

平成15年度 年次報告書

—活動状況と課題—

大阪大学産業科学研究所

目 次

1. はじめに	1
2. 研究活動	
1) 組織	3
2) 運営	9
3) 研究費	10
4) 国際研究プロジェクト	12
5) 学術講演会・研究集会	12
6) 広報活動	17
7) 受賞状況	18
3. 教育への関与	
1) 大学院研究科・専攻担当	18
2) 大学院担当授業一覧	20
3) 大学院生の受入数	23
4) 学部、共通教育担当授業一覧	24
4. 国際交流	
1) 活動状況	24
2) 国外との研究者往来	25
5. 産業界との交流	26
6. まとめ（課題と展望）	27
[附 1] 各研究部門の組織と活動	33
[附 2] 各附属研究施設の組織と活動	189
[附 3] 共通施設、技術室、事務部の組織と活動	269

本年次報告書は、平成 15 年度（平成 15 年（2003 年）4 月 1 日から平成 16 年（2004 年）3 月 31 日まで）を対象としたものである。

なお、発表論文リストについては平成 15 年（2003 年）中に発行されたもののみを集めた。

1. はじめに

大阪大学産業科学研究所は関西の産業界の強い期待と要望をもとに、昭和14年に誕生した。設置目的を「自然科学に関する特殊事項で産業に必要なものの基礎的学理とその応用の研究」として、3部門からスタートした。関係各位の御支援により、研究所は発展を続け、平成6年度までには、電子・情報科学研究部、金属無機材料研究部、生物・有機化学研究部、放射線科学研究部の4つの研究部を構成する全21研究部門とこれに加え、放射線実験所、材料解析センター、高機能極限材料研究センターの3附属施設を有する総合理工学研究所となった。

産業の発展と学問の進展に適切に対応し、柔軟で総合性をもった組織とするため、平成7年4月には研究所の改組を行い、設置目的を「産業に必要となる先端的な事項で材料、情報及び生体に関するものの総合研究」と変更した。一見しただけでは研究所の内容がよくわからないと批判されてきた点を改めて、研究対象を材料、情報、生体と特定し、総合的研究（あるいは領域融合型研究）を目的とした研究所へと改組した。すなわち改組によって、各研究分野が独立に研究を進めるばかりでなく、研究分野間の共同研究を進めることを重視しているという姿勢を明確にした。4研究部を構成する21研究部門を新たに6大研究部門・24研究分野とし、高機能極限材料研究センターを廃止し、高次インターマテリアル研究センターを新設して教授1名を配し、25名の教授陣となった。

平成14年度からは放射線実験所と高次インターマテリアル研究センターを廃止転換した新しい組織として、ナノテクノロジーとナノサイエンスの研究を目的とした産業科学ナノテクノロジーセンターが発足した。センターには新たに2名の教授が加わり、インターマテリアル研究センターより移籍した教授に加え3名の専任教授と7名の兼任教授を擁する体制となった。量子ビーム実験室を持ち、ナノテクノロジーに対するビームの応用を一つの目的とし、さらに広い産業応用を志向し、同時に基礎科学を重視する、国内外に類例のないナノサイエンスのセンターが発足したと言ってよいだろう。

また、当研究所の提案した「新産業創造指向インターナノサイエンス」が21世紀 COE 拠点として認められ、産業創成を目指すナノサイエンスの総合的研究と教育を推進している。発足して間もないナノテクノロジーセンターと21世紀 COE 拠点、そして各研究部門から新しい研究成果が次々と出されている。全国の国立大学は平成16年度から独立法人化という大きな試練に向おうとしている。その中であって私達の研究所は27名の教授を中心に全教官108名を有する国内有数の研究所として理学・工学の分野において飛躍が期待されている。

改組及び大学院重点化と相前後して研究所に所属する大学院生も倍増し、ポスドク等も増え、研究室の面積不足は深刻な問題になってきた。この問題を解決すべく、かねてより文部省に第二研究棟の新設を要求していたが、幸いにして平成11年度の補正予算で認められた。延面積6,600㎡に及ぶ第二研究棟が平成12年度末までに完成し、平成13年9月には竣工式を行った。平成13年度以降は研究棟の不足面積は解消したが、既存の第一研究棟の老朽化が著しく、修繕も追いつかない状況にある。また十分な耐震性もないため、改築が今後の大きな課題である。

それぞれの研究分野では独自の先端的な研究を進めており、同時に分野間の共同研究を進めている。これに対応して活発な学会活動を行っている。平成9年度からスタートした原子・分子プロセスグループの文部省中核的研究拠点（COE）としての研究は十分な成果を得て終了した（平成14年度から2年間は特別推進研究として継続）。さらに、文科省の戦略的基礎研究推進事業や未来開拓学術研究推進事

業などに研究所教官の提案した課題が次々と採択されている。また、上に述べた21世紀COE拠点として研究と教育に新しい局面を拓いている。客員教官や特任教授、特任助教授として産業界の研究者の協力が得られている点は特筆できる。21世紀COEの教育面としては、原子力工学科と協力して新しいインターナノサイエンス教育を提案し試行している。

研究資金としては校費の他に、政府関連の大型外部資金、科学研究費補助金、民間との共同研究、受託研究資金などを得て研究を進めている。リーダーシップ支援経費（所長裁定経費）を用いた分野間若手共同研究、国際シンポジウム、研究所間交流、これらに加えてナノテクノロジーセンター国際シンポジウム、21世紀COE国際シンポジウムなど種々の事業を行っている。

研究所の活動に関しては、各グループの原著論文による発表に加えて、年次報告書やMemoirs、要覧（邦文と英文併記）の発行、「産研ニュースレター」の発行や新聞発表、学会、国際会議発表などによって広報活動に努めている。産研ニュースレターの内容は産研ホームページにのせるなどインターネットを活用している。また産業科学研究協会と緊密にタイアップしており、産研テクノサロンや新産業創造研究会を通じて、研究所の成果を産業に還元するべく努力を続けている。

研究所として、研究の現場に於ける大学院教育を重視しており、理・工・基工・薬・生命機能・情報科学の研究科から大学院生を受け入れており、総数は200名に及ぼうとしている。RA制度、院生による研究発表会、院生の国際学会出席援助等を実施しており、教育効果を上げている。異なる研究科の学生が同じ研究所に所属し、多様なバックグラウンドを持つ教授のもとで、切磋琢磨している環境から将来の日本の科学そして産業界を担う研究者が生まれるものと期待している。

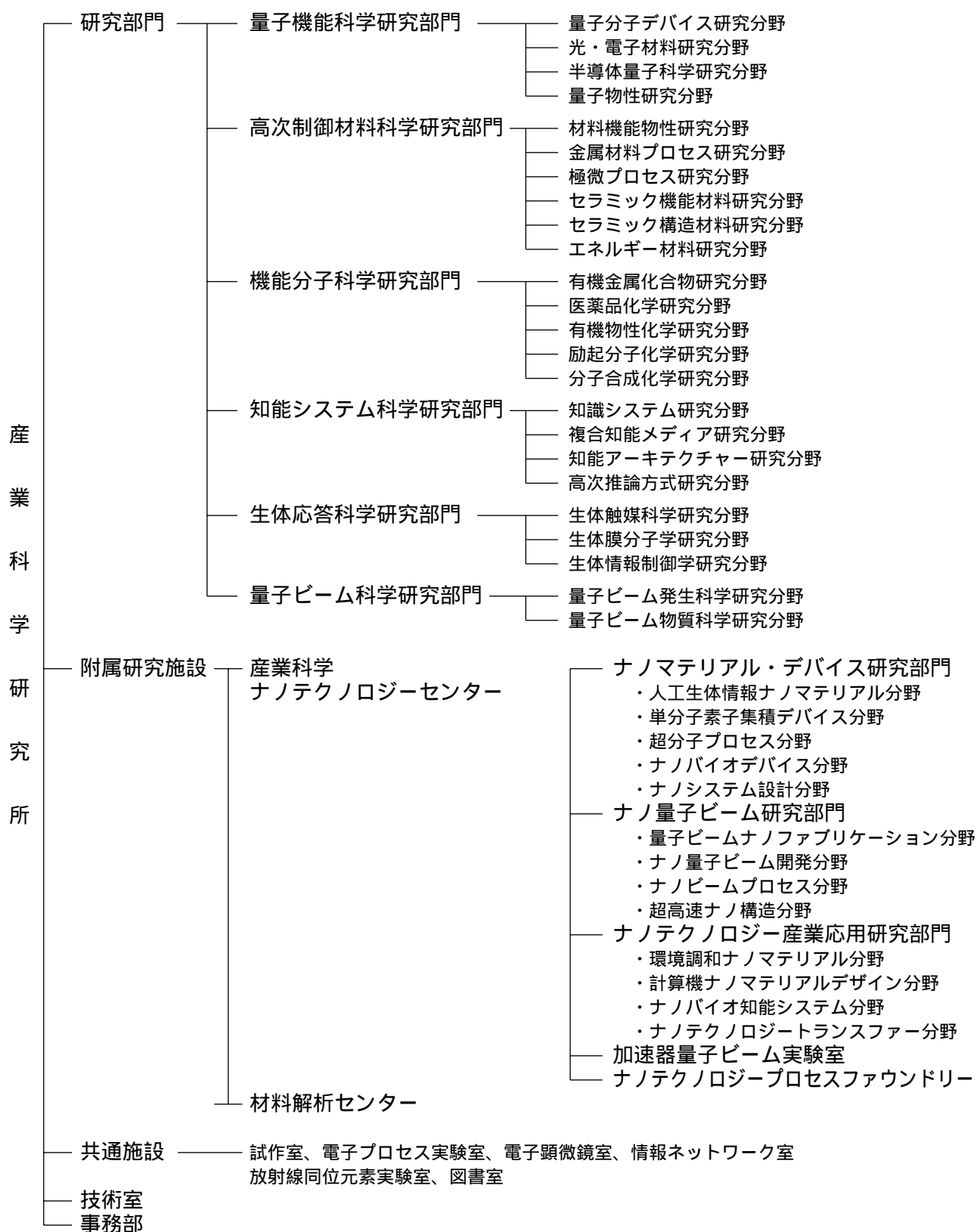
この報告書は当研究所の平成15年度の活動を各項目にわたって示している。1年間の研究・教育・社会貢献にわたる成果が詳しくまとめられている。従って、本報告書は広報活動の一環であると同時に、自己評価と外部評価の為に基礎資料という性格を持っている。研究所の所員は次の年度に向けての発展の為に資料とするべきものとする。また、所外の諸賢におかれては、資料に基づいて私共の活動を御叱正、御批判を頂ければ幸いである。なお、本報告書は自己評価委員を初めとする若い研究者の協力なしにはできなかつたものである。貴重な時間をさいて執筆し、編集していただいたことを感謝する。

2. 研究活動

1) 組織

産業科学研究所の機構および教員組織は、次のとおりである。

・機構図（平成16年3月31日現在）



・教員組織（平成16年3月30日現在）

量子機能科学研究部門

量子分子デバイス研究分野	教授	工学博士	岩崎 裕
	助教授	博士(工学)	吉信達夫
	助手	博士(工学)	足立敏之
	助手	博士(工学)	須藤孝一
光・電子材料研究分野	教授	工学博士	朝日 一
	助教授	工学博士	長谷川繁彦
	助手	理学博士	江村修一
	助手	博士(工学)	周 逸凱
半導体量子科学研究分野	教授	工学博士	松本和彦
	助教授	理学博士	井上恒一
	助手	博士(工学)	前橋兼三
	助手	博士(工学)	大野恭秀
量子物性研究分野	教授	理学博士	吉田 博
	教授(兼)	工学博士	笠井秀明
	助教授	理学博士	播磨尚朝
	助教授	博士(理学)	森川良忠

高次制御材料科学研究部門

材料機能物性研究分野	教授	工学博士	弘津禎彦
	助教授	博士(工学)	石丸 学
	助手	修士(工学)	佐藤和久
	助手	博士(工学)	平田秋彦
金属材料プロセス研究分野	教授	工学博士	中嶋英雄
	助手	博士(工学)	池田輝之
	助手	博士(工学)	玄 丞均
	助手	修士(工学)	中畑拓治
極微プロセス研究分野	教授	理学博士	川合知二
	助教授	博士(理学)	田中秀和
	助手	理学博士	北濱克熙
	助手	博士(理学)	田中裕行
セラミック機能材料研究分野	助手	博士(理学)	李 惠瑛
	教授	理学博士	小林 光
	助教授	理学博士	高橋昌男
	助手	理学博士	延谷宏治
セラミック構造材料研究分野	助手	博士(工学)	每田 修
	教授	工学博士	新原皓一
	助教授	博士(工学)	関野 徹
	助手	博士(工学)	楠瀬尚史
エネルギー材料研究分野	助手	博士(工学)	中山忠親
	教授	工学博士	谷村克己
	教授(兼)	工学博士	伊藤 正
	助教授	理学博士	田中慎一郎
	助手	博士(工学)	西浦徹也
	助手	博士(理学)	石川憲一

機能分子科学研究部門

有機金属化合物研究分野

教授	理学博士	高橋成年
助教授	博士(理学)	鬼塚清孝
助手	博士(工学)	周 大揚
教授	理学博士	加藤修雄
助手	理学士	新田 孟
助手	博士(理学)	河野富一
教授	理学博士	安蘇芳雄
助教授	理学博士	兼田隆弘
助手	博士(工学)	家 裕隆
教授	工学博士	真嶋哲朗
助教授	博士(工学)	藤塚 守
助手	工学修士	藤乘幸子
助手	博士(工学)	川井清彦
教授	工学博士	笹井宏明
教授(兼)	農学博士	村田道雄
助教授	理学博士	山高 博
助手	理学博士	市原潤子
助手	理学博士	山口俊郎
助手	理学博士	Doss Jayaprakash

知能システム科学研究部門

知識システム研究分野

教授	工学博士	溝口理一郎
助教授	博士(工学)	來村徳信
助手	博士(工学)	角 薫
助手	博士(学術)	稲葉晶子
教授	博士(工学)	八木康史
助手	博士(工学)	佐川立昌
教授	工学博士	沼尾正行
教授	工学博士	元田 浩
助教授	工学博士	鷲尾 隆
助手	博士(工学)	吉田哲也
助手	博士(工学)	大原剛三

複合知能メディア研究分野

知能アーキテクチャー研究分野

高次推論方式研究分野

生体応答科学研究部門

生体触媒科学研究分野

教授	農学博士	谷澤克行
助教授	博士(農学)	黒田俊一
助手	修士(工学)	立松健司
教授	薬学博士	二井將光
助教授	理学博士	和田 洋
助手	博士(理学)	孫 戈虹
教授	薬学博士	山口明人
教授(兼)	理学博士	月原富武
助手	博士(理学)	村上 聡
助手	博士(薬学)	平田隆弘

生体膜分子学研究分野

生体情報制御学研究分野

量子ビーム科学研究部門

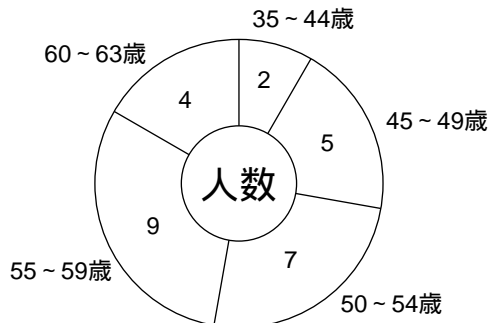
量子ビーム発生科学研究分野

教授	理学博士	磯山悟朗
----	------	------

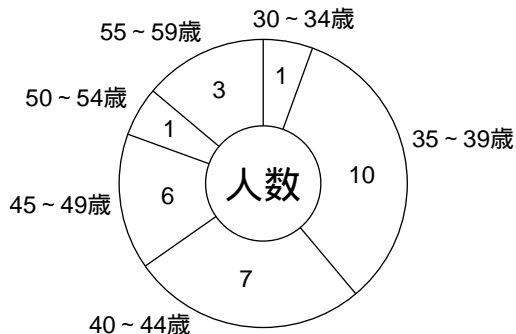
	教授(兼)	理学博士	佐藤健次
	助教授	博士(理学)	加藤龍好
	助手	工学士	池田稔治
	助手	博士(理学)	柏木 茂
量子ビーム物質科学研究分野	教授	工学博士	田川精一
	助教授	工学博士	山本幸男
	助手	工学博士	小林一雄
	助手	修士(工学)	佐伯昭紀
附属産業科学ナノテクノロジーセンター ナノマテリアル・デバイス研究部門	センター長(併)		川合知二
人工生体情報ナノマテリアル分野	教授	博士(理学)	田畑 仁
	助手	修士(工学)	佐伯洋昌
単分子素子集積デバイス分野	教授(兼)	理学博士	川合知二
	助教授	理学博士	松本卓也
	助手	博士(工学)	谷口正輝
超分子プロセス分野	教授(兼)	工学博士	真嶋哲朗
	助手	博士(工学)	遠藤政幸
	助手	博士(薬学)	滝澤 忍
ナノバイオデバイス分野	教授(兼)	薬学博士	二井將光
	助教授	博士(理学)	岡島俊英
ナノシステム設計分野 ナノ量子ビーム研究部門			
量子ビームナノアプリケーション分野	教授	工学博士	吉田陽一
	助手	博士(理学)	楊 金峰
ナノ量子ビーム開発分野	教授(兼)	理学博士	磯山悟朗
	助教授	工学博士	誉田義英
	助手	工学博士	木村徳雄
ナノビームプロセス分野	教授(兼)	工学博士	田川精一
	助教授	博士(工学)	関 修平
	助教授	博士(工学)	古澤孝弘
超高速ナノ構造分野 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	教授	工学博士	菅沼克昭
	助教授	博士(工学)	奥 健夫
	助手	博士(工学)	井上雅博
計算機ナノマテリアルデザイン分野	教授(兼)	理学博士	吉田 博
	助教授	博士(工学)	白井光雲
	助手	博士(理学)	佐藤和則
ナノバイオ知能システム分野	教授(兼)	工学博士	溝口理一郎
	助手	博士(工学)	古崎晃司
ナノテクノロジー・トランスファー分野 附属材料解析センター	センター長(併)		真嶋哲朗
	助教授	理学博士	澤田正實

・教員の年齢構成 (平成16年3月30日現在。ただし、併任、兼任者は除く。)

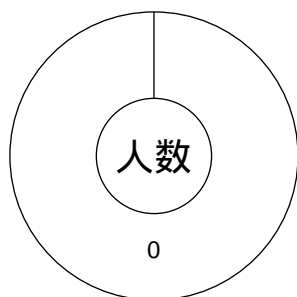
教授



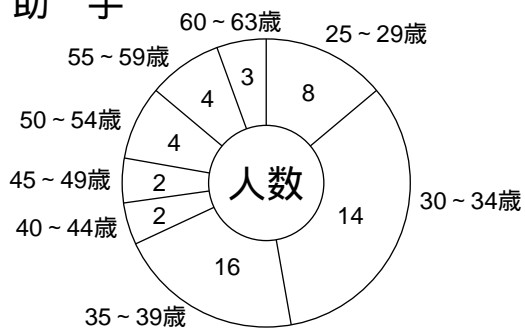
助教授



講師

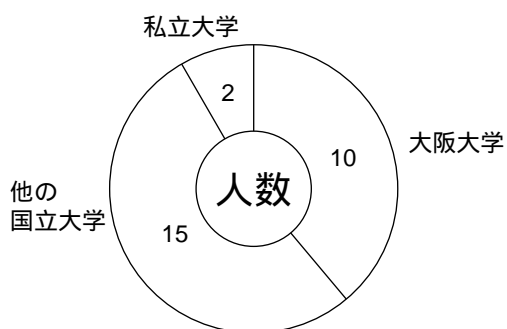


助手

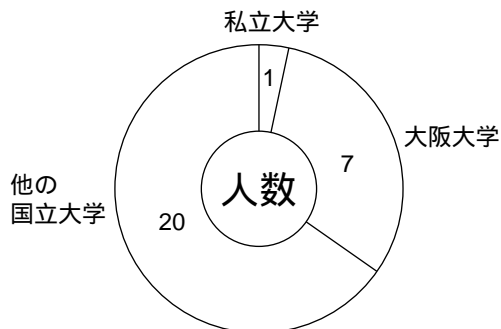


・教員の出身大学 (平成16年3月30日現在。ただし、併任、兼任者は除く。)

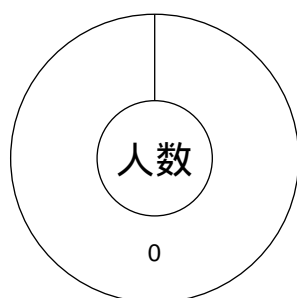
教授



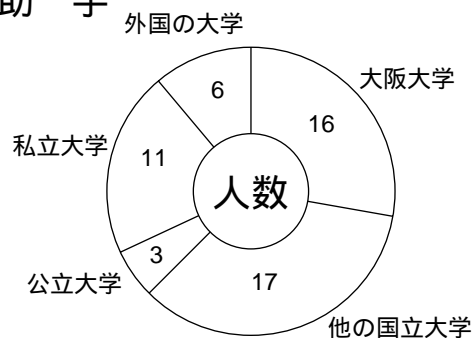
助教授



講師



助手



職員全体では、平成16年3月30日現在で文部科学教官108名、教務職員3名、文部科学事務官15名、文部科学技官13名、及び非常勤職員137名を含み、合計276名である。全職員のうち女子は62名である。

平成15年3月31日から平成16年3月30日までの人事異動は次のとおりである。

異動事項 (職名)	異動日	(元職)	氏名
定年退職	15.3.31	(合成医薬品・教授)	植田育男
定年退職	15.3.31	(事務部長)	奥野正明
辞職(立命館大学工学部助教授)	15.3.31	(複合知能メディア・助手)	柴田史久
出向(国立曽爾少年自然の家庶務課会計係)	15.3.31	(経理掛員)	西尾真樹
昇任(医薬品化学・教授)	15.4.1	(九州大学機能物質科学研究所・助教授)	加藤修雄
昇任(複合知能メディア・教授)	15.4.1	(大阪大学大学院基礎工学研究科・助教授)	八木康史
昇任(知能アーキテクチャー・教授)	15.4.1	(東京工業大学大学院情報理工学研究科・助教授)	沼尾正行
昇任(知識システム・助教授)	15.4.1	(知識システム・助手)	來村徳信
昇任(産業科学ナノテクノロジーセンター・助教授)	15.4.1	(産業科学ナノテクノロジーセンター・助手)	古澤孝弘
昇任(分子合成化学・助手)	15.4.1	(分子合成化学・教務職員)	DOSS・JAYA- PRAKASH
昇任(事務部長)	15.4.1	(徳島大学総務部総務課長)	田部信重
昇任(北陸先端科学技術大学院大学・教授)	15.4.1	(知識システム・助教授)	池田 満
昇任(千葉大学理学部・助教授)	15.4.1	(分子合成化学・助手)	荒井孝義
昇任(国際日本文化研究センター情報課情報システム掛長)	15.4.1	(研究助成掛・主任)	浅野正浩
転任(独立行政法人海上技術安全研究所上席研究員)	15.4.1	(金属材料プロセス・助教授)	村上健児
採用(半導体量子科学・助手)	15.4.1		大野恭秀
採用(材料機能物性・助手)	15.4.1		平田秋彦
採用(複合知能メディア・助手)	15.4.1		佐川立昌
採用(量子ビーム物質科学・助手)	15.4.1		佐伯昭紀
採用(産業科学ナノテクノロジーセンター・助手)	15.4.1		佐伯洋昌
採用(産業科学ナノテクノロジーセンター・助手)	15.4.1		楊 金峰
採用(金属材料プロセス・助手)	15.4.1		中畑拓治
採用(極微プロセス・助手)	15.4.1		李 惠璵
採用(医薬品化学・教務職員)	15.4.1		原 道寛
配置換(庶務掛主任)	15.4.1	(理学部大学院掛主任)	児玉直美
配置換(研究助成掛主任)	15.4.1	(歯学部総務課管理掛主任)	中原洋一
配置換(経理掛員)	15.4.1	(経理部豊中調達センター室調達第四掛)	花木信夫
配置換(基礎工学部化学系専攻事務室主任)	15.4.1	(庶務掛主任)	三井伸子
配置換(高次推論方式・助手)	15.7.1	(複合知能メディア・助手)	大原剛三
転任(国立民族学博物館管理部会計課用度係長)	15.8.1	(経理掛長)	小林祥孝

昇任（経理掛長）	15. 8. 1	（経理部主計課予算第二掛主任）	周防 孝
辞職	15. 9. 30	（庶務掛主任）	児玉直美
配置換（知識システム・助手）	15. 10. 1	（知能アーキテチャー・助手）	稲葉晶子
配置換（庶務掛員）	15. 10. 1	（歯学部業務課医事掛）	和崎英里
転出（電気通信大学電気通信学部・助教授）	15. 12. 1	（知能アーキテチャー・助教授）	柏原昭博
採用（計算機ナノマテリアルデザイン・助手）	16. 1. 1		佐藤和則
転任（量子物性・助教授）	16. 3. 16	（独立行政法人産業技術総合研究所主任研究員）	森川良忠

2) 運営

産業科学研究所全般の管理運営は所長が行っている。所長は、本研究所の専任教授の中から選挙によって選考される。選挙は第一次選挙と第二次選挙からなり、本研究所専任の教授、助教授、講師及び助手による第一次選挙において3名の候補者が選ばれ、その中から、教授のみによる第二次選挙において1名の所長候補者が選ばれる。最終的には、教授会によって所長候補者が決定される。所長の任期は2年であり、再任は可能であるが、引き続き4年を超えることはできない。平成16年（2004）3月31日現在の所長は、二井将光教授が併任しており、任期は平成13年（2001）8月1日から平成16年（2004）3月31日までである。評議員は、本研究所の専任教授の中から教授会での選挙によって選ばれる。平成16年（2004）3月31日現在の評議員は、新原皓一教授で任期は平成16年（2004）3月31日までである。

産業科学研究所の教官人事、予算等の重要事項は、所長及び専任教授で組織される教授会において審議される。教授会の議長には所長がなり、通常毎月1回予め決められた日時に開催される。教授欠員部門または教授欠席の部門では、予め承認されている教官が教授会に代理出席することができる。ただし、審議に加わることはできない。

各附属施設には、円滑な運営を図るために、実験室長又はセンター長及び運営委員会が置かれている。本研究所の官制上の研究単位は前述のように部門であるが、意見の集約と伝達等の円滑化をはかるために、便宜上部門を下記のように2つずつまとめて3つの研究部としている。

第1研究部	量子機能科学研究部門 知能システム科学研究部門
第2研究部	高次制御材料科学研究部門 量子ビーム科学研究部門
第3研究部	機能分子科学研究部門 生体応答科学研究部門
	附属産業科学ナノテクノロジーセンター
	附属材料解析センター

