered as a method to treat waste water. Now some environment considerate compound like chloride phenol and quinoline was selected as model to carry out the free radicals reaction mechanism induced by ionizing radiation. The reaction mechanism will led to a basic understanding of the process of waste water treatment.

Fast charge and energy transfer in biological system

Ionizing radiation and photosensitization are highly damaging events and they generate oxygen-derived free radicals as well as excited species. In the past our research has mainly been focused on the primary processes in biological damage induced by radiation (UV). Using pulse radiolysis and photolysis and other related spectroscopic methods, the intermediate states radical ions, radical pairs, and triplet states have been studied. And the reaction mechanisms of electron transfer from free radical of DNA and its base to antioxidants was studied. Now antioxidants are studied as a protector to reduce the protein damage induced by ionizing radiation and photosensitization.

Synthesize the nanogel as drug release

Now nanogel is widely considered as a drug controlled delivery. A novel method to prepare thermosensitive nanogels from photocross-linkable copolymers of N-isopropylacrylamide and dimethyl maleinimido acrylamide was developed. The particle sizes of the nanogels and their swellability could be controlled through the UV irradiation

time and the concentration of surface active agent. The shape of nanogel was studied by AFM and TEM.

論文 (Publications)

1. Laser photolysis of interaction of poly-guanylic acid (5 ') with anthraquinone-2-sulfonate
Ma Jianhua, Lin Weizen, Wang Wenfeng, Han Zhenhui, Yao Side, Lin Nianyuan
SCIENCE IN CHINA, SER. B, 45 (4): 384-388, 2002
2. Fast repair activities of quercetin and rutin toward dGMP hydroxyl radical adducts
Zhao Chenyang, Shi Yimin, Wang Wenfeng, Lin Weizen et.al
RADIATION PHYSICS AND CHEMISTRY, 63 (2): 137-142, 2002
3. The free radical reaction of CCl₃OO with polyphenol: A pulse radiolysis study
Zhao Yaping, Qian Suping, Yu Wenli, Yao Side and Wang Wenfeng
Journal of Radiation Research and Radiation Processing, 20(4), 231-234, 2002
4. An approach to the application of radiation chemistry for the study of environmental hormone.
Dou Dayin, Zhao Hongwei, Miao Jinling, Li Rongqun, Wang Wenfeng, Yao Side
Journal of Safety and Enviroment, 2(3), 51-54,2002
5. Nano poly(N-isopropylacrylamide) microgel polymerization initiates by light.
Li Wei, Wang Wenfeng, Qian Suping, Yao Side
Journal of Radiation Research and Radiation Processing, 20(2), 118-122,2002
6. Complicated resistivity-temperature behavior in polymer composites
Li Rongqun, Dou Dayin, Miao Jinling, Wang Wenfeng, Yao Side
JOURNAL OF APPLIED POLYMER SCIENCE, 86 (9): 2217-2221, 2002
7. The synthetise of thermosensitive nanogel and its applied in the field of biomedicine.
Li Wei, Wang Wenfeng, Li Rongqun and Yao Side
Nuclear Technique, 25(8), 624-630, 2002
8. The reaction of β -carotene with CCl₃OO free radical studied by pulse radiolysis
Zhao Wenen, Yao Side, Qian Suping, Wang Wenfeng, Han Yashan
Science in China, Ser. C., 32(4), 355-359, 2002
9. The photolysis study the primary processes induced by ADE triplet.
Pan Jinxi, Lin Weizen, Han Zhenhui, Li Rongqun, Wang Wenfeng, Yao Side

国際会議 (Conferences)

1. The synthetise, characteristic of nanogel and its applied in the field of biomedicine.
Li Wei, Wang WF and Yao SD
Shanghai Nano Technology Conference, Shanghai, China, Jan. 2002
2. The photosensitizer and protect reaction of DNA and its base.
Wang WF (invited)
The symposium of research trend on biochemistry, Dalian, China, Jul. 2002

ナノテクノロジー産業応用研究部門

環境調和ナノマテリアル分野

グリーン戦略，果たして！？

菅沼 克昭（すがぬま かつあき）



またしても環境技術を全面に出して産業界との連携を強めた1年が過ぎ去った。経済不況の中，何が個人で産業界へ寄与できるのかを常に考えながらの1年であったが，果たして何が達成されたのだろうか振り返る間もない状況で，たぶん，このまま新たな年度へ突入だろうと半ば諦めている今日この頃である。学会初の低温実装プロジェクトも無事終了でき，そのまとめのために久しぶりにほとんど数日徹夜をした。変なところで，まだまだ行けると実感したしだいである。産業界とのプロジェクトを幾つも進めながら，なんでこんなに予算に苦勞するのだろうと，改めて不思議に感じる。一方で，「はじめてのはんだ付け...」を工業調査会から出版できたことは，個人のことながらトピックスと感じる。執筆に当たって大英博物館，刈谷市立図書館，シャープ，或いは研究室の諸君，学会諸氏，業界各位には大変なお世話になり，改めて感謝したい。書き進める上で久しぶりに神田の古書店を歩き巡り古代歴史書を読み漁った。忘れていた歴史のおもしろさも実感できた。研究は，学生諸君が頑張ってくれるおかげで順調である。自分が手を動かすことが出来なくなったことは少し寂しいが，世の中の動きと科学の楽しみを皆が感じてくれれば良いのだろう。そうそう，新年度も「日本のグリーン戦略」を唱えるのだから，「実験室や自分の部屋のグリーン戦略」も考えねば... これは，ちょっと頭が痛い。

奥 健夫（おく たけお）



大阪に来て早くも5年半が過ぎました。高次インターマテリアル研究センターから産業科学ナノテクノロジーセンターへと変化があり、にぎやかになってきて喜ばしいことと思います。人々の役に立ち、サイエンス・テクノロジーで重要なテーマで仕事を進めていきたいと考えております。ナノチューブ・フラーレン関連では、Nariとのんびりと仕事を進めさせていただいております。多くの方々の助けを借りながら楽しく仕事をさせていただけることに大変感謝しております。

スキー場から20分という滋賀県の田舎に住んでいるため、朝猛吹雪で雪が10cmくらい積って家を出ても、学校に着く頃には晴れているということもよくあります。趣味はエレクトーンでのYamaryとのバンド活動、Hagaryとのテニスなどです。共働きなので、夕方は私が早く帰り子供2人を食事させお風呂に入れて一緒に早寝しています。

山口 俊郎（やまぐち しゅんろう）

大阪大学理学部化学科卒業。高次インターマテリアル研究センターから引き続き研究を継続しています。バイオメテックな観点から新しい人工関節の開発と新しい骨セメントの開発を進めています。また、菅沼教授の導電性接着剤に関する研究プロジェクトも継続して取り組んでいます。

井上雅博（いのうえ まさひろ）

主な研究テーマ

種々の材料の表面や界面制御に関する基礎研究から産業応用につながる材料システムの開発を目指しています。

- ーゾルーゲル電着法による金属系材料表面へのセラミックス薄膜形成
- ー活性プラズマプロセスによる金属および金属間化合物の直接表面改質
- ー金属間化合物表面における化学反応の量子化学シミュレーション
- ーエレクトロニクス実装に用いられる異方性導電フィルムの界面接着性と信頼性評価
- ー各種複合材料における異相界面制御
- ーソフトマターの特性評価と高機能化

他

所属学協会

（国内）応用物理学会，日本金属学会，日本セラミックス協会，日本 MRS，
DV-X α 研究協会，軽金属学会，粉体粉末冶金協会，腐食防食協会
（海外）MRS, TMS, ASM

研究概要

鉛フリーソルダリングにおける界面ナノ構造制御

近年，慢性化した酸性雨の下で，家電製品，情報機器，自動車などの廃棄物からの有害元素流出が大きな社会問題となっている．特に，エレクトロニクス実装の基板技術を支える鉛はんだは法規制の対象とされていることから，緊急の対策が必要となっている．我々の研究グループは，これまで国内の鉛フリーはんだ開発研究の先導的な役割を果たしてきたが，さらに研究を発展させ，はんだ合金設計，凝固プロセスのシミュレーションおよびその場観察，界面のナノ構造解析，接続信頼性評価などの系統的な検討を通じて高信頼性鉛フリーはんだ接続技術の確立を目指している．

従来の研究では主としてミクロレベルの組織観察から接続信頼性を議論してきたが，我々の研究室では界面ナノ構造を詳細に調べることにより，接続信頼性に関する新たな知見を明らかにしている．例として図1に Ni めっき層と鉛フリーはんだ界面の透過型電子顕微鏡(TEM)写真を示す．従来から生成することがわかっていた反応層(Ni_3Sn_4)のほかにナノ結晶粒から構成される数十 nm レベルの反応層($\eta\text{-Ni}_3\text{Sn}_2$)が生成していることをはじめて明らかにした．このような界面組織は，疲労き裂進展抵抗を低下させるなど，接続信頼性に対して重大な影響を及ぼしているものと考えられる．今後，マイクロエレクトロニクスの急速な進展に伴い，ナノレベルからの界面構造制御の重要性はさらに増していくものと予想されるが，我々の研究グループではナノキャラクターゼーションをもとにこの分野での研究を強力に推進していく予定である．

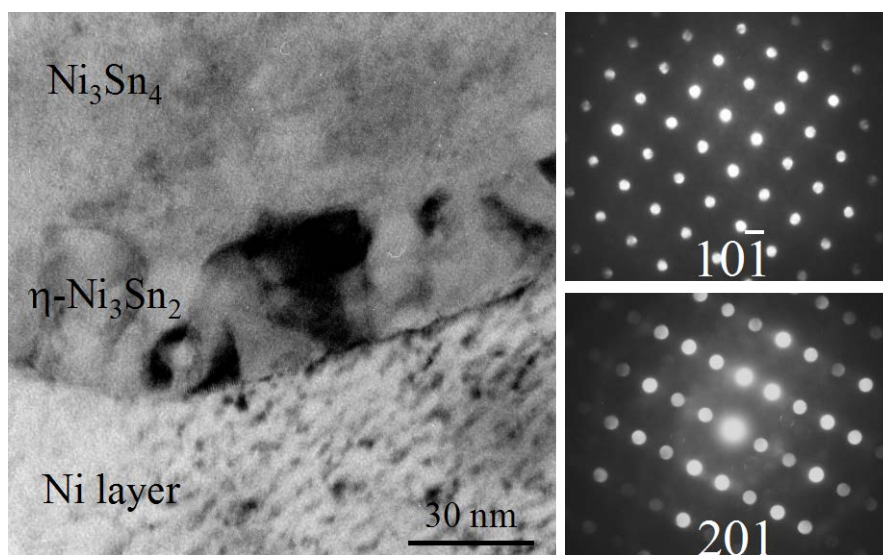


図1 Ni めっき／鉛フリーはんだ界面の TEM 写真および電子線回折パターン．初期界面反応によって生成する Ni_3Sn_4 以外にナノ結晶粒からなる $\eta\text{-Ni}_3\text{Sn}_2$ 層が生成することをはじめて明らかにした．上下の電子線回折パターンはそれぞれ Ni_3Sn_4 と Ni_3Sn_2 層から得られたパターン．

新たな領域を切り開く導電性接着剤研究

近年、家電製品、情報機器、或いは自動車などが廃棄物場に溢れ、慢性化した酸性雨のもとでの有害元素流出が大きな社会問題になっている。特に、電子実装の基盤技術を支える鉛はんだ材料は大きな問題になり、まさに EU では規制法案(WEEE/RoHS)が成立しようとしている。我が国ばかりでなく、世界中で鉛フリー実装技術が研究され、この数年で格段の進歩と実績を積み上げて来た。一方、導電性接着剤には 40 年以上の歴史があり、鉛フリー化が求められている今、はんだ代替材料として新たな注目を集めている。導電性接着剤の長所は、鉛フリーはんだでは使用できない高温使用と低温実装の両方が可能であるところにある。しかし、環境調和の魅力は大きいものの、まだまだ多くの問題点を持ち、特性の改善が求められている。

私たちの研究室では、はんだ代替材料としての導電性接着剤開発に取り組み、界面反応や結合などの材料学の基礎的な取り組みから、界面を通して生じる諸現象の解明を行い、更に得られた知見に基づいた問題点解決に取り組んでいる。そのひとつとして、高温保持による導電性接着剤の信頼性解析を行っているが、問題となっている

Sn 合金めっきとの界面の高温劣化メカニズムを解明し(図 1), 更にその抑制策を提案した。この一連の研究は、国内ばかりでなく米国でも高い評価を得ている。また、高温高湿保持における劣化の解明、複合材料としての諸物性の理論的解明と設計技術の確立にも取り組んでいる。

これらの一連の導電性接着剤に関する研究は、重要なテーマでありながら我が国では、大

学や国研においてほとんど為されていない。特に、導電性接着剤は金属と有機の知識を必要とする学際領域であり、いずれかの領域の専門家には取り組みが難しいものである。「高次インターマテリアル」を対象とする当センターの最も特色とする領域であったことが幸いしたとも言えよう。なお、当研究所では、新産業創造研究会の活動の一つとして先進導電性接着剤研究会を実施し、多くのメンバー企業との産学共同活動を行っている。

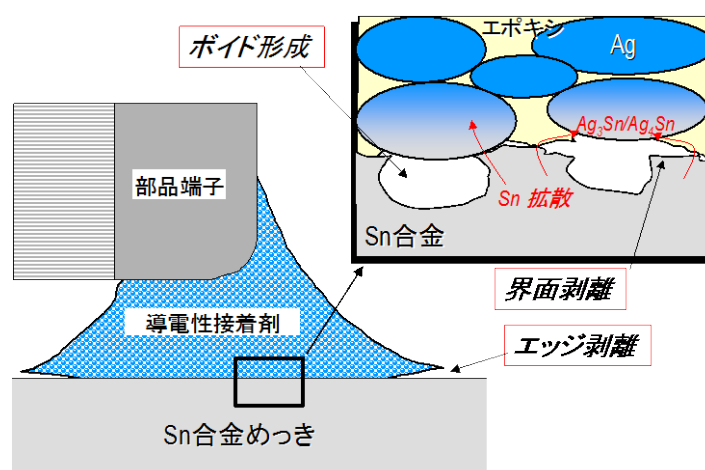


図 2 Ag-エポキシ/導電性接着剤界面の高温保持による劣化メカニズム。

金属間化合物およびその複合材料の開発

(1)構造材料

Ni, Fe, Ti 系アルミナイドをベースとする構造用材料の反応合成プロセスと、それを利用した材料設計について検討し、合金からナノ・ミクロスケールに至る階層的な複合材料設計指針を提案した。環境効果も考慮に入れた独自のアイディアは、海外の学会から招待講演を依頼されるなど、高い評価を得ている。また、反応性プラズマプロセスを用いて、化合物表面に傾斜組成を有するセラミックス層を形成させ、耐熱性および耐環境性を改善する（ライフタイムエクステンション）試みも行っている。

(2)機能性材料

金属間化合物の中には、熱電特性や水素吸蔵などの機能を有するものがある。このような材料に関する検討も進め、エネルギー問題に対応できる機能調和ハイブリッドマテリアルの開発を目指している。

(3)第1原理シミュレーションによる物質設計

これまでの研究の中で実験的に解明してきた環境脆化など現象のメカニズムや活性プラズマプロセスによって形成される表面改質層の形成過程などを原子スケールから解明することを目的に第1原理シミュレーションによる検討を行っている。環境中に存在する脆化因子のアルミナイド表面への化学吸着や、原子上水素、酸素、窒素、炭素などの挙動についていくつかの知見を得ることができた。これをもとに物質設計の指針を提案した。

有用な機能をもつ有機-無機複合材料の開発

i) 人工骨材料および人工軟骨材料の開発

Ti-PVA 系人工軟骨材料およびバイオ軟骨-ポーラスアパタイト系材料の研究開発に取り組んでいる。(菅沼、青木(D2))

臨床応用を目指した人工骨および骨セメントの開発を目指して、有機-リン酸カルシウム複合材料を合成し、機械的特性および生体適合性について研究を行っている。

(新原、関野、野本(D1))

ii)有機修飾型ポリタングステン酸を用いた高活性酸化触媒の開発

グリーンケミストリーを指向した有機溶媒をもちいないクリーンな系での酸化反応の開発をおこなっている。これらの研究は、近畿大学理工学部佐々木講師、産研市原助手、神戸薬科大学中山助教授らと共同で行った。

iii)有機-層状リン酸塩インターカレーション化合物の有機反応への応用

インターカレーション化合物の層間を反応場としてもちいた有機反応の開発を試みた。この研究は、近畿大学理工学部佐々木講師、神戸薬科大学中山助教授らと共同で行った。

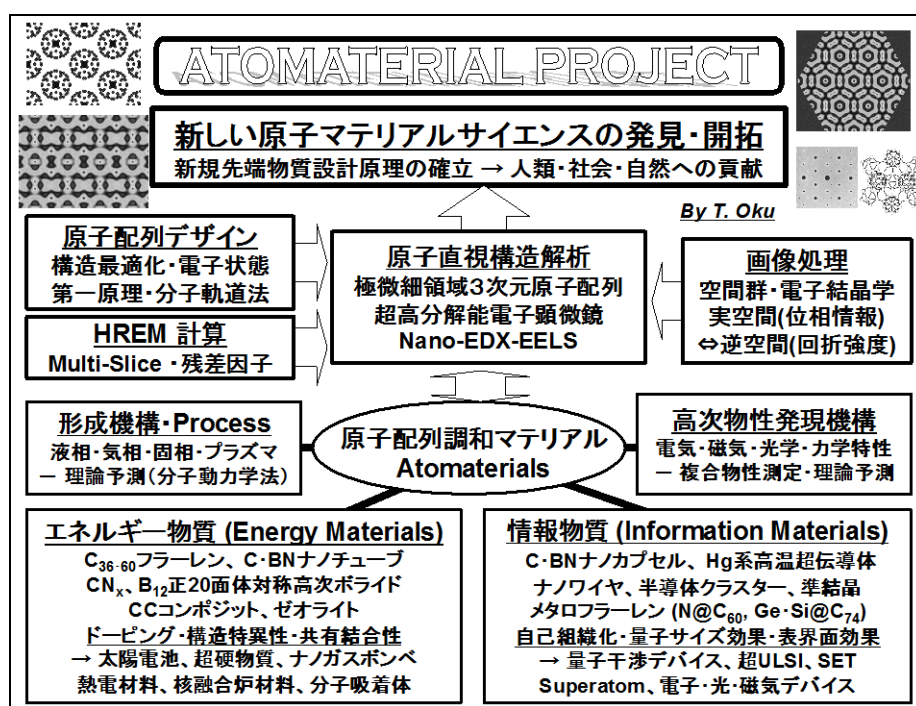
ATOMATERIAL-PROJECT

新物質は、新たなエネルギー・情報材料への発展が期待され、人類の将来的なエネルギー・情報化社会問題を解決するための新デバイス実現の上で基本となる領域である。この新物質が生み出す様々な特性は、その原子配列が最も重要な鍵となっている。現在、下図にまとめられた ATOMATERIAL-PROJECT を推進している。これは原子配列調和マテリアルを中心とした Project であり、新物質の原子の世界を直視することにより、新しい原子マテリアルサイエンスの発見・開拓を目的としており、新規先端物質設計原理の確立を通して、21 世紀に向かい人類・社会・自然に貢献していくことを大きな目標としている。詳しいテーマ等はホームページ参照。
(<http://www.sanken.osaka-u.ac.jp/~oku/frame.html>)

プロジェクトの選択基準としては、科学と人類社会へ大きなインパクト (Nature and Science)を与え、自分の直観・情熱・興味・靈感を大事にして、Only one and No. 1—重要でオリジナリティのあるものに集中するようにしている。

具体的には図に表現されているように、様々な新規構造・物性発現が期待される、金属・無機・有機物質の原子配列が機能的に調和したエネルギー物質と情報物質（原子配列調和マテリアル）を中心として、形成機構・プロセス・高次物性を評価し、理論計算による原子配列デザイン・HREM 計算・画像処理から極微細領域 3 次元原子配列直接決定法を確立し、上記目的を達成していく。対象となる原子配列調和マテリアルは、異元素を内包した新規ナノ量子構造による高機能・多機能の発現を期待した、人と環境に優しい、炭素、ホウ素、窒素をベースとした C・BN フラーレン等、様々な物質を取り扱っている。さらに究極の原子配列調和物質として、生命体・人間を対象と考えているが、生命体における意識（情報）→エネルギー→物質の変換は今後の大きな課題となるであろう。

上記の ATOMATERIAL PROJECT に関して、様々なグループと共同研究を推進している。また、科学研究費等の援助を受けている。



論文

1. Effect of Au addition on microstructural and mechanical properties of Sn-Cu eutectic solder
S-H Huh, K-S Kim and K Suganuma
Mater. Trans., JIM, 42[2](2002) 239-245
2. Degradation mechanism of Ag-epoxy conductive adhesive/Sn-Pb plating interface by heat exposure
M Yamashita and K Suganuma
J Electron Mater, 31[6] (2002), 551-556
3. 高温保持による Sn-Zn 系鉛フリーはんだと Cu 接合部の微細組織変化
金 槿銖、金 迎奄、菅沼克昭、中嶋英雄
エレクトロニクス実装学会誌、5[7](2002),666-671.
4. Improvement of properties of Sn-Cu lead-free solder by third element alloying and its reliability for through-hole circuit assembly
S. -H. Huh, K. -S. Kim and K. Suganuma
Adv. In Tech. of Mat. And Mat. Proc. J., 5[1](2003), 1-6.
5. Mechanical behavior of reactively hot-pressed FeAl matrix composites with carbide particles at elevated temperatures
M Inoue and K Suganuma
Journal of Materials Science Letters(2002)
6. Effects of Cooling Speed on Microstructure and Tensile Properties of Sn-Ag-Cu Alloys
K-S Kim, S-H Huh and K Suganuma
Materials Science and Engineering A, 333(2002)106-114
7. Structure of thermoelectric material CoSb₃ formed by reactive diffusion
T. Shimozaki, K. S. Kim, T. Iwata, T. Okino and Chan-Gyu Lee
Materials Transactions, JIM. 43 (2002) 2609-2616
8. Three-dimensional imaging of YB₅₆ by high-resolution electron microscopy
T. Oku
Chem. Comm. (2002) 302-303.
9. Atomic and electronic structures of Si@C₇₄ cluster studied by HREM and molecular orbital calculations
T. Oku, I. Narita, R. Hatakeyama, T. Hirata, N. Y. Sato, T. Mieno and N. Sato
Diamond and Related Mater. 11 (2002) 935-939.
10. Calculation of H₂ gas storage for boron nitride and carbon nanotubes studied from the cluster calculation
T. Oku and I. Narita
Physica B 323 (2002) 216-218.

11. High-resolution electron microscopy and electronic structures of endohedral La@B₃₆N₃₆ clusters
T. Oku, M. Kuno and I. Narita
Diamond and Related Mater. 11 (2002) 940-944.
12. Formation and atomic structure of carbon mini-nanotube
T. Oku, R. Hatakeyama, T. Hirata and N. Sato
Physica B 323 (2002) 284-286
13. Synthesis and atomic structures of boron nitride nanotubes
T. Oku
Physica B 323 (2002) 357-359.
14. Atomic structures of surface and interface in (Hg, Tl, Pb)-based superconducting oxides studied by high-resolution electron microscopy
T. Oku and S. Nakajima
Sol. State Comm. 124 (2002) 305-309.
15. Molecular dynamics calculation of H₂ gas storage in C₆₀ and B₃₆N₃₆ clusters
I. Narita and T. Oku
Diamond and Related Mater. 11 (2002) 945-948.
16. Arc-melting synthesis of BN nanocapsules from B/Al, TiB₂ and VB₂
I. Narita and T. Oku
Diamond and Related Mater. 11 (2002) 949-952.
17. Synthesis of boron nitride nanotubes by using YB₆ powder
I. Narita and T. Oku
Sol. State Comm. 122 (2002) 465-468.
18. Structural and mechanical properties of particulate, whisker and unidirectional Bi-2223 Ag composites
E. Bruneel, T. Oku, J. Degrieck, I. Van Driessche and S. Hoste
Key Eng. Mat. 206 (2002) 637-640.
19. TEM study on the alignation of BSCCO-2223 phase along Ag-whiskers in a bulk composite
E. Bruneel, T. Oku, G. Penneman, I. Van Driessche and S. Hoste
Key Eng. Mat. 206 (2002) 1473-1476.
20. Modulated structure of the thermoelectric compound [Ca₂CoO₃]_{0.62}CoO₂
Y. Miyazaki, M. Onoda, T. Oku, M. Kikuchi, Y. Ishii, Y. Ono, Y. Morii and T. Kajitani
J. Phys. Soc. Jpn 71 (2002) 491-497.
21. Shape-controlled synthesis of hydroxyapatite from tricalcium bis(orthophosphate) in organic- aqueous binary system.
K.Sakamoto, A.Nakahira, M.Okazaki, M.Kaneno, J.Ichihara, S.Yamaguchi and J. C. Elliott
J. Mat. Sci., 37 (2002) 1-9.