その他、所内には、規定または申し合わせに従って種々の委員会が設置されて活動している。その内の主なものは、次のようなものである。（ ）内は、各委員会の構成を示す。

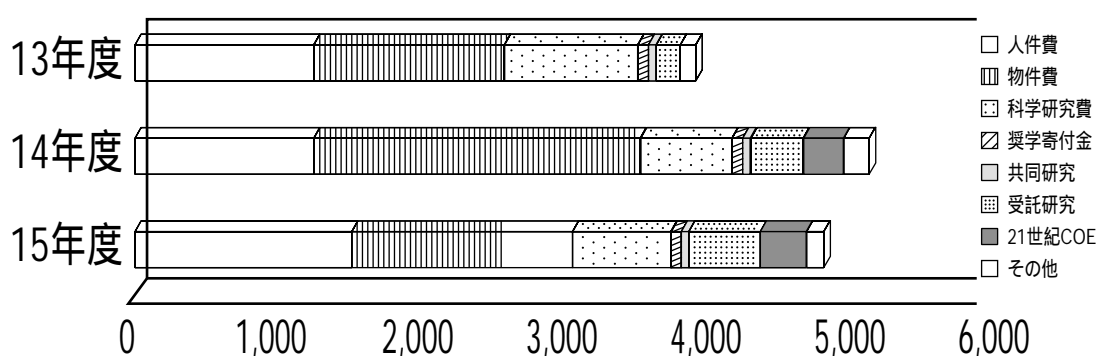
- 幹事会（所長、評議員、各研究部から教授 1 名）
- 産学協同問題委員会（所長、評議員、各研究部から教授 1 名）
- 国際交流推進委員会（学内国際交流委員会委員、各研究部から教官 1 名）
- 自己評価委員会（所長、学内評価委員会委員、広報委員会委員長、教授若干名など）
- 広報委員会（教授 2 名、総務課長、各研究部から教官 1 名）
- 安全管理・安全教育委員会（所長、組換えDNA実験安全主任者、放射線取扱主任者など）
- 環境整備委員会（学内キャンパス計画委員会委員、各研究部から教官 1 名）
- 施設委員会（所長、評議員、キャンパス計画委員会委員、各研究部門から選出された教授 3 名）
- 将来計画委員会（所長、評議員、各部門から教授 1 名、事務部長）
- 情報ネットワーク室運営委員会（教授 3 名、情報ネットワーク室長、ほか）

教官の欠員が生じた場合には、選考委員会が設置され、後任候補者の選考が行われる。特に、教授が欠員になった場合には、研究分野検討委員会が設置され、当該研究分野の研究内容、将来の方向等について検討される。教授選考委員会は、研究分野検討が終了した後でなければ、設置することができない。研究分野検討委員会は、当該研究部から選出された 3 名の教授と他の研究部から選出された教授各 1 名の計 5 名で構成される。教授選考委員会は、当該研究部の教授全員とその他研究部の教授各 1 名で構成される。

当研究所では学内の他部局の教授と共同研究を行うために兼任教授制度を採用している。平成15年度は学内から 5 名の理科系の教授（笠井秀明教授（工学研究科）、伊藤正教授（基礎工学研究科）、村田道雄教授（理学研究科）、月原富武教授（蛋白質研究所）、佐藤健次教授（核物理研究センター））をお願いした。

3) 研究費

研究所の主な経費は、校費、文部省科学研究費補助金、奨学寄附金等である。次にそれら研究費の平成13年から 3 年間の推移を示す。



予算(単位:千円)(平成13~15年度)

(単位:千円)

		13年度	14年度	15年度
校費	人件費	1,222,247	1,183,164	1,493,979
	物件費	1,330,927	2,334,611	1,524,027
科学研究費(件数)		910,600(100)	578,772(93)	686,997(104)
奨学寄附金(件数)		77,676(83)	76,760(47)	64,930(67)
共同研究(件数)		47,183(10)	40,670(12)	66,393(13)
受託研究(件数)		172,368(24)	367,966(27)	473,471(36)
21世紀COE(件数)			271,000(1)	330,000(1)
その他(件数)		100,710(3)	160,023(5)	116,005(4)
合計		3,861,711	5,012,966	4,755,802

(注)科学研究費については、分担者として配分されたものは除く。

21世紀COE

文部科学省の21世紀COEプログラム研究拠点形成費補助金(研究拠点形成費)に、次のプログラムが平成14年度(2002)から採択されている。

学問分野 : 学際、複合、新領域

拠点のプログラム名 : 新産業創造指向インターナノサイエンス

拠点のリーダー : 川合知二教授

・COE研究

文部省の中核的研究拠点形成プログラム(COE)の一つに、次の研究グループが平成9年度から採用されている。

研究テーマ : 高次機能調和材料創成の原子・分子プロセッシング

研究拠点名称 : 大阪大学機能調和材料原子・分子プロセス拠点

研究責任者 : 川合知二教授

平成14年度より特別推進研究に変わり継続されている。

・奨学寄附金等

奨学寄附金、共同研究、受託研究については予め申し込まれた内容について、所内の産学官連携問題委員会において審査したうえで受け入れが決定され、総長(全学産学官連携問題委員会)に報告される。このうち、過去3年間に委任経理金として受け入れられた奨学寄附金は次のとおりである。

	量子機能科学 研究部門	高次制御材料 科学研究部門	機能分子科学 研究部門	知能ナノ科学 研究部門	生体応答科学 研究部門	量子ドット科学 研究部門	産業科学ナノテ クノロジー センター	その他	合 計
平成 13	1,500 (3)	29,091 (27)	10,311 (17)	11,250 (10)	11,606 (10)	500 (1)		13,418 (15)	77,676 (83)
平成 14	3,581 (6)	33,913 (32)	9,486 (15)	7,920 (7)	13,899 (4)	1,111 (3)		6,850 (7)	76,760 (74)
平成 15	1,500 (2)	24,300 (20)	10,250 (13)	6,480 (5)	8,350 (9)	2,000 (3)	11,050 (14)	1,000 (1)	64,930 (67)

単位：千円 ()内は件数

4) 国際研究プロジェクト

本研究所が当該年度において、公的機関の補助のもとに実施した国際研究プロジェクトは次のとおりである。

新原 皓一 学術振興会 拠点大学方式による学術交流事業(コーディネーター)
 韓国漢陽大学 keun Ho Auh 教授
 「環境低負荷型の多機能セラミックスの新しいプロセッシング及びナノ構造と機能の評価」

5) 学術講演会・研究集会

本研究所が15年度において、研究所の主催または共催として実施した学術講演会・研究集会は次のとおりである。

拠点大学学術交流国際セミナー

The 10th Seminar on Core University Program (CUP) between Japan and Korea -New Nanostructure and Nanocomposite Ceramics with Multiple Functionality-

日本学術振興会の拠点大学方式による学術交流事業(CUP)の一環として平成15年11月10日～12日に、三河ハイツ(愛知県)にて(社)日本セラミックス協会高温構造材料部会との共催で標記国際セミナーが開催された。約100名の参加者(うちCUP関係は日本側30名、韓国側23名)を得て、口頭29件・ポスター47件の発表がなされた。

第59回学術講演会

一般講演として、教職員、学生による材料・情報・生体に関する最新の研究成果をポスターセッションにより発表するとともに「新産業創成へのメッセージ」と題するシンポジウムを開催し、

7件の講演（うち1件は招待講演）を実施した。平成15年11月28日・本研究所講堂

産業科学ナノテクノロジー国際シンポジウム

産業科学ナノテクノロジーセンターと特別推進研究（旧文部科学省COE）との共催により、12月8～9日の2日間にわたり本研究所講堂において「産業科学ナノテクノロジー国際シンポジウム(International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003)」を開催した。この会議では、国内外の第一線の研究者18名による招待講演、産研の研究者8名による講演、60件を超えるポスター発表が行われた。有機・無機・金属・バイオ等の物質・材料におけるナノ構造制御、および外部からの摂動による物性制御および新機能の創出、または量子ビームを利用したナノテクノロジー等に関して活発な議論がなされた。150名を超える参加者があった。

第2回21世紀COEプログラム国際シンポジウム・第7回産研国際シンポジウム

平成16年1月13日～14日、本学銀杏会館において、第2回21世紀COE国際シンポジウムと第7回産研国際シンポジウムが共催として開催された。今年度は、「Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science, -Perspectives in Nanoscience-」をテーマに、16名の著名な科学者による招待講演の外、21世紀COEプログラムの各グループによる成果報告を含む8件の講演と62件のポスター発表があり、活発な議論が行われた。

研究所間交流プログラム

平成15年度は以下のとおり研究所間交流が行われた。

- ・ 大阪大学産業科学研究所・九州大学先導物質化学研究所・静岡大学電子工学研究所 三研究所間交流会（平成15年11月18日～19日）
- ・ 第3回大阪大学産業科学研究所・九州大学先導物質化学研究所・応用力学研究所 研究所間交流ワークショップ（平成16年2月12日～13日）
- ・ 東北大学電気通信研究所との研究所間交流ワークショップ（平成16年2月17日）
- ・ シンポジウム「化学、生物科学、物質科学研究の最先端」（平成16年2月25日～26日）
- ・ 東北大学金属材料研究所との研究所間交流ワークショップ（平成16年2月25日）

上記以外にも、外来講師を迎えての講演会、セミナーも随時開催しており、それらの合計は52件（うち外国人を講師に迎えてのものは11件）であった。

	(開催日)	(講師)	(演題)
平成15年	5月12日	Wolfgang Braun (ドイツ ポールデューラー研究所 研究員)	In Situ Synchrotron X-Ray Diffraction Studies of MBE Growth
	5月22日	額賀 路嘉 (米国 コネチカット大学)	-ラクタマーゼの超高分解能X線結晶 構造解析

	5月26日	西本 吉助 (岡山理科大学 客員教授(元大阪市立 大学教授))	量子化学の基礎、ガウシアンを始めるた めの基礎
	6月27日	Jin-Chun Kim (韓国 機械研究院 博士研究員)	Preparation of WC and WC-Co Nanopowders by Chemical Vapor Condensation Proces
	7月16日	西本 吉助 (岡山理科大学 客員教授(元大阪市立 大学教授))	量子化学の基礎方程式、MOPACとDFT (密度汎関数)の違い
	8月7日	古川 雅士 (理化学研究所 基礎科学特別研究員)	電子分光でDNAの伝導機構を探る
	10月6日	鈴木 清策 (モナッシュ大学 助教授)	ナノ構造磁性材料の軟磁気特性
	10月23日	Ljupco Todorovski (スロベニア ヨーゼフステファン研 究所 研究員)	Using Domain-Specific Knowledge for Automated Modeling
	10月23日	大西 智子 (米国ペンシルバニア大学 医学部生 物物理学教室 教授)	Insights into the reaction mechanism of proton-translocationg NADH-quinone oxidoreductase (Complex I)
	12月5日	Hansjoerg Griese (Fraunhofer Institute 工学博士)	Microintegration and Reliability of Electronics for a sustainable development
	12月5日	Tomas Pajdla (チェコ工科大 助教授)	Non-central cameras, their models, and stereo geometries
平成16年	1月13日	Sinn-wen Chen (台湾精華大学 教授)	Lead free solder/Ni Interfacial reactions in the electronic products
	1月15日	Kim Jin Hyeok (全南大学 助教授)	Heteroepitaxial Growth of Oxide Thin Films On Sisubstrates by Physical Vapor Deposition Methods
	1月16日	Kim Jin Hyeok (全南大学 助教授)	Structural Characterization of Oxide Thin Films Using High Resolution Transmission Electron Microscopy
	1月16日	Horst W. Hahn (独国ダルムシュタット工科大学 教授)	Toward Creating New Industry Based on Nanosized Particle Systems

1月16日	横野 照尚 (九州工業大学 教授)	高活性可視光応答型二酸化チタン光触媒の開発
1月16日	加藤 隆二 (産業技術総合研究所 主任研究員)	可視・近赤 外過渡吸収分光法によるナノ微粒子酸化チタン膜中の光反応活性種の観測
1月16日	小海 文夫 (三重大学工学部 教授)	レーザーによるナノカーボンの合成と修飾
1月19日	M. Joanne Lemieux (Department of Biochemistry, CIHR Group in Protein Structure and Function, University of Alberta, Canada)	Structure and Mechanism of GlpT, the glycerol-3-phosphate transporter from <i>E. coli</i>
1月19日	中谷 和彦 (京都大学大学院工学研究科 助教授)	ミスマッチ検出表面プラズモン共鳴センサーの開発
1月20日	村上 章 (京都工芸繊維大学繊維学部 教授)	光応答性核酸誘導体によるトランスクリプトーム解析
1月20日	山名 一成 (姫路工業大学工学部 助教授)	DNA変異の蛍光および電気化学検出
1月31日	山田 淳 (九州大学大学院工学研究科 教授)	金ナノ粒子の光工学的応用・触媒 からフォトニクスまで
1月31日	市村 禎二郎 (東京工業大学大学院理工学研究科 教授)	レーザー化学が拓く分子の世界
1月31日	山路 稔 (群馬大学工学部 助教授)	三重項エネルギー移動が関連する最近の光化学反応
2月2日	King-Ning Tu (カリフォルニア大学ロサンゼルス校 教授)	Mechanism of spontaneous Sn whisker Growth
2月4日	池田 富樹 (東京工業大学資源化学研究所 教授)	協同現象を利用した光機能材料の創出
2月6日	今野 豊彦 (大阪府立大学 教授)	ナノテクノロジーにおいて電子顕微鏡が果たす役割
2月6日	森 茂夫	CMR 磁性材料におけるナノスケール強

	(大阪府立大学 助教授)	磁性の発現機構
2月13日	大西 洋 (財団法人神奈川科学技術アカデミー (KAST) 研究室長)	プローブ顕微鏡と時間分解光による光触媒反応の解析
2月14日	野坂 芳雄 (長岡科学技術大学院大学 教授)	酸化チタン光触媒の反応機構に関する最近の進歩
2月19日	畑中 保丸 (富山医科薬科大学薬学部 教授)	光アフィニティ解析を創薬に生かす
2月19日	九内 淳堯 (広島大学大学院工学研究科 教授)	機能材料を指向した有機ケイ素化合物の合成と性質
2月21日	栗山 恭直 (山形大学理学部 助教授)	ゼオライト細孔内の新しい光化学
2月21日	伊古田 暢夫 (放射線医学総合研究所 グループリーダー)	放射線による酸化ストレスとレドックス制御
2月23日	唐津 孝 (千葉大学工学部 助教授)	有機ケイ素化合物の特徴を活かした材料の創製
2月23日	辻本 和雄 (北陸先端科学技術大学院大学 教授)	有機天然物化合物がもつ抗酸化作用と光老化防止の関係
2月23日	池田 壽文 (東京理科大学基礎工学部 助手)	次期遺伝子探索技術の開発～人工機能核酸 PNA の戦略的合成方法の確立とその応用～
2月24日	秋永 広幸 (独立行政法人産業技術総合研究所 先進ナノ構造グループリーダー)	スピンエレクトロニクス関連研究の先端状況
2月24日	穴戸 昌彦 (岡山大学工学部 教授)	蛋白質生合成系の有機化学的拡張による非天然アミノ酸導入蛋白質の作製
2月24日	村田 重夫 (産業技術総合研究所 光反応制御研究センター チーム長)	超高速電子移動とエキシプレックス生成
2月24日	杉浦 健一 (東京都立大学 理学部化学科 助教授)	ポルフィリン多量体の化学： ・ x ・ (マル・バツ・サンカク)

2月25日	豊島 近 (東京大学分子細胞生物学研究所 教授)	カルシウムポンプによるイオンの輸送機構
2月28日	林 高史 (九州大学大学院工学研究科 助教授)	単純なミオグロビタンパク質の超高機能化・生体分子モデル構築から酸化酵素、センサータンパク質創製の応用まで
2月28日	橋本 修一 (群馬工業高等専門学校 教授)	光化学的手法によるゼオライト結晶内及び結晶間の吸着芳香族分子の拡散運動の研究
2月28日	玉置 信之 (産業技術総合研究所 研究グループ長)	分子情報材料を目指した光応答性分子組織体
2月28日	矢島 博文 (東京理科大学理学部 教授)	単層カーボンナノチューブ・生体高分子複合体とその応用
2月28日	新納 弘之 (産業技術総合研究所 研究チーム長)	液体アブレーションによる石英ガラスの微細表面加工
3月1日	坂口 喜生 (理化学研究所 副主任研究員)	磁場とマイクロ波による反応制御
3月1日	石川 満 (産業技術総合研究所 ラボ副ラボ長)	単一分子感度をもつ SERS 基板の調製と評価
3月1日	樋口 秀男 (東北大学工学研究科金属工学専攻 助教授)	1分子研究から見えてきた、タンパク質の運動、制御そしてシステム化
3月1日	秋吉 一成 (東京医科歯科大学・生体材料工学研究所 教授)	ナノゲル工学による新規バイオマテリアルの創成

6) 広報活動

本研究所では、広報活動の一環として次の出版物を発行した。

- ・産業科学研究所要覧(和・英文併記)(2003)
- ・Memoirs of the Institute of Scientific and Industrial Research, Osaka University Vol. 60 (2003)
- ・年次報告書(平成14年度)
- ・産研ニュースレター(年3回発行)

・産研テクノサロン 講演録・資料（平成15年度）

「産研ホームページ」も開設しており、産研ニュースレター等を見ることができる。

（URL:<http://www.sanken.osaka-u.ac.jp>）

7) 受賞状況（平成15年1月2日～平成16年1月1日）

川合 知二 紫綬褒章（内閣府）
谷澤 克行 日本ビタミン学会・学会賞（日本ビタミン学会）
二井 將光 薬学会賞（社団法人日本薬学会）
河野 富一 BCSJ賞（社団法人日本化学会）
奥 健夫 第53回金属組織写真学術部門・奨励賞（社団法人日本金属学会）
元田 浩 研究会優秀賞（社団法人人工知能学会）
鷲尾 隆 研究会優秀賞（社団法人人工知能学会）
佐藤 和久 奨励賞（日本MRS）
玄 丞均 優秀論文賞（先端材料技術協会）
中嶋 英雄 優秀論文賞（先端材料技術協会）
池田 輝之 優秀論文賞（先端材料技術協会）
八木 康史 優秀論文賞（コンピュータ機器協会）
西野 邦彦 黒屋奨学賞（日本細菌学会）

3. 教育への関与（平成15年度）

1) 大学院研究科・専攻担当

本研究所の教員は、大阪大学大学院理学研究科・工学研究科・基礎工学研究科・薬学研究科・情報科学研究科に所属し、各専攻の大学院生の講義および研究指導を行っている。

（研究科）	（専攻）	（担当教官）			
理 学	物理学	教授	磯山悟朗	助教授	加藤龍好
		教授	朝日 一	助教授	長谷川繁彦
				助教授	井上恒一
		教授	吉田 博	助教授	播磨尚朝
				助教授	白井光雲
	化 学	教授	川合知二	助教授	松本卓也
		教授	小林 光	助教授	高橋昌男
		教授	高橋成年	助教授	鬼塚清孝
		教授	加藤修雄	助教授	澤田正實
		教授	笹井宏明	助教授	山高 博
生物科学	教授	谷澤克行	助教授	黒田俊一	
			助教授	岡島俊英	

教授 二井將光 助教授 和田 洋

工 学	知能・機能創成工学	教授	菅沼克昭	助教授	奥 健夫
	マテリアル科学	教授	弘津禎彦	助教授	石丸 学
		教授	中嶋英雄		
	分子化学	教授	安蘇芳雄	助教授	兼田隆弘
		教授	真嶋哲朗	助教授	藤塚 守
	物質化学	教授	新原皓一	助教授	関野 徹
		教授	田川精一	助教授	山本幸男
				助教授	関 修平
				助教授	古澤孝弘
	応用生物学	教授	二井將光	助教授	和田 洋
	応用物理学	教授	岩崎 裕	助教授	吉信達夫
	電子情報工学	教授	朝日 一	助教授	長谷川繁彦
	通信工学	教授	元田 浩	助教授	鷲尾 隆
	電子工学	教授	溝口理一郎		
	原子力工学	教授	谷村克己	助教授	田中慎一郎
	教授	磯山悟朗	助教授	誉田義英	
	教授	吉田陽一			
基礎工学	物質創成	教授	松本和彦	助教授	井上恒一
		教授	吉田 博	助教授	播磨尚朝
				助教授	白井光雲
		教授	川合知二	助教授	田中秀和
		教授	谷村克己		
		教授	田畑 仁		
	システム創成 情報数理系	教授	溝口理一郎		
	教授	八木康史			
薬 学	分子薬科学	教授	山口明人		
情報科学	情報数理学	教授	溝口理一郎	助教授	柏原昭博
		教授	沼尾正行		
	コンピュータ工学	教授	元田 浩	助教授	鷲尾 隆
生命機能		教授	谷澤克行	助教授	和田 洋

2) 大学院担当授業一覧

(研究科)	(科目)	(担当教官)
理 学	放射光物理学	磯山悟朗
	物性理論セミナー	播磨尚朝
	物性理論セミナー	吉田 博、白井光雲
	物性理論特別セミナー	吉田 博、播磨尚朝、白井光雲
	ナノ構造物性物理学	井上恒一
	半導体物理学	井上恒一
	半導体セミナー	朝日 一、長谷川繁彦
	半導体特別セミナー	朝日 一、長谷川繁彦
	放射光セミナー	磯山悟朗、井上恒一、加藤龍好
	放射光特別セミナー	磯山悟朗、井上恒一、加藤龍好
	構造物性化学	川合知二
	半導体化学	小林 光
	有機金属化学	高橋成年、鬼塚清孝、澤田正實
	構造物性化学セミナー	川合知二、松本卓也
	構造物性化学セミナー	川合知二
	半導体化学セミナー	小林 光、高橋昌男
	半導体化学セミナー	小林 光
	有機金属化学セミナー	高橋成年、鬼塚清孝、澤田正實
	有機金属化学セミナー	高橋成年、鬼塚清孝、澤田正實
	機能性分子化学セミナー	笹井宏明、山高 博
	活性中間体化学セミナー	山高 博
	合成有機化学セミナー	加藤修雄
	構造物性化学特別セミナー	川合知二
	半導体化学特別セミナー	小林 光
	有機金属化学特別セミナー	高橋成年
	合成有機化学特別セミナー	加藤修雄
	機能性分子化学特別セミナー	笹井宏明
	生体機能物質学	黒田俊一
	生体機能物質学	谷澤克行
	生体膜分子生化学	和田 洋
	生体膜分子生化学	二井將光
	生体機能物質学セミナー	谷澤克行、黒田俊一、岡島俊英
	生体膜分子生化学セミナー	二井將光、和田 洋
生体機能物質学特別セミナー	谷澤克行、黒田俊一、岡島俊英	
生体膜分子生化学特別セミナー	二井將光、和田 洋	
工 学	光化学特論	安蘇芳雄、兼田隆弘
	励起反応化学特論	真嶋哲朗、藤塚 守

分子化学ゼミナール	真嶋哲朗、安蘇芳雄、兼田隆弘
分子化学研究課題企画ゼミナール	真嶋哲朗、安蘇芳雄、兼田隆弘
分子化学先端研究情報ゼミナール	真嶋哲朗、安蘇芳雄、兼田隆弘
光物性・光エレクトロニクス	朝日 一
複合基礎	長谷川繁彦
電子情報エネルギー工学セミナー	朝日 一、長谷川繁彦
超高温応用工学	朝日 一
量子分子工学特論	田川精一、山本幸男、関 修平、古澤孝弘
複合材料工学特論	新原皓一、関野 徹
物質化学ゼミナール	田川精一、関野 徹、山本幸男
物質化学研究課題企画ゼミナール	田川精一、新原皓一、関野 徹、山本幸男、関 修平、古澤孝弘
物質化学先端研究情報ゼミナール	田川精一、新原皓一、関野 徹、山本幸男、関 修平、古澤孝弘
生体応答科学	二井將光、和田 洋
バイオテクノロジー特論	二井將光
生物機能工学特論 1 , 2	二井將光、和田 洋
応用生物学ゼミナール 1	二井將光
応用生物学ゼミナール 2	二井將光、和田 洋
応用生物学実験	二井將光
量子分子デバイス	岩崎 裕、吉信達夫
知識情報処理	柏原昭博
応用物理学演習 1 , 2	岩崎 裕、吉信達夫
応用物理学実験	岩崎 裕、吉信達夫
応用物理学特別ゼミナール 1 , 2	岩崎 裕
応用物理学ゼミナール	岩崎 裕、吉信達夫
表面・界面工学	奥 健夫
創成工学演習	菅沼克昭、奥 健夫
創成工学ゼミナール	菅沼克昭、奥 健夫
材料設計・デバイス工学特論	菅沼克昭
創成工学ゼミナール (D r)	菅沼克昭
材料設計特論	中嶋英雄
極微構造解析学	弘津禎彦、石丸 学
マテリアル科学実験	弘津禎彦、中嶋英雄、石丸 学
放射線・量子ビーム工学	吉田陽一、菅田義英
情報通信システム工学論	元田 浩、鷺尾 隆
知識工学論	溝口理一郎
知的コミュニケーション論	元田 浩、鷺尾 隆

通信工学セミナー 1	元田 浩、鷺尾 隆
通信工学セミナー 2	元田 浩、鷺尾 隆
電子工学セミナー	溝口理一郎
電子工学実験	溝口理一郎
電子工学演習	溝口理一郎
知識処理工学特論	溝口理一郎
放射線物性	谷村克己
原子力工学演習	谷村克己、磯山悟朗
原子力工学セミナー 1	磯山悟朗、谷村克己
原子力工学セミナー 2	磯山悟朗、吉田陽一

基礎工学	物性理論特論	播磨尚朝
	半導体物性	井上恒一
	回折結晶学	井上恒一
	物質設計	吉田 博、川合知二、白井光雲
	機能材料特論	吉田 博
	強相関電子機能特論	田畑 仁
	ゼミナール	川合知二、吉田 博
	ゼミナール	田畑 仁、井上恒一、播磨尚朝
	微小物質光学応答	谷村克己
	物理系研究	川合知二、吉田 博
	物理系研究	田畑 仁、井上恒一、播磨尚朝
	知的学習制御理論	溝口理一郎
	ゼミナール	溝口理一郎
	ゼミナール	溝口理一郎
	システム人間系研究	溝口理一郎
	システム人間系研究	溝口理一郎
	ロボット工学特論	八木康史
パターン処理論	八木康史	

薬 学	細胞生物学ゼミナール	山口明人
	細胞生物学特別演習	山口明人
	生物薬学特論	山口明人
	生物薬学特論 、ゼミナール	山口明人

情報科学	情報数理学セミナー	溝口理一郎、柏原昭博
	情報数理学セミナー	溝口理一郎、柏原昭博
	情報数理学演習	溝口理一郎、柏原昭博
	情報数理学演習	溝口理一郎、柏原昭博

知識メディア	溝口理一郎
アフォーダンス理論	溝口理一郎、柏原昭博
知能コンピューティング論	元田 浩
コンピュータサイエンスセミナー	元田 浩
コンピュータサイエンスセミナー	元田 浩
コンピュータサイエンス演習	元田 浩
コンピュータサイエンス演習	元田 浩
コンピュータサイエンス研究	元田 浩
コンピュータサイエンス研究	元田 浩
アルゴリズム論	元田 浩
生命機能	和田 洋
理工医学セミナーIH	和田 洋
理工医学 IH	和田 洋
理工医学 F	谷澤克行
理工医学セミナー F	谷澤克行
理工医学特別セミナーF	谷澤克行