22. The catalytic activities of poly acid/apatites in the epoxidation using urea-hydrogen peroxide
J.Ichihara, S.Yamaguchi, H.Nakayama, K.Iteya, T. Shinkawa, Y. Sasaki
Phosphorus Sulfur and Silicon, 177 (2002).
23. Aldehyde absorption with Asp-OCP inclusion compound
S. Aoki, S. Yamaguchi, A. Nakahira, and K. Suganuma
Phosphorus Sulfur and Silicon, 177 (2002) 2259.
24. Synthesis and mechanical properties of calcium phosphate-methacrylate phosphate composite
T. Nomoto, S. Yamaguchi, H. Tokunaga, Y. Sasaki, K. Sakamoto, M. Okazaki, T. Kusunose, and K. Niihara
Phosphorus Sulfur and Silicon, 17, (2002) 2257.
25. Keggin-type polyacid clusters on apatite: Characteristic catalytic activities in solvent-free oxidation
J. Ichihara, S.Yamaguchi, and Y.Sasaki
Tetrahedron Lett., 43 (2002) 8231-8234.
26. Selective oxidation of allylic alcohols with H₂O₂ on a series of lanthanide decatungstate modified with 1-hexadecylpyridinium cation; kinetic features and working mechanisms
Y. Kera, A. Inagaki, Y. Mochizuki, H. Kominami, S.Yamaguchi, and J. Ichihara
J. Mol. Cat. A: Chem., 184 (2002) 413-429.
27. A new approach to artificial joint ; Fusion of tissue engineering and material science
S.Yamaguchi
Materials Intrgration, 15 (2002) 32-35.
28. Thermoluminescence of calcium-deficient fluoridated hydroxyapatite
K.Sakamoto, K.Mizuguchi, T. Nomoto, S.Yamaguchi, J.Ichihara, Y.Sasaki, and K.Niihara
Phosphorus Sulfur and Silicon, 177 (2002) 2261.
29. Novel reactive plasma processing for transforming surface of metals and intermetallics to ceramics.
M. Inoue, M. Nunogaki and T. Yamamoto
Mater.Manuf. Processes, 17 (2002) 553-565
30. Ceramic layers formed on metals by reactive plasma processing
M. Nunogaki, M. Inoue and T. Yamamoto
J. Euro. Ceram. Soc., 22 (2002) 2573-2541

解説・総説

1. The current status of lead-free soldering
K. Suganuma
Espec Technology Report, No.13 (2002) 1-8.

2. 欧州の環境規制と世界の実用化へ向けた鉛フリー実装技術動向
菅沼克昭
電子材料5月号別冊「実装技術ガイドブック2002年」, (2002) 83-88.
3. 鉛フリーはんだ実装への世界の対応状況とEU指令
菅沼克昭
JPCA NEWS, No.406, [6] (2002) 10-17.
4. 鉛フリーはんだ材料と対応プロセスの現状
菅沼克昭
実装技術, Vol.18, No.8 (2002).22-27.
5. 界面工学に基づく環境に優しい電子実装工学への取り組み
菅沼克昭, 金 グンス, 山下宗哲
マテリアルインテグレーション, Vol.15, No.10 (2002) 26-31.
6. 実装における鉛フリー化とハロゲンフリー化の技術
菅沼克昭
O plus E, Vol.24, No.10 (2002) 1120-1125.
7. 鉛フリーはんだ実装の技術と科学
菅沼克昭
科学と工業, Vol.76, No.10(2002) 494-502.
8. WEEE/RoHS指令と鉛フリーはんだ付け技術の動向
菅沼克昭
産業と環境, 12月号(2002) 67-74.
9. ナノワールドー電子顕微鏡で見た原子の世界ー
奥 健夫
日経サイエンス, Vol. 32, No. 3 (2002) 102-105.
10. 原子配列調和物質の構造と物性ー自己組織集合体から生命における情報・エネルギー・物質変換へー
奥 健夫
Materials Integration Vol. 15, No. 7 (2002) 3-11.
11. ナノワールドー電子顕微鏡で見た原子の世界ー
奥 健夫
別冊日経サイエンス Vol. 138 (2002) 118-121.
12. 超伝導の世界ー原子は直接見える？ー $\text{TlBa}_2\text{Ca}_3\text{Cu}_4\text{O}_{11}$ の高分解能電子顕微鏡像
奥 健夫
現代化学, No. 380 (2002) 32-33.

13. クラスターの世界－美しき曼荼羅模様－ $B_{84} \cdot B_{156}$ クラスターの高分解能電子顕微鏡像
奥 健夫
現代化学, No. 381 (2002) 52-53.

著書

1. はじめてのはんだ付け技術(単著)
菅沼 克昭、工業調査会 (2002) 197 page.
2. Advances in Materials Research -Physics and Chemistry of Clusters-
Edited by Y. Kawazoe, T. Kondow and K. Ohno (Springer-Verlag, 2002). P. 221-244.
Takeo Oku
Nanostructural characterization of inorganic materials by high-resolution electron microscopy
3. 電子顕微鏡法の実践用解説とその応用写真集（日本金属学会編、2002 年） P. 195.
奥健夫、成田一人、平野孝典、久野昌樹、北原秀彦、菅沼克昭、平賀賢二、青柳英二
新規 BN/C クラスターの構造最適化
4. 知的生命情報概論－意識・生命エネルギーの原理と応用－
三恵社、2002 年、372 page.
奥 健夫 監修、奥健夫、中野利徳、桑原昌広、佐藤正英、二宮裕樹著

国際会議

1. Three-dimensional morphology of intermetallics compound formed in Sn-Ag-Cu solders and various substrates
K-S Kim, S-H Huh and K.Suganuma
The 5th SANKEN international symposium, Osaka, March(2002), 129.
2. Degradation mechanism of Ag-epoxy conductive adhesive/Sn-Pb plating interface by heat exposure
M.Yamashita and K.Suganuma
5th Sanken International Symposium, Osaka, March (2002), 148-149
3. JIEP low temperature lead-free soldering project
K.Suganuma, T.Tsukui, T.Suga and T.Makimoto
International Conference on Electronics Packaging (2002ICEP), JIEP, April (2002) 74-78.
4. Joining reliability of Sn-Ag-Cu series solder alloys
K.S.Kim, S.H.Huh and K.Suganuma
International Conference on Electronics Packaging (2002ICEP), JIEP, April(2002) 89-92.

5. Evaluation of properties of skeleton structured ceramic/aluminum composites for heat-sink
M.Nakata, K.Tanihata and K.Suganuma
International Conference on Electronics Packaging (2002ICEP), JIEP, April (2002) 255-259.
6. A new approach to an artificial joint with bio-cartilage/porous beta tricalcium phosphate
S. Aoki, S. Yamaguchi, A. Nakahira and K.Suganuma
Internatinal Workshop on Ceramic & Metal Interfaces, Spanish National Research Council , Oviedo, July 23-27, (2002).
7. Joining silicon carbide/aluminum composite
M. Nakata, K. Tanihata, and K. Suganuma
Internatinal Workshop on Ceramic & Metal Interfaces, Spanish National Research Council , Oviedo, July 23-27, (2002).
8. Thermal and Mechanical Stability of SMT Structure Soldered with Sn-Bi-Ag Lead-Free Alloy
K. Suganuma, T. Sakai, K.-S. Kim, Y. Takagi, J. Sugimoto, and M. Ueshima
HDP'02, IEEE CPMT, Shaghai (2002) 161-164.
9. Interface and Interphase between Dissimilar Materials in Microsoldering
K. Suganuma, K-S Kim and C-W Hwang
International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2002 (ISSIN-2002), Osaka, Japan, 12-13 December (2002), 51.
10. Sn-Zn systemsolder for electronics assemblies
Y.S.Kim and K. Suganuma
Mater. Res. Soc. Of Korea, 1-2 November (2002) 42.
11. ★Alloying design for lead-free soldering
K.Suganuma, K.-S. Kim and C.-W. Hwang
Proc. International Conf. on Designing and Interfacial Structures in Advanced Materials and their Joints (DIS'02), edited by M. Naka, Osaka,Nov (2002), 697-703
12. Reactive plasma process combined with ion and electron beam pre-irradiation of metallic materials
M. Inoue, M. Nunogaki and K. Suganuma
Oxford Kobe Seminars 2002, Kobe, Sep(2002)
13. Carburization of TiAl alloys by reactive plasma process at elevated temperatures
M. Inoue, M. Nunogaki and K. Suganuma
JSME/ASME Int. Conf. Mat. & Proc. 2002, Honolulu, Oct.(2002)
14. Chemical interactions on hydroxyapatite colloidal particles dispersed in aqueous solutions containing inorganic electrolytes and amino acids
M. Inoue, T. Matsumoto and K. Suganuma
ISSIN-2002, Osaka ,Dec.(2002)

15. Direct formation of ceramic layers with a graded composition on metals and intermetallics for extending material's lifetime
M. Inoue, M. Nunogaki and K. Suganuma
ISSIN-2002, Osaka ,Dec. (2002)
16. Formation, atomic structures and structural optimization of tetrahedral carbon onion
T. Oku and I. Narita
8th International Conference New Diamond Science and Technology (July 21-26(22), 2002, Melbourne, Australia). Abstracts P. 35.
17. Atomic structure of BN nanotubes studied by HREM analysis and ab-initio molecular orbital calculations
I. Narita and T. Oku
8th International Conference New Diamond Science and Technology (July 21-26, 2002 Melbourne, Australia) Abstracts P. 173.
18. Synthesis of boron nitride nanotubes by using NbB₂, YB₆ and YB₆/Ni powder
I. Narita and T. Oku
8th International Conference New Diamond Science and Technology (July 21-26, 2002 Melbourne, Australia) Abstracts P. 174.
19. Formation and structures of multiply-twinned nanoparticles with fivefold symmetry in chemical vapor deposited boron nitride
T. Oku, K. Hiraga, T. Matsuda, T. Hirai and M. Hirabayashi
8th International Conference New Diamond Science and Technology (July 21-26(25), 2002, Melbourne, Australia). Abstracts P. 175.
20. Hydrogen storage of boron nitride fullerene materials prepared by arc melting method
T. Oku and M. Kuno
13th European Conference on Diamond, Diamond-Like Materials, Carbon Nanotubes, Nitrides and Silicon Carbide, (Granada, Spain, Sept. 8-13(12), 2002) Abstract Book 15.05.06.
21. Twin structures of rhombohedral boron nitride prepared by chemical vapor deposition method
T. Oku, K. Hiraga, T. Matsuda, T. Hirai and M. Hirabayashi
13th European Conference on Diamond, Diamond-Like Materials, Carbon Nanotubes, Nitrides and Silicon Carbide, (Granada, Spain, Sept. 8-13(12), 2002) Abstract Book 15.10.14.
22. Effects of catalytic metals for synthesis of BN fullerene nanomaterials
I. Narita and T. Oku
13th European Conference on Diamond, Diamond-Like Materials, Carbon Nanotubes, Nitrides and Silicon Carbide, (Granada, Spain, Sept. 8-13(12), 2002) Abstract Book 5.06.23.
23. Synthesis and structure analysis of BN fullerene nanomaterials
I. Narita and T. Oku

- The 8th Seminar on Core University Program between Japan and Korea (November 3-6, 2002 Osaka, Japan) Abstracts P. 29.
24. Nanostructural Characterization of 5-fold Multiply-twinned Nanoparticles in CVD-BN
T. Oku and K. Hiraga
The 8th Seminar on Core University Program (CUP) between Japan and Korea - New Nanostructured and Nanocomposite Ceramics with Multiple Functionality - (Osaka, Japan November 3-6, 2002) P. 30.
 25. Hydrogen/argon storage in boron nitride/carbon nanomaterials and *ab-initio* calculation of the structural stability
T. Oku, I. Narita and M. Kuno
International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2002 (Osaka, Japan December 12-13, 2002) P. 81.
 26. Synthesis, Atomic Structure and Properties of BN Fullerene Nanomaterials by Arc-melting of Boride Powders
I. Narita and T. Oku
International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2002 (December 12-13, 2002 Osaka) Abstracts P. 31.
 27. Catalytic Activities of Nanoclustered Dispersed on Apatite
J. Ichihara, K. Iteya, H. Kawaguchi, Y. Sasaki, H. Nakayama, S. Yamaguchi
2002 International Nano Ceramics/Crystals Forum and International Symposium on Intermaterials, (NCF6 & IMA6), Aug. 12-15th, 2002, Seoul, Korea
 28. Spectroscopic studies on the catalytic activities of phosphotungstates nanoclusters On apatite
J Ichihara, S Yamaguchi, H Nakayama, K Iteya, A Kanbara, H Kawaguchi, Y Sasaki
Core University Program (CUP) between Japan and Korea Osaka Seminar
New Nanostructured and Nanocomposite Ceramics with Multiple Functionality
November 4- 6, 2002, Osaka
 29. Catalytic behavior of phosphomolybdates nanoclusters on apatite in solvent-free oxidations
Y.Sasaki, K. Iteya, K. Ushimaru, H.Nakayama, S.Yamaguchi, J.Ichihara
Core University Program (CUP) between Japan and Korea Osaka Seminar
New Nanostructured and Nanocomposite Ceramics with Multiple Functionality
November 4- 6, 2002, Osaka
 30. Solid-phase-peroxidation of polyoxometalate nanoclusters
J.Ichihara, Y. Sasaki, S. Yamaguchi
International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2002,12-13th December, 2002, Osaka, Japan
 31. Preparation of porous calcium phosphates using hydrothermal treatment and ceramic foaming technique and the cultivation of osteoblast-like cells on them
S. Aoki, S. Yamaguchi and K. Suganuma The 8th Seminar on Core University Program (CUP) between Japan and Korea, 3-6 November, 2002, Osaka

32. A New Approach to an artificial joint based on Bio-cartilage/porpus β -tricalcium phosphate system,
S. Aoki, S. Yamaguchi and K. Suganuma Internatinal Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2002,12-13 December, 2002 Osaka

国内会議

1. Sn-Zn-Bi 系はんだと Fe 系合金との接続信頼性
金迎奄, 黄致元, 菅沼克昭
エコデザイン 2002 ジャパンシンポジウム論文集, 東京(2002) 124-127.
2. SOP リードのはんだ付けにおける鉛フリーはんだ凝固その場観察
芳我基治, 金槿誅, 菅沼克昭
JIEP, 16(2002), 81-82. ,横浜, 18-20 March
3. ★鉛規制がスタートした世界の規制同行と対応状況
菅沼克昭
インターネプコンショー、東京、2002 年 1 月
4. ★JEITA 電解蓄電器研究会
菅沼克昭、東京、2002 年 1 月
5. ★岩谷産業講演会
菅沼克昭、東京、2002 年 2 月
6. ★JIE P 低温はんだ開発プロジェクトの成果と欧州規制動向
菅沼克昭
第 15 回環境対応実装技術フォーラム、東京、2002 年 5 月
7. ★鉛フリーはんだ実装の現状
菅沼克昭
JPCA 鉛フリーオープンセミナー、東京、2002 年 6 月
8. ★鉛フリーはんだ実装
菅沼克昭
JPCA ショー・アカデミックラボラトリー、東京、2002 年 6 月
9. ★欧州の環境規制と世界の実用化に向けた鉛フリー実装技術動向
菅沼克昭
北陸鉛フリーセミナー、石川、2002 年 7 月
10. ★鉛フリーはんだの特性と課題
菅沼克昭
鉛フリーソルダーリングの実用化最前線、愛媛、2002 年 9 月