3) 大学院生の受入数

(研究科)	(専攻)	(博士前期)	(博士後期)	(小計)
理 学	物理学	11	3	14
	化 学	24	17	41
	生物科学	3	8	11
	(小 計)	38	28	66
工 学	分子化学	5	5	10
	物質化学	11	11	22
	応用生物学	2		2
	応用物理学	4		4
	電子情報エネルギー工学	4	4	8
	通信工学	2	2	4
	電子工学	2	1	3
	原子力工学	5	1	6
	マテリアル科学	8	6	14
	知能・機能創成工学	5	6	11
(小 計)	48	36	84	
基礎工学	物理系	5	3	8
	システム人間系	2		2
	物質創成	8	2	10
	システム創成	1		1
(小 計)	16	5	21	
薬学	分子薬科学	8	3	11
(小 計)	8	3	11	

情報科学	情報数理	2	1	3
	コンピュータサイエンス	4	1	5
(小計)		6	2	8
生命機能		1		1
(小計)		1		1
合計		117	74	191

4) 学部、共通教育担当授業一覧(平成15年度)

理学	代謝生化学		谷澤克行
	有機金属化学序論		高橋成年
	放射光物理学		磯山悟朗
工学	放射線物理学		谷村克己
基礎工学部	コンピュータ工学C		溝口理一郎
	固体電子論B		吉田 博
	知識工学		八木康史
	先端科学技術セミナー	物性物理工学の最前線	田畑 仁
薬学部	薬学特論		山口明人
	薬学概論		山口明人
共通教育	基礎教育セミナー	生活の中の有機化学	笹井宏明
			高橋成年
		物質と宇宙	吉田 博、岩崎 裕、朝日 一 井上恒一、吉信達夫、白井光雲
		分子と生命	山口明人
	特別科目	新しい物質の科学	川合知二、新原皓一 弘津禎彦
	基礎教育科目	物理学概論	播磨尚朝
		物理学概論	朝日 一
		分子化学序論	真嶋哲朗、菅沼克昭 小林 光、高橋昌男
		基礎有機化学	笹井宏明
		電磁気学要論	吉田 博
		化学概論	真嶋哲朗、磯山悟朗、加藤龍好
		分子化学A	田川精一、関 修平

4. 国際交流

1) 活動状況

当研究所では、国際交流の推進が研究所の活動にとってひとつの重要な要因であるという認識にたつて、平成2年(1990)から国際交流推進委員会を設置した。委員会は、教授3名、助教授2名、助手1名及び当研究所から選出の大阪大学国際交流委員会委員から成っており、国際交流の推進に中心的な役割を果たしている。

当研究所は、外国研究機関と学術交流協定を結んでおり、シンポジウム・講義の実施、研究者等の交流、情報交換などを行っている。

平成15年度は、協定締結機関は合計6機関となった。

ドイツ国	マグデブルグ・オットーフォンゲーリック大学自然科学部	平成 6 (1994).10.18 ~
米国	メリーランド大学カレッジパーク校	平成 9 (1997).12.15 ~
韓国	釜慶大学校基礎科学研究所	平成 11(1999). 2.26 ~
ドイツ国	ユーリッヒ研究センター	平成 13(2001). 1. 1 ~
英国	ユニバーシティカレッジロンドン	平成 15(2003).9.26 ~
韓国	漢陽大学産業科学研究所	平成 16(2004).2.11 ~

当研究所に所属する外国人は、平成16年3月31日現在で合計28名であり、その内訳は助手7名、客員研究員1名、研究生6名、大学院博士課程13名、修士課程1名である。

国別では次のとおりである。

韓国(14) 中国(7) インド(2) タイ(2) 台湾(1) フィンランド(1) フィリピン(1)

2) 国外との研究者往来(平成15年度)

教官の海外出張は、合計202件であった。訪問先は、米国、韓国、オーストラリア、中国、ドイツ、フランスその他の多岐に渡っている。経費面では、科学研究費によるものが77件で、委任経理金が38件、国費、その他によるものが87件であった。

国外から当研究所を訪問した研究者は合計48名であり、内訳は次のとおりである。

米国(4) ドイツ(6) 韓国(7) イギリス(1) 中国(1) カナダ(3) スイス(1) スペイン(1) オーストラリア(1) オランダ(2) タイ(17) 台湾(1) マレーシア(2) ベルギー(1)

5 . 産業界との交流

共同研究、受託研究、技術相談など当研究所と産業界との交流が、各教官によって個別に活発に行われている。これに加えて研究所として平成10年度から「産研テクノサロン」を新設した。これは財団法人・産業科学研究協会との共同事業である。企業の経営者および、技術者と産研の研究者の定期的な交流の場をつくり、産研の研究成果を産業界の人に広く、詳しく知ってもらい、同時に産研側も産業界の抱えている問題を知り、研究テーマの発掘に役立てようというものである。この趣旨に賛同する企業に会員になってもらい、継続的に交流を行っている。平成15年度は5回の会合をもった。

・第1回 平成15年 9月10日(水)

「大阪大学の産学連携の戦略」 大阪大学先端科学技術共同研究センター長 村上 孝三

「今、産学連携を進める意味・独立法人化後の動きを読んで」

(株)日経BP社編集委員室編集委員 丸山 正明

「韓国におけるベンチャー起業」

(株)ナノ社長 Dong-Woo Shin

「産研の産学連携への取り組み」

所長 二井 将光

・第2回 平成15年10月 7日(火)

「産学官連携施策と近畿経済産業局の取り組み」

経済産業省近畿経済産業局産学官連携推進室係長 細川 洋一

「産業科学研究所育成への取り組み・21世紀COEプログラムから」

大阪大学工学研究科原子力工学専攻教授 西嶋 茂宏

「産研知能システム研究分野からのシーズ紹介：全方位ビジョンとそのメディア応用」

教授 八木 康史

「産研の生体触媒科学研究分野からのシーズ紹介：薬物や遺伝子を生体内の任意の部位へ送達させピンポイント投与方法について」

助教授 黒田 俊一

「産研の材料研究分野からのシーズ紹介：機能調和セラミックス材料の開発と産業応用」

助教授 関野 徹

・第3回 平成15年11月14日(金)

「兵庫県における産学連携の取り組み」

(財)新産業創造研究機構イノベーションセンター 山中 直樹

「大学発シーズによるベンチャー起業：モノリスゲルと出会って」

(株)京都モノテック代表取締役 石塚 紀生

「産研の機能分子研究分野からのシーズ紹介・スピロ化合物を利用する新規触媒的不斉合成法の開発」

教授 笹井 宏明

「産研の量子機能研究分野からのシーズ紹介・シリコンデバイスの中身をナノスケールで見る、計る技術」

助教授 長谷川 繁彦

「産研の高次制御材料研究分野からのシーズ紹介・新しい化学プロセスで太陽電池の効率と半導体洗浄を同時達成する！」

助教授 高橋 昌男

・第4回 平成15年12月2日(火)

「産業科学研究所からのベンチャー起業を目指して！」

教授 中嶋 英雄

「接合科学研究所からのベンチャー起業を目指して！」

「産研の量子物性研究分野からのシーズ紹介：第1原理計算による物質設計の例」

教授 吉田 博

「産研のナノテクセンターからのシーズ紹介：シングルイオンを用いた任意のサイズのナノ構造体の形成とその物性」

助教授 関 修平

「産研の生体情報制御研究分野からのシーズ紹介：異物排出ナノマシンの構造と機能」

教授 山口 明人

・第5回 平成16年2月19日(木)

「実装に使えるナノ粒子技術」

教授 菅沼 克昭

「次世代ナノファブリケーションの問題点」

教授 吉田 陽一

「ボトムアップ・トップダウン融合ナノパターン技術の可能性」

教授 田畑 仁

「走査プローブ顕微鏡技術の新展開：ナノデバイス評価への応用」

助教授 松本 卓也

平成12年度より産研の技術シーズを公開して関心のある企業の参加で研究会を組織して事業化を目指す目的で「新産業創造研究会」を設置した。15年度は「極微加工・極微構造評価」「データマイニングと先端知識管理」「レーザー同位体分離」「排出蛋白」の4テーマについて各3回、「ナノ及びナノコンポジット」のテーマについて4回の研究会を開催した。

6. まとめ(課題と展望)

(1) 組織運営と運営形態

平成7年の改組で、当研究所は従来の小部門制から6部門よりなる大部門制へと移行した。

教官人事において研究業績が最も重要視されているのは当然である。教授選考は原則として、公募し厳正な選考が行われている。また、選考委員会に他部局の専門家が加わることも行われている。教官の出身は理、工、農、薬、基工と多彩であり、ほとんどが他大学の経験者である。このようなバラエティーに富んだ人事構成は当研究所の優れた点であり、今後とも堅持していく方針である。

平成12年度において任期制の導入について集中的に議論を行ない、競争力の高い研究所の構築を目指して、人事の流動化をさらに促進するためにこの制度を導入することとなった。平成13年4月1日以降採用の助手から「任期7年、再任可(再任の場合の任期は3年)」として採用することになった。

研究所の運営については各種委員会が設置され、そこで議論されたことは教授懇談会と教授会に反映されている。この様にして、すべての教授が研究所の運営に関与している。産研としては、こうした運営方式がこれまでは最善であったと思われる。しかし、国立大学独立行政法人化後には、迅速な意志決定や将来に向けての戦略などが要求されるようになることを考え、運営方式を新たな形に変革しつつある。

(2) 研究の予算、設備、研究活動

研究設備、装置類については比較的恵まれているが、幸いにも平成11年度の補正予算で第二研究棟(6,660 m²)の新築が認められた。13年の秋には第二研究棟竣工記念式典を行った。15年度にはナノテクノロジー研究棟が竣工されている。今後は老朽化の著しい第一研究棟の改築が大きい

な課題である。

放射線実験所と高次インターマテリアルセンターを改組し、産業科学ナノテクノロジーセンターが14年4月1日より発足した。新たに2名の教授が加わり総勢20名という組織でナノサイエンスとナノテクノロジーの研究がスタートした。さらに、21世紀COE拠点「新産業指向インターナノサイエンス」として活発な研究をすすめている。

研究活動については、各教官は中核的研究拠点(COE) 戦略的基礎研究事業、未来開拓研究などに採用されており、大きなスケールの研究が進行している。

(3) 教育活動

教育活動では、大学院の理学、工学、基礎工学、薬学、生命機能、情報科学などの研究科から約200名の院生を受け入れ、研究現場におけるユニークな教育を行って世に送り出している。RAを採用しており、院生としてさらに研究に密着できる体制となっている。国際学会出席援助や著名外国人の招待セミナー、国際シンポジウムなどを通じて院生教育の国際化を図っている。各教官は学部の教育や共通教育機構の教育にも要請に応じて関与している。このような教育活動に加えて、今後、さらに産研でなければ出来ない研究者教育を考えようとしている。

(4) 社会との連携、社会貢献

学会での発表や役員就任など所員による学界活動は積極的に行なわれている。産業界との連携は個人的な接触が多いが、研究所としては会員制の産研テクノサロンを平成10年度にスタートさせている。産研テクノサロンに参加する会員企業数は年を追うにしたがい増加しており、特色ある産学交流の場としての役割を果たしつつある。また、平成12年度には研究所で生まれた科学技術のシーズを公開して、関心のある企業が参加して事業化を目指す目的で「新産業創造研究会」を設置した。15年度は5テーマについて研究会が行われた。研究会の中から企業化へという方向も出てきている。

(5) 国際交流

数多くの外国人研究者、外国人客員教授や留学生(平成15年度は総計31名)を受入れている。さらに外国人研究者を増やす努力をしている。研究所としては毎年一回国際交流パーティーを開くとともに、留学生の要望を積極的に取り入れるように努めている。

研究所主催の国際会議は平成9～14年度に続いて、平成15年度も3回開催した。研究所から世界に向けて情報を発信し、外国の研究者と意見交換を行なう場を持つ意義は大きい。

(6) 将来計画

平成10年度に行われた外部評価において、当研究所の将来計画を策定する必要性が指摘された。これを受けて、平成11年度に将来計画委員会において研究所の将来像について検討を行ない、まとめた。この将来像は研究所の基本的なビジョンとなっており、16年度からの独立法人化における中期目標と中期計画に反映させていく所存である。

産業科学研究所の将来像

1) 総論

産業科学研究所においては(1)社会的・経済的ニーズに応じた研究の推進と、(2)長期的な

ビジョンの上に立った基礎研究を行う。これは科学技術基本法にうたわれている研究推進の基本方向と一致するものである。すなわち「産業に必要な先端的事項を基礎科学及び応用科学の立場で研究し」、同時に「各専門分野の研究を深化させ異分野にわたる融合学際型研究を推進し」、「新しい研究分野を拓いていける人材を育成していく」。これによって、トップレベルの研究所として世界に発信する。研究課題の項に述べるように、研究体制の機動性とプロジェクトの学際性において特徴を持つ研究を発展させる。さらに、大阪大学の一員として、大学院各研究科との密接な関係を維持しつつ、レベルの高い研究者教育に貢献する。

2) 研究課題

産研が対象とする3つの領域「材料」、「情報」、「生体」に属するそれぞれの分野が国内外に類例のない超一流の研究を推進する。同時に、これを踏まえて、3つの領域の融合した研究を行う(異分野間・異部門間の共同研究)。21世紀には分析的な個別科学から統合的な予測の科学が求められる。このような視点から諸分野を融合させた新しい科学を立ち上げ、積極的に推進を図る。異分野の研究室が同じ建物にあり、常に討論する学問的な雰囲気のある産研には新しい融合科学を生み出す素地がある。量子ビーム科学、生命物質科学、宇宙科学、生命情報科学、複合材料科学、量子機能科学、分子機能科学、環境科学、知識科学、ヒューマンインタフェース科学、ナノテクノロジー、バイオコンピューティング、などがキーワードとなる。

さらに他部局、他大学、国公立の研究機関、外国の研究機関などとの共同研究を推進する。また、産業界との目的指向型の共同研究にも参画する。産研が主体となる共同研究は各分野の世界第一級の実績に基づくものであり、さらに次世代の研究者教育に根ざしており、産研の特徴を生かしたものである。

3) 運営

「材料」、「情報」、「生体」を対象とするそれぞれの分野の行う超一流の研究、異分野間/異部門間の融合研究、この二つが高い効率で推進される運営体制をとる。人材と予算については基本的な配分と同時に、研究の成果および計画の独創性と先導性を評価した傾斜配分を行う。評価には評価委員会の審議を経て教授会が当たる。

さらに異分野間融合プロジェクト研究室を設け、プロジェクトの先導性により優先的使用をきめる。社会的インパクトが高く、産研の目玉となるような基礎または応用研究を一定の年限で行うプロジェクト(数プロジェクト程度)を随時設け、人、予算、研究スペースなどの面で全所的に支援する。同時に制度としてプロジェクトを目的とする研究分野を設ける。プロジェクト研究分野の教官には任期を設ける。さらに、ポストドクトラルフェローを増員し、また制度として、国際ポストドクトラルコースを設け、レベルの高い研究者の養成に努める。

4) 教育、社会的貢献

大学附置研究所としての大きな任務の一つは研究の現場に於いてレベルの高い研究者を養成する事である。産研におけるそれぞれの分野の研究と異分野融合プロジェクトに参画させることによって、大学院生及びポストドクトラルフェローを教育し、次世代の研究者を国内外の大学と産業界に供給する。同時に国内外より研究者を招きセミナーとシンポジウムを開催し研究成果の普及と国際貢献に努める。

20世紀の科学者は専門に閉じこもりがちであり、知識と成果を社会に還元する姿勢に欠けてい

た。その結果、社会は最終的な工業製品の恩恵は受けてはいるものの、製品を可能にした技術と基礎科学に対する興味と理解とをほとんど示さなかった。これと対応するかのように高校生の理科離れと理工系学生の学力低下が指摘されている。これは次の世代の科学と社会の発展にとって好ましい事ではない。このような認識に立ち、産業科学研究所の各研究分野は所属する大学院研究科の指導教官として大学院教育に積極的に参加する。21世紀には社会人に対するレベルの高い科学教育が必要になることも自明である。これらに対して、産研の特徴を生かし、積極的に関与する。

(5) 産業界との連携

各分野は基礎研究、応用研究を通じて積極的に21世紀の産業への貢献を目指す。産業界との連携は21世紀の産業科学研究所という組織において、特に重要になると予想される。研究所としては研究成果、取得特許、量子ビーム発生装置を初めとする大型装置、材料解析センター、等をホームページを通して公開し、産業界の利用に供する。産業界の要求に対処し実質的な関係を積極的に押し進める研究を研究所として重点的に支援する。同時に産業界より客員教授を招きニーズとシーズを通じ産業界との連携を強める。さらに、産研協会や産研テクノサロンを活性化し、産業界との密接な関係を維持し発展させる。

(広報委員)

委員長	(教 授)	菅 沼 克 昭
委 員	(")	田 川 精 一
	(助 教 授)	和 田 洋
	(助 手)	稲 葉 晶 子
	(")	須 藤 孝 一
	(")	高 井 嘉 雄
	(")	池 田 輝 之
	(")	川 井 清 彦
	(")	小 林 一 雄
	(総務課長)	井 上 清 光

は、編集作業に当たった委員

[附 1] 各研究分野の組織と活動

[附 2] 各附属研究施設の組織と活動

[附 3] 共通施設、技術室、事務部の組織と活動

(注) 各研究分野等の所属者については、平成 15 年度に在籍した者を全て収録した。
なお、年度途中の異動者については()書きで、その異動日を表した。

〔附 1〕各研究部門の組織と活動

量子機能科学研究部門

概要

電子、光子が量子的な振る舞いを顕著に示す舞台を自在に作る事が出来ると、これまでは不可能であった高度な計算や情報処理を行う電子素子、光素子、スピン素子を作ることが可能となる。またこのような性質を織り込んだ材料設計を行うことにより、これまでになかった物性をもった材料を創製することが可能となる。量子機能科学研究部門では、表面物理、電子・光分光法、薄膜・結晶成長、半導体物理、計算物理などをベースとして、主として半導体を中心に、ナノメートルレベルの構造・新材料の設計と創製・評価に関する研究を行い、量子機能を利用した高性能素子や新しいセンサ・メモリ素子の実現を目指している。本研究部門は、「量子分子デバイス」、「光・電子材料」、「半導体量子科学」の実験系3研究分野と、「量子物性」の理論系1研究分野からなっている。

各研究分野が開発している特色ある研究領域・手法は、表面物理、特に半導体表面・界面の原子的および電子的構造、走査プローブ法を用いたナノ加工プロセス、シリコン基板上に生体分子などを配列させるプロセス、分子線結晶成長法を中心とした化合物半導体系の材料合成、低次元量子構造の自己組織的形成、電子分光法・フォトルミネセンス法を中心技術とした評価、電気伝導などの電氣的評価、新物質物性予測と創製プロセス開発が可能な第1原理計算、量子シミュレーションなどである。

これらの研究手法を総合すると、半導体から有機超分子の広範な材料を用いた多岐にわたる材料設計・合成、ナノ加工が可能なナノファクトリーを形成している。このナノファクトリーを駆使することにより、新物質の創製、高性能デバイス、量子デバイスの開発および超五感・生体指向センサ・メモリの開発に関する研究を推進している。具体的には、電子励起原子移動による半導体中不純物欠陥の制御と物理、ナノスケール磁性半導体によるスピンと電荷の制御と光磁気効果の物質設計、カーボンナノチューブの物性制御とそれを用いた単電子トランジスタの作成、量子ドット・細線の形成と評価、光子と電子波の量子相互作用等の量子物性、量子電子デバイス・量子光デバイス・スピントロニクスデバイスの基礎、バイオ・化学イメージセンサの開発、DNA コンピューティングなどの研究を行っている。併せて、材料、情報、生体の学際的な研究テーマも推進している。

成果

- ・シリコン表面の原子ステップのゆらぎの解析による表面原子ステップの熱力学的研究
- ・バイオ・化学イメージセンサの高性能化と応用
- ・AFM を用いた半導体表面ナノ加工プロセスの開発
- ・半導体-半金属混晶 TI 系新半導体の成長と温度安定波長半導体レーザへの応用
- ・新磁性半導体、窒化物混晶半導体の成長と評価
- ・高密度量子ドット及び磁性原子を含む量子ドットなどの半導体量子構造の形成と物性評価
- ・シリコン表面に形成されたナノ pn 接合観察とバイアス依存等による電氣的性質の評価
- ・カーボンナノチューブの物性制御と単電子トランジスタの作成
- ・II-VI 族半導体 CdSe 量子構造の形成と評価
- ・第1原理計算による半導体や蛋白質を母体とした遷移金属や f 電子系化合物等の新機能性材料のマテリアルデザイン
- ・高効率エネルギー変換材料（太陽電池材料、熱電材料）のマテリアルデザイン
- ・放射光等による電子励起原子移動過程の量子シミュレーション及び新物質の創製プロセスデザイン

量子分子デバイス研究分野

教授	岩崎 裕
助教授	吉信 達夫
助手	足立 敏之、須藤 孝一
博士研究員	文 元鐵、亀谷 圭介、Hongwen Liu
研究支援推進員	井上 森雄
大学院学生	栗林 均、宇井 靖人、木村 考伸、宮田 譲、藤村 英明
事務補佐員	梶井 文

a) 概要

21世紀を迎え、より人にやさしくまた高度に情報化された社会の実現が期待され、これらを可能とするデバイスが要求される。こうした要請を念頭に置いて、本研究分野は、主として半導体の量子機能とタンパク質、DNA等の分子機能を利用したデバイスを開発することを目的としている。具体的には、シリコン表面上のナノ構造を制御するための原子ステップの研究、次世代LSIにとって重要なシリコン/酸化膜界面の研究、量子ドット等の量子構造を形成する研究、AFM, STM, 分光エリプソメトリによるタンパク質の研究、微小構造化媒質における化学反応波に関する研究、半導体を用いた化学イメージセンサの開発と応用に関する研究を行っている。これらの系に共通するナノ～メソスコピックスケールにおける自己組織的な振る舞いに関しても系統的な研究を行っている。

b) 成果

・Si(111)表面におけるCaF₂の層成長に関する研究

超高真空走査トンネル顕微鏡を用いて、Si(111)表面における1分子層以下のCaF₂膜の層成長について調べ、ステップフロー成長から2次元核成長への成長様式変化のしくみを明らかにした。

・SrTiO₃(001)表面におけるステップの性質に関する研究

超高真空STMを用いて、SrTiO₃(001)表面上のステップの性質について調べた。テラス幅分布の解析から、ステップ間には、長距離で斥力的相互作用、短距離では引力的相互作用が働いていることを明らかにした。

・シリコン基板上に形成したトレンチ構造の水素アニールによる変形に関する研究

シリコン基板上に形成したトレンチ構造の高温水素アニールによる変形機構について調べた。トレンチの角の曲率の加熱時間依存性から、トレンチの変形が表面拡散によって起こっていることを明らかにした。また、Mullinsの理論に基づいた高温水素アニールによる構造変化のシミュレーションを実現した。

・AFM陽極酸化を用いたシリコン表面への生体分子の微細パターンニング

AFM探針によるシリコン表面の陽極酸化プロセスを用いて作製したシリコン酸化物パターンをテンプレートとして、タンパク質やDNA分子の微細パターンニングを行うプロセスを開発した。

・AFM, STM, 走査分光エリプソメトリによるタンパク質の研究

AFM, STM(大気中)を用いて、フェリチン、シュドアズリンなどの構造やトンネル像を観察している。また、分光エリプソメトリを用いてタンパク質間相互作用を調べている。これらは、谷澤研、鈴木研(理学部)との共同研究として行っている。

・化学イメージセンサのマイクロ流体デバイスへの応用

試料中のイオン濃度の空間分布を画像化することができる半導体化学イメージセンサを用いて、マイクロ流路中のイオン濃度の分布や時間変化を測定できるシステムを試作した。

[原著論文]

AFM Fabrication of Oxide Patterns and Immobilization of Biomolecules on Si Surface, T. Yoshinobu, J. Suzuki, H. Kurooka, W.-C. Moon and H. Iwasaki: *Electrochimica Acta*, 48 (2003) 3131-3135.

Shape Transformation of Silicon Trenches during Hydrogen Annealing, H. Kuribayashi, R. Hiruta, R. Shimizu, K. Sudoh and H. Iwasaki: *J Vac Sci Technol A.*, 21(2003) 1279-1283.

The Double K^+/Ca^{2+} Sensor Based on Laser Scanned Silicon Transducer (LSST) for Multi-Component Analysis, Yu. Ermolenko, T. Yoshinobu, Yu. Mourzina, K. Furuichi, S. Levichev, M.J. Schöning, Yu. Vlasov and H. Iwasaki: *Talanta*, 59 (2003) 785-795.

Anion-Selective Light-Addressable Potentiometric Sensors (LAPS) for the Determination of Nitrate and Sulphate Ions, Yu. G. Mourzina, Yu. E. Ermolenko, T. Yoshinobu, Yu. Vlasov, H. Iwasaki and M.J. Schöning: *Sensors and Actuators B.*, 91 (2003) 32-38.

Detection of Protein-Protein Interactions on SiO_2/Si Surfaces by Spectroscopic Ellipsometry, S. Kodera, T. Okajima, H. Iwabuki, D. Kitaguchi, S. Kuroda, T. Yoshinobu, K. Tanizawa, M. Futai and H. Iwasaki: *Analytical Biochemistry*, 321 (2003) 65-70.

K^+ -Selective Field-Effect Sensors as Transducers for Bioelectronic Applications, Yu. Mourzina, Th. Mai, A. Poghossian, Yu. Ermolenko, T. Yoshinobu, Yu. Vlasov, H. Iwasaki and M.J. Schöning: *Electrochimica Acta*, 48 (2003) 3333-3339.

Portable Light-Addressable Potentiometric Sensor (LAPS) for Multisensor Applications, T. Yoshinobu, M.J. Schöning, R. Otto, K. Furuichi, Yu. Mourzina, Yu. Ermolenko and H. Iwasaki: *Sensors and Actuators B.*, 95 (2003) 352-356.

Investigation on Light-Addressable Potentiometric Sensor as a Possible Cell-Semiconductor Hybrid, A.B.Md. Ismail, T. Yoshinobu, H. Iwasaki, H. Sugihara, T. Yukimasa, I. Hirata and H. Iwata: *Biosensors and Bioelectronics*, 18 (2003) 1509-1514.

Flow-Velocity Microsensors Based on Semiconductor Field-Effect Structures, A. Poghossian, T. Yoshinobu and M.J. Schöning: *Sensors*, 3 (2003) 202-212.

Step Dynamics in Faceting on Vicinal Si(113) Surfaces, K. Sudoh and H. Iwasaki: *J. Phys: Cond. Mat.*, 15 (2003) S3241-S3253.

Ambient STM and in-situ AFM Study of Nitrite Reductase Proteins Adsorbed on Gold and Graphite, S. Antoranz Contera, H. Iwasaki and S. Suzuki: *Ultramicroscopy*, 97 (2003) 65-72.

Nanolithography on SiO_2/Si with a Scanning Tunnelling Microscope, H. Iwasaki, T. Yoshinobu and K. Sudoh: *Nanotechnology*, 14 (2003) R55-R62.

[国際会議]

Multi-Analyte LAPS Based on Photocurable Polymeric Membranes, T. Yoshinobu, Yu. Ermolenko, Yu. Mourzina, H. Iwasaki, Yu. Vlasov, *M. J. Schöning 3. BioSensorSymposium (BSS2003), Potsdam, Germany, Mar. 30-Apr. 2, 2003.

Multi-Component Analysis Based on the Light-Addressable Potentiometric Sensor (LAPS), *T. Yoshinobu, H. Iwasaki, Y. Ermolenko, Y. Mourzina, Y. Vlasov and M. J. Schöning, Sensor 2003, Nürnberg, Germany, May 13-15, 2003.

Flow-Velocity Microsensors Based on Semiconductor Field-Effect Structures, *A.Poghossian, T. Yoshinobu and M. J. Schöning, International Symposium on Sensor Science (I3S), Paris, France, Jun. 16-20, 2003.

Amorphous Silicon as Semiconductor Material for High Resolution LAPS, *W. Moritz, T. Yoshinobu, F. Finger, S. Krause and M. J. Schöning, 17th European Conference on Solid-State Transducers (Eurosensors XVII), Guimaraes, Portugal, Sep. 21-24, 2003.

A Multisensor Based on Laser Scanned Silicon Transducer (LSST): Development and Properties, Yu. Ermolenko, *T. Yoshinobu, Yu. Mourzina, M.J. Schöning, Yu. Vlasov and H. Iwasaki, 17th European Conference on Solid-State Transducers (Eurosensors XVII), Guimaraes, Portugal, Sep. 21-24, 2003.

Thin-Film a-Si LAPS: Preparation and pH Sensitivity, *T. Yoshinobu, M. J. Schöning, F. Finger, W. Moritz and H. Iwasaki, 17th European Conference on Solid-State Transducers (Eurosensors XVII), Guimaraes, Portugal, Sep. 21-24, 2003.

Formation of Aligned SiC Dots on Vicinal Si(111) Using CaF₂ Masks (Poster), *K. Kametani, K. Sudoh and H. Iwasaki, The 7th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures (ACSIN-7), Nara, Japan, Nov. 16-20, 2003.

Evolution of Surface Morphology of Si-Trench Sidewalls during Hydrogen Annealing, *R. Hiruta, H. Kuribayashi, R. Shimizu, K. Sudoh, and H. Iwasaki, The 7th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures (ACSIN-7), Nara, Japan, Nov. 16-20, 2003.

Effect of Hydrogen Ambient on Corner Rounding of Silicon Trench during High Temperature Annealing (Poster), *H. Kuribayashi, R. Hiruta, R. Shimizu, K. Sudoh and H. Iwasaki, The 7th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures (ACSIN-7), Nara, Japan, Nov. 16-20, 2003.

In situ Observation and Analysis of Step Structures on Tetragonallysozyme (110) Surface during Crystal Growth (Poster), *K. Kimura, T. Yoshinobu, K. Sudoh and H. Iwasaki, The 7th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures (ACSIN-7), Nara, Japan, Nov. 16-20, 2003.

In situ Observation and Analysis of Step Structures on Tetragonal Lysozyme (110) Surface during Crystal Growth (Poster), *K. Kimura, T. Yoshinobu, K. Sudoh and H. Iwasaki, International

Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Biomolecules Patterning on Si Surface by AFM Oxidation (Poster), *W. C. Moon, T. Yoshinobu, A. Nishikawa and H. Iwasaki, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Light-Addressable Potentiometric Sensor for Detection of Ion Distribution in Microfluidic Channel (Poster), *Y. Ui, T. Yoshinobu and H. Iwasaki, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Step Kinetics in Step-Flow Growth of CaF_2 on Si(111) (Poster), *Y. Miyata, K. Sudoh, K. Kametani and H. Iwasaki, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

An STM Study of Step Distributions on $\text{SrTiO}_3(001)$ Surfaces (Poster), *K. Sudoh and H. Iwasaki, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Patterned Surface as a Template for DNA-Based Nanotechnology, W.C. Moon, * A. Nishikawa, T. Yoshinobu and H. Iwasaki, 2003 Congress on Evolutionary Computation (CEC 2003), Canberra, Australia, Dec. 8-12, 2003.

[国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員]

岩崎 裕	Scanning Probe Microscopy, Sensors and Nanostructures 2003 (組織委員)
岩崎 裕	7th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures (組織委員)
岩崎 裕	Applied Surface Science special issue: Proceedings of 7th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures (guest editor)
吉信 達夫	7th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures (steering committee)
須藤 孝一	7th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures (出版委員)

[国内学会]

計測自動制御学会	2 件
応用物理学会	9 件
日本物理学会	3 件
電気化学会	1 件

[取得学位]

修士 (工学)	
宇井 靖人	半導体化学センサによるマイクロ流路内のイオン濃度分布測定
木村 考伸	卵白リゾチーム結晶成長に関する研究
宮田 讓	Si(111)表面における CaF_2 薄膜の層成長に関する研究

[科学研究費補助金]

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

基盤研究(C)(2)

吉信 達夫 マルチイオンイメージング装置の開発と生物試料への応用 900

若手研究(B)

須藤 孝一 金属酸化物表面におけるステップの熱力学・動力学的性質の解明 600

[受託研究]

岩崎 裕 先端医療振興財団 細胞の2,3-D ディスプレイとその次世代分析システムへの展開 4,437

光・電子材料研究分野

教授	朝日 一
助教授	長谷川 繁彦
助手	江村 修一、周 逸凱
博士研究員	李 西軍、Shanthi SUBASHCHANDRAN
大学院学生	森 淳、橋本 政彦、李 輝宰、藤原 淳志、金 武成 今田 明範、大角 祐介、田中 浩之、西田 聡佑、 木村 重哉、島田 隆司、土井 航、向井 俊和、宗像 宏典、山下 剛司
研究生	崔 誠佑
事務補佐員	菊本 記子

a) 概要

21世紀に大きく展開する科学技術の一つは情報通信に関するものである。情報伝達・処理を担うものは光と電子であり、これにその働きを与える物質・材料である。当研究分野は光・電子さらにスピントロニクスに関連する材料を半導体を中心に研究している。材料研究の4段階すなわち材料設計、材料合成(結晶成長)/加工、材料評価(物性)、デバイス応用について、時期により重点の置きどころは異なるが、一つの流れとして研究を進めている。材料設計は、原子・分子の組み合わせを変えて必要な特性を得る研究を行っている。材料合成/加工は、原子・分子を適当な条件下で基板に入射させる分子線結晶成長法を中心として行っている。材料評価の研究は、X線やSTM、EXAFS等を用いた構造評価、光の吸収、反射、発光等の光学的評価や電気伝導等の電气的評価、SQUID等の磁性評価などを中心に行っている。デバイス応用については、レーザ等の光デバイス、電界電子放射素子等の電子デバイス、さらにスピントロニクスデバイスの基礎となる研究を行っている。

b) 成果

・希薄磁性半導体の結晶成長と物性

半導体と磁性体という2つの性質をあわせもつ希薄磁性半導体は新しい機能を発現できる材料として注目されている。当研究室ではInMnAsSb/InSb新材料ヘテロ構造を考案し、中赤外域での光誘起強磁性(センサメモリ機能)を実現している。平成13年度には、GaNベースの磁性半導体GaCrNの成長に成功し、室温強磁性を実現した。平成14年度には、GaCrNから室温PL発光を観測し、希土類原子を添加したGaGdN、GaEuNにおいても室温強磁性成分のあることを見出した。平成15年度には、成長条件の最適化を進めるとともに、DyN/GaN超格子構造でのスピントネル特性の観測、放射光を用いたXAFS測定によりCr Gd等の磁性原子がGaサイトを置換していることの確認、その際の価数の把握、時間分解PLによる発光寿命測定による発光機構の解明などで前進があった。RIEエッチングによりGaCrNが加工できることを確認し、次年度のスピントロニクスデバイス作製の基盤を築いた。

・半導体-半金属混晶(TI系新半導体)の結晶成長、評価とデバイス応用

禁制帯幅(波長領域)が温度によって変化しない新しい材料としてTI系材料TlInGaP, TlInGaAsを平成7年に当研究室が提案し、分子線結晶成長法による結晶成長検討から始めて、物性評価、デバイス応用の研究を行っている。TI組成の少ない領域での成長に成功し、TlInGaAs/InPヘテロ構造において、PL発光波長、EL発光波長の小さな温度依存性を確認した。平成13年度にはTlInGaAs/InPレーザダイオード(LD)でパルス電流注入によるレーザ発振を達成し、平成14年度には発振スペクトルのピーク波長の温度変化が0.06 nm/Kと小さいことを確認した。平成15年度には、LD構造の検討を行うと共に、TlInGaAsの屈折率の温度依存性を測定し、予想どおり屈折率も温度安定化することを確認した。また、しきい値電流、発振波長共に温度安定なLD用材料として提案したTlInGaAs(N)/(Al)GaAs量子井戸構造での発光波長の温度依存性改善を確認した。

・窒化物半導体混晶の結晶成長と物性

III-V 族窒化物半導体は、発光素子や高温素子への応用で注目を浴びている材料であり、研究が進めばより応用が広がる可能性をもっている。今までに、非晶質の石英ガラス基板あるいは金属基板上に多結晶 GaN を成長し、その発光強度が非常に大きいことを示し、多様な応用を提案した。平成 13 年度には、金属基板上多結晶 GaN から良好な電界放射電子放出特性を得た。平成 14 年度は電子親和力のより小さな AlN を表層に形成することにより、特性の改善を得た。平成 15 年度には Si 基板上に GaN ナノロッドの形成を試み、 $1.1 \text{ V}/\mu\text{m}$ と極めて良好な電界放射電子放出特性を得た。フレキシブルで低電圧駆動の電子源への応用が有望であることを示した。

・半導体量子構造の形成と物性

当研究室では GaP/InP 短周期超格子を (N11) 面 GaAs 基板上に成長すると高密度で高配列性の量子ドット構造が自己形成されることを見出し、赤色領域でのレーザ発振を実現した。(N11) 面 InP 基板上に GaAs/InAs 短周期超格子を成長することにより、光情報通信で重要な $1.3\text{-}1.6\mu\text{m}$ で発光する量子ドットを得た。平成 14 年度は短周期超格子層構造のパラメータの調整により精密な発光波長の制御ができることを確認した。平成 15 年度はこの量子ドット構造により、 $1.3\text{-}1.5\mu\text{m}$ での LED を実現した。

・短チャンネル MOSFET のナノ観察と評価

イオン注入角を変えて作製した短チャンネル MOSFET 断面を走査型トンネル顕微鏡 (STM) により評価した。エクステンションのサイズや形状、エクステンションとゲートとのオーバーラップ長などといったデバイス構造を STM で可視化できることを示した。また、作製条件と作製したデバイス構造との関係をナノスケールで評価できることを示した。

[原著論文]

New III-V-based magnetic semiconductors and quantum nano-structures, H. Asahi: J. Korean Phys. Soc.42 (2003) S499-S503.

Magnetic and optical properties of GaMnN grown by ammonia source molecular beam epitaxy, M. Hashimoto, Y.K. Zhou, H. Tambo, M. Kanamura and H. Asahi: J. Cryst. Growth, 252 (2003) 499-504.

MBE growth and properties of GaCrN, M. Hashimoto, Y.K. Zhou, M. Kanamura, H. Katayama-Yoshida and H. Asahi: J. Cryst. Growth, 251 (2003) 327-330.

Gas source MBE growth of TlInGaAs/InP laser diodes and their room temperature operation, H.J. Lee, A. Fujiwara, A. Imada and H. Asahi: J. Cryst. Growth 251 (2003) 800-803.

Room Temperature Ferromagnetism in III-V-Based Diluted Magnetic Semiconductor GaCrN Grown by ECR Molecular-Beam Epitaxy, Y.K. Zhou, M. Hashimoto, M. Kanamura, H. Asahi: Journal of Superconductivity: Incorporating Novel Magnetism 16(1) (2003) 37-40.

New III-V-based magnetic semiconductors and their optical and magnetic properties, H. Asahi, Y.K. Zhou, M. Hashimoto, R. Asano and H. Tanaka: Proc. of SPIE 4999 (2003) 221-228.

Tunable Synchrotron Radiation Used to Induce Emission from the 31 Year Isomer of ^{178}Hf , C.B. Collins, N.C. Zoita, A.C. Rusu, M.C. Iosif, D.T. Camase, F. Davanloo, S. Emura, T. Uruga, R.

Dussart, J.M. Pouvesle, C.A. Ur, I.I. Popescu, V.I. Kirischuk, N.V. Strichuk, and F.J. Agee: *Europhys. Lett.*, 57 (2002) 677-682.

Formation of $Ce_{1-x}Pd_xO_2$ - Solid Solution in Combustion Synthesized Pd/CeO₂ Catalyst: XRD, XPS and EXAFS Investigation, K.R. Priolkar, P. Bera, P.R. Sarode, M.S. Hegde, S. Emura, R. Kumashiro, and N.P. Lalla: *Chem. Mater* 14 (2002) 2120-2128.

Structural Investigation of Combustion Synthesized Cu/CeO₂ Catalyst by EXAFS and Other Physical Techniques: Formation of a $Ce_{1-x}Cu_xO_{2-\Delta}$ Solid Solution, P. Bera, K.R. Priolkar, P.R. Sarode, M.S. Hegde, S. Emura, R. Kumashiro, and N.P. Lalla: *Chem. Mater.* 14 (2002) 3591-3601.

Structure Analysis of Ag-In-Sb-Te Phase-change Material, H. Tashiro, M. Harigaya, Y. Kageyama, K. Ito, M. Sinotsuka, K. Tani, A. Watada, N. Yiwata, Y. Nakata and S. Emura: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 41 (2002) 3758-3759.

Study of Local Environment of Ag in Ag/CeO₂ Catalyst by EXAFS, P.R. Sarode, K.R. Priolkar, P. Bera, M.S. Hegde, S. Emura, and R. Kumashiro: *Material Research Bulletin*, 37 (2002) 1679-1690.

Structural Change of $Li_{1-x}Mn_{0.5}Ni_{0.5}O_2$ Cathode Materials for Lithium-Ion Batteries by Synchrotron Radiation, Y. Arachi, H. Kobayashi, S. Emura, Y. Nakata, M. Tanaka, and T. Asai: *Chemistry Letters*. 32 (2003) 60-61.

Crystal Structure and Electronic Transport of Dy@C82, Y. Kubozono, Y. Takabayashi, K. Shibata, T. Kanbara, S. Fujiki, T. Hosokawa, S. Kashino, A. Fujiwara, S. Emura, and T. Uritsu: *Phys. Rev. B*, 67 (2003) 11510-1-8.

Ionic Dispersion of Pt over CeO₂ by the Combustion Method: Structural Investigation by XRD, TEM, XPS, and EXAFS, P. Bera, K.R. Priolkar, A. Gayen, P.R. Sarode, M.S. Hegde, S. Emura, R. Kumashiro, V. Jayaram, and G.N. Subbanna: *Chem. Mater.* 15 (2003) 2049-2060.

Scanning tunneling microscopy study on stacking processes of InAs dots on GaAs(001), S. Hasegawa, O. Suekane, and H. Nakashima: *Phys. Stat. Sol. (c)* 0, No.4 (2003) 1125-1128.

Scanning tunneling microscopy study of GaAs overgrowth on InAs islands formed on GaAs(001), S. Hasegawa, O. Suekane, M. Takata, and H. Nakashima: *J. Crystal Growth* 251 (2003) 161-165.

Electric field emission from nitride semiconductor grown on Mo substrate, S. Nishida, T. Yamanaka, S. Hasegawa and H. Asahi: *Phys. Stat. Sol. (c)* 0(7) (2003) 2416-2419.

Local structure of rare-earth-doped diluted magnetic semiconductor GaGdN, M. Hashimoto, S. Emura, R. Asano, H. Tanaka, Y.K. Zhou, N. Teraguchi, A. Suzuki, Y. Nanishi, T. Honma, N. Umesaki and H. Asahi: *Phys. Stat. Sol. (c)* 0(7) (2003) 2650-2653.

Optical and magnetic properties of DyN/GaN superlattice, Y.K. Zhou, N. Teraguchi, M. Hashimoto, H. Tanaka, A. Suzuki, Y. Nanishi, and H. Asahi: *Phys. Stat. Sol.(b)* 240(2) (2003) 440-442.

Magnetic properties of rare-earth-doped semiconductor GaEuN, H. Tanaka, M. Hashimoto, R. Asano, Y. K. Zhou, H. Bang, K. Akimoto, H. Asahi: Phys. Stat. Sol. (c)0(7) (2003) 2864-2868.

Magnetic properties of Eu-doped GaN grown by plasma-assisted molecular beam epitaxy, M. Hashimoto, A. Yanase, R. Asano, H. Tanaka, H. Bang, K. Akimoto and H. Asahi: Jpn. J. Appl. Phys. 42 (10A) (2003) L1112-L1115.

Reduced temperature-dependence of refractive-index in TlInGaAs quaternary alloys grown on InP substrates, A. Imada, H.-J. Lee, A. Fujiwara, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi: J. Appl. Phys. 94(10) (2003) 6976-6978.

Observation of small temperature variation of longitudinal-mode peak wavelength in TlInGaAs/InP laser diodes, A. Fujiwara, H.J. Lee, A. Imada, S. Hasegawa and H. Asahi: Jpn. J. Appl. Phys. 42 (11B) (2003) L1359-L1361.

Temperature-Insensitive Wavelength TlInGaAs Semiconductor Lasers, S. Gonda, H. Asahi, A. Fujiwara and H.J. Lee: Recent Research Developments in Applied Physics 6 (2003) 649-661.

Ionic Dispersion of Pt over CeO₂ by the Combustion Method: Structural Investigation by XRD, TEM, XPS, and EXAFS, P. Bera, K.R. Priolkar, A. Gayen, P.R. Sarode, M.S. Hegde, S. Emura, R. Kumashiro, V. Jayaram, and G.N. Subbanna: Chem. Mater. 15 (2003) 2049-2060.

Two-dimensional characterization of carrier concentration in metal-oxide-semiconductor field-effect transistors with the use of scanning tunneling microscopy, H. Fukutome, H. Arimoto, S. Hasegawa, and H. Nakashima: J. Vac. Sci. Technol. B 22 (2004) 358-363.

[解説、総説]

遷移金属および希土類元素を添加した室温強磁性窒化物半導体、朝日一、周逸凱: 大阪大学低温センターだより 124 (2003) 18-21.

応用電子物性分科会, 朝日一: 応用物理、72 [5] (2003) 624-625.

Present and Future Views of Division of Solid State Physics and Applications, H. Asahi: JSAP International 8 (2003) 3

[著書]

「新訂版・薄膜作製応用ハンドブック」第2編 第2章 第2節: 分子線エピタキシー法、朝日一: エヌ・ティ・エス (2003) 288-305.

[国際会議]

New III-V-based magnetic semiconductors and their optical and magnetic properties (Invited), *H. Asahi, Y.K. Zhou, M. Hashimoto, R. Asano and H. Tanaka, SPIE Optoelectronics 2003 International Symposium, San Jose, CA, USA, Jan. 25-31, 2003.

Temperature-dependence of lasing spectrum for TlInGaAs/InP DH laser diodes and 77K CW operation, *A. Fujiwara, H.J. Lee, A. Imada and H. Asahi, 15th International Conference on Indium

Phosphide and Related Materials, Santa Barbara, California, USA, May 12-16, 2003.

Optical properties of the quantum dot structures self-formed in GaAs/InAs short-period superlattices grown on InP(411)A substrates, *J. Mori, T. Nakano, S. Hasegawa and H. Asahi, 15th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials, Santa Barbara, California, USA, May 12-16, 2003.

Structural and magnetic properties of rare-earth-doped diluted magnetic semiconductor GaGdN, *M. Hashimoto, S. Emura, R. Asano, H. Tanaka, Y.K. Zhou, N. Teraguchi, A. Suzuki, Y. Nanishi, T. Honma, N. Umesaki and H. Asahi, 5th International Conference on Nitride Semiconductors, Nara, Japan, May 25-31, 2003.

Optical and magnetic properties of DyN/GaN superlattice, *Y.K. Zhou, N. Teraguchi, M. Hashimoto, H. Tanaka, A. Suzuki, Y. Nanishi, and H. Asahi, 5th International Conference on Nitride Semiconductors, Nara, Japan, May 25-31, 2003.

Magnetic properties of rare-earth-doped semiconductor GaEuN, *H. Tanaka, M. Hashimoto, R. Asano, Y. K. Zhou, H. Bang, K. Akimoto, H. Asahi, 5th International Conference on Nitride Semiconductors, Nara, Japan, May 25-31, 2003.

Electric field emission from nitride semiconductor grown on Mo substrate, *S. Nishida, T. Yamanaka, S. Hasegawa and H. Asahi, 5th International Conference on Nitride Semiconductors, Nara, Japan, May 25-31, 2003.

Spectral evidence of high crystallinity with uniform solid solution of Ga_{1-x}Mn_xN, *H. Harima, N. Hasuike, T. Ryoki, E. Kurimoto, M. Hashimoto, Y.K. Zhou, and H. Asahi, 5th International Conference on Nitride Semiconductors, Nara, Japan, May 25-31, 2003.

X-ray Absorption Studies of Combustion Synthesized Cu/CeO₂ Catalysts, *K.R. Priolkar, P. Bera, P.R. Sarode, M.S. Hegde, S. Emura, and R. Kumashiro, International Symposium on Recent Advances in Inorganic Materials, India Institute of Technology Bombay, Mumbai, India, Dec. 11-13, 2002.

Size Effect on X-ray Absorption Spectra of Iron Nitride Nano Particles, *T. Nakagawa, M. Kano, K. Nishimaki, T. Yamamoto, and S. Emura, 6th International Conference on Nanostructured Materials, Orlando, Florida, USA, Jun. 16-21, 2002.

High-temperature structure of Sc₂O₃-doped ZrO₂, *Y. Arachi, M. Suzuki, T. Asai, S. Emura, T. Kamiyama, and F. Izumi, 14th International Conference on Solid State Ionics, Monterey, California, USA, Jun. 22 – 27, 2003.

Possibility of XAFS Spectra Detection by NEET – Nuclear XAFS -, *S. Emura, Carl B. Collins, N.C. Zoita, A.C. Rusu, F. Davanloo, T. Uruga, Y. Yoda, J.M. Povesle, C.A. Ur, I.I. Pepescu, V.I. Kirischuk, N.V. Strilchuk, and F.J. Agee, 12th International Conference on X-ray Absorption Fine Structure, Malmö, Sweden, Jun. 22-27, 2003.

Local Environments of Cu⁺ in Dilute System NaCl:Cu⁺ and the first Principal Calculation of Its environment, *S. Emura and Y. Nakata, 12th International Conference on X-ray Absorption Fine Structure, Malmö, Sweden, Jun. 22-27, 2003.

Orbital Ordering in Pr_{0.5}Sr_{0.5}MnO₃: Pr K-edge XAFS Study, *K.R. Priolkar, V.D. Kulkarni, P.R. Sarode, R. Kumashiro, and S. Emura, 12th International Conference on X-ray Absorption Fine Structure, Malmö, Sweden, Jun. 22 -27, 2003.

Pseudo Jahn – Teller Effect Observed in Eu@C₆₀, *S. Emura, K. Shirai, and Y. Kubozono, 12th International Conference on X-ray Absorption Fine Structure, Malmö, Sweden, June 22 -27, 2003.

XAFS Study on Li_{1-x}Ni_{0.5}Mn_{0.5}O₂ Cathode Material for Lithium-Ion Batteries, *Y. Arachi, H. Kobayashi, S. Emura, Y. Nakata, M. Tanaka, and T. Asai, 12th International Conference on X-ray Absorption Fine Structure, Malmö, Sweden, Jun. 22 -27, 2003.

Site-selective and Valence-selective Structural Analysis around Monovalent Copper-Ion Exchanged in ZSM-5-type Zeolite by Synchrotron-light-induced XEOL Detection Method, *Y. Kuroda, S. Emura, R. Kumashiro, T. Uruga, and M. Nagao, 12th International Conference on X-ray Absorption Fine Structure, Malmö, Sweden, Jun. 22 -27, 2003.

Adsorption Site of Cs⁺ in Smectite Hydrate: Determination by XAFS, *M. Nakano, K.Kawamira, S. Emura, H. Tanida, and K.Uchida, 12th International Conference on X-ray Absorption Fine Structure, Malmö, Sweden, Jun. 22 -27, 2003.

On XAFS Spectra by the Secondary Processes Detection such as Fluorescence, Photo-conductivity, displacement Current and Photo-electron, *S. Emura, Y. Nakata, Y. Nishuhata, and Y. Ito, 12th International Conference on X-ray Absorption Fine Structure, Malmö, Sweden, Jun. 22 -27, 2003,

1.3-1.6 μm wavelength control of light emission from the quantum dots self-formed in GaAs/InAs short-period superlattices grown on InP(411)A Substrates, *J. Mori, T. Nakano, S. Hasegawa, H. Asahi, 11th International Conference on Modulated Semiconductor Structures, Nara, Japan, Jul. 14-18, 2003.

Electric field emission from nitride semiconductor grown on Mo substrate, *S. Nishida, T. Yamanaka, S. Hasegawa, and H. Asahi, 5th International Conference on Nitride Semiconductors, Nara, Japan, May 25-31, 2003.

Optical properties of the quantum dot structures self-formed in GaAs/InAs short-period superlattices grown on InP(411)A substrates, *J. Mori, T. Nakano, S. Hasegawa, and H. Asahi, 15th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials, Santa Barbara, California, USA, May 12-16, 2003.

Temperature-dependence of lasing spectrum for TlInGaAs/InP DH laser diodes and 77 K CW operation, *A. Fujiwara, H. J. Lee, A. Imada, S. Hasegawa, K. Oe, S. Gonda, and H. Asahi, 15th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials, Santa Barbara, California, USA, May 12-16, 2003.

Two-dimensional characterization of carrier concentration in MOSFETs with the use of scanning tunneling microscopy, *H. Fukutome, H. Arimoto, S. Hasegawa, and H. Nakashima, The 7th Int. Workshop On Fabrication, Characterization, and Modeling Of Ultra-Shallow Doping Profiles In Semiconductors, Santa Cruz, USA, Apr. 27-May 1, 2003.

Delineation of electrostatic potential in 0.1- μm MOSFETs by cross-sectional scanning tunneling microscopy, *S. Hasegawa, T. Okui, and H. Nakashima, 2003 International Conference on Characterization and Metrology for ULSI technology, Austin, USA, Mar. 24-28, 2003.

New III-V-based Magnetic Semiconductors and Their Optical and Magnetic Properties, *H. Asahi, Y.K. Zhou, M. Hashimoto, H. Tanaka, M.S. Kim, S. Emura and S. Hasegawa, Gordon Research Conference on the Chemistry of Electronic Materials, Connecticut College, New London, CT, USA, Jul. 13-18, 2003.

Migration Enhanced Epitaxy (MEE) Growth of Five-Layer Asymmetric Coupled Quantum Well (FACQW) and its Cross-sectional STM Observation, *J.H. Noh, S. Hasegawa, T. Suzuki, T. Arakawa, K. Tada and H. Asahi, Fifth International Workshop on Epitaxial Semiconductors on Patterned Substrates and Novel Index Surfaces (ESPS-NIS), Max-Planck-Institute Stuttgart, Stuttgart, Germany, Oct. 13-14, 2003.