11. ★鉛フリー化が進むエレクトロニクスの実装技術最新動向
菅沼克昭
テクノシステムセミナー、東京、2002 年 10 月
12. ★鉛フリーはんだ付け実装の技術展開とこれから
菅沼克昭
実装技術／環境対応セミナー、大阪、2002 年 10 月
13. ★高密度実装用導電性樹脂接合技術
菅沼克昭
JISSO/PROTEC フォーラム 2002、東京、2002 年 11 月
14. ★J I E P 低温はんだ P J の開発成果
菅沼克昭
第 16 回環境対応実装技術フォーラム、東京、2002 年 11 月
15. ★鉛フリーはんだ付け実装の現状と低温化の課題
菅沼克昭
低融点鉛フリーはんだ／ソルダーペーストの開発と活用事例及びその信頼性セミナー、東京、2002 年 12 月
16. ★半導体分野における導電性ペーストについて
菅沼克昭
新技術普及講座、徳島、2002 年 12 月
17. ★エレクトロニクス実装における最近の動向～鉛フリー実装について～
菅沼克昭
新技術普及講座、徳島、2002 年 12 月
18. Synthesis and analysis of BN fullerene nanomaterials
I. Narita and T. Oku
東北大学金属材料研究所研究会「ナノスケールのクラスターと構造体：理論・実験・シミュレーション」(2002 年 11 月 18-19 日、仙台) P.10
19. Hydrogen storage in boron nitride and carbon nanomaterials
T. Oku, I. Narita and M. Kuno
東北大学金属材料研究所研究会「ナノスケールのクラスターと構造体：理論・実験・シミュレーション」(2002 年 11 月 18-19 日、仙台) P.9
20. リン酸カルシウム骨セメントの加水分解における allograft の添加効果
野本琢也・山口俊郎・原口圭司・菅野伸彦・関野徹・新原皓一
日本セラミックス協会第 15 回秋季シンポジウム（秋田）2002 年 9 月 22-24 日
21. スルフィドの固相系酸化反応における Keggin 型リンモリブデン酸塩触媒の活性

種

射手矢勝真・牛丸恭平・佐々木 洋・中山尋量・山口俊郎・市原潤子
日本化学会第 82 回秋季年会（東京）

22. 固相系酸化反応における Keggin 型リンタングステン酸塩触媒の活性種
射手矢勝真・神原章宏・川口 博・佐々木 洋・中山尋量・山口俊郎・市原潤子
日本化学会第 82 回秋季年会（東京）
23. 無溶媒酸化反応に高活性なドデカタングステン酸セチルピリジニウム塩の調製
北條竜彦・津家敬明・神原章宏・佐々木洋・市原潤子・山口俊郎
日本化学会第 82 回秋季年会（東京）
24. アパタイト分散相を利用したクリーンな有機変換反応
市原潤子・山口俊郎・射手矢勝真・佐々木洋
第 18 回日本アパタイト研究会、(埼玉) 2002 年 11 月 27-28 日
25. Preparation of porous calcium phosphates using hydrothermal treatment and ceramic foaming technique and the cultivation of osteoblast-like cell on them
青木慎介・山口俊郎・菅沼克昭
第 18 回日本アパタイト研究会、(埼玉) 2002 年 11 月 27-28 日

受賞

1. 第52回金属組織写真賞・学術部門・奨励賞
日本金属学会 2002年3月28日
奥 健夫、Jan-Olov Bovin、東 以和美、平賀 賢二、青柳 英二、田中 高穂
「B₈₄・B₁₅₆クラスター及びドーピング原子の直接観察」
日本金属学会会報 Materia 41, No.5 (2002) 323.

学会活動、共同研究

菅沼 克昭

所属学会：IMAPS、エレクトロニクス実装学会、軽金属学会、日本セラミックス協会、
日本金属学会、粉体粉末冶金協会、他

学会活動：粉体粉末冶金協会参事、エレクトロニクス実装学会理事、軽金属学会評議員

国家プロジェクト：

NEDO・JEITA新接合技術標準化委員会委員
NEDO EFSOTプロジェクト委員

国内会議開催：

1. Mate2002 エレクトロニクスにおけるマイクロ接合・実装技術シンポジウム組織

- 委員会委員、横浜、2002年1月
2. MES2002 マイクロエレクトロニクスシンポジウム副委員長、大阪、2002年10月
3. 低温鉛フリーはんだ実装技術実行委員長、東京、2002年11月
4. EcoDesign2002、東京、2002年12月

社会活動：VMT コンソーシアム、2002年10月～

奥 健夫

所属学会：日本金属学会、日本セラミックス協会、日本物理学会、日本電子顕微鏡学会、フラーレン研究会

共同研究：

1. 東北大学100万ボルト電子顕微鏡室、平賀賢二教授、青柳英二技官（金研共同研究）
2. 千葉工業大学、東以和美教授、無機材質研究所、田中高穂博士
3. Department of Inorganic and Physical Chemistry, University of Ghent, Belgium
Els Bruneel博士、Serge Hoste教授
4. 東北大学電子工学科、電気・通信工学科、畠山力三教授、平田孝道助手
5. 東北大学工学部応用物理学科、宮崎譲助手
6. 秋田工業高等専門学校、中島理助教授
7. 姫路工業大学工学部材料工学科、横山嘉彦助手

山口 俊郎

共同研究：

1. 生体アフィニティー結合を応用した骨セメントの開発
岡崎正之（広大歯）、坂本清子（大阪産大）、佐々木洋（近大理工）、
中山尋重（神戸薬大）、J..C.Elliot (Univ. of London)、松本卓也（阪大歯）
2. 骨吸収性リン酸カルシウム系骨セメントの開発
菅野（阪大医）、新原（阪大産研）、関野（阪大産研）

井上 雅博

所属学協会

国内：応用物理学会、日本金属学会、日本セラミックス協会、日本 MRS、
DV-X 研究会、軽金属学会、粉体粉末冶金協会、腐食防食協会
海外：MRS, TMS, ASM

科研費・助成金等

1. 科学研究費・基盤研究(A)(2)：平成 14 年度
「鉛フリーはんだ実装における凝固欠陥の抑制技術開発」
菅沼 克昭
2. 21 世紀 COE プログラム事業推進担当者

菅沼 克昭

3. 財団法人新生資源協会研究助成
「導電性接着剤接続の力学的信頼性に関する研究」
菅沼 克昭
4. 科学研究費・基盤研究(B)(2)：平成 14 年度
「新規原子配列調和物質のナノ構造決定と高次物性発現機構解明」
奥 健夫
5. 科学研究費・基盤(B) 分担 (研究代表者 広大歯 岡崎正之)：平成 14 年度
歯槽骨再建・再生を目指した高次炭酸アパタイト・コラーゲン複合体の創製
山口 俊郎
6. 関西エネルギー・リサイクル科学研究振興財団研究助成
「金属系構造材料のライフタイム・エクステンションのための直接表面改質プロセスの開発」
井上 雅博
7. 平成 14 年度 産研&原子力 21 世紀 COE 若手研究(B)
「ナノ粒子を用いた新鉛フリーはんだの開発及び接合信頼性の評価」
金 謹銖
8. 平成 14 年度 産研&原子力 21 世紀 COE 若手研究(B)
「接合界面をナノレベルで制御したバイオ軟骨-多孔質リン酸カルシウムによる新しい人工関節モデルの開発」
青木 慎介
9. 科学研究費・特別研究員奨励費：平成 14 年度
「新規 BCN ナノクラスターの構造と物性解明」
成田 一人
10. 平成 14 年度 産研&原子力 21 世紀 COE 若手研究(B)
「BN フラーレンナノクラスターの多量合成・原子レベル構造解析及び光機能特性評価」
成田 一人

計算機ナノマテリアルデザイン分野



教授（兼任）吉田 博（よしだ ひろし）

私は大阪大学大学院理学研究科・物理学専攻の物性理論分野（磁性理論）で理学博士の学位を授与され、日本学術振興会の奨励研究員を経て、東北大学理学研究科・物理学専攻で半導体物理学、高温超伝導研究、第一原理計算による物性予測などの理論的研究を行い、助手、助教授を経て、現在、産業科学研究所ナノテクノロジーセンターの計算機ナノマテリアルデザイン分野を兼担しております。本務は量子機能科学研究部門の量子物性研究分野です。私の夢は実験を用いなくて理論的手法によって新機能を持つナノ構造の新物質を次々にデザインすることのできる「21世紀の錬金術師」になることです。実験を一切用いなくて、原子番号だけを入力パラメータにして、物質の微視的世界の基本法則である量子力学に基づいて、ナノ構造を持つ新物質や新機能を予言し、今までになかったような新機能物質をデザインするという研究です。現在では、計算手法とコンピュータの計算能力の進歩により物質の基底状態における物性はかなりの精度で予言でき、世の中に存在しない仮想物質についてもかなりのレベル（基底状態の構造をきめる格子定数や体積弾性率などは実験と比べて1%以内の誤差）で予言でき、予言の後の行なわれる実験結果とも良い一致を示します。また、計算結果のデータベースや他の物質のデータベースを基に新物質を予測のための知識情報処理（インフォマティクス）が進歩すると第一原理計算との組み合わせで大きな進歩が期待されます。将来は、このような計算機ナノマテリアルデザインが可能になり、デザイン主導とプロパテントを基盤にし、マテリアルやデバイス・デザイナーという職業を創出し、新しくデザインした知識を売る第四次産業としての新しいタイプの新産業の創成が大阪で可能になることを夢見ています。



助教授 白井 光雲（しらい こううん）

私は、半導体結晶成長や光物性分光実験の実験的研究を通して、実験事実を定量的に説明するための手段として用いていた物性理論の計算手法を通して物性理論研究に移り、1995年新たに発足した量子機能科学研究部門・量子物性研究分野を経て、産業科学研究所ナノテクノロジーセンターの計算機ナノマテリアルデザイン分野の助教授として、計算機ナノマテリアルデザイン手法の開発を行っています。ナノ構造を持つ新物質を計算物理学手法に基づく第一原理によりデザインすることは人類の大きな夢です。幸い、私は過去7年間にわたり、原子番号だけを入力パラメータにして、物質の基本法則である量子力学の基づき、全エネルギーの原子座標位置における微分である原子に働く力を計算し、これらの力に基づいて有限温度で原子が格子振動したり、高温で融解したり、また高速で冷却することによりアモルファス状態を正確に記述することのできる第一原理分子動力学プログラムについて競争的資金を含む公財政をもとに自ら開発し、OSAKA2000というプログラム名で無償公開しています。これらのプログラムは、理論家のみならず、多くの実験家や企業の研究者および新物質開発担当者に広く受け入れられており、講習会やチュートリアルなどを通じては好評を得ています。産研ナノテクノロジーセンターでは、ナノ構造を持つ新物質の計算機ナノマテリアルデザインが

可能になる計算機基盤ソフトの開発を目標にしています。この分野は試行錯誤的な要素も多く、多くの試練が待ちかまえていますが、チャレンジングな立場に立って、将来の産業応用に不可欠な計算手法とナノマテリアルデザイン・ツールを開発し、社会に提供してゆく研究を進めています。

計算機ナノマテリアルデザインは、物質を支配している微視的機構である要素を還元し、これらをデータベースとして、要素を統合することにより、新機能を持つナノ構造新物質をデザインしようとするまさに要素統合型科学の典型あり、Small is beautiful. Small is different, and Small is useful. という新階層を創出して行こうという大きな潮流と歴史的には見ることができます。

研究概要

1 ナノ構造材料の電子構造とマテリアルデザイン

ナノ構造物質では従来のバルクでは見られなかった様々な物性が出現する。またナノ構造はバルク構造に比べて多くの構造の自由度があり、それらをうまく制御できるようになると工業的に非常に有用となる。そのためこうしたナノ構造物質の電子構造を理論的に予測し、かつその予測に従い物質設計を行えるようになることが求められている。

こうした社会的要請に応えるよう、第一原理計算により理論的に解明し、応用上必要とされる物性を有する材料設計を行う。当面する具体的な物質群として以下のものを研究している。

1-1) サッカーボール構造のホウ素系化合物における超伝導の可能性探索

ホウ素系化合物はフラーレンのようにサッカーボール構造を有するが、その物性はフラーレン族のものとはその共有性結合の点で大きく異なる。この系でもサッカーボール内外への不純物制御により物性が大きく変えられることが示唆されている。最近では、この属の物質の中に高圧下で超伝導転移を示すものが発見され、超伝導探索として興味を持たれている。このような背景で、サッカーボール構造をナノ領域で制御することにより、いかに物性を変えられるか、そしてどれくらいの超伝導特性が現れ得るかを研究する。

この研究の理論予測と実験の比較において、国内の実験グループ（阪大基礎工、東大、物質材料研究機構）、及びアメリカの高圧実験グループ（ハワイ大）と共同研究を行っている。

1-2) アモルファスシリコンの光照射劣化のナノ領域での制御

アモルファスシリコンは太陽電池材料として長年有望視されているが、光照射による伝導特性の劣化の問題が応用上の最大の桎梏となっている。近年 CN 処理によりこの光劣化の抑制法が提案されている。我々はこの機構を微視的な観点から解明してきた。それによるとアモルファスネットワークの中で、最近接結合の結合要請が満たされるだけでは不十分で、ナノスケールでの四配位連結性が必要である。このようなアモルファスネットワークを構築するために、不純物、電子励起などによる物質設計を行う。