Magnetic, Optical and Transport Properties of Magnetic Semiconductor Heterostructure DyN/GaN, *M.S. Kim, Y.K. Zhou, X.J. Li, and H. Asahi, The 2nd Asian International Symposium on the Science of Engineering Ceramics (EnClera2003, CUP-10), Gamagori, Shizuoka, Nov. 10-12, 2003.

MBE Growth of Magnetic Semiconductor GaCrN and Their Magnetic and Optical Properties, *Y. Osumi, M. Hashimoto, H. Tanaka, Y.K. Zhou, S. Hasegawa and H. Asahi, The 2nd Asian International Symposium on the Science of Engineering Ceramics (EnClera2003, CUP-10), Gamagori, Shizuoka, Nov. 10-12, 2003.

Barrier Height Control for Electron Field Emission by Growing Ultra Thin AlN Layer on GaN/Mo, *S. Nishida, T. Yamashita, S. Hasegawa and H. Asahi, The 7th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures, Nara, Japan, Nov. 16-20, 2003.

Fabrication of Cr-doped GaN/AlN quantum dots by RF molecular-beam epitaxy, *Y. Osumi, H. Munakata, S. Hasegawa and H. Asahi, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003, Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Optical properties of TlInGaAs films grown on (100) InP substrates, *A. Imada, H. J. Lee, A. Fujiwara, T. Mukai, S. Hasegawa and H. Asahi, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003, Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Electric field emission properties of GaN films on Mo substrates, *T. Yamashita, S. Nishida, S. Hasegawa and H. Asahi, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003, Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Optical characterization of new GaN-based ferromagnetic semiconductor GaCrN grown by molecular beam epitaxy, *S. Kimura, Y.K. Zhou, M.S. Kim, X.J. Li, A. Kaneta, Y. Kawakami, Sg. Fujita, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003, Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Evaluation of device configurations of 0.1 μm MOSFETs by scanning tunneling microscopy, *W. Doi, S. Hasegawa, T. Okui, H. Nakashima, and H. Asahi, 11th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, Izu-Atagawa, Shizuoka, Dec. 11-13, 2003.

Cross-sectional STM study of five-layer asymmetric coupled quantum well (FACQW) grown by migration enhanced epitaxy (MEE), *J.H. Noh, S. Hasegawa, T. Suzuki, T. Arakawa, K. Tada and H. Asahi, 11th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, Izu-Atagawa, Shizuoka, Dec. 11-13, 2003.

Growth and characterization of new III-V-based magnetic semiconductors for application to semiconductor spintronics devices (Invited), *H. Asahi, Y.K. Zhou, M. Hashimoto, H. Tanaka and S. Emura, 12th International Workshop on The Physics of Semiconductor Devices (IWPSD-12), Chennai, India, Dec. 16-20, 2003.

Accelerated Decay of the 31-yr Isomer of Hf-178 Induced by Low-Energy Photons and Electrons, *C.B. Collins, N.C. Zoita, F. Davanloo, S. Emura, Y. Yoda, T. Uruga, B. Patterson, B. Schmitt, J.M. Povesle, I.I. Popescu, V.I. Kirischuk, and N.V. Strilchuk, The Twelfth International Laser Physics Workshop (LPHYS'03), Hamburg, Germany, Aug. 25-29, 2003.

Accelerated emission from isomeric nuclei, *C.B. Collins, N.C. Zoita, F. Davanloo, S. Emura, Y. Yoda, T. Uruga, B. Patterson, B. Schmitt, J.M. Povesle, I.I. Popescu, V.I. Kirischuk, and N.V. Strilchuk, The ISRP9 Conference, Cape Town, South Africa, Oct. 24-31, 2003.

Tunneling magnetoresistance effect in magnetic semiconductor heterostructure DyN/GaN, *M.S. Kim, Y.K. Zhou, X.J. Li and H. Asahi: Second 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" and 7th SANKEN International Symposium on "Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science", Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Temperature-stability of lasing wavelength for TlInGaAs/InP DH laser diodes and 77K CW operation, *A. Fujiwara, H.J. Lee, A. Imada, K. Mukai, S. Hasegawa, and H. Asahi: Second 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" and 7th SANKEN International Symposium on "Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science", Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

1.3-1.5 μm wavelength quantum dot light emitting diodes by growing GaAs/InAs short-period superlattices on InP(411)A, *T. Shimada, J. Mori, S. Hasegawa and H. Asahi: Second 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" and 7th SANKEN International Symposium on "Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science", Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Luminescence from the Gd Site in the GaGdN Dilute Magnetic Semiconductor, *S. Emura, Y.K. Zhou, M. Hashimoto, H. Tanaka, M.S. Kim, S. Kimura, S. Shanthi, X.J. Li, N. Teraguchi, A. Suzuki,

A. Yanase, and H. Asahi: Second 21st Century COE “Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience” and 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

[国際会議の組織委員、国際雑誌の編集委員]

- 朝日 — 15th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials
(国際諮問副委員長、プログラム委員)
- 朝日 — 4th International Conference on Nitride Semiconductors (プログラム委員)
- 朝日 — 11th International Colloquim on Scanning Probe Microscopy
(組織委員、実行委員、出版委員)
- 朝日 — The Seventh International Conference on Atomically Controlled Surfaces,
Interfaces and Nanostructures (プログラム委員)
- 朝日 — 16th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials
(国際諮問委員、組織委員)
- 朝日 — International Conference on Nanospintronics Design and Realization (組織委員)
- 朝日 — International Workshop on Nitride Semiconductors (IWN-2004)(国際試問委員)
- 朝日 — Japan. J. Appl. Phys. (編集委員)
- 朝日 — Current Applied Physics (編集委員)
- 朝日 — J. of Materials Science: Materials in Electronics (編集委員)
- 朝日 — e-Journal of Surface Science and Nanotechnology (Advisory Board 委員)

[国内学会]

- | | |
|--------------|------|
| 応用物理学会 | 23 件 |
| 日本物理学会 | 1 件 |
| 電子材料シンポジウム | 4 件 |
| PASPS シンポジウム | 1 件 |

[取得学位]

修士(工学)

- 今田 明範 InP 基板上 TlInGaAs の光学特性に関する研究
- 田中 浩之 GaN 系希薄磁性半導体の結晶成長と評価に関する研究

修士(理学)

- 大角 祐介 MBE 法による Cr ドープ GaN 量子ドットの作製と評価に関する研究
- 西田 聡佑 金属基板上窒化物半導体からのフィールドエミッション

博士(工学)

- 森 淳 高指数面基板上 - 族半導体短周期超格子量子ドット構造の作製とデバイス応用
- 李 輝宰 Study on Tl-Based Semiconductors and Their Device Applications
(Tl ベース半導体とそのデバイス応用に関する研究)

博士(理学)

- 橋本 政彦 Study on Properties of GaN-Based Diluted Magnetic Semiconductors
(GaN ベース希薄磁性半導体の物性に関する研究)

[科学研究費補助金]		単位：千円
(代表者として配分されたもの)		
特定領域研究(A)(2)		
朝日 一	広い波長域での温度無依存発振波長半導体レーザに関する研究	3,000
周 逸凱	GaN ベースの透明強磁性半導体の創製に関する研究	2,200
基盤研究(B)(2)		
朝日 一	多結晶窒化物半導体の電界放射電子源、可視蛍光体への応用に関する研究	9,300
長谷川 繁彦	スピン偏極走査型トンネル顕微鏡による希薄磁性半導体のナノ磁性評価	8,200
基盤研究(C)(2)		
江村修一	XAFS 及び XMCD による GaN 系希薄磁性半導体の局所原子配置と磁性起源の研究	3,100
[受託研究費補助金]		
長谷川 繁彦	走査型プローブ顕微鏡による微細トランジスタ計測技術の研究	8,400
特別研究員奨励費		
森 淳	高指数面基板上高密度短周期超格子量子ドット構造の赤外域レーザへの応用に関する研究	900
[その他の競争的研究資金]		
朝日 一	文部科学省書科学技術振興 調整費(代表：笠井秀明)	25,395
	ナノスピントロニクスデザインと創製	

半導体量子科学研究分野

教授	松本 和彦
助教授	井上 恒一
助手	前橋 兼三、大野 恭秀
学部学生	成実 一樹、藤原 泰幸
事務補佐員	岡野 愛弓

a) 概要

電子・光子等の量子が独特な振舞いをし、量子力学的効果が顕著に現れる極微細構造（量子構造）を半導体やカーボンナノチューブ内に形成し、その物性機能を研究する。そのために原子的尺度で量子構造を形成し、評価する技術を確認する。すなわち、カーボンナノチューブや結晶の成長過程を解明し、量子構造の原子的、電子的構造を明らかにする。同時にコヒーレントな電子波の伝播、光子と電子波の量子相互作用等の量子物性に注目し、新しい概念の半導体素子の創出を目指した研究を行う。また、素子特性に大きな影響を与える表面・界面の原子的および電子的構造を明らかにする。現在、熱 CVD 成長法、ラマン分光法、原子間力顕微鏡およびフォトルミネセンス法を中心技術として、低次元量子構造の形成と特性評価、表面、界面の原子的および電子的構造、カーボンナノチューブの熱 CVD 成長と伝導特性評価の研究を行っている。

b) 成果

・カーボンナノチューブの熱 CVD 成長と特性評価

触媒を通常のリソグラフィでパターンニングし、必要な位置にカーボンナノチューブを成長させる技術を開発し、この手法で成長したカーボンナノチューブの伝導特性、フォトルミネセンス特性、ラマンシフト特性を評価した。低温における単一電子トランジスタ特性、水素終端したカーボンナノチューブのフォトルミネセンスの発光特性の研究を行なった。

・カーボンナノチューブのカイラリティー制御

様々なカイラリティーを有するカーボンナノチューブに特定波長のレーザーを照射すると、カイラリティーに対応するバンドギャップを有するカーボンナノチューブが選択的にレーザーのエネルギーを吸収する。レーザーの照射を大気中に行なうことにより、エネルギーを吸収したカーボンナノチューブが酸素と反応して選択的に焼却でき、不必要なカイラリティーを選択的に除去できることを示した。これはカーボンナノチューブのカイラリティーを初めて制御した実験結果である。

[原著論文]

Magnetoresistance in a GaAs-AlGaAs two-dimensional periodic potential fabricated by AFM local anodization, K. Oto, K. Shibuya, K. Matsumoto, and K. Murase : *Microelectronic Engineering*, 63 (2003) 253-258.

Single Electron Transistor with Ultra-High Coulomb Energy of 5000K Using Position Controlled Grown Carbon Nanotube as Channel, K. Matsumoto, S. Kinoshita, Y. Gotoh, K. Kurachi, T. Kamimura, M. Maeda, K. Sakamoto, M. Kuwahara, N. Atoda, and Y. Awano : *Jpn. J. Appl. Phys.*, 42-1[4B] (2003) 2415-2418.

カーボンナノチューブの新展開, 松本和彦 : 生産研究, 55[4](2003) 358-365.

[著書]

「カーボンナノチューブの合成・評価・実用化とナノ分散・配合制御技術」松本和彦 他共著、技術情報協会、(2003) 297-308.

「21世紀版 薄膜作製応用ハンドブック」(改訂版) 権田俊一監修、松本和彦 他共著、NTS社、(2003)

「ナノテクノロジーハンドブック」難波進監修、松本和彦 他共著、オーム社、(2003)

「新訂版・表面化学の基礎と応用」岩澤康裕編集、松本和彦 他共著、NTS社、(2003)

「ナノカーボン材料開発の新局面ー加速する本格実用化」松本和彦 他共著、シーエムシー出版、(2003) 225-237.

「ナノテクノロジー大事典」松本和彦 他共著、工業調査会、(2003) 458-466.

[解説、総説]

電子材料 2003・11月号「ナノエレクトロニクスの展望」松本和彦 他共著、工業調査会、(2003)18-22.

[特許]

「半導体装置及びその製造方法」栗野裕二、松本和彦、国際出願 10/440332

「カーボンナノチューブ単一電子バイオセンサー」松本和彦、武笠幸一、末岡和久、澤村誠、アグス・スバギョ、細井浩貴、特願 2003-a146480

「電界効果トランジスタ及び単一電子トランジスタ並びにそれを用いたセンサ」松本和彦、小島厚彦、長尾哲、加藤尚範、山田豊、長池一博、井福康夫、三谷浩、特願 2003-307798

「カーボンナノチューブ光検素」永宗靖、松本和彦、特願 2003-199225

「チューブ状物質を用いた電子デバイスの製造方法」山本和弘、松本和彦、上村崇史、特願 2003-163073

「ナノスケール物質の構造制御方法」前橋兼三、井上恒一、松本和彦、大野恭秀、特願 2003-307602

「カーボンナノチューブ単一電子バイオセンサー」武笠幸一、松本和彦、石井睦、武田清治、澤村誠、アグス・スバギョ、細井浩貴、末岡和久、喜田宏、迫田義博、特願 2004-37866

[国際会議]

Defective Carbon Nanotube Devices (Invited), *K. Matsumoto, Device Research Conference (DRC), Utah University, Utah, USA, Jul. 2, 2003.

Temperature Dependence of Carbon Nanotube Channel Single Electron Transistor, K. Matsumoto and *T. Kamimura, The 11th International Conference on Modulated Semiconductor Structures (MSS 11), Naraken New Public Hall, Nara, Japan, Jul. 17, 2003.

Carbon Nanotube Nanoelectron Devices, *K. Matsumoto, CREST & QNN03 Joint International Workshop, Awaji Yumebutai International Conference Center, Hyogo, Japan, Jul. 21, 2003.

High Sensitive Photo-detectors by the Combination of Carbon Nanotubes and Photo-materials, *Y. Nagamune, T. Kamimura, and K. Matsumoto, CREST & QNN03 Joint International Workshop, Awaji Yumebutai International Conference Center, Hyogo, Japan, Jul. 21, 2003.

Improvement of Carbon Nanotube Channel Single Electron Transistor Characteristics by Ultra-low Energy Nitrogen-ion Irradiation, *T. Kamimura, K. Yamamoto, and K. Matsumoto, CREST & QNN03 Joint International Workshop, Awaji Yumebutai International Conference Center, Hyogo, Japan, Jul. 21, 2003.

Low-temperature Transport Properties of Carbon Nanotubes Grown by Thermal Chemical Vapor Deposition, *T. Yamaguchi, K. Ono, S. Tarucha, T. Kamimura, and K. Matsumoto, CREST & QNN03 Joint International Workshop, Awaji Yumebutai International Conference Center, Hyogo, Japan, Jul. 21, 2003.

Single Electron Transistor with Ultra-High Coulomb Energy of 5000K using Position Controlled Grown Carbon Nanotube as Channel, *T. Kamimura, K. Yamamoto, K. Matsumoto, The 2003 International Conference on Solid State Devices and Materials, Tokyo, Sep. 17, 2003.

Defective Carbon Nanotube Channel Single Electron Transistor with Ultra-High Coulomb Energy of 5000K(Invited), K. Matsumoto, TNT03 (Trend in Nano Technology 2003), Samaranka, Spain, Sep. 15, 2003.

Defective Carbon Nanotube Channel Single Electron Transistor with Ultra-High Coulomb Energy of 5000K and its Applications(Invited), K. Matsumoto, 50th American Vacuum Society Meeting, Baltimore Convention Center, USA, Nov. 5, 2003.

Ultra-low Energy Nitrogen-ion Irradiation for Quantum Dots Size Control in Carbon Nanotube Channel Room Temperature Single Electron Transistor, *T. Kamimura, K. Yamamoto, K. Matsumoto, The 2nd International Symposium on "Future-oriented Interdisciplinary Materials Science" FIMS2003, Epochal Tsukuba International Congress Center, Tsukuba, Japan, Nov. 10, 2003.

Carbon Nanotube Single Electron Transistor with Ultra-High sensitivity for Optical and Bio-Sensor, K. Matsumoto, International Workshop on Multi Processing Technology 2003 (IWMPT 2003), World Convention Center "Summit", Miyazaki, Japan, Nov. 10, 2003

Application of RT Carbon Nanotube Single Electron Transistor to Methanol Sensor, *K. Kurachi, M. Torigoe, K. Matsumoto, Functional Semiconductor Nano Structure 2003 (FSNS 2003), NTT Basic Research Laboratories, Japan, Nov. 14, 2003.

Application of Carbon Nanotube Single Electron Transistor with Ultra-High Coulomb Energy (Invited), K. Matsumoto, Functional Semiconductor Nano Structure 2003 (FSNS 2003), NTT Basic Research Laboratories, Japan, Nov. 14, 2003.

Application of Carbon Nanotube Quantum Dot to Single Electron Transistor with Ultra-High Coulomb Energy of 5000K (Invited), K. Matsumoto, ACSIN-7 (7th International Conference on Atomically Controlled Surface, Interface and Nanostructures), Naraken New Public Hall, Nara, Japan, Nov. 19, 2003.

Optical Sensor and Bio Sensor Applications using Carbon Nanotube Channel Single Electron Transistor, K. Matsumoto, Y. Nagamune, A. Kojima, NPMS-6/SIMD-4 2003, Six International Conference on new phenomena in Mesoscopic Structures, Fourth International Conference on Surface and Interface of Mesoscopic Devices, Wailea Marriot Resort, USA, Dec. 3, 2003.

Carbon Nanotube FET/SET with Ultra-High Sensitivity for Sensor Application, K. Matsumoto, K. Inoue, K. Maehashi, Y. Ohno, SANKEN COE/Nanotechnology Symposium, ISIR, Osaka, Japan, Dec. 9-10, 2003.

Polarization Control of Vertical Cavity Surface Emitting Laser Structure by Using Self-organized Quantum Wires Grown on (775)B-oriented GaAs Substrate by Molecular Beam Epitaxy, *Y. Ohno, Y. Takasuka, M. Ogura, K. Komori, S. Shimomura, S. Hiyamizu, 2003 North American Conference on Molecular Beam Epitaxy, keystone, Colorado, USA, Sep. 28, 2003.

[国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員]

松本 和彦	CREST & QNN Joint International Workshop (副委員長)
松本 和彦	The 11th International Conference on Modulated Semiconductor Structures(MSS 11) (組織委員)
松本 和彦	Functional Semiconductor Nano Structure 2003 (組織委員)
松本 和彦	7th International Conference on Atomically Controlled Surface, Interface and Nanostructures (組織委員)

[国内学会]

応用物理学会	17 件
日本物理学会	1 件

[共同研究]

単位：千円

松本 和彦	三菱化学株式会社	カーボンナノチューブ室温単一電子トランジスタを利用したバイオセンサーの開発	20,000
-------	----------	---------------------------------------	--------

[その他の競争的研究資金]

松本 和彦	科学技術振興機構	カーボンナノチューブ単一電子・スピン計測システムの確立	92,000
松本 和彦	科学技術振興調整費	カーボンナノチューブエレクトロニクス	30,000

量子物性研究分野

教授	吉田 博
助教授	播磨 尚朝、森川 良忠
内地研究員	柳谷 俊一
博士研究員	真砂 啓、Dinh Van An、中山 博幸、浜田 幾太郎
特任教員	天谷 喜一、興地 斐男、本河 光博
研究生	張 允信
大学院学生	松村 隆嘉、光田 直樹、山内 邦彦、舩島 洋紀、松岡 秀行、大石 雄紀、 鈴木 通人、清家 聖嘉、道北 俊行、木崎 栄年、劔持 一英、豊田 雅之、 福島 鉄也
学部学生	本島 英明
事務補佐員	浅田 美香

a) 概要

量子物性研究分野は、物質や材料の物性を理論的手法を用いて解明すると共に、必要とする機能を持つ物質材料の創出やそれらの創製プロセスを理論的に予測する物質設計を目指した研究をおこなっている。理論的手法として、物質の本質を抽出したモデルによる解析に加えて、最近のコンピュータの計算能力の飛躍的進歩を反映した計算物理的また計算化学的手法を用いた物質、材料の量子シミュレーションに立脚した物性予測の研究をおこなっている。さらに、応用上必要とされる物性を持つ物質材料を経験的パラメータを用いずに、原子番号だけを入力パラメータにして第一原理からの物性予測を可能にする理論的アプローチの開発もおこなっている。

b) 成果

・電子励起原子移動を利用した新物質創製法のマテリアルデザイン

電子励起下での原子移動の機構解明とそれに立脚した制御を可能にするシミュレーション技術を開発し、電子励起原子移動による準安定状態を利用した新物質の創製と設計に応用できるようにした。ダイヤモンド、カーボン、アモルファスシリコンの電子励起原子移動に適用し、原子移動の微視的機構を明らかにした。また、内殻励起により価電子帯に正孔をドーピングすると基底状態とは逆に、グラファイトよりもダイヤモンドの方が安定化し、常温・定圧でダイヤモンドを創製するためのプロセスのデザインを行った。これらは、最近になって、電子線励起に伴う内殻励起やレーザー励起により実験的に実証された。

・半導体ナノスピントロニクのためのマテリアルデザインとスピン制御

第一原理計算に基づいて、磁性不純物を含む II-VI 族半導体、III-V 族半導体の価電子制御法とスピン間相互作用に関する電子状態の第一原理計算を行い、二重交換相互作用や p-d 交換相互作用による長距離のキャリア誘起強磁性機構と、短距離の強磁性及び反強磁性超交換相互作用との競合による強磁性発現機構を解明した。これらの計算結果に基づいて透明強磁性体のマテリアルデザインを行った。さらに高い強磁性転移温度を持つ物質のデザインを行った。II-VI 族半導体では V, Cr が強磁性を示し、III-V 族半導体では、V, Cr, Mn が強磁性を示すことを明らかにした。ZnO は特別で、V, Cr, Fe, Co, Ni が強磁性をしめす。また、これらの系について強磁性転移温度(T_c)を第一原理からデザインし、遷移金属濃度依存性、p 型および n 型濃度依存性、また母体半導体依存性を予言した。

さらに、遷移金属不純物の低い溶解度に起因する補償効果を防止し、遷移金属不純物濃度を上昇させて、高い強磁性転移温度(T_c)を実現するための同時ドーピング法を (Ga,Mn)(As,C), (Ga,Mn)(As,N) や原子層エピタキシャル結晶成長時に於けるデルタ・ドーピング法として 2 倍近い T_c が得られることを提案した。これらの提案は最近になって実証された。

- ・大きな磁気光学効果を持つ 4d 遷移金属不純物をドーピングした逆（アンチ）CaF₂ 構造を持つ K₂S ベース透明強磁性半導体のデザイン

大きな磁気光学効果を持つ 4d 遷移金属不純物をドーピングした逆（アンチ）CaF₂ 構造を持つ K₂S ベース透明強磁性半導体のデザインも行った。これにより、光誘起や FET 電場誘起、また円偏光レーザー発光によるスピングラス状態からハーフメタル透明半導体強磁性体への転移を起こすマテリアルデザインが可能になり、これを用いた脳型メモリや脳型演算装置などの機能調和材料デバイスのデザインを行った。

- ・磁性不純物（遷移金属や希土類金属）を含まないハーフメタル室温強磁性半導体のマテリアルデザイン

第一原理計算に基づいて、磁性不純物（遷移金属や希土類金属）を含まないハーフメタル強磁性半導体のマテリアルデザインをおこなった。K₂S などの逆蛍石構造を持つ半導体や、CaO などのイオン結晶中にドーピングした B、C、N などの深い不純物バンドのバンド幅は狭く、電子相関エネルギーとの競合により、磁性状態が実現し、さらに、不純物状態による二重交換相互作用や強磁性的超交換相互作用を不純物濃度によってバンド幅を制御することにより強磁性状態を安定化させるためのマテリアルデザインを行った。

- ・ワイドギャップ半導体の価電子制御と新機能性のマテリアルデザイン

ワイドバンドギャップ半導体、CuAlO₂ やダイヤモンドにおいて、第一原理計算からアクセプター不純物、原子空孔、侵入型原子の形成エネルギーや不純物準位を予測し、価電子制御のためのアクセプターやドナーの補償機構を解明し、低抵抗化のためのアクセプターとドナーの同時ドーピング法による不純物バンドを利用した新しい価電子制御法のマテリアルデザインを行った。これらの系についての同時ドーピング法による価電子制御法の予言はその後の実験的に検証された。また、これらの価電子制御に基づいた p 型透明酸化物伝導体や透明超伝導体、また高効率熱電機能のマテリアルデザインをおこなった。

- ・アモルファス半導体の高効率太陽エネルギー変換材料のマテリアルデザイン

第一原理分子動力学法により、アモルファス半導体の光励起劣化反応機構の研究を行い、ダングリグボンドが正と負の電子相関をもつためであることを解明した。これらを防止するための CN 処理法が提案されているが、ダングリグボンドの不活性機構が CN による一重結合、二重結合、三重結合の環境に合わせた変身によって生じる連続ネットワークの修復と再生によるものであることを明らかにした。光劣化を防止するためのマテリアルデザインをおこなった。

- ・強誘電体のスピン制御法と価電子制御法に関するマテリアルデザイン

BaTiO₃ や SrTiO₃ などの強誘電体について、第一原理計算手法により、低抵抗 p 型化のための新しい価電子制御法を明らかにした。また第一原理計算により磁性不純物のドーピングによる強磁性および反強磁性基底状態の予言を行った。

- ・ヘムタンパク質によるスピン制御法と価電子制御法に関するマテリアルデザイン

ヘムタンパク質の電子状態を記述するモデルを提案し、スピンに依存したハートリー・フォック近似によるヘムタンパク質の電子状態の計算から高スピン状態や低スピン状態の起源、多重荷電状態の起源および、交換相関相互作用による負の電子相関系の予測を行った。また電荷とスピンの遮蔽の違いを明らかにし、これを用いた新機能デバイスのマテリアルデザインを行った。

- ・シリコン中の遷移金属不純物のゲッターリングの機構とゲッターリングセンターのマテリアルデザイン

第一原理計算に基づいて、シリコン中の遷移金属不純物、C、N、O、B、P などの不純物の電子状態とエネルギーおよび拡散の第一原理分子動力学シミュレーションを計算し、これらが不純物対やクラスターなどの不純物複合体を形成した時のエネルギーの利得（不純物複合体形成エネルギー）計算を行った。その結果、有効なゲッターリングセンターをデザインすることができた。

・第一原理による電場勾配の計算

FLAPW-LDA 法の範囲内で原子核位置での電場勾配を一般的に計算可能とし、多くの化合物で実験で測られている NQR 振動数との比較を行った。

・LaRh₃B₂の電子状態の解明

高い強磁性転移温度(120K)を持つ CeRh₃B₂の参照系である LaRh₃B₂のフェルミ面を決定した。

・新超電導体の電子状態の解明

新しい超伝導体である Y₂C₃と KOs₂O₆の電子状態を計算し、バンド構造を求めた。Y₂C₃ではCのp電子が超電導に重要な寄与をしている事を示した。

[原著論文]

MBE growth and properties of GaCrN, H. Hashimoto, Y.K. Xhou, M. Kanamura, H. Katayama-Yoshida and H. Asahi: J. Crystal Growth. 251 (2003) 327-330.

Materials Design for Semiconductor Spintronics by *Ab initio* Electronic-structure Calculation (Invited), H. Katayama-Yoshida and K. Sato: Physica B327 (2003) 337-343.

Engineering of Nested Fermi Surface and Transparent Conducting p-type Delafossite CuAlO₂: Possible Lattice Instability or Transparent Superconductivity?, H. Katayama-Yoshida, T. Koyanagi, H. Funashima, H. Harima and A. Yanase: Solid State Commun. 126 (2003) 135- 139.

Curie Temperatures of III-V Diluted Magnetic Semiconductors Calculated from First-Principles in Mean Field Approximation (Invited), K. Sato, H. Katayama-Yoshida and P. H. Dederichs: J. Supercond. Inc. Novel Magnetism, 16 (2003) 31-35.

Spin and Charge Control Method of Ternary II-VI and III-V Magnetic Semiconductors for Spintronics: Theory vs. Experiment (Invited), H. Katayama-Yoshida and K. Sato: J. Phys. Chem. Solid. 64 (2003) 1447-1452.

A Structural Study of CN Treated Amorphous Silicon, Y. Yamazaki, K. Shirai and H. Katayama-Yoshida: Solid State Commun. 126 (2003) 597-600.

Direct Conversion of Graphite into Diamond Through Electronic Excited States (Invited), H. Nakayama and H. Katayama-Yoshida: J. Phys.:Condens. Matter 15 (2003) R1077-R1091.

Charge and Spin States of Transition-Metal Atoms in a Hemoprotein Based on the Extended Haldane-Anderson Model, K. Yamauchi, H. Maehashi and H. Katayama-Yoshida: J. Phys. Soc. Japan, 72 (2003) pp.2029-2032.

Materials Design of 4d-Transition-Metal-Doped Transparent and Half-Metallic Ferromagnets with K₂S-Based Diluted Magnetic Semiconductors, M. Seike, A. Yanasse, K. Sato and H. Katayama-Yoshida: Jpn. J. Appl. Phys. 42 (2003) L1061 -L1063.

Tc-Enhanced Codoping Method for GaAs-Based Dilute Magnetic Semiconductors, Van An Dinh, K. Sato and H. Katayama-Yoshida: Jpn. J. Appl. Phys. 42 (2003) L888-L891.

Theoretical Aspect of Doping of Photovoltaic Materials (Invited), H. Katayama-Yoshida: Mat. Res. Soc. Symp. Proc. 763 (2003) B1.1, 3-12.

Magnetic Impurities and Materials Design for Semiconductor Spintronics. (Invited), K. Sato, P. H. Dederichs, H. Katayama-Yoshida and J. Kudrnovsky: Physica B340-342 (2003) 863-869.

Ab initio materials Design and Curie Temperature of GaN-based Ferromagnetic Semiconductors, K. Sato, P. H. Dederichs, K. Araki and H. Katayama-Yoshida: Phys. Stat. Sol. c, 7 (2003) 2855-2859.

Unique Fermi Surfaces with Quasi-one-dimensional Character in CeRh₃B₂ and LaRh₃B₂, T. Okubo, M. Yamada, A. Thamizhavel, S. Kirita, Y. Inada, R. Settai, H. Harima, K. Takegahara, A. Galatanu, E. Yamamoto and Y. Onuki: J.Phys. Condens. Matter 15 (2003) L721-L727.

Definitive Experimental Evidence for Two-Band Superconductivity in MgB₂, S. Tsuda, T. Yokoya, Y. Takano, H. Kito, A. Matsushita, F. Yin, J. Itoh, H. Harima and S. Shin: Phys. Rev. Lett. 71 (2003) 127001-1-4.

A de Haas-van Alphen Experiment under Pressure on CeCoIn₅: Deviation from the Quantum Critical Region, H. Shishido, T. Ueda, S. Hashimoto, T. Kubol, R. Settai, H. Harima and Y. Onuki: J.Phys.:Condens. Matter 15 (2003) L499-L504.

Materials Design of p-type Transparent Conducting Oxides of Delafossite CuAlO₂ by Super-cell FLAPW Method, T. Koyanagi, H. Harima, A. Yanase and H. Katayama-Yoshida: J. Phys. Chem. Solids 64 (2003) 1443-1446.

Photoemission Study of CeMIn₅ (M=Rh, Ir): Nearly Localized Nature of f Electrons, A.-I. Fujimori, T. Okane, J. Okamoto, K. Mamiya, Y. Muramatsu, A. Fujimori, T. Narimura, K. Kobayashi, K. Shimada, H. Namatame, M. Taniguchi, H. Harima, D. Aoki, S. Ikeda, H. Shishido, Y. Tokiwa, Y. Haga and Y. Onuki: Physica B 329-333 (2003) 547-548.

De Haas-van Alphen Effect of CeRhIn₅ Under Pressure, H. Shishido, R. Settai, S. Araki, T. Ueda, Y. Inada, H. Harima and Y. Onuki: Physica B 329-333 (2003) 526-527.

Quadrupolar Ordering in Half-integral Spin Systems, S. H. Curnoe, K. Ueda, H. Harima and K. Takegahara: Physica B 329-333 (2003) 474-475.

FLAPW Electronic Band Structure of the Filled Skutterudite ThFe₄P₁₂, K. Takegahara and H. Harima: Physica B 329-333 (2003) 464-466.

Conduction Bands in the Filled Skutterudites, H. Harima and K. Takegahara: J.Phys.:Condens. Matter 15 (2003) S2081-S2086.

High-quality Single Crystal Growth and the Fermi Surface Property of Uranium and Cerium Compounds, Y. Onuki, Y. Haga, E. Yamamoto, Y. Inada, R. Settai, H. Yamagami and H. Harima: J. Phys. Condens. Matter 15 (2003) S1903-S1909.

Magnetic Properties and Fermi Surface of YMn₂, K. Nakada, H. Shimizu, H. Yamada and H. Harima: J Magn. Magn. Mater. 262 (2003) 374-381.

Theory of a New Type of Heavy-electron Superconductivity in $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$: Quadrupolar-fluctuation Mediated Odd-parity Pairings, K. Miyake, H. Kohno and H. Harima: *J. Phys. Condens. Matter* 15 (2003) L275-L284.

Fermi Surface of the Filled Skutterudite $\text{LaOs}_4\text{Sb}_{12}$, H. Harima and K. Takegahara: *Physica C* 388-389 (2003) 555-556.

Possible Type of Heavy-electron Superconductivity in $\text{PrOs}_4\text{Sb}_{12}$, K. Miyake, H. Kohno and H. Harima: *Physica C* 388-389 (2003) 553-554.

Formation Mechanism of Hybridization Gap in Kondo Insulators based on a Realistic Band Model and Application to YbB_{12} , T. Saso and H. Harima: *J. Phys. Soc. Jpn.* 72 (2003) 1131-1137.

Nearly Localized Nature of f Electrons in CeTIn_5 (T = Rh, Ir), S. Fujimori, T. Okane, J. Okamoto, K. Mamiya, Y. Muramatsu, A. Fujimori, H. Harima, D. Aoki, S. Ikeda, H. Shishido, Y. Tokiwa, Y. Haga and Y. Onuki: *Phys. Rev. B* 67 (2003) 144507-1-5.

Systematic Study of Electronic Band Structures for Binary Skutterudite Compounds, K. Takegahara and H. Harima: *Physica B* 328 (2003) 74-76.

de Haas-van Alphen Effect in $\text{LaRu}_4\text{P}_{12}$, S. R. Saha, H. Sugawara, R. Sakai, Y. Aoki, H. Sato, Y. Inada, H. Shishido, R. Settai, Y. Onuki and H. Harima: *Physica B* 328 (2003) 68-70 .

X-dependence of Electronic Bandstructures for $\text{LaFe}_4\text{X}_{12}$ (X=P,As,Sb), H. Harima and K. Takegahara: *Physica B* 328 (2003) 26-28.

High Magnetic Field Study of CePd_2Si_2 , I. Sheikin, A. Groger, S. Raymond, D. Jaccard, D. Aoki, H. Harima and J. Flouquet: *Phys. Rev. B* 67 (2003) 094420-1-10.

Origin of the Metal-Insulator Transition in $\text{PrRu}_4\text{P}_{12}$, H. Harima, K. Takegahara, K. Ueda and S.H. Curnoe: *Acta Physica Polonica B* 34 (2003) 1189-1192.

Single-Crystal Growth and de Haas-van Alphen Effect in Yb_4Sb_3 , M. Shirakawa, M. Ona, H. Aoki, A. Ochiai and H. Harima: *Acta Physica Polonica B* 34 (2003) 1157-1160.

Heavy Fermion Behavior of Pr 4f Electrons in Filled Skutterudites Studied by Bulk-Sensitive Photoemission, A. Yamasaki, S. Imada, T. Masuda, T. Nanba, A. Sekiyama, H. Sugawara, T.D. Matsuda, H. Sato, C. Sekine, I. Shirotni, H. Harima and S. Suga: *Acta Physica Polonica B* 34 (2003) 1035-1038.

Correlations and Semimetallic Behaviors in Pyrochlore Oxide $\text{Cd}_2\text{Re}_2\text{O}_7$, Z. Hiroi, M. Hanawa, Y. Muraoka and H. Harima: *J. Phys. Soc. Jpn.* 72 (2003) 21-24.

Mechanism of Suppression of Light-induced Degradation in Amorphous Silicon by CN Treatment, Y. Yamazaki, K. Shirai and H. Katayama-Yoshida: *Proc. 26th Int. Conf. Phys. Semicond., Edinburgh 2002*, eds. A. R. Long and J. H. Davies, IOP Conf. 171 (2003) L.3.6.

Pressure-induced Phase Transitions of BNs, K. Shirai, H. Fujita, and H. Katayama-Yoshida: *Physica Status Solidi (b)* 235 (2003) 526-530.

Association Simulation by a Metallic Car-Parrinello Dynamics, S. Kawamoto, T. Oda and I. Hamada: International Journal of Quantum Chemistry 91, (2003) 165

Structure and Magnetism on Iron Oxide Clusters $FenOm(n=1-5)$: Calculation from First Principles, H. Shiroishi, T. Oda, I. Hamada and N. Fujima: Euro. Phys. J. D. 24, (2003) 85.

Possibility of Pressure-induced Superconductivity by Phonon Mechanism in Pd, K. Yanai, T. Takezawa, I. Hamada, N. Suzuki: Physica C 388-389 (2003) 596.

The Electronic Structure of Beta-boron and the Pressure Dependence, K. Shirai, A. Masago and H. Katayama-Yoshida: Physics of Semiconductors 2002, 171(2003) D210.

[特許]

「磁気抵抗ランダムアクセスメモリー装置」吉田博、佐藤和則、台湾出願 92116467

「磁気抵抗ランダムアクセスメモリー装置」吉田博、佐藤和則、PCT/JP03/07447

「遷移金属または希土類金属を固溶する透明強磁性アルカリ・カルコゲナイド化合物及びその強磁性特性の調整方法」吉田博、清家聖嘉、佐藤和則、柳瀬章、特願 2003-127602

「強磁性 VI 族系半導体、強磁性 III-V 族系化合物半導体、または強磁性 II-VI 族系化合物半導体とその強磁性特性の調整方法」吉田博、荒木和也、佐藤和則、PCT/JP03/07161

「強磁性 VI 族系半導体、強磁性 III-V 族系化合物半導体、または強磁性 II-VI 族系化合物半導体とその強磁性特性の調整方法」吉田博、荒木和也、佐藤和則、台湾出願 92115303

「内殻励起によりグラファイトからダイヤモンドを製造する方法」吉田博、中山博幸、国際出願:PCT/JP03/06426

「内殻励起によりグラファイトからダイヤモンドを製造する方法」吉田博、中山博幸、台湾出願 92114330

「磁性半導体を用いた円偏光スピン半導体レーザーおよびレーザー光の発生方法」吉田博、佐藤和則、国際公開番号 WO 03/065525A1

「シリコン結晶中の遷移金属不純物のゲッターリング方法」吉田博、国際公開番号：WO03/060981A1

「 - 族または - 族系単結晶強磁性化合物及びその強磁性の調整方法」吉田博、佐藤和則、韓国出願 2003-7011104 号

「高輝度発光半導体材料の作製方法」吉田博、中島理志、特許第 3464618 号

「遷移金属または希土類金属などの磁性不純物を含まず不完全な殻を持つ元素を固溶した透明強磁性化合物及びその強磁性特性の調整方法」吉田博、劔持一英、清家聖嘉、佐藤和則、特願 2004-055017

「遷移金属または希土類金属を固溶する透明強磁性アルカリ・カルコゲナイド化合物及びその強磁性特性の調整方法」吉田博、清家聖嘉、佐藤和則、柳瀬章、PCT/JP04/003373

「二次元酸化物自然超格子を用いた高電材料とその熱電特性の調整方法」吉田博、船島洋紀、浜田幾太郎、播磨尚朝、柳瀬章、特願 2004-085615

[国際会議]

Theoretical Aspects of Doping of Photovoltaic Materials (Invited), *H. Katayama-Yoshida, 2003 MRS Spring Meeting, San Francisco, California, Apr. 21-25, 2003.

Ab initio Materials Design and Curie Temperature of GaN Compound-based Ferromagnetic Semiconductors, K. Sato, P. H. Dederichs, *H. Katayama-Yoshida, ICNS-5: 5th International Conference on Nitride Semiconductors, Nara, Japan, May 25-30, 2003.

Codoping Methods of Mn and N for GaAs-based Diluted Magnetic Semiconductors, *Dinh Van An, K. Sato, H. Katayama-Yoshida, PASPS-9: The 9th Symposium on the Physics and Application of Spin-Related Phenomena in Semiconductors, Tokyo, Japan, Jun. 11-12, 2003.

Materials Design of 4d-Transition-Metal Doped Transparent and Half-metallic Ferromagnetism with Diluted Magnetic Semiconductors in Anti-CaF₂ structures of K₂S, *M. Seike, A. Yanase, K. Sato and H. Katayama-Yoshida, PASPS-9: The 9th Symposium on the Physics and Application of Spin-Related Phenomena in Semiconductors, Tokyo, Japan, Jun. 11-12, 2003.

Effects of Anti-site Defects on Half-metallicity in Zinc-blends CrAs, *M. Shirai, M. Seike, K. Sato, H. Katayama-Yoshida, PASPS-9: The 9th Symposium on the Physics and Application of Spin-Related Phenomena in Semiconductors, Tokyo, Japan, Jun. 11-12, 2003.

Material Design of the Powerful Faraday Rotator, *A. Yanase, H. Katayama-Yoshida, PASPS-9: The 9th Symposium on the Physics and Application of Spin-Related Phenomena in Semiconductors, Tokyo, Japan, Jun. 11-12, 2003.

Magnetic Mechanism and Materials Design of Diluted Magnetic Semiconductors from First Principles ~Guideline for High-T_c and Application to II-VI, III-V, IV, and I₂-VI Semiconductors (invited), *H. Katayama-Yoshida, K. Sato and P. H. Dederichs, International Workshop on Diluted Magnetic Semiconductors, CECAM, Lyon, Jun. 12-14, 2003.

Exchange Interactions and Curie Temperatures in Diluted Magnetic Semiconductors (invited), *K. Sato, P. H. Dederichs, H. Katayama-Yoshida and J. Kudrnovsky, International Workshop on Diluted Magnetic Semiconductors, CECAM, Lyon, Jun. 12-14, 2003.

Band Structure Calculation and Fermi Surfaces for LaRh₃B₂, *H Harima and K Takegahara, ICM2003: International Conference on Magnetism, Roma, Italy, Jul. 27-August 1, 2003.

Group Theoretical Classification of the Electronic Structure of LiNiO₂, *A. Masago, ICM2003: International Conference on Magnetism, Roma, Italy, Jul. 27-Aug. 1, 2003.

Mechanism of Enhanced Ferromagnetism in Delta-doped(Ga, Mn)As Studied by *ab initio* Electronic Structure Calculation, *Y. Ohishi, K. Sato, H. Katayama-Yoshida, ICM2003: International Conference on Magnetism, Roma, Italy, Jul. 27-Aug. 1, 2003.

Theoretical Study on Anti-site Defects in Half-metallic Zinc-blende Ferromagnets, *M. Shirai, M. Seike, K. Sato and H. Katayama-Yoshida, ICM2003: International Conference on Magnetism, Roma, Italy, Jul. 27-Aug. 1, 2003.

Electronic Structures and CDW of Transition Metal Dichalcogenides, *M. Suzuki and H. Harima, ICM2003: International Conference on Magnetism, Roma, Italy, Jul. 27-Aug. 1, 2003.

Magnetic Impurities and Materials Design for Semiconductor Spintronics, *K. Sato, P. H. Dederichs, H. Katayama-Yoshida and J. Kudrnovsky, ICDS-22: International Conference on Defects in Semiconductors, Aarhus, Denmark, Jul. 28-Aug. 1, 2003.

Materials Design of 4d-transition-metal Doped K₂S Diluted Magnetic Semiconductors with Transparent and Half-metallic, *M. Seike, A. Yanase, K. Sato and H. Katayama-Yoshida,

SPINTECH2: International Conference and School Semiconductor Spintronics and Quantum Information Technology, Brugge, Belgium, Aug. 4-8, 2003.

Mechanism of Enhanced Ferromagnetism in Delta-doped (Ga,Mn) As Studied by *ab initio* Electronic Structure Calculation, *Y. Ohishi, K. Sato, H. Katayama-Yoshida, SPINTECH2: International Conference and School Semiconductor Spintronics and Quantum Information Technology, Brugge, Belgium, Aug. 4-8, 2003.

Electronic Structure, Ferromagnetic Mechanism, and Curie Temperature of 3d- and 4d-Transition Atom Doped Diluted Magnetic Semiconductors (invited), *H. Katayama-Yoshida, The 4th Korea-Japan Workshop on Strongly Correlated Systems and The First Japan-Korea-Taiwan Workshop on Condensed Matter Physics "Spectroscopy of Correlated Materials and their Nano-Structures", Nagano, Japan, Sep. 24-26, 2003.

Band Structure Calculations and Fermi Surfaces of $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$, *Y. Yamauchi, H. Katayama-Yoshida, A. Yanase, H. Harima, 16th International Symposium on Superconductivity, Tsukuba, Japan, Oct. 27-29, 2003.

Symmetry of the Conduction Bands in the Pyrochlore Lattice, *H Harima and K Takegahara, The 3rd International Workshop "Novel Quantum Phenomena in Transition Metal Oxides" and The 1st Asia-Pacific Workshop on "Strongly Correlated Electron Systems", Sendai, Nov. 5-8, 2003.

Diamond Transition from Graphite Induced by Electronic Excitations, *H. Nakayama and H. Katayama-Yoshida, The 6th Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations, Tsukuba, Nov. 10-12, 2003.

Pressure-induced Phase Transitions of BN, *K. Shirai, H. Fujita, and H. Katayama-Yoshida, The 6th Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations, Tsukuba, Nov. 10-12, 2003.

Design of High-Tc Curie Temperature with Transparent and Half Metallic Ferromagnetism in Zr- and Nb-doped K_2S Diluted Magnetic Semiconductors, *M. Seike, A. Yanase, K. Sato and H. Katayama-Yoshida, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003, Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Design of a Method to Raise Curie Temperature by Delta-doping and Co-doping, *Y. Ohishi, Dinh Van An, K. Sato, H. Katayama-Yoshida, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003, Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

An Application of Molecular Dynamics Simulation to Diffusion of Impurity in Solids, *K. Shirai and H. Katayama-Yoshida, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003, Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Ab-initio Molecular Dynamics Simulation of CN in Amorphous Silicon, *N. Mitsuda, K. Shirai and H. Katayama-Yoshida, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003, Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Materials Design for Spin-electronics by *Ab-initio* Electronic Structure Calculation (invited), *H. Katayama-Yoshida, 31st Conference on The Physics and Chemistry of Semiconductor Interface (PCSI-31), Kailua-Kona, Hawaii, USA, Jan. 18-22, 2004.

Electric Field Gradients Obtained by the FLAPW Method, *H. Harima, K. Betsuyaku and K. Takegahara, Magnetism and Superconductivity in f-electron systems, Tokai, Japan, Feb. 23-24, 2003.

Exchange Interactions and Curie Temperatures in Diluted Magnetic Semiconductors, *K. Sato, P. H. Dederichs, H. Katayama-Yoshida, APS(American Physical Society) March Meeting, Montreal, Quebec, Canada, Mar. 22-26, 2004.

[国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員]

吉田博 第3回半導体中のスピンに関連する物理と応用国際会議(PASPS-3)国際諮問委員及びプログラム委員
吉田博 第24回半導体中の欠陥国際会議(ICDS-24)委員長

[国内学会]

物理学会 13件
応用物理学会 6件
応用磁気学会 1件

[取得学位]

修士(理学)

鈴木 通人 遷移金属ダイカルコゲナイド化合物のCDWと電子状態

修士(工学)

大石 雄紀 GaAsベース希薄磁性半導体の第一原理マテリアルデザイン
清家 聖嘉 室温ハーフメタリック室温希薄強磁性体マテリアルデザイン
道北 俊之 第一原理計算による単結晶Si中のCuゲッターリング

[科学研究費補助金]

(代表者として配分されたもの)

単位:千円

特定領域研究(2)

播磨 尚朝 充填スクッテルダイト化合物の重い電子状態の解明 36,700

(上記の他に分担者として配分されたもの)

基盤研究(A)(1)(代表者:平山秀樹、理化学研究所)

吉田 博 交互供給ドーピ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 500

特定領域研究(代表者:白井正文、東北大学)

吉田 博 光-スピントロニクスデバイス及びナノスピンプローブのデザイン

[受託研究]

吉田 博 科学技術振興調整費 ナノスピントロニクスのデザインと創製に関 19,964

吉田 博	産学官連携イノベーション創出事業費補助金 (独創的革新技術開発研究提案)	する研究「計算機ナノマテリアル・デバイスデザイン」 赤外レーザー照射による半導体中不純物の選択的低温拡散技術の研究	4,500
播磨 尚朝	科学技術振興調整費	ホウ素系新超伝導物質の材料化基盤研究 「機能発現機構の解明と物質デザイン」	3,750

(分担者として配分されたもの)

吉田 博	科学技術振興事業団 戦略的基礎研究	新規化学結合を用いるシリコン薄膜太陽電池
吉田 博	新エネルギー・産業技術 総合開発機構	ナノ構造物性シミュレーション技術の開発
吉田 博	科学技術振興事業団 計算科学活用型特定研究開発推進事業	計算機ナノマテリアルデザイン手法の開発

[共同研究]

吉田 博	東北大学金属材料研究所	機能性ワイドギャップ半導体のマテリアルデバイスデザイン
吉田 博	(財)高輝度光科学研究センター Spring-8	電子励起による新物質創製の機構解明
吉田 博	(財)国際高等研究所	物質科学とシステムデザイン
吉田 博	ドイツ・ユーリッヒ固体物理研究所	計算機ナノスピントロニクスのマテリアル・デバイスデザイン
播磨 尚朝	日本原子力研究所	軌道縮退の大きな系における多体電子理論の研究

高次制御材料科学研究部門

概要

本研究部門は、材料機能物性、金属材料プロセス、極微プロセス、セラミック機能材料、セラミック構造材料、エネルギー材料の6分野からなり、平成14年度に設置された産業科学ナノテクノロジーセンターと密接な協力関係を持ちながら研究を行っている。今後の急速な科学技術の発展を支えるためには、新しい機能・性能を持つ材料及び新材料の創成が不可欠であり、これらの材料は、従来からの材料構造制御の高度化と、原子・分子・ナノレベルからの新しい人工的な高次構造制御の構築から生まれる。本研究部門は6研究分野が協力して、既存のいわゆる金属・無機・有機材料研究の枠を超えた高次プロセス及び高次制御材料の設計・開発・応用と材料物性解明の研究を進め、今後の新産業育成につながる新しい材料設計コンセプトの構築を目指す。特に、新しいナノ複合化技術による高次構造的および機能性複合材料の設計・開発・応用、原子・分子・ナノスケールで制御された人工新材料、複合新機能を持つ高次情報材料、エネルギー材料、環境保護材料の創製、それらの物性解明と応用などを目的にして研究を推進している。分野・部門間の共同研究のみならず、国公立研究機関、民間企業ならびに国際的な共同研究にも積極的に取り組んでいる。

成果

- ・ 計算機シミュレーションによる物質・材料設計およびその構造と物性の予測
- ・ アモルファス物質の局所構造解析に関する研究
- ・ 合金ナノ粒子の形態制御と磁性・相変態に関する研究
- ・ 高機能ポーラス材料の創製とその応用に関する研究
- ・ 金属間化合物、準結晶及び過冷却液体相を持つ金属ガラスにおける拡散現象の解明
- ・ 走査プローブ顕微鏡を利用した極微表面における分子操作・配列読み取り
- ・ 各種機能調和人工格子の設計、プロセス開発、創成と構造及び機能評価に関する研究
- ・ 新規な欠陥消滅処理を用いたシリコン太陽電池の高性能化
- ・ 新規な化学反応を用いた誘電体薄膜の作製とMOSデバイスへの応用
- ・ 高次機能を有する高強度高靱性ナノ複合材料の設計・作製・特性評価と実用化に関する研究
- ・ ナノ複合化コンセプトによる電子セラミックスの高次機能調和化に関する研究
- ・ 原子・分子レベル複合材料の設計コンセプトの構築とその開発
- ・ 光誘起秩序形成による新物質創製とその評価
- ・ 光誘起相転移による電子励起状態を介した新物質相創製に関する研究
- ・ 半導体表面の光誘起原子構造制御に関する研究

材料機能物性研究分野

教授	弘津 禎彦
助教授	石丸 学
助手	佐藤 和久、平田 秋彦
特任教員(COE)	張 志
研究推進支援員	是枝 淳夫
大学院学生	ベ インテ、内藤 宗幸、ウォン ジョンハン、川村 純一、山口 允裕、小寺 貴士、八木 啓介
事務補佐員	富井 茂子

a) 概要

新しい機能材料の創製には、材料の局所構造、電子状態を正確に知ることが重要となってきた。当研究分野では、非晶質ならびにナノ結晶が示す特異な性質と局所構造との関係に注目した研究を進めて来ている。高分解能電子顕微鏡法、ナノビーム電子回折法、電子線エネルギー損失分光法などを利用して、これらの局所構造、電子状態を解析し、機能との関連を調べる研究を行う一方、得られた知識を新しい機能材料の設計に向けた研究や、新しい局所構造解析手法の開発などを行っている。また、種々の条件下での材料の局所構造の予測、物性の予測する目的で、分子動力学法、モンテカルロ法などによる局所構造シミュレーションや、バンド計算による電子状態の解析なども行っている。

b) 成果

・先端的電子顕微鏡技術による電子線動径分布解析手法の確立

電子線構造解析手法を応用する際に重要となる、(1)多重散乱効果、(2)非弾性散乱効果の解析精度への影響について検討した。アモルファス $\text{Fe}_{70}\text{Nb}_{10}\text{B}_{20}$ 試料について、異なる試料厚さ領域からの電子線回折強度を得ると同時に、試料厚さ確認のため同一領域からの電子線エネルギー損失分光スペクトルを得た。強度解析の結果、約 20nm 厚さ以下では同様な強度プロファイルが得られ、2 体分布関数も全く同じであった。一方で、厚さが 30nm 以上になると、高角度散乱強度は急に減衰し、2 体分布関数の第一ピーク高さが減少する。以上より、多重散乱は、Fe 系金属ガラスでは、厚さ約 20nm 以下でほぼ避けることができることが判明した。一方、エネルギーフィルター装置を用いた実験の結果、プラズモン励起による非弾性散乱波の除去は、電子線構造解析精度、特に配位数精度向上に大きく寄与することが判明した。

・方位配向強磁性合金ナノ粒子分散膜の構造と磁性

NaCl 単結晶基板上での貴金属(Pt、Pd、Au)ナノ粒子のエピタキシャル成長を利用し、これらを種結晶とした方位配向 Fe ナノ粒子分散膜を作製し、その構造と磁性について研究を行っている。FePt、FePd 系では原子配列の規則化により優れた方位配向硬質磁性ナノ粒子分散膜が得られている。本年度は(1)FePt ナノ粒子の粒子サイズと規則度・硬質磁性、(2)電子回折精密強度測定とマルチスライスシミュレーションによる FePt、FePd ナノ粒子の長距離規則度決定、(3)Fe/L1₀-FePd ナノコンポジット粒子の形成と交換結合による高機能化の 3 点について研究を行った。(1)より粒子サイズ約 8nm 以下では原子配列の規則化にも関わらず硬質磁性が発現しないことが判明した。(2)では規則度測定に及ぼす加速電圧、温度因子、電子線入射方位の影響について検討し高加速電圧(1MV)での $hh0$ 系統反射励起により規則度測定精度が高まることが判明した。また(3)では L1₀-FePd 規則相形成により室温で 1kOe、10K で 2kOe の保磁力を発現させるとともに、Fe/L1₀-FePd 界面での交換結合により FePd 単相よりも大きな飽和磁化(1100-1400emu/cc)発現を達成した。

・アモルファス物質の局所構造解析

高分解能電子顕微鏡法、ナノビーム電子線構造解析ならびに分子動力学法による構造シミュレーショ

ンなどにより、機能性アモルファス物質の局所構造解析を行った。(1)電子線照射に伴う SiC の構造変化に関する研究では、C 原子の優先はじき出しによりアモルファス化が起こることを見出し、異種原子対 (Si-C) と同種原子対 (Si-Si, C-C) の存在比は照射量により変化することが明らかとなった。(2)アモルファス Si-Ge 半導体では、部分 2 体分布関数、部分ボンド角分布解析により Ge 周りの方が Si 周りよりも局所的に歪んでいることを見出した。(3)Ge-Sb-Te 系光メモリー材料のアモルファス局所構造研究では、ナノ電子ビームによる動径分布解析および高分解能像の自己相関関数解析を行い、アモルファス母相中に見られる中範囲規則領域の詳細を検討すると共に、高速結晶化機構を考察した。

[原著論文]

Electron Diffraction and High-resolution Electron Microscopy Study of an Amorphous Pd₈₂Si₁₈ Alloy with Nanoscale Phase Separation, T. Ohkubo and Y. Hirotsu: Phys. Rev. B 67 (2003) 094201(1)-094201(9).