この研究において、産研・小林グループと協力関係にある。

1-3) 炭素系ナノ構造物質での電子構造の研究と構造制御

近年、フラーレン族に代表される炭素系物質が超伝導など目覚ましい物性を示すことで注目されているが、注目されるべきものはフラーレン族ばかりでない。ベンゼン結晶においても、様々な不純物ドーピングおよび高圧印加により超伝導出現が示されている。それらの高圧下での物性は、その構造でさえも明らかでない。これを有限温度、圧力下での第一原理分子動力学シミュレーションにより、解明する。それにより超伝導、金属-非金属転移などを予測する。

これに関連して、ダイヤモンド-グラファイトに代表される構造相転移の機構は長

年不明のままであったが、近年の研究では転移は原子スケールというよりももう少し大きいナノスケールで起こることが示唆されている。これを大規模な第一原理分子動力学シミュレーションで研究する。これが解明できると、常温、常圧でのダイヤモンド合成、立方晶 BN の合成への応用が期待される。

1-4) 超格子構造の電子構造の研究

半導体超格子構造は長年研究されてきた分野であるが、近年スピントロニクスへの応用で新たな展開が期待されている。具体的にはスピン分極、伝導を超格子構造により制御することである。このためには精密な第一原理計算による物質、構造設計が必要である。

1-5) ナノ領域での原子動力学とマテリアルデザイン

結晶中の原子拡散機構は応用上重要な研究であるが、単に基本単位格子中の原子の動力学を研究するだけでは不十分である。もっと大きなナノスケールでの動力学が必要である。このような観点から大規模な分子動力学シミュレーションで拡散の問題の解明を計り、デバイス設計などに役立てる。

熱伝導率を第一原理から予測する。

さらにこの研究はナノ構造でのフォノン物性、ナノ構造における熱伝導の問題などの基礎的な問題と密接な関係を持つ。この分野での新たな展開を計る。特にナノサイズでの電子格子相互作用が重要である。

1-6) ナノ構造物質の電子伝導機構

ナノ構造物質での電子伝導機構は、従来の巨視的伝導の記述が破綻する領域であり、これをどう記述するか原理上の興味が持たれている。また応用上もトンネル顕微鏡などへ大きく貢献できる。

この研究は、本学工学部・広瀬グループとの共同研究である。

1-7) 電子励起によるグラファイトからナノ構造ダイヤモンドへ創成プロセスのデザイン

第一原理計算に基づいて、常温・常圧状態におけるグラファイトからの内殻電子励起によるダイヤモンド創製法のデザインを行った。次に、内殻電子を放射光、多価イオン、レーザーなどで励起した内殻励起状態（寿命は十フェムト秒程度）では、グラファイトの方が安定であるが、オージェ崩壊過程の終状態では価電子帯に二個のホールが束縛された状態となり（寿命は数ピコ秒程度）、この状態ではダイヤモンドの方がグラファイトよりも安定になることが第一原理計算から明らかになり（図1）、バリア・フリーで、グラファイトから自然にダイヤモンドを創成することができる。このようなホール・ドープによるグラファイト構造の不安定性は、グラファイトの層状構造を保っている価電子帯トップの $p_{\pi} \sigma$ 軌道からなる結合状態にホールが入り、平面構造を保つことができなくなるために、グラファイト面に垂直に炭素原子が大きく原子移動してダイヤモンド構造にバリアーなしで移行するために生じる。図1に示したようにグラファイト構造とダイヤモンド構造の間には内殻励起によってドープされるホール数が少ない場合にはバリアーがあることから、内殻電子励起の強度を調整する

事により、グラファイトのマトリックスの中にナノ構造を持つダイヤモンドを創製することができる。放射光照射時間や温度を変えることにより、単結晶からナノ構造までその大きさを制御できる利点がある。現在これらを確認するための実証実験が行われている

◎内殻電子励起によるグラファイトからダイヤモンド創製の第一原理 マテリアルデザイン

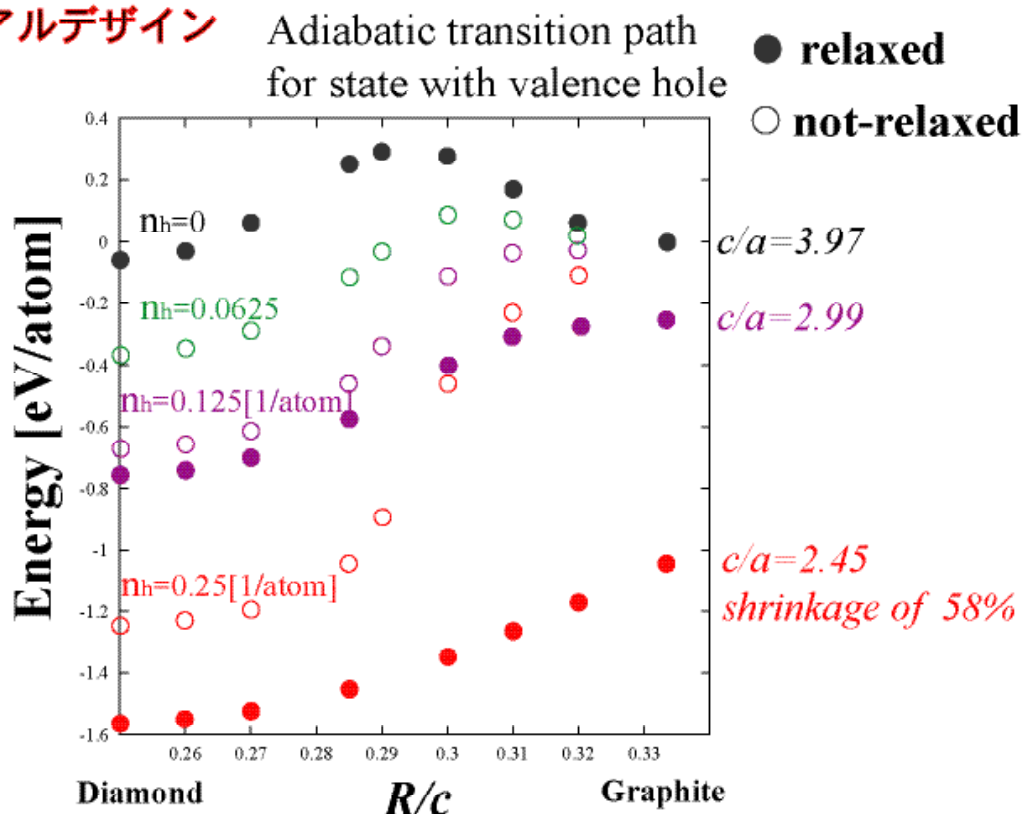


図1：オージェ効果により価電子帯のホールがドーピングされたときのダイヤモンドとグラファイトの全エネルギー比較。

ブラジルなどの南米では、石炭（主成分はグラファイト）とウラニウム（放射線を出す）が共存する鉱床において、グラファイトの混じった黒いダイヤモンド（文字通り Black Diamond といい、価格は安価でおみやげもの屋などで売られている）が大量に発見されるとの事である。どのようなメカニズムでグラファイトが主成分である石炭がダイヤモンド化するかは知られていないようであるが、前述の筆者らの立場からは、ウラニウムの強い放射線が石炭の中に含まれるグラファイトの内殻電子を励起し、オージェ効果により価電子帯にホールがドーピングされた状態ができ、また直接価電子帯の電子を大量に励起することにより、第一原理計算が示すとおり、グラファイトからダイヤモンドに自然に移行すると考えられ、地球物理学や地質学で知られていた現象や事実についても合理的に説明することができる。

2. ナノ領域現象の解明のための第一原理計算の発展・拡張

以上の応用を考える場合、従来のバルクの計算方法がそのまま使えない状況がでてく

る。ナノ構造物質を研究する際、方法論の研究は必須である。

現在の第一原理計算の原理、密度汎関数理論の対象は基底状態に限られるが、実験的に多くの現象は励起状態に関係する。そのため近年、この密度汎関数理論の励起状態、時間発展、外場に対する拡張が盛んに行われてきている。これらの拡張はナノ構造物質の理解、設計では不可欠の事項であり、その重要性に鑑み、その方法論の発展を行う。

理論・方法論の発展の方向性は以下のものがある。

有限温度、有限圧力における分子動力学シミュレーション

励起状態計算

線形応答理論の密度汎関数理論への応用およびその電子格子間相互作用への応用

時間依存のある密度汎関数理論

時間依存を持つ励起状態シミュレーションにおいてはNEC 宮本グループと共同研究を行っている。

3. 半導体ナノスピントロニクスのマテリアル・デバイスデザイン

第一原理計算に基づいて、3d 遷移金属や希土類金属を希薄にドーピングしたIII-V族化合物半導体(GaN, GaAs)やII-VI族化合物半導体(ZnO, ZnSe)の反強磁性的スピングラス絶縁体相からハーフメタリック強磁性相への転移について、3d 遷移金属磁性不純物の原子番号依存性および濃度依存性、p 型および n 型キャリアー濃度依存性、強磁性転移温度、不純物の入る結晶学的位置に関する依存性などを定量的に予測し、これらのメカニズムと一般則を解明した。III-V族半導体やII-VI族化合物半導体をベースとした希薄磁性半導体のスピングラス状態及び強磁性ハーフメタル状態の安定化エネルギーと強磁性転移温度(T_c)に関する遷移金属不純物濃度依存性、およびキャリアー濃度依存性に関する物性予測を行った。(図2、図3)

最近になり、これらの新機能物質は、MBE などの非平衡結晶成長法により実際に合成され、(Ga, Cr)N, (Ga, Mn)N, (Ga, Gd)N, (Zn, V)O, (Zn, Co)O, (Zn, FeCo)O, (Zn, Cr)Te, (Zn, Cr)Se などでの高い強磁性転移温度を持つものがデザインに基づいて実際に実験的に合成された。このような第一原理計算による、実験データを一切用いない理論計算に基づくマテリアル・データベースを基に、電子やホール濃度を制御し、また、円偏光励起によるスピン・フリップによりスピングラス絶縁体相から強磁性ハーフメタル状態への転移を利用した、ちょうど人間の脳のような働きをする脳型メモリや脳型演算装置、シリコン CMOS-FET を必要としない超高速磁性半導体 MRAM, および p 型・n 型透明強磁性半導体を用いた完全円偏光スピントロニクス半導体 CW レーザ等についてのマテリアル・デバイスデザインをおこなった。さらに、希土類金属を含む透明強磁性半導体のマテリアルデザインも行った。

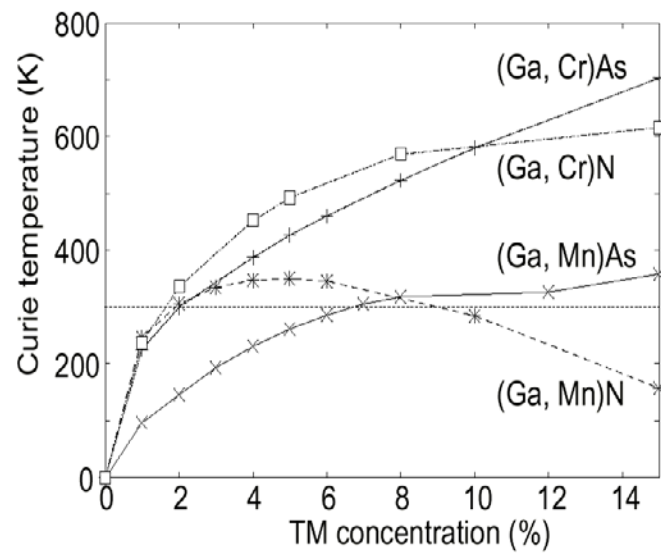


図 2 : III-V 族ベース化合物磁性半導体の強磁性転移温度と遷移金属不純物濃度依存性

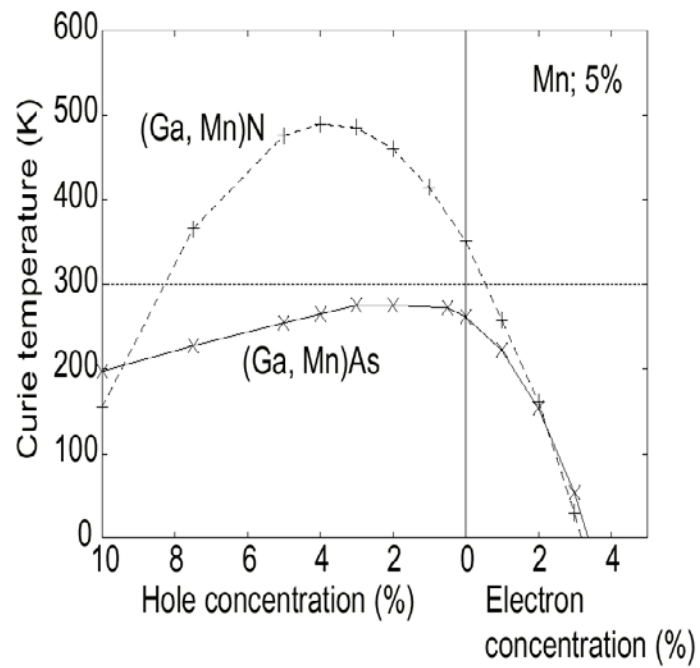


図 3 : III-V 族ベース化合物磁性半導体の強磁性転移温度のドナーおよびアクセプター濃度依存性

論文

1. *Ab initio* study on the magnetism in ZnO-, ZnS-, ZnSe-, and ZnTe-based diluted magnetic semiconductors. [Invited Paper]
K. Sato and H. Katayama-Yoshida
Phys. stat. sol. (b) 229 (2002) 673-680.
2. *Ab initio* study of donor-hydrogen complexes for low resistive n-type diamond semiconductor
T. Nishimatsu, H. Katayama-Yoshida and N. Orita
Jpn.J.Appl.Phys.Vol.41. Part 1, No.4A. (2002) 1952 –1962.
3. 第一原理計算による物質設計
吉田博、佐藤和則
化学工業 Vol.53、No.4 (2002) 47-53.
4. First principles materials design for semiconductor spintronics. [Invited Paper]
K. Sato and H. Katayama-Yoshida
Semicond. Sci. Technol. 17 (2002) 367-376.
(Special issues: Semiconductor spintronics, Guest editor: H. Ohno)
5. Codoping Methods For Wide Bandgap Semiconductors: Application to the Low-resistive n-type Diamond [Invited Paper]
H. Katayama-Yoshida, T. Nishimatsu and N. Orita
CTMC 2002 (10th International Ceramics Congress and 3rd Forum on New Materials), Florence, July 14-18, 2002) Invited Paper
6. Group Theoretical Classification of Broken Symmetry States of Doubly Degenerate Orbital Systems with Cubic Structure
A. Masago, H. Katayama-Yoshida and N. Suzuki
J. phys. Soc. Jpn. 71 (2002) Suppl. pp. 184-186.
7. Materials design for new functional semiconductors by *ab initio* electronic structure calculation –Prediction vs. experiment–
H. Katayama-Yoshida, K. Sato and T. Yamamoto
JSAP International 6 (2002) 20-27.
8. *Ab initio* Design on the Diamond Synthesis Method by Core Excitation
H. Nakayama and H. Katayama-Yoshida
Jpn. J. Appl. Phys. 41 (2002) L817-L819.
9. Materials Design by *Ab Initio* Electronic Structure Calculation
H. Katayama-Yoshida
Materials Integration 15 (2002) 28-40. Special Issue for Inter Material on Materials Integration (1).
10. 第一原理分子動力学法 (Osaka2000) の開発と応用
白井光雲、吉田博