Local Atomic Structures of Amorphous Nd_{4.5}Fe₇₇B_{18.5} Alloys Formed under Different Cooling Rates and Their Relations to the Structures in the Early Stage of Crystallization, T. Hanada, T. Sakamoto, T. Ohkubo, Y. Hirotsu, H. Kanekiyo and S. Hirosawa: Mater. Trans. 44 (2003) 2042-2047.

Structure and Magnetic Property Changes of Epitaxially Grown L1₀-FePd Isolated Nanoparticles on Annealing, K. Sato and Y. Hirotsu: J. Appl. Phys. 93 (2003) 6291-6298.

Long-range Order Parameter of Oriented L1₀-FePt Nanoparticles Determined by Electron Diffraction, K. Sato and Y. Hirotsu: Mater. Trans. 44 (2003) 1518-1522.

Effects of Particle Size and Additive Element on the Atomic Ordering Temperature of L1₀-FePt Nanoparticles, K. Sato, M. Fujiyoshi, M. Ishimaru and Y. Hirotsu: Scripta Mater. 48 (2003) 921-927.

Effects of Surface Step and Substrate Temperature on Microstructure of L1₀-FePt Nanoparticles, K. Sato, T. Kajiwara, M. Fujiyoshi, M. Ishimaru, Y. Hirotsu and T. Shinohara: J. Appl. Phys. 93 (2003) 7414-7416.

Electron Diffraction Structure Analysis for Amorphous Materials (invited), Y. Hirotsu, T. Ohkubo, I.-T. Bae and M. Ishimaru: Mater. Chem. Phys. 81 (2003) 360-363.

Ion-beam-induced Amorphous Structures in Silicon Carbide, I.-T. Bae, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, S. Matsumura and K.E. Sickafus: Nucl. Instrum. Meth. B 206 (2003) 974-978.

Amorphous Structures of Silicon Carbonitride Formed by High-dose Nitrogen Ion Implantation into Silicon Carbide, M. Ishimaru, M. Naito, Y. Hirotsu and K.E. Sickafus: Nucl. Instrum. Meth. B 206 (2003) 994-998.

Electron-beam-induced Amorphization in SiC, M. Ishimaru, I.-T. Bae and Y. Hirotsu: Phys. Rev. B 68 (2003) 144102(1)-144102(4).

Molecular-dynamics Study of Structural and Dynamical Properties of Amorphous Si-Ge Alloys, M. Ishimaru, M. Yamaguchi and Y. Hirotsu: Phys. Rev. B 68 (2003) 235207(1)-235207(7).

Electron Microscopy Study on Amorphous Ge-Sb-Te Thin Film for Phase Change Optical Recording, M. Naito, M. Ishimaru, Y. Hirotsu and M. Takashima: Jpn. J. Appl. Phys. 42 (2003) L1158-L1160.

Appearance of the Icosahedral Atomic Cluster in the Formation of the MgCu₂-type Structure From the Bcc Structure in Ti-Cr Alloys, A. Hirata, Y. Koyama and M. Tanimura: Phys. Rev. B 67 (2003) 144107(1)-144107(9).

Ion Dose Dependence on Solid Phase Epitaxy of Amorphous Silicon Carbide Induced by Ion Implantation, I.-T. Bae, M. Ishimaru and Y. Hirotsu: Proc. Mater. Res. Soc. Symp. 742 (2003) 67-72.

Radial Distribution Functions of Amorphous Silicon Carbide, M. Ishimaru, I.-T. Bae and Y. Hirotsu: Proc. Mater. Res. Soc. Symp. 742 (2003) 73-77.

[解説、総説]

アモルファスシリコンカーバイドの構造と構造緩和過程, 石丸 学、ベインテ、弘津禎彦: 日本結晶学会誌 45 (2003) 185-189.

Au-Cd および Fe-Ni 合金ナノ粒子のマルテンサイト変態, 安坂幸師、唯木次男、弘津禎彦: 日本金属学会誌「まてりあ」42 (2003) 725-730.

相変化型記録材料 Ge-Sb-Te 非晶質薄膜の断面観察, 内藤宗幸、石丸 学、弘津禎彦、高島正樹: 日本金属学会会報「まてりあ」42 (2003) 889.

[著書]

「ナノメタルの最新技術と応用開発」弘津禎彦, シーエムシー出版, (2003), 第4章 分析・解析技術

[国際会議]

Structural studies of functional nanomaterials by modern electron microscopy (invited), *Y. Hirotsu, M. Ishimaru and K. Sato, The 41th Symposium on Basic Science of Ceramics, Nanotechnology Symposium for World Young Ceramist, Kagoshima, Jan. 22-23, 2003.

New Possibilities in Electron Diffraction Based Phase Analysis in the TEM (invited), *J.L. Lábár, M. Ishimaru and Y. Hirotsu, 6th Multinational Congress on Microscopy – A Regional Meeting with European Extension, Pula, Croatia, Jun. 1-5, 2003.

Variation of Short Range Order with the Composition in an Amorphous-Al-Pt Alloy Existing in a Wide Compositional Range, *J.L. Lábár, A Kovács, B.P. Barna, T. Hanada, M. Ishimaru, Y. Hirotsu and I.-T. Bae, 6th Multinational Congress on Microscopy – A Regional Meeting with European Extension, Pula, Croatia, Jun. 1-5, 2003.

Formation of Multiply Twinned Nanostructural L1₀-type FePt Particles, *A. Kovács, G. Sáfrán, K. Sato, P. B. Barna and Y. Hirotsu, 6th Multinational Congress on Microscopy – A Regional Meeting

with European Extension, Pula, Croatia, Jun. 1-5, 2003.

Local Structural Change of Amorphous Ge-Sb-Te Thin Film during Annealing (Poster), *M. Naito, M. Ishimaru, Y. Hirotsu and M. Takashima, X International Conference on the Physics of Non-Crystalline Solids, Parma, Italy, Jul. 13-17, 2003.

Electron Diffraction Study on Chemical Order in Amorphous Silicon Carbide, *M. Ishimaru, I.-T. Bae and Y. Hirotsu, X International Conference on the Physics of Non-Crystalline Solids, Parma, Italy, Jul. 13-17, 2003.

Magnetoanisotropy, Long-range Order Parameter and Thermal Stability of Isolated L1₀ FePt Nanoparticles with Mutual Fixed Orientation (Poster), *K. Sato, T. Kajiwara and Y. Hirotsu, Int'l Conference on Magnetism, Roma, Italy, Jul. 27-Aug.1, 2003.

Atomistic Structures of Amorphous Si_{1-x}Ge_x Alloys: A Molecular-dynamics Study (Poster), *M. Yamaguchi, M. Ishimaru and Y. Hirotsu, The 8th IUMRS-International Conference on Advanced Materials, Yokohama, Oct. 8-13, 2003.

Fabrication and Structure of Oriented L1₀-FePd Nanoparticles (Poster), *K. Sato and Y. Hirotsu, Int'l Symposium on Advanced Magnetic Materials, Yokohama, Oct. 8-10, 2003.

Nanoscale Phase Separation in Metallic Glasses Studied by Advanced Electron Microscopy Techniques (invited), *Y. Hirotsu, T. Hanada, T. Ohkubo and T. G. Nieh, 3rd International Conference on Bulk Metallic Glasses, Beijing, China, Oct. 12-16, 2003.

The Glass Forming Ability, Microstructure and Magnetic Properties of NdAlNiCuFe Alloys, *Z. Zhang, Y. Hirotsu and W. H. Wang, 3rd International Conference on Bulk Metallic Glasses, Beijing, China, Oct. 12-16, 2003.

Effect of Cu Addition on the Annealing Process of FeNbSiB Glass (Poster), *T. Hanada, T. Matsumoto, Y. Hirotsu, T. Ohkubo, S. Fijii and Y. Yoshizawa, 3rd International Conference on Bulk Metallic Glasses, Beijing, China, Oct. 12-16, 2003.

Structural Analysis of Amorphous Ge-Sb-Te Thin Film Using Nano-Beam Diffraction and High-Resolution Electron Microscopy (Poster), *M. Naito, M. Ishimaru, Y. Hirotsu and M. Takashima, International Symposium on Optical Memory 2003, Nara, Nov. 3-7, 2003.

Transmission Electron Microscopy Study on Amorphous Structures of Phase Change Optical Recording Material (Poster), *M. Ishimaru, M. Naito, Y. Hirotsu and M. Takashima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003, Osaka, Dec. 8-9, 2003.

Fabrication of Exchange-coupled Fe/L1₀-FePd Nanocomposite Isolated Particles (Poster), *J. Kawamura, K. Sato and Y. Hirotsu, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003, Osaka, Dec. 8-9, 2003.

[国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員]

弘津禎彦	8 th Asia-Pacific Conference on Electron Microscopy (組織委員)
弘津禎彦	16 th International Congress on Electron Microscopy (組織委員)
弘津禎彦	International Conference on New Frontiers of Process Science and Engineering in Advanced Materials (顧問委員)
弘津禎彦	8 th IUMRS International Conference on Advanced Materials (シンポジウム組織委員)
弘津禎彦	Japan-Polish Joint Seminar on Materials Analysis (組織委員)

[国内学会]

日本金属学会	11 件
応用物理学会	3 件
日本電子顕微鏡学会	5 件
その他	10 件

[取得学位]

修士(工学)

川村 純一	Fe/L1 ₀ -FePd 複合ナノ粒子の構造形態と磁氣的性質
山口 允裕	分子動力学法による非晶質 Si-Ge 系合金の構造シミュレーション

[科学研究費補助金]

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

特定領域研究(2)「金属ガラスの科学」

弘津 禎彦	融体・金属ガラスの局所原子構造のその場観察	8,800
-------	-----------------------	-------

基盤研究(A)(2)一般研究

弘津 禎彦	強磁性規則合金ナノ粒子の低温エピタキシャル成長と機能化	10,400
-------	-----------------------------	--------

若手研究(B)

佐藤 和久	硬質磁性を示す方位配向 FePt、FePd ナノ粒子の規則化・配向支配因子の解明	1,800
-------	--	-------

[受託研究]

単位：千円

弘津 禎彦	科学技術振興調整費	ナノヘテロ材料局所構造の電子線精密構造解析と機能発現機構の解明	11,987
弘津 禎彦	NEDO(革新的部材産業創出プログラム)	高機能高精度省エネ加工型金属材料(金属ガラス)の成形加工技術	3,150

[共同研究]

単位：千円

弘津 禎彦	日本学術振興会欧州諸国及び豪州との科学協力事業共同研究	強磁性規則合金ナノ粒子のエピタキシャル成長機構と高機能化	560
-------	-----------------------------	------------------------------	-----

[その他の競争的研究資金]

			単位：千円
石丸 学	(財)村田学術振興財 団	光相変化型記録材料におけるアモルファス構造 とその結晶化速度に及ぼす影響	1,000
佐藤和久	(財)ホソカワ粉体工 学振興財団	鉄白金ナノ粒子の極微構造観察と規則相低温合 成	700

金属材料プロセス研究分野

教授	中嶋 英雄
助手	池田 輝之、玄 丞均、中畑 拓治
研究支援推進員	中居 由忠
大学院学生	野瀬 嘉太郎、謝 振凱、久次米 利彦、星山 英男
	井手 拓哉、大西 洋史、伏屋 実
事務補佐員	松尾 紀美、山本 香代子

a) 概要

金属材料は構造材料や機能材料の基幹材料として我々の生活に不可欠なものであり、21世紀に向けた需要に対してさらに耐熱強靱性、軽量化、高機能化、長寿命化などが要求されてきている。この金属材料を優れた構造材料、機能性材料として開発するための金属材料プロセスの新しい展開をめざすことが本研究分野の主なテーマである。これまでは、構造材料、機能材料を問わず、合金元素の添加、結晶粒微細化、熱処理などによって組織や結晶構造を制御し、強度をはじめとする種々の材料特性を向上させることに主要な力点が置かれていた。このような観点とは別に、本研究分野では、従来ほとんど注目されていなかった鑄造欠陥と見なされていた気孔を材料に利用する試みを行っている。

その1つとして、金属を水素や窒素などの高圧ガス中で溶解し一方向凝固させて孔の向きのそろったロータス(レンコン)型ポーラス金属を作製している。孔のサイズは1 μm から10mmの大きさと孔の空隙率は最大80%程度である。ロータス型ポーラス金属は機械加工や合金化により高強度化が可能であり、高強度材料の軽量化、孔や表面を利用した機能性材料などへの広範な用途が期待される。今年度は、連続帯溶融法を用いたポーラス金属作製方法の確立、ポーラス金属間化合物・ポーラスシリコンの創製、医療器具の開発を行った。

また、金属合金や金属間化合物における原子の拡散の系統的な研究を行い、結晶における原子のジャンプ過程の機構を解明している。

b) 成果

・ロータス型ポーラス金属および合金の作製

我々のグループでは、融点における金属中のガス溶解度差を利用して一方向に向きの揃った円柱状の孔を有するポーラス金属を創製している。本年度は、新たにロータス型ポーラス銀及びマグネシウム合金を創製し、また板状ポーラス金属の作製手法を確立した。

酸素加圧雰囲気中での鑄造によってロータス型ポーラス銀を作製すると、他のロータス型金属では見られないような歪んだポアやポアサイズ分布のばらつきが生じる。これは、ポア内部の酸素が酸素濃度不足の液相に再溶解することによると考えられる。凝固界面に気相から酸素が供給されやすいチヨクラルスキー法により作製したところ、ポアの真円度やポアサイズ分布が大幅に改善された。

ポーラスマグネシウム合金においては、合金元素濃度や温度勾配がポアの形状に影響を及ぼすことが明らかになった。この知見をもとに連続帯溶融法により大きな温度勾配下で、円柱状のポアが均一に生成したロータス型ポーラスマグネシウム合金を作製することができた。

また、連続帯溶融法を応用して、板状のロータス型ポーラス Ni 基超合金およびステンレス鋼を作製した。これまで作製されてきたロータス型ポーラス金属は主としてインゴット状あるいは丸棒状であったが、板材の作製が可能になったことで、より幅広い用途への応用が期待される。

・ロータス型ポーラス金属間化合物の創製

加圧水素ガス中で Ni_3Al 金属間化合物を一方向凝固させることによって、平行な多数の円柱状ポアを有するロータス型ポーラス Ni_3Al 金属間化合物を作製した。ポアのサイズは数10 μm ~ 数100 μm であ

り、ポロシティは最大でおよそ 50%であった。今後、高温軽量構造材料や高温触媒担体、高温フィルターなどへの応用が期待できる。

・ロータス型ポーラスシリコンの創製

水素・アルゴン加圧雰囲気中での一方向凝固によりロータス型ポーラスシリコンを作製した。ポロシティやポアサイズの水素分圧依存性を明らかにした。ポアは直径が約 10 μm から 1mm であり、凝固方向に伸びていることが特徴である。

・ロータス型ポーラス金属人工骨・人工歯根の動物実験

ポーラスステンレス鋼およびポーラスチタンの動物への埋入実験を行い、ポア内に新生骨が侵入することを確認した。特に、チタンは短期間で著しい骨結合が起こっていた。このようにロータス型ポーラス金属は生体適合性に優れ、人工骨や人工歯根への応用が期待される。

・ロータス型ポーラスステンレス鋼の耐食性

ロータス型ステンレス鋼 SUS304L の耐食性の検討を行った。0.1mol/l の硫酸水溶液を用いた動電位分極曲線測定の結果、約-100mV における電流密度は作製時に生成した第二相であるフェライト相が多いほど増加することが判明した。

・L₁₀ 型および L₁₂ 型規則合金中の原子拡散機構

規則不規則合金 FePt、Pt₃Fe は、次世代磁気メモリー材料、構造材料としての期待が大きい。これらの規則合金はそれぞれ L₁₀ 型および L₁₂ 型構造を有する。これらの規則合金の構成元素の拡散係数を放射性同位元素をトレーサーとして用いる方法により詳細に測定した。この結果を熱力学的手法により計算した点欠陥濃度等と比較することにより、拡散機構を明らかにした。

[原著論文]

Fe tracer diffusion in L₁₀ ordered FePt, Y. Nose, T. Ikeda, H. Nakajima, K. Tanaka and H. Numakura: Mat. Res. Soc. Symp. Proc., 753 (2003), 381-386.

Weld fusion property of lotus-type porous cooper by laser beam irradiation, T. Murakami, K. Nakata, T. Ikeda, H. Nakajima and M. Ushio: Mater. Sci. Eng., A357 [1-2] (2003), 134-140.

Tracer and chemical diffusion in L₁₂-ordered Pt₃Fe, Y. Nose, T. Ikeda, H. Nakajima and H. Numakura: Mater. Trans., 44 [1] (2003), 34-39.

Fabrication of lotus-type porous brass by zinc diffusion into porous copper, T. Aoki, T. Ikeda and H. Nakajima: Mater. Trans., 44 [1] (2003), 89-93.

Self-diffusion of titanium in single crystalline γ -TiAl, T. Ikeda and H. Nakajima: Defect and Diffusion Forum, 213-215 (2003), 133-141.

Diffusion of ⁵⁹Fe in γ -TiAl single crystals, N. Terashita, Y. Nose, T. Ikeda, H. Nakajima, H. Inui and M. Yamaguchi: Mater. Lett., 57 [22-23] (2003), 3357-3360.

Re-examination of the phase diagram of Fe-Pt system, Y. Nose, A. Kushida, T. Ikeda, H. Nakajima, K. Tanaka and H. Numakura: Mater. Trans., 44 [12] (2003), 2723-2731.

Anisotropic compressive properties of porous copper by unidirectional solidification, S.K. Hyun and H. Nakajima: Mater. Sci. Eng. A, 340 [1-2] (2003), 258-264.

Effect of solidification velocity on pore morphology of lotus-type porous metals fabricated by unidirectional solidification, S.K. Hyun and H. Nakajima: Mater. Lett., 57 [21] (2003), 3149-3154.

Fabrication of lotus-type porous iron and steel and the mechanical properties, S.K. Hyun, H. Nakajima and T. Ikeda: Proc. 8th Japan Int. SAMPE Sym., edited by N. Takeda, H. Hamada, S. Ogihara and A. Nakai, Japan Chapter of SAMPE, Tokyo, (2003), 753-756.

Fabrication of lotus-type porous metals and physical properties, H. Nakajima, T. Ikeda and S.K. Hyun: Cellular Metals: Manufacture, Properties and Applications, ed. J. Banhart, N. Fleck and A. Mortensen, Verlag MIT Publ. (2003), 191-202.

Anisotropic elastic constants of lotus-structured porous metals, M. Tane, T. Ichitsubo, H. Ogi, M. Hirao, T. Ikeda and H. Nakajima: Cellular Metals: Manufacture, Properties and Applications, ed. J. Banhart, N. Fleck and A. Mortensen, Verlag MIT Publ. (2003), 351-354.

Measurement and analysis of effective thermal conductivities of lotus-type porous copper, T. Ogushi, H. Chiba, H. Nakajima and T. Ikeda: Cellular Metals: Manufacture, Properties and Applications, ed. J. Banhart, N. Fleck and A. Mortensen, Verlag MIT Publ. (2003), 493-498.

Melting of lotus-type porous copper in laser beam welding, T. Murakami, K. Nakata, T. Ikeda, H. Nakajima and M. Ushio: Cellular Metals: Manufacture, Properties and Applications, ed. J. Banhart, N. Fleck and A. Mortensen, Verlag MIT Publ. (2003), 531-534.

Internal friction in lotus-structured porous copper with hydrogen pores, K. Ota, K. Ohashi and H. Nakajima: Mater. Sci. Eng., A341 [1-2] (2003), 139-143.

Diffusion in α -Ti and Zr, R. A. Perez, H. Nakajima and F. Dyment: Mater. Trans., 44 [1] (2003), 2-13.

ロータス型ポーラス銅の圧縮および曲げ特性、玄丞均、中嶋英雄：銅と銅合金、42 [1] (2003) 77-82.

ロータス型ポーラス銅の異方的弾性定数、多根正和、市坪哲、荻博次、平尾雅彦、池田輝之、中嶋英雄：銅と銅合金、42 [1] (2003)、83-86.

ハイドロキシアパタイト超薄膜/ロータス型ポーラス金属複合インプラントの作製、川島将実、本津茂樹、西川博昭、細井美彦、樋口裕一、池田輝之、中嶋英雄：Orthopaedic Ceramic Implants、22 (2003)、23-27.

超音波共鳴法によるロータス型ポーラスマグネシウムの弾性定数測定、多根正和、市坪哲、武田亮、平尾雅彦、池田輝之、中嶋英雄：日本金属学会誌、67 [9] (2003)、417-419.

水素雰囲気下で一方向凝固法により作製したポーラスマグネシウム合金のポア形態とミクロ組織、星山英男、池田輝之、村上健児、中嶋英雄：日本金属学会誌、67 [11] (2003)、713-719.

ロータス型ポーラスマグネシウムの吸音特性、謝振凱、池田輝之、奥田良行、中嶋英雄：日本金属学会誌、67 [12] (2003)、708-713.

[解説、総説]

ロータス型ポーラス金属 –製法、強度と応用–、中嶋英雄：粉体工学会誌、40 [2] (2003)、108-114.

ロータス型ポーラス金属の製造技術と強度、中嶋英雄：熱処理、43 [2] (2003)、87-92 .

第 3 回セル状金属および発泡金属に関する国際会議報告 · MetFoam2003 ·、池田輝之、玄丞均：まてりあ、42 [11] (2003) 836.

[著書]

「第 17 回「大学と科学」公開シンポジウム講演収録集 21 世紀を拓く水素の世界 新しい材料とクリーンエネルギー」(公開シンポジウム組織委員会編)、中嶋英雄、クバプロ、(2003)、49-60.

[特許]

「工作機械」中嶋英雄他、特願 2003-023887

「ポーラス金属を用いたガスタービン部品及びその製造方法」中嶋英雄他、特願 2003-050448

「吸音材料」中嶋英雄、奥田良行、謝振凱、池田輝之、特願 2003-121606

「ロータス型多孔質金属体の製造方法」中嶋英雄、玄丞均、特願 2003-119647

「除去加工用工具」中嶋英雄他、特願 2003-208949

「ゴルフクラブヘッド」中嶋英雄他、特願 2003-359017

「ヒートシンク」中嶋英雄他、特願 2003-363529

「多孔質半導体の製造方法」中嶋英雄、中畑拓治、特願 2003-432602

[国際会議]

Anisotropic fusion zone of lotus-type porous metals by laser welding, *T. Murakami, T. Tsumura, K. Nakata, T. Ikeda, H. Nakajima and M. Ushio, International symposium on Novel Materials Processing by Advanced Electromagnetic Energy Sources (MAPEES'04), Osaka University, Mar. 19-22, 2004.

Development of porous metals for medical devices (Poster), *T. Ikeda, S. Hyun and H. Nakajima, Second 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience", 7th

SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science, Osaka University, Jan. 13-14, 2004.

Analysis of heat transfer characteristics of lotus-type porous copper heat sink, *H. Chiba, T. Ogushi, T. Ikeda and H. Nakajima, International Symposium on Micro-Mechanical Engineering — Heat Transfer, Fluid Dynamics, Reliability and Mechatronics — (ISMME 2003), Tsuchiura, Japan, Dec. 1–3, 2003.

Fabrication of lotus-type porous iron and steel and the mechanical properties, *S. K. Hyun, T. Ikeda and H. Nakajima, 8th Japan International SAMPE Symposium & Exhibition (SAMPE JAPAN 2003), Tokyo, Nov. 18-21, 2003.

Measurement and analysis of sound absorption of porous magnesium, *Z. K. Xie, Y. Okuda, S. K. Hyun, T. Ikeda and H. Nakajima, 3rd International Symposium on Designing and Properties of Advanced Engineering Materials (ISAEM-2003), Jeju Island, Korea, Nov. 5–8, 2003.

Fabrication of lotus-type porous metals by unidirectional solidification in pressurized gas atmosphere and physical properties (Invited), *H. Nakajima, 3rd International Conference on Cellular Metals and Metal Foaming Technology (MetFoam 2003), Berlin, Germany, Jun. 23-25, 2003.