固体物理 37 卷 (2002) pp.521-525.

11. Mechanism of suppression of light-induced degradation in amorphous silicon by CN treatment, Y. Yamazaki, K. Shirai and H. Katayama –Yoshida, 26th Int. Conf. Phys. Semicond., 2002.

国際会議

1. Co-doping method for wide bandgap semiconductors
H. Katayama-Yoshida, T. Nishimatsu, N. Orita
International Conference on Modern Materials & Technologies (CIMTEC2002)
July 14-18, 2002 (Florence International Congress Center, Italy)
2. ★ Curie Temperatures of III-V diluted magnetic semiconductors calculated from first-principles in mean field approximation
K. Sato, H. Katayama-Yoshida, P. H. Dederichs
2nd International Conference on Physics and Application of Spin Related Phenomena
In Semiconductors (PASPS2002)
Universität Würzburg, Germany (July 23-26, 2002)
3. The electronic structure of beta-boron and the pressure dependence
K. Shirai, A. Masago, H. Katayama-Yoshida
26th International Conference on the Physics of Semiconductors, July 29-August 2, 2002 (Edinburgh International Conference Center, UK)
4. A mechanism of suppression of light-induced degradation of amorphous silicon by CN treatment
H. Katayama-Yoshida
26th International Conference on the Physics of Semiconductors, July 29-August 2, 2002 (Edinburgh International Conference Center, UK)
5. Pressure induced phase transitions of BNs
K. Shirai, H. Fujita, H. Katayama-Yoshida
The 10th International Conference on High Pressure Semiconductor Physics (HPSP) :
August 5-8, 2002 (University of Surrey, Guildford, UK)
6. ★ Materials design for semiconductor spintronics by *ab initio* electronic structure calculation
H. Katayama-Yoshida and K. Sato
International Symposium on Advanced Magnetic Materials (ISAMM'02)
: October 2-4, 2002 (Halong Bay, Vietnam)
7. Materials Design of New-Class of Diluted Magnetic Semiconductors by *ab initio* Electronic Structure Calculation: 4f Rare Earth Metal Doping and 3d Transition Metal Doping
H. Katayama-Yoshida

COMPUTATIONAL MAGNETOELECTRONICS 2nd Annual Meeting and Mid-Term Review: October 5-9, 2002 (CNRS, Oleron Island)

8. Materials Design of Ferromagnetic II-VI Semiconductors: Prediction vs. Experiment
H. Katayama-Yoshida Third International Workshop on Advances in Growth and Characterization of II-VI Semiconductors : October 9-11, 2002 (Würzburg, Germany)
9. ★Spin and Charge Control Methods of Ternary II-VI and III-V Magnetic Semiconductors for Spintronics : Theory vs. Experiment
H. Katayama-Yoshida, K. Sato
13th International Conference on Ternary and Multinary Compounds, October 14-18, 2002 (Ecole Nationale Supérieure de Chimie de Paris)
10. Materials Design for the Fabrication of Transparent Conducting Oxides of p-type Proskite-SrTiO₃ and Delafosites-CuAlO₂ by Super-cell FLAPW Method
K. Betsuyaku, T. Koyanagi, H. Harima, A. Yanase, H. Katayama-Yoshida
13th International Conference on Ternary and Multinary Compounds, October 14-18, 2002
11. Materials Design of Transparent and Half-metallic Ferromagnet in 3d transition-Metal Digital-Doped ZnS by Super-cell FLAPW Method” (Poster)
M. Santou, H. Harima, A. Yanase, and H. Katayama-Yoshida
13th International Conference on Ternary and Multinary Compounds, October 14-18, 2002
12. *Ab Initio* Materials Design for Semiconductor Spintronics: Prediction vs. Experiment
H. Katayama-Yoshida and K. Sato
The 5th Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations : October 21-23, 2002 (Seoul National University, Seoul, Korea)

国内会議

1. ホール励起下におけるグラファイト構造の安定性”
中山博幸, 吉田博
2002 年秋の日本物理学会 : 2002 年 9 月 6 日～9 日 (中部大学)
2. 第一原理分子動力学法による BN の構造相転移
藤田洋士, 白井光雲, 吉田博
2002 年秋の日本物理学会 : 2002 年 9 月 6 日～9 日 (中部大学)
3. 高圧下における β ホウ素の第一原理計算
真砂啓, 白井光雲, 吉田博
2002 年秋の日本物理学会 : 2002 年 9 月 6 日～9 日 (中部大学)
4. 第一原理計算による強磁性半導体 (Ga,Cr) N のキャリア濃度依存性
荒木和也, 佐藤和則, 吉田博
2002 年秋の日本物理学会 : 2002 年 9 月 6 日～9 日 (中部大学)
5. 第一原理計算による IV 族半導体中の遷移金属不純物の研究

荒木和也，吉田博

2002 年秋の日本物理学会：2002 年 9 月 6 日～9 日（中部大学）

6. 希土類原子ドーピングによる希薄磁性半導体のマテリアルデザイン

荒木和也，吉田博

2002 年秋の日本物理学会：2002 年 9 月 6 日～9 日（中部大学）

7. 放射光内殻励起による新物質創成の第一原理マテリアルデザイン

吉田博

2002 年秋の日本物理学会：2002 年 9 月 6 日～9 日（中部大学）

8. 第一原理計算によるワイドギャップ半導体の低抵抗 p 型ドーピング制御法とスピン制御法

吉田博

2002 年秋の応用物理学会：2002 年 9 月 24 日～27 日（新潟大学）

9. CN 処理によるアモルファスシリコンの構造

白井光雲，山崎勇治，吉田博

2002 年秋の応用物理学会：2002 年 9 月 24 日～27 日（新潟大学）

10. 第一原理計算による遷移金属ドーピング IV 族 (Ge,Si,C) 磁性半導体の研究

荒木和也，佐藤和則，吉田博

2002 年秋の応用物理学会：2002 年 9 月 24 日～27 日（新潟大学）

11. 第一原理計算による強磁性半導体(Ga,Cr)N のキャリア濃度依存性

荒木和也，佐藤和則，吉田博

2002 年秋の応用物理学会：2002 年 9 月 24 日～27 日（新潟大学）

12. 第一原理計算による希土類金属ドーピング強磁性 GaN の物質設計

橋本政彦，荒木和也，佐藤和則，周逸凱，朝日一，吉田博

2002 年秋の応用物理学会：2002 年 9 月 24 日～27 日（新潟大学）

13. 希薄磁性半導体のスピングラス・強磁性ハーフメタル転移を用いた脳型メモリ・脳型演算装置～第一原理計算によるマテリアル・デバイスデザイン～

吉田博，佐藤和則

物性研短期研究会「フラストレート系の磁性と新しい物性」

2002 年 6 月 19 日～21 日（東京大学物性研究所）

14. 格子欠陥の第一原理計算とマテリアルデザイン“

吉田博

第 12 回格子欠陥フォーラム「21 世紀の格子欠陥研究に残された課題」

2002 年 9 月 9 日～11 日（KKR 下呂しらさぎ）

15. Magnetism in 4d transition metal doped ZnO

M. Seike, K. Sato, H. Katayama-Yoshida

第 8 回半導体スピン工学の基礎と応用研究会(PASPS-8)

2002 年 12 月 19 日～20 日（仙台国際センター）

16. Electronic structure and Curie temperatures of diluted magnetic semiconductors

K. Sato, H. Katayama-Yoshida, P. H. Dederichs

第 8 回半導体スピン工学の基礎と応用研究会(PASPS-8)

2002 年 12 月 19 日～20 日（仙台国際センター）

17. Materials design for rare-earth-metals doped ferromagnetic GaN and AlN from first-principles

M. Hashimoto, K. Araki, K. Sato, H. Asahi, H. Katayama-Yoshida

第 8 回半導体スピン工学の基礎と応用研究会(PASPS-8)

2002 年 12 月 19 日～20 日（仙台国際センター）

18. Materials design of group IV semiconductor-based diluted magnetic semiconductors

K. Araki, K. Sato, H. Katayama-Yoshida

第 8 回半導体スピン工学の基礎と応用研究会(PASPS-8)

2002 年 12 月 19 日～20 日（仙台国際センター）

19. Mechanism of enhanced ferromagnetism in delta-doped (Ga,Mn)As studied by ab initio calculation

Y. Ohishi, K. Sato, H. Katayama-Yoshida

第 8 回半導体スピン工学の基礎と応用研究会(PASPS-8)

2002 年 12 月 19 日～20 日（仙台国際センター）

科研費・助成金等

1. 平成 14 年度科学研究費補助金 基盤研究(B)(2) 研究代表者：吉田 博
研究課題名：第一原理計算による遷移金属 ZnO 系透明強磁性体の物質設計
配分額：1,300,000 円
2. 平成 14 年度科学研究費補助金 基盤研究 (C) (2)研究代表者：白井 光雲
研究課題名：高い熱伝導度を目指したフォノン間相互作用の第一原理計算
配分額：600,000 円
3. 平成 14 年度科学研究費補助金 基盤研究(A)(1) 研究分担者：吉田 博
研究課題名：交互供給コーディング法による高濃度 p 型窒化物半導体薄膜結晶の制作とその応用
配分額：800,000 円
4. 平成 14 年度科学技術振興調整費 「ナノスピントロニクスデザインと創製」
研究分担者：吉田 博
研究課題名：透明磁性半導体ベースのデバイスデザインに関する研究
配分額：23,507,000 円
5. 平成 14 年度 NEDO ナノ機能合成技術プロジェクト
研究課題名：ナノ構造物性シミュレーション技術の開発

研究分担者：吉田 博

6. 平成14年度 科学技術振興事業団計算科学技術活用型特定研究開発推進事業（A C T－J S T）

研究課題名：計算機ナノマテリアル・デザイン手法の開発

研究分担者:吉田 博

7. 平成 14 年度 科学技術振興事業団戦略的基礎研究（C R E S T）

研究課題名:新規化学結合を用いるシリコン薄膜太陽電池

研究分担者：吉田 博

ナノバイオ知能システム分野



溝口 理一郎（みぞぐち りいちょう）

1972 年大阪大学基礎工学部電気工学科卒業。1977 年同大学院基礎工学研究科博士課程修了。同年、大阪電気通信大学工学部講師、1978 年大阪大学産業科学研究所助手、1987 年同研究所助教授、1990 年同教授。現在に至る。工学博士。パターン認識関数の学習、クラスタ解析、音声の認識・理解、エキスパートシステム、知的 CAI システム、オントロジー工学の研究に従事。1985 年 Pattern Recognition Society 論文賞、1988 年電子情報通信学会論文賞、1996 年人工知能学会創立 10 周年記念論文賞、1999 年 ICCE99 Best paper Award 受賞。人工知能学会理事、電子情報通信学会論文誌編集委員、教育システム情報学会理事、同学会誌編集委員長を歴任。情報処理学会、日本認知科学会、Intl. AI in Education (IAIED) Soc., AAAI, IEEE, APC of AACE 各会員。現在、IAIED Soc. 及び APC of AACE の会長。



古崎 晃司（こざき こうじ）

1997 年大阪大学工学部電子工学科卒業。2002 年同大学院工学研究科博士後期課程修了。同年、化学工学会嘱託研究員、同年 12 月大阪大学産業科学研究所附属産業化学ナノテクノロジーセンター助手、現在に至る。博士（工学）。ナノテクノロジーオントロジーの開発、オントロジー構築・利用環境の設計・開発に関する研究に従事。人工知能学会、情報処理学会会員。

研究概要

オントロジー工学によるナノテク知識の構造化

研究目的

ナノテクノロジーに関する研究は多種多様な領域にまたがり、かつ、これらの領域は互いに密接に絡み合っている。このため、知識を異なる領域間で共有することができれば、互いの領域のさらなる発展の促進に貢献することが期待される。このような背景の下、NEDO による「材料技術の知識の構造化」プロジェクトが行われている。

知識の構造化プロジェクトは、材料種を限定しない領域に共通する材料知識の基盤となるプラットフォームの開発を目指し、データベース、モデリング・推論エンジン、電子教科書などの構築・構造化を進めている。しかし、利用者の要求に十分応えるには、利用者とプラットフォームを「概念レベル」でつなぐインタフェースが不可欠であり、その両者をつなぐ「糊」の働きを果たすのが「オントロジー」である。オントロジーは各領域に共通であるべきナノテク世界を構成する基盤概念を抽出し、構造化する。それと同時に、機能概念を組織化して、一般社会が要求する材料の機能概念を整理して、ナノテク基盤概念との関係を確立する。このことによって、利用者とナノテク材料知識が結合される（図1）。

研究内容

1) ナノテクオントロジーの開発

化学工学の領域を含む複数の領域を対象にして、全体に共通する基盤概念を構造化するために必要な共通オントロジーを開発する。オントロジーを開発しながらナノテクオントロジーの特殊性を把握して、オントロジー構築の基礎を固める。

データの収集と分析

教科書や関連論文を参照しつつ、基本的な用語を抽出した。それを階層構造に組織化したものを図2に示す。このような階層化の基板になっているいくつかの基本的な考え方の概要を以下に示す。

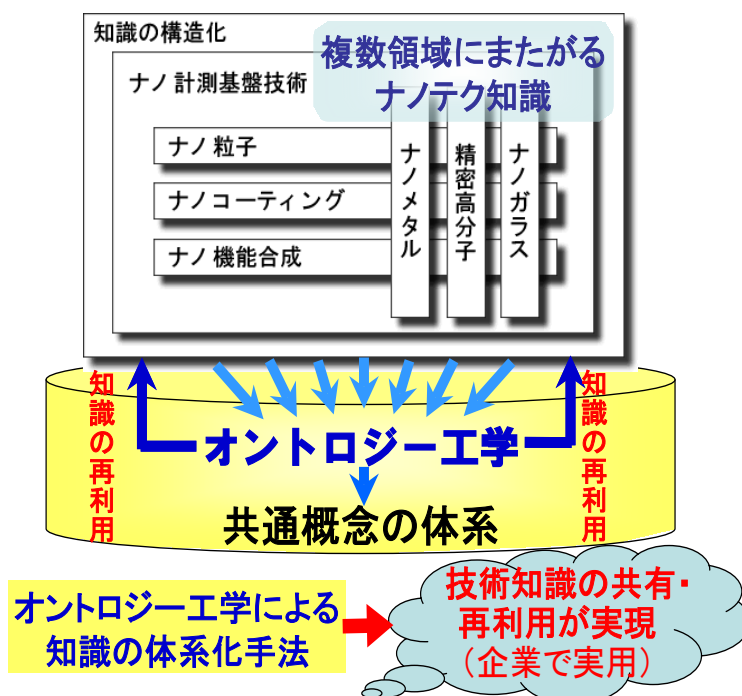


図1 オントロジー工学によるナノテク知識の構造化

(a) 4つのトップレベル概念

ー トップレベル概念として、機能・物性、構造概念、物質、合成(プロセス)の4つの概念を認定した。

(b) 形状と構造の差別化

ー 形状: それ以上要素に分解できないものが持つ姿・形 (例: 球, 直方体など)

ー 構造: 要素間の位相的関係を表す抽象概念。

(c) 機能と特性

ー 物性・特性: あくまでもある対象物の属性であり客観的。

ー 機能: 目的指向で, ある特定の状況における働きを概念化したもの。

ー 現象・効果: ある物性を発現する根拠を与える。

-機能・特性

- 物性
- 現象・効果(≒方式)
- 機能語彙
 - 発光する
 - 通す

-構造概念

- 構造属性
- 形状
- 構造

-物質

- (ナノ物質)
 - フラレン
 - ナノチューブ
- (バルク物質)

-合成法概念

- 合成法(方式)
- (合成法に用いる)機能

図2 上位の概念の構成

予備的オントロジーの試作

収集した概念を対象にして, プロセス, 構造, 機能, 物質の4つのカテゴリーに分類し, 適切な中間概念を導入しつつ, 予備的なオントロジーを構築した. 暫定的なオントロジーの一部を図3に示す. 図中, 左のペインは *is-a* 階層を, 中央の大きなペインは *is-a* 階層に含まれる概念とそれらの関係の詳細な情報を表示している.

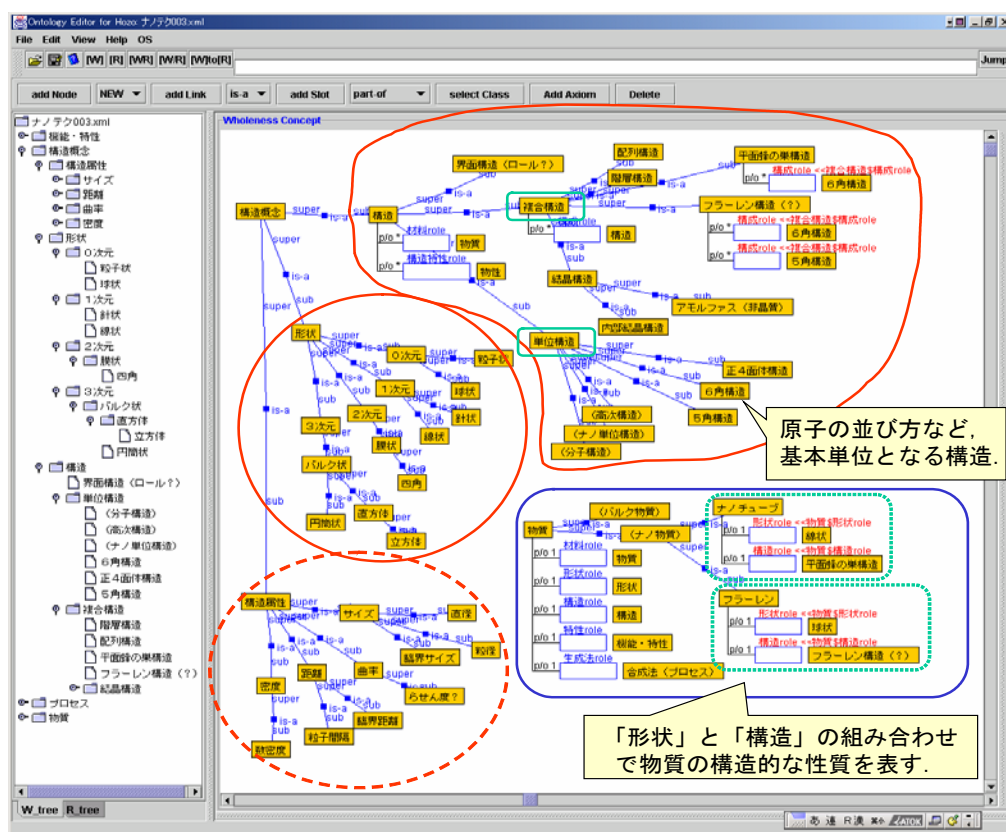


図3 構造概念オントロジー (ver0.1)

2) 方式知識に基づくナノテク材料開発発想支援システム

ナノテク材料への要求機能を分析して、要求レベルから見た機能のオントロジーを開発し、要求機能と基本機能とを接続し、材料からデバイスまでをつなぐことを目指している。更に、構造化された知識を用いたナノテク材料開発発想支援システムの設計・開発を行っている（図4）。

機能分解木

一般にある機能は、複数の部分機能を実現することによって達成される。例えば、白熱灯が「発光する」機能は、「フィラメントに電流を流す」「抵抗が発熱する」「発光する」という部分機能によって達成される。機能達成には、対象の構造や物理原理などの背景（この例では材料が持つ「輻射」という性質）があり、このような機能達成方法の背景を概念化したものを「方式」と呼ぶ。そして、ある機能（全体機能）を分析し、ある方式に基づいて部分機能の列に分解することを「機能分解」と呼び、これらの関係を木構造で図示したものを「機能分解木」と呼ばれる（図5）。部分機能はさらに機能分解することが可能で、機能分解木は複数の階層を持つ木構造となり、木構造の葉に近い部分により基本的な機能が現れる。このような機能分解をユーザーの要求機能に対して繰り返し適用することで、要求機能から材料設計の領域となる基本機能まで繋げることが出来る。

方式代替による発想支援

一つの機能を達成する方式は複数存在し、ある方式を新しい方式に代替することで発想がなされる。例えば、上述の「発光する」という機能を達成する為の方式として白熱灯で用いられている「抵抗発熱方式」の代わりに、放電により放出された熱電子を水素原子に衝突させることで発光させる「放電発光方式」が、蛍光灯に用いられている（※ここで放出される光は紫外線の為、実際の蛍光灯では紫外線を可視光に変換するという機能が必要になるが、ここでは説明を簡単にする為に詳細な機能分解木は省略する）。このとき、様々な方式をデータベースとして蓄えておき、必要に応じてユーザーに提示することで、発想支援を行うことが出来る。その際に重要となるのは、

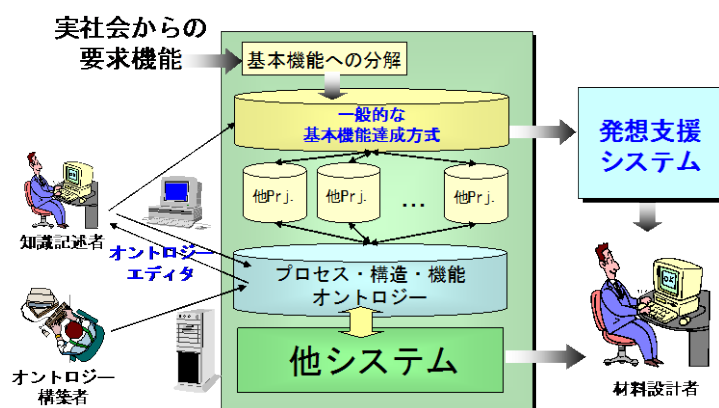


図4 発想支援システムの概要

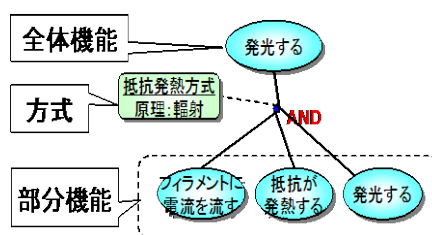


図5 機能分解木

機能や方式を領域に依存しない形で概念化することである。そうすることで、ある領域ではこれまで用いられていなかった方式を、他の領域の方式において適用し今までに無い画期的な発想がなされることが期待される。このような発想支援システムのプロトタイプを実装した（図6）。

設計思考過程の明示化

設計者の思考過程は、ある機能を達成する為にどの方式を用いるかという選択の繰り返しと考えることができる。よって機能分解木には、設計者の設計意図が、どの方式を選択したかという形で明示される。先ほどの白熱灯と蛍光灯の例では、白熱灯の「抵抗発熱方式」では、熱エネルギーを光エネルギーに変換しているため効率が悪いから、「放電発光方式」という“より効率の良い方式に代替しよう”という設計意図が理解できる。このような思考過程は、複雑なシステムになるほど暗黙的となり他者と共有することは難しい。しかし、機能分解木を用いることで、過去の成功事例や失敗事例において「なぜ特定の方式を選択したのか」という理由を設計意図として明示することが可能となる。さらに、何か不具合が生じたときには、「どの方式が原因か」を分析することで、解決法を効率的に提案することが出来る。また、機能分解木において選択されている方式の組み合わせを比較することで、複数の事例間の相違点が明示化される。このような利点は、特許情報の記述形式として用いると、過去の特許事例の分析や、新しい特許を申請する際の既存方法との差別化に効果を発揮する。

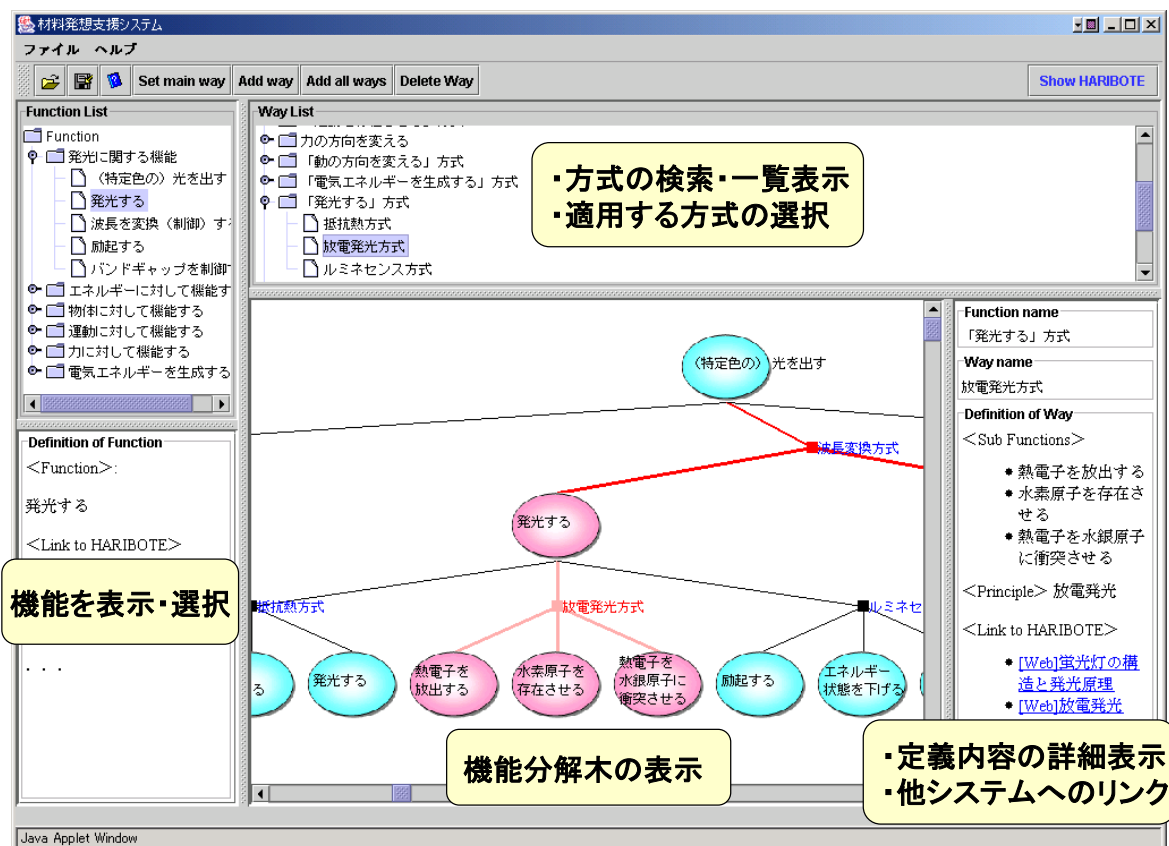


図 6 発想支援システムの画面例

3) オントロジー構築・利用環境の開発

オントロジー工学に基づくナノテク知識の構造化を進める為の基盤技術として、オントロジーの構築から利用に至る一連の過程を支援する計算機システム「**法造**」の開発を進めてきた。「**法造**」とはオントロジー (= “法”) を構築する (= “造”) 為の計算機環境で、以下の3つのシステムから構成される (図7)。

オントロジーエディタ

オントロジーの基礎理論に関する考察に基づいて設計がなされた記述環境を提供し、オントロジーをグラフィカルに表示・編集する機能を持つ。概念間の関係はノード・リンクを用いたグラフ状に表現され、ユーザーはマウス操作で容易にオントロジーの表示・編集を行うことができる。この際、形式的な整合性の確認やオントロジーに基づくモデルの記述機能はオントロジーサーバーとネットワークを介した通信を行いながら実行される。

概念工房

オントロジー構築方法 AFM (Activity-First Method) に基づき、自然言語で書かれたドキュメントからオントロジーで記述される概念の抽出や組織化を支援するシステムで、ガイドラインに従いオントロジーの全体像を構築することができる。

オントロジーサーバー

オントロジーやモデルを管理するために必要な様々な機能を持ち、他のシステムとはネットワークを介して接続されている。構築されたオントロジーやモデルは、ネットワーク経由の参照や、LISP, XML など汎用形式での出力・組込みを通して、外部の知識システムから利用される。

先に述べた、ナノテクオントロジーや、方式知識に基づく発想支援システムは、「法造」を利用して開発を進めている。

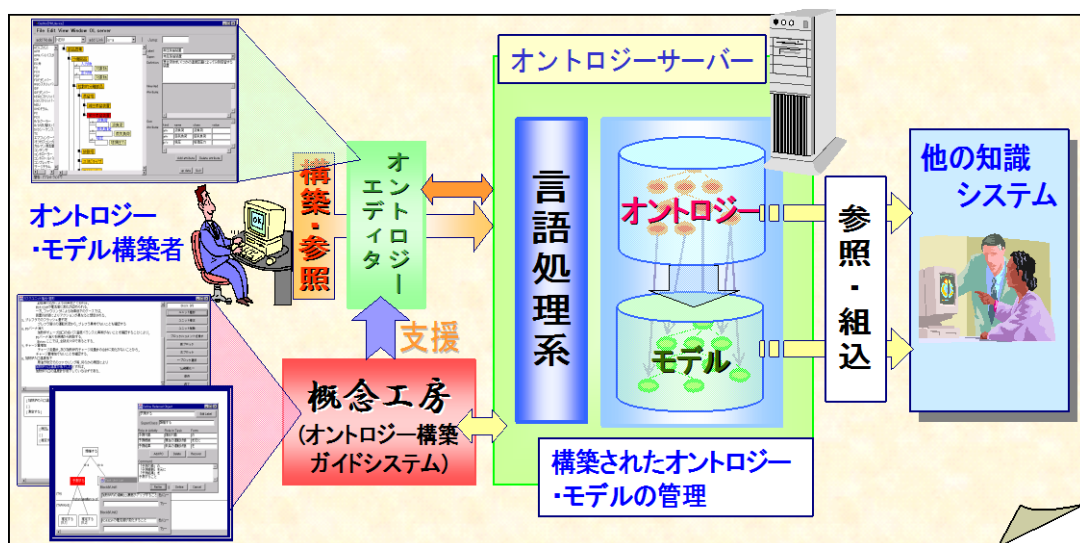


図7 オントロジー構築・利用環境「法造」

論文

1. 「ロール」および「関係」に関する基礎的考察に基づくオントロジー記述環境の開発
古崎晃司，來村徳信，池田満，溝口理一郎
人工知能学会論文誌, Vol.17, No.3, pp.196-208, 2002
2. オントロジー構築・利用環境「法造」の開発と利用－実規模プラントオントロジーを例として－
古崎晃司，來村徳信，佐野年伸，本松慎一郎，石川誠一，溝口理一郎
人工知能学会論文誌, Vol.17, No.4, pp.407-419, 2002
3. タスク・ドメインロールに基づくオントロジー構築ガイドシステムの設計と開発－石油精製プラントを例として－
石川誠一，久保成毅，古崎晃司，來村徳信，溝口理一郎
人工知能学会論文誌, Vol.17, No.5, pp.585-597, 2002

国際会議

1. Hozo: An Environment for Building/Using Ontologies Based on a Fundamental Consideration of “Role” and “Relationship”
Kouji Kozaki, Yoshinobu Kitamura, Mitsuru Ikeda, and Riichiro Mizoguchi
Proc. of the 13th International Conference Knowledge Engineering and Knowledge Management (EKAW2002), pp.213-218, Sigüenza, Spain, October 1-4, 2002
2. Systematization of Nanotechnology Knowledge Through Ontology Engineering
Riichiro Mizoguchi and Kouji Kozaki
International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2002 (ISSIN-2002) 12-13 December, 2002, Osaka, Japan

国内会議

1. 古崎 晃司，來村 徳信，溝口 理一郎
オントロジー構築・利用環境「法造」の Semantic Web システム開発に向けた拡張
第 57 回人工知能学会知識ベースシステム研究会（大阪）2002 年 9 月 10 日
2. 溝口理一郎，古崎晃司
ナノテクノロジーオントロジーを用いた発想支援システムの設計・開発
第 2 回ナノテクノロジー・材料技術シンポジウム（東京）2002 年 10 月 23 日

受賞

1. 技術開発賞，関西経営システム協会(KIMS)
「技術の体系化と共有化（機能分解木）」2002 年 12 月 27 日

溝口理一郎

特許

1. データ検索システム及びデータ検索装置,
篠木秀次, 寺尾俊彦, 柏瀬雅一, 布瀬雅義, 溝口理一郎, 來村徳信
出願番号: 特願 2002-382529, 2002.

学会活動、共同研究

溝口 理一郎

共同研究:

1. NEDO 材料技術の知識の構造化プロジェクト, 研究項目③「知識基盤プラットフォームの開発」, ナノテクオントロジーの研究とオントロジーサーバーの開発
社団法人化学工学会

国際共同研究:

1. JSPS 特別研究員 Wilfred van der Vegte, デルフト工科大学
4月2日から6月1日
2. Lora Arroyo, Technical University Eindhoven
11月8日～30日 (科研基盤 A で招聘)

学会活動:

- ・人工知能学会理事
- ・人工知能学会編集員長
- ・セマンティックウェブとオントロジー研究会 (人工知能学会) 主査
- ・教育システム情報学会理事
- ・IAIED Soc.会長
- ・APC of AACE 会長.

国際会議主催:

- ・ 8th International Conference on Computers in Education, Auckland, New Zealand. 会議議長

古崎 晃司

所属学会: 人工知能学会, 情報処理学会

科研費・助成金等

1. 溝口理一郎
科学研究費補助金基盤 B 代表
オントロジーに基づく訓練システムのための知的オーサリングツールの開発

2. 溝口理一郎
科学研究費補助金特定 代表
機能オントロジーに基づく設計・製造知識コンテンツ管理と活用
3. 溝口理一郎
科学研究費補助金特定 代表
オントロジー工学に基づく知識体系化の方法論
4. 溝口理一郎
科学研究費補助金基盤 A 代表
Theory-Aware オーサリングワークベンチの開発
5. 共同研究費
社団法人化学工学会
材料技術の知識の構造化プロジェクトーナノテクオントロジーの研究とオントロジーサーバーの開発ー

ナノテクノロジートランスファー分野

顧 鴻壽(コウ ホーンショウ)

1979年 国立高雄工業専科学校 化学行程学科
5年制卒業

1984年 国立台湾技術学院 化学行程技術学部
2年制卒業

1990年 国立交通大学 機械専攻研究所 修士課
程修了

1999年 国立交通大学 電子専攻研究所 博士課程 修了

1985年 工業技術研究員 助手研究員 副研究員・エンジニア計画経理、2000年日本半
導体振動学会半導体研究所・非常勤研究員、2000年国立雲林科技大学・化工技術学部
助教授兼任、2002年国立聯合技術学院・電子工程学部 助教授

研究テーマは「分子スケール電子デバイスの作製と評価」

事務補佐員

池田 恵 (いけだ めぐみ)



【略歴】

1975 年 京都市生まれ
1998 年 帯広畜産大学 畜産学部 卒業
1999 年 産業科学研究所 川合研究室 秘書
2002 年 12 月 同研究所 田畑研究室 秘書

【趣味】

旅行、スポーツ、温泉、散歩など

【一言】

川合研に秘書として来てから 4 年が過ぎ、川合先生、田畑先生、藤林さんを始め、その他、職員や学生の方々には大変お世話になり、ありがとうございました。

秘書 5 年目に入った今年からは、田畑研究室の秘書として、一からがんばりたいと思いますので、これからも宜しくお願いします。

浦山奈緒美 (うらやまなおみ)



【略歴】

1974 年 兵庫県宝塚市生まれ
1998 年 大阪教育大学教養学科芸術専攻卒業
2000 年 7 月 高次インターマテリアル研究
センター 菅沼研究室 秘書

【趣味】

旅行、音楽鑑賞、自然散策

【一言】 年末の大掃除で、大迷惑をおかけしながら窓際席をゲットしました。入口から見えなくなってしまいましたが、隠れているわけではありませんので、どうぞお気軽に？お声がけください。

私事ながら昨秋結婚いたしました。生活は大きく変わりましたが、菅沼先生をはじめ研究室の皆様、秘書の方々のおかげで以前と変わらず楽しく勤めさせていただいております。今後ともよろしく願ひいたします。

名前：松島 愛（まつしま あい）

略歴：1975年 奈良県橿原市生まれ

1999年 武庫川女子大学文学部初等教育学科卒業

1999年 放射線実験所 秘書

趣味：スポーツ（スノーボード、バレーボール・・・）、お菓子作り

一言： 放射線実験所から、新しくナノテクノロジーセンター加速器量子ビーム実験室となり、色々と不安もありますが、少しでも先生方や学生さんたちのお手伝いができたら・・・と思っています。よろしくお願い致します。



名前：末永 海（すえなが うみ）

略歴：1978年 京都府京都市生まれ

2001年 宇都宮大学教育学部 養護学校教員養成課程 中学部 卒業

2002年 大阪教育大学 特殊教育特別専攻科 言語障害教育専攻 修了

2002年6月 産業科学ナノテクノロジーセンター秘書

一言： 社会人として初めて働いた場所が、このナノテクセンターということもあり、先生方、先輩の秘書の方には様々なことを教えていただきました。今後も皆様のお役に立てる様、自分なりに努力していこうと思っています。よろしくお願い致します。



編集後記

本報告書を編集するにあたり、フォーマットの統一などの点で苦劳しましたが、他分野の研究内容を知ることができ、良い経験となりました。

今回は新センター報告書第一号ということで、不足な点もあろうかと思いますが、今後さらに充実していけると期待しております。

原稿をご準備してくださった皆様、本当にありがとうございました。

(岡島，誉田，奥)

大阪大学産業科学研究所

産業科学ナノテクノロジーセンター報告書

Vol. 1 (2002年)

発行元 大阪大学産業科学研究所
産業科学ナノテクノロジーセンター

TEL 06-6879-8518 FAX 06-6879-8518

URL: <http://www.sanken.osaka-u.ac.jp/labs/nano/index.html>

発行日 平成 15 年 3 月 31 日

印刷 セイエイ印刷 (株)

■発行日 2003年 3月

■事務連絡先

大阪大学 産業科学研究所 産業科学ナノテクノロジーセンター
Nanoscience and Nanotechnology Center , ISIR , Osaka University

〒567-0047 大阪府茨木市美穂ヶ丘8-1 TEL: 06-6879-8518 FAX: 06-6879-8518

8-1 Mihogaoka, Ibaraki, Osaka 567-0047, Japan TEL: +81-6-6879-8518

Web: <http://www.sanken.osaka-u.ac.jp/labs/nano/index.html>