Formation and growth of gas pores during unidirectional solidification of water containing carbon dioxide (Poster), *K. Murakami, Y. Nakai, H. Nakajima, 3rd International Conference on Cellular Metals and Metal Foaming Technology (MetFoam 2003), Berlin, Germany, Jun. 23-25, 2003.

Melting property of lotus-type porous copper by laser beam welding, *T. Murakami, K. Nakata, T. Ikeda, H. Nakajima, M. Ushio, 3rd International Conference on Cellular Metals and Metal Foaming Technology (MetFoam 2003), Berlin, Germany, Jun. 23-25, 2003. (poster)

Measurement and analysis of effective thermal conductivity of lotus-type porous copper, *T. Ogushi, H. Chiba, T. Ikeda and H. Nakajima, 3rd International Conference on Cellular Metals and Metal Foaming Technology (MetFoam 2003), Berlin, Germany, Jun. 23-25, 2003.

Fabrication and mechanical property of lotus-type porous magnesium (Poster), *T. Ikeda and H. Nakajima, 3rd International Conference on Cellular Metals and Metal Foaming Technology (MetFoam 2003), Berlin, Germany, Jun. 23-25, 2003.

Fabrication of lotus-type porous stainless steel bars and their microstructure (Poster), *T. Ikeda, T. Aoki and H. Nakajima, 3rd International Conference on Cellular Metals and Metal Foaming Technology (MetFoam 2003), Berlin, Germany, Jun. 23-25, 2003.

Mechanical properties of lotus-type porous iron fabricated by unidirectional solidification in nitrogen atmosphere (Poster), *S. K. Hyun, T. Ikeda and H. Nakajima, 3rd International Conference on Cellular Metals and Metal Foaming Technology (MetFoam 2003), Berlin, Germany, Jun. 23-25, 2003.

Fabrication and mechanical properties of lotus-type porous nickel by unidirectional solidification (Poster), Y. Suematsu, *S. K. Hyun, T. Ikeda and H. Nakajima, 3rd International Conference on Cellular Metals and Metal Foaming Technology (MetFoam 2003), Berlin, Germany, Jun. 23-25, 2003.

Structure and mechanical properties of lotus-type porous magnesium (Poster), *H. Seki, M. Otsuka, T. Ikeda and H. Nakajima, 3rd International Conference on Cellular Metals and Metal Foaming Technology (MetFoam 2003), Berlin, Germany, Jun. 23-25, 2003.

Anisotropic elastic constants of lotus-structured porous metals (Poster), *M. Tane, T. Ichitsubo, H. Ogi, M. Hirao, T. Ikeda and H. Nakajima, 3rd International Conference on Cellular Metals and Metal Foaming Technology (MetFoam 2003), Berlin, Germany, Jun. 23-25, 2003.

[国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員]

中嶋 英雄	Materials Letters (主席編集長)
中嶋 英雄	High Temperature Materials and Progress (国際編集委員)
中嶋 英雄	Diffusion and Defect Data (編集顧問)
中嶋 英雄	Materials Science Foundations (編集顧問)
中嶋 英雄	First International Symposium on Point Defect and Nonstoichiometry (実行委員)
中嶋 英雄	Third International Conference on Cellular Metals and Metal Foaming Technology (組織委員)
中嶋 英雄	International Symposium on Structural and Functional Materials Design (組織委員)
中嶋 英雄	International Conference on New Frontiers of Process Science and Engineering in Advanced Materials (組織委員)
中嶋 英雄	THERMEC'2006 Symposium on Metallic Foams (実行委員)
中嶋 英雄	International Conference on Diffusion in Materials (組織委員)
中嶋 英雄	Forth International Conference on Porous Metals and Metal Foaming Technology (MetFoam2005) (組織委員長)

[国内学会]

日本金属学会	30 件
日本鉄鋼協会	1 件
高温学会	2 件
銅および銅合金技術研究会	1 件
軽金属学会	1 件
バイオマテリアル学会	1 件
日本冷凍空調学会	1 件

[取得学位]

修士(工学)	
星山 英男	ロ・タス型ポ・ラスマグネシウム合金の作製および機械的性質

[科学研究費補助金]

単位：千円

萌芽研究

中嶋 英雄 無垢の鉄より 4 倍の比強度をもつ軽量高強度鉄の創製 1,900

[受託研究]

中嶋 英雄 土山産業株式会社 特殊鑄造法によるポーラス金属の開発 800

中嶋 英雄 超音速輸送機用推進システム技術研究組合 革新複合機能化鑄造プロセスの開発 18,117
 基盤技術研究促進事業

[共同研究]

中嶋 英雄 朝日インテック株式会社 多孔金属材料の作製と加工及びその応用 3,630

[その他の競争的研究資金]

中嶋 英雄 文部科学省・大学等発ベンチャー創出支援制度補助金 レンコン型ポーラス金属を用いた商品開発 62,400

池田 輝之 日本鉄鋼協会 鉄鋼研究振興助成 ロータス型ポーラスステンレス鋼の開発 500

極微プロセス研究分野

教授	川合 知二
助教授	田中 秀和
客員助教授	Herrmann Michael
助手	北濱 克熙、田中 裕行、李 恵りょん
博士研究員	李 るんうえい、朴 鐘完、Hossain, A.K.M.、Supab Choopun、山本 洋平、 柳田 剛、B. Vilquin、金 種民、小嶋 薫、大竹才人、安立 京一、宇野 毅、 金井 真樹、唐山 英明、鄭 浩燮、美甘 江利子、松浦 俊彦、吉田 祐介、
受託研究員	日下 貴生、川辺 隆志
大学院学生	菅野 誉士、神吉 輝夫、堀田 育志、田中 慎一、田淵 智美、鈴木 光治、 中村 昌文、高東 智佳子、関 宗俊、大塚 洋一、大西 正敏、杉山 朝久、 中村 友彦、寺脇 歩、屋嘉比 友子、小林 俊之、山本 斉、山田 郁彦、 山崎 龍二郎、片岡 誠、廣岡 誠之、仲里 卓
学部学生	野島 義弘、藤川 和子、水野 江里子
研究生	浜井 知歩
事務補佐員	藤林 乃理子、阪本 友佳子、高森 千恵美

a) 概要

「機能調和人工格子の作成と評価」、「固体表面の極微細構造の科学」および「計算科学」を柱とするナノテクノロジー指向の研究を行っている。これらは、レーザー-MBE を用いて原子層毎に組成を制御する人工格子作製により、通常の平衡相図上では実現できない新機能を顕示する物質・材料等を人工的に創成し、高感度に外場応答するデバイス等を作製すること、さらに、走査プローブ顕微鏡により DNA など表面 1 分子の観察、分光および分子マニピュレーションを行うことに挑戦している。また、コンピューターを用いて物質の結晶構造変化や電子状態を予測する計算科学も行っている。

主要研究課題としては、レーザープロセスによる機能調和人工格子薄膜・デバイスの創成、SPMによるDNA等の有機分子の観察と分子マニピュレーション、DNAチップの開発、コンピューターシミュレーションによる物質設計・物性解明、が挙げられる。

b) 成果

室温強磁性 (La,Ba)MnO₃/強誘電体 Pb(Zr,Ti)O₃ 電界効果トランジスタ素子作製とその室温における磁気輸送特性の電界制御を実現した。強相関電子系酸化物薄膜による高感度赤外線センサを作成した。強磁性遷移金属酸化物における AFM ナノリソグラフィにおいて、最小加工幅 48nm の達成。

金属清浄表面上に固定した単鎖 DNA の個々の塩基分子を高分解能走査型トンネル顕微鏡像により個別観察および個別分光することに成功した。蛍光ラベルされた DNA の観察をおこない、DNA と蛍光ラベルとの状態密度および分極状態の差異を塩基分子レベルの空間分解能で検出することに成功した。

微細加工技術によって 1 または複数の微小ウェルを電極表面上に配列させ、これら微小ウェルの各々にプローブ DNA を固定化したバイオ分子アレイチップを作製し、このプローブ DNA にターゲット DNA が相互作用したときの酸化還元電流値の変化を高感度で測定することによって、ターゲット DNA 中の単一塩基の変異を検出する方法を開発した。

[原著論文]

Electrical-field control of metal-insulator transition at room temperature in a Pb(Zr_{0.2}Ti_{0.8})O₃/La_{1-x}Ba_xMnO₃ filed effcet transistor. T. Kanki, Y.-G. Park,, H. Tanaka, T. Kawai, Appl. Phys. Lett., 83(2003) 4860-482

Nanoscale observation of room-temperature ferromagnetism on ultrathin (La,Ba)MnO₃ films, T.Kanki, R. Li, Y. Naitoh, Hide. Tanaka, T. Matsumoto, T. Kawai : Appl. Phys. Lett 83 (2003)

1184-1186.

CuPc/PbZr_{0.2}Ti_{0.8}O₃/(La, Ba)MnO₃ field effect transistor heterojunction photomemory, Y.G.Park, T.Kanki, H.Y.Lee, Hide.Tanaka, T.Kawai : Solid State Electronics Lett., 47(2003) 2221-2224.

Electrical Properties of Poly(dA)-Poly(dT) and Poly(dG)-Poly(dC) DNA Doped with Iodine Molecules, M. Taniguchi, H.Y. Lee, Hide. Tanaka, T.Kawai : Jpn. J. Appl. Phys. (2003) 215-216.

Magneto-transport properties of La_{0.8}Ba_{0.2}MnO₃/antiferromagnetic LaMO₃ (M=Cr, Fe) perovskite tri-layered films.T. Kanki, H. Tanaka and T. Kawai : J. Appl. Phys., 93(2003) 4718-4721.

Appearance of magnetic blocking temperature in zinc magnesium ferrite thin films.Y. Yamamoto, H. Tanaka and T. Kawai : J. Magn. Magn. Mater.,261(2003) 263-268.

Investigations on the nature of observed ferromagnetism and possible spin polarization in Co-doped anatase TiO₂ thin films D. H. Kim, J. S. Yang, K. W. Lee, S. D. Bu, D.-W. Kim, T. W. Noh, S.-J. Oh, Y.-W. Kim, J.-S. Chung, Hide. Tanaka, H. Y. Lee, T. Kawai, J. Y. Won, S. H. Park, J. C. Lee J.Appl. Phys., 93(2003),6125-6132.

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, T. Kawai, Solid State Commun., 125 (2003) 305-309

La_{0.7}Ce_{0.3}MnO₃ Epitaxial Films Fabricated by a Pulsed Laser Deposition Method. Yanagida, T., T.Kanki, B.Vilquin, H.Tanaka and T.Kawai, *Solid State Commu.*, 129 (2004) 785-790.

AFM Observation of Stretched DNA on Graphite Surfaces Itsuki Yamamoto, Hiroyuki TANAKA and Tomoji KAWAI Jpn. J. Appl. Phys. PT.2, 42[5B] (2003)559-560.

High-resolution scanning tunneling microscopy imagin of Escherichia coli lysine transfer ribonucleic acid Makoto NISHIMURA Hiroyuki TANAKA and Tomoji KAWAI J. Vac. Sci. Technol. B21(4) Jul/Aug(2003)1265-1267.

Visualization of detailed structures within DNA Hiroyuki Tanaka and Tomoji Kawai Surf. Sci. Lett. Volume 539, Issues 1-3, 1 August(2003)L531-L536.

Near-field optical imaging of abasic sites on a single DNA molecule J.M.Kim, H.Y.Lee, H.Muramatsu, T.Kawai FBBS LETTER, 555(2003) 611-615.

Electrical properties of poly(dA)-poly(dT) and poly(dG)-poly(dC) DNA doped with iodine molecules M.Taniguchi, H.Y.Lee, H.Tanaka, and T. Kawai Jpn. J. Appl. Phys., 42 (2003) 215-216.

[解説、総説、翻訳]

超高感度センサ/バイオセンサ, 田中秀和、川合知二 : 化学装置, (2003) 59-61.

[著書]

「ナノテクノロジー大事典」監修 : 川合知二、工業調査会、(2003) 総 989 ページ

「ナノテクノロジー 極微科学とは何か」川合知二、PHP 新書、(2003) 総 192 ページ

「基礎から学ぶナノテクノロジー : ナノ加工技術 ~ 先端・新機能デバイスの創製 ~ 」田中秀和 (分担執筆)

川合知二 (分担執筆): 化学同人, (2003).

「ナノテクノロジーハンドブック」田中秀和 (分担執筆)、川合知二 (分担執筆): オーム社, (2003).

[特許]

「不揮発性光メモリ、光情報の記憶方法、および光情報の読み出し方法」田中秀和、朴影根、李恵りょん、神吉輝夫、川合知二、特願 2003-010746

「電界効果トランジスタ」田中秀和、朴影根、神吉輝夫、川合知二 PCT/JP03/11300 PCT 国際特許出願

「トンネル磁気抵抗素子、半導体接合素子、磁気メモリ、および半導体発光素子」田中 秀和、川合 知二、PCT/JP03/030604 PCT 国際特許出願

「高分子固定化基板の製造方法およびこの方法により得られる高分子固定化基板」田中裕行、川合知二、特願 2003-203163 号

「分子基板間相互作用を利用した鎖状分子伸張固定化基板の製造方法およびこの方法により得られる鎖状分子伸張固定化基板、並びにその利用」川合知二、田中裕行、菅野誉士、山本斉、田中慎一、特願 2003-204981 号

「DNA チップおよびそれを用いたバイオセンサー」川合 知二、李 恵りょん、朴 鐘完、J.M.Kim, H.S.Jung 特願 2003-403398, 2003 年 12 月 2 日出願.

「蛋白質チップそれを用いたバイオセンサー」川合 知二、李 恵りょん、H.S.Jung, J.M.Kim, 朴 鐘完 特願 2003-403408, 2003 年 12 月 2 日出願.

[国際会議]

Nanobiology and Nanodevices(Invited), *T. Kawai, Osaka University•EU•LMU Forum 2003 on Nanoscience and Nanotechnology in cooperation with CeNS, Germany, Jan. 16, 2003.

Toward DNA Electronics (Invited), *T. Kawai, Third International Symposium on Biomimetic Materials Processing (BMMP-3), Nagoya, Jan. 27, 2003.

Artificially structured materials which show giant properties at room temperature (Invited), *T.Kawai, The 4th France - Japan Workshop on Nanomaterials, Toshi Centre Hotel, Tokyo, Japan, Mar. 3, 2003

Nanoscience and Nanotechnology using Quantum Beams (Plenary talk), *T. Kawai, 13th International Conference on Positron Annihilation, Kyoto, Japan, Sep. 7, 2003.

Laser MBE for Construction of Multilayered Metal Oxide Devices Sensitive to External Fields (Invited), *T.Kawai, COLA'03 (7th International Conference on Laser Ablation), Greece, Dec. 5, 2003.

Molecular and Nanowire Interconnects (Invited), *T. Kawai, International Workshop on Smart Interconnects (IWSI), Atami, Japan, Nov. 6, 2003.

DNA based electronic and Magnetic devices (Invited), *T. Kawai, Sweden-Japan Workshop on Bionanotechnology, Kyoto, Japan, Nov. 9, 2003.

Nanotechnology toward Human Body Building (Plenary), *T. Kawai, ITRI (Industrial Technology Research Institute) 30th Anniversary Celebrations-International Nanotechnology Forum, Taiwan, Nov. 19, 2003.

DNA Nanotechnology Toward Biomolecular Electronics (Invited), *T. Kawai, 7th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures (ACSIN-7), Nara, Japan, Nov. 16, 2003.

Nanotechnology toward Human Building (Invited), *T. Kawai, Nanoscience and Nanotechnology and Quantum Particles (NNQP2003), Tokyo, Japan, Dec. 15, 2003.

Biomolecular Electronic Devices (Invited), *T. Kawai, Interdisciplinary Nanoscience Center, CAMP and Department of Physics and Astronomy, University of Aarhus Seminar, Denmark, Jan. 16, 2004.

Nanotechnology in Japan (Invited), *T. Kawai, IBC EUROFORUM, Denmark, Jan. 27, 2004.

Characterization of Artificial Nanostructures and Nanomaterial (Invited), *T. Kawai, The 9th International Symposium on Advanced Physical Fields (APF-9), Tsukuba, Japan, Mar. 1, 2004.

Future Trend's in Nanotechnology (Plenary), *T. Kawai, The 3rd National Congress on Science and Technology for Development "Thailand's S&T Future Trends in the Coming Decade", Thailand, Mar. 15, 2004.

Nano Tech 2004 (Exhibition), *.Kawai, Tokyo, Japan, Mar. 17, 2004.

DNA Nanotechnology Toward Nano-Electronics (Invited), *Hide. Tanaka and T. Kawai International Symposium of Dry Process 2003, Tokyo, Nov. 14, 2003.

Nano-Scale Characterization of the Ultra thin (La,Ba) MnO₃ Film with Room Temperature Ferromagnetism and Their Device Application, *H. Tanaka, T. Kanki and T. Kawai, 2003 MRS Fall Meeting, Boston, USA, Dec. 1, 2003.

Nano-Patterning on Transition Metal Oxides by SPM Lithography, M. Hirooka, R.-W. Li, *H. Tanaka and T. Kawai, The 3rd International Workshop on Novel Quantum Phenomena in Transition Metal Oxides, Sendai, Nov. 8, 2003.

Magnetic and Electrical Properties of Field Effect Transistor Using Ferromagnetic (La,Ba) MnO₃ Channel, *Hide. Tanaka and T. Kawai, 2nd 21st Century COE and 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology and Material Science, Osaka, Jan. 13, 2004.

Metal-Insulator Transition Phenomena of La_{0.7}Ce_{0.3}MnO₃ Thin Films (Poster), *T. Yanagida, T. Kanki, B. Vilquin, Hide. Tanaka and T. Kawai, The 3rd International Workshop on Novel Quantum Phenomena in Transition Metal Oxides, Sendai, Japan, Nov. 8, 2003.

Nature of Phase Transition Phenomena of La_{0.7}Ce_{0.3}MnO₃ Thin Films (Poster), *T. Yanagida, T. Kanki, B. Vilquin, Hide. Tanaka and T. Kawai, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003, Osaka, Japan, Dec. 8, 2003.

Origin of Metal-insulator Transition and Ferromagnetism Phenomena of $\text{La}_{0.7}\text{Ce}_{0.3}\text{MnO}_3$ Thin Films (Poster), *T. Yanagida, T. Kanki, B. Vilquin, Hide. Tanaka and T. Kawai, Second 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" 7th SANKEN International Symposium, Osaka, Japan, Jan. 14, 2004.

Phase Transition Phenomena of $\text{La}_{0.7}\text{Ce}_{0.3}\text{MnO}_3$ Thin Films, *T. Yanagida, T. Kanki, B. Vilquin, Hide. Tanaka and T. Kawai, American Physics Society March Meeting, Montreal, Canada, Mar. 25, 2004.

Hall Effect in Strained $\text{La}_{0.85}\text{Ba}_{0.15}\text{MnO}_3$ Thin Films, *T. Yanagida, T. Kanki, B. Vilquin, Hide. Tanaka and T. Kawai, American Physics Society March Meeting, Montreal, Canada, Mar. 25, 2004.

Metal-Insulator Transition Phenomena in $(\text{La}, \text{Sr})\text{TiO}_3$ Thin Films (Poster), *B. Vilquin, T. Kanki, T. Yanagida, Hide. Tanaka, T. Kawai, The 3rd International Workshop on Novel Quantum Phenomena in Transition Metal Oxides, Sendai, Japan, Nov. 5-8, 2003.

Exemples de Transistor pour L'electronique de Spin (Poster), *B. Vilquin, T. Kanki, T. Yanagida, Hide. Tanaka, T. Kawai, Journees Scientifiques Francophones 2003, Tokyo, Japan, Nov. 24-26, 2003.

Metal-Insulator Transition Phenomena in $(\text{La}, \text{Sr})\text{TiO}_3$ Thin Films (Poster), *B. Vilquin, T. Kanki, T. Yanagida, H. Tanaka, T. Kawai, International Symposium of Scientific and Industrial Nanotechnology 2003, Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Metal-Insulator Transition Phenomena in $(\text{La}, \text{Sr})\text{TiO}_3$ Thin Films (Poster), *B. Vilquin, T. Kanki, T. Yanagida, H. Tanaka, T. Kawai, American Physical Society March Meeting, Montreal, Canada, Mar. 22-26, 2004.

Nano-Scale Modification of Electrical and Magnetic Properties of Fe_3O_4 Thin Film by AFM Lithography, M. Hirooka, *B. Vilquin, R. Li, H. Tanaka, T. Kawai, American Physical Society March Meeting, Montreal, Canada, Mar. 22-26, 2004.

DNA-Templated Assembly of Gold Nanoparticles, *F. Yamada, Y. Otsuka, T. Matsumoto, H. Tanaka and T. Kawai, The 11th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, Shizuoka, Japan, Dec. 11, 2003.

Nano-Patterning on Transition Metal Oxides by SPM Lithography (Poster), *M. Hirooka, Hide. Tanaka, R. Li, and T. Kawai, Novel Quantum Phenomena in Transition Metal Oxide, Sendai, Japan, Nov. 5-8, 2003.

Nano-Patterning on Transition Metal Oxides by SPM Lithography (Poster), *M. Hirooka, Hide. Tanaka, R. Li, and T. Kawai, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003, Osaka, Japan, Dec. 8, 2003.

Nano-Scale Modification of Electrical and Magnetic Properties on Fe_3O_4 Thin Film by AFM lithography, *M. Hirooka, Hide. Tanaka, R. Li, and T. Kawai, The 11th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, Atagawa, Japan, Dec. 11, 2003.

Development of Electrochemical DNA Nanochip Protocol for SNPs Assay (Invited), *H.-Y. Lee, and T. Kawai, The Korean Physical Society-2003 Fall Meeting, DeoGu, Korea., Oct. 25, 2003.

SNPs Assay of Nonlabeled Leptin DNA Based on Biofunctional-Modified Surface(Poster), * H.-Y. Lee, J.-W. Park, J.-M. Kim, R.Yamazaki and T.Kawai, 2003 MRS Fall Meeting, Boston, USA, Dec. 2, 2003.

SPM Investigation for an Electrochemical or a Micro-Gravimetric DNA-Sensing Procedure (Poster), * H.-Y. Lee, J.-M. Kim, J.-W. Park, H.-S. Jung, and T. Kawai , 2003 MRS Fall Meeting, Boston, USA, Dec. 2, 2003.

High Resolution SPM Imaging of DNA(Invited), *H. Tanaka and T. Kawai, The 8th IUMRS International Conference on Advanced Materials, Yokohama, Oct. 8-12, 2003.

Visualization of Detailed Structures within DNA, *Hiro. Tanaka and T.Kawai, Scanning Probe Microscopy in Life Sciences, Berlin, Germany , Sep. 18, 2003.

Visualization of Detailed Structures within DNA, *Hiro. Tanaka and T. Kawai, SPM and Organic Materials XII, Mainz, Germany, Sep. 24-26, 2003.

[国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員]

川合 知二 エレクトロニクスソサイエティ編集委員会委員

川合 知二 IEICE Electronics Express (電子情報通信学会) 編集委員会編集委員

川合 知二 e-JSSNT (e-Journal of Surface Science and Nanotechnology) アドバイザリーボード

川合 知二 第19回京都賞記念ワークショップ「有機分子の自己組織化とナノ技術の新たな展開」
専門委員会委員

川合 知二 新エネルギー・産業技術総合開発機構「nano tech 2003 + Future」
(ナノテクノロジーに関する国際会議および国際展示会) 委員長

川合 知二 Surface Science. Editorial boardmember

田中 裕行 7th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures
(現地実行委員)

[国内学会]

日本物理学会	1 件
応用物理学会	17 件
日本化学会	3 件
蛋白化学会	2 件
日本磁気学会	4 件
その他の学会	1 件

[取得学位]

修士(理学)

杉山 朝久 固体表面に吸着した DNA の電気伝導測定
(Conductance measurement of DNA molecule adsorbed on a solid surface)

中村 友彦 Toll-like receptor 9 による CpG DNA の認識に関する研究
(Studies on the recognition of CpG DNA by Toll-like receptor 9)

屋嘉比 友子 色素-DNA 複合体の形成とその光学的・電氣的性質に関する研究
(Formation of Dye-DNA complexes and their optical and electrical properties)

山本 斉 Cisplatin 修飾 DNA 及び DIG 修飾 DNA の SPM 観察
(SPM Observation of Cisplatin-modified and DIG-modified DNA)

修士（基礎工学）

- 寺脇 歩 ドープされた DNA の電気伝導度測定
(Electrical conductivity measurement of doped DNA)
- 小林 俊之 有機性高分子の誘電特性および有機トランジスタにおけるゲート絶縁膜としての効果
(Dielectric characteristics of polar polymer and the effect on organic field-effect transistors)
- 山田 郁彦 DNA をテンプレートに用いたナノ微粒子の配列
(DNA templated assembly of nanoparticle)

博士（理学）

- 堀田 育志 秩序制御された複合ペロブスカイト超格子におけるリラクサー現象
(Relaxor phenomena in order-controlled complex-perovskite superlattices)
- 田中 慎一 酵素反応を用いた特異な塩基配列を有する長鎖 DNA の合成とナノ材料としての応用に関する研究
(Studies on synthesis of long strand DNA with specific sequences using enzymatic reaction and application to nano materials)
- 菅野 誉士 原子間力顕微鏡によるベシクルの構造とアミロイドフィブリルの形成機構に関する研究
(Atomic force microscopy studies of structure of vesicle and formation mechanism of amyloid fibril)

博士（基礎工学）

- 神吉 輝夫 強相関電子系 Mn 酸化物極薄膜における物性制御と室温スピン素子応用
(Control of physical properties of manganese oxide thin films and application to Room temperature spin devices)

[科学研究費補助金]

（代表者として配分されたもの）

単位：千円

特別推進研究(2)

川合 知二 高次機能調和材料創成の原子・分子プロセッシング 203,000

21 世紀 COE

川合 知二 新産業創造指向インターナノサイエンス 330,000

特定領域研究(2)

田中 秀和 DNA プログラム自己組織化を用いたナノ粒子光磁気材料の創成 7,700

若手 B

田中 裕行 真空噴霧法による巨大鎖状分子の配列 1,900

[特別研究員奨励費]

神吉 輝夫 酸化物人工格子による室温・超巨大磁気抵抗材料の創成 1,000

山本 洋平 スピネル型酸化物および有機無機交互積層人工格子薄膜の作製及びその光磁化 1,000

李 るんうえい人工格子による超高感度光磁気センサ・メモリ創成 800

朴 鐘完 ナノ電極を用いた DNA の電気伝導の測定と DNA 分子デバイスの開発 800

堀田 育志 ペロブスカイト型強誘電体リラクサーの構造制御と評価物性 900

金 種珉

パートランド・

ビルクイン レーザーアブレーション法による新規強誘電体薄膜材料の創成 1,200

アクター・

ホセイン 酸化物人工格子による新規磁気材料の創成 1,200

[受託研究費]

川合 知二	財団法人科学技術振興機構	プログラム自己組織化による人工生体情報材料創成	受入額：9,360
川合 知二	経済産業省「フォーカス 21」NEDO 先進ナノバイオプロジェクト	〔東レ(株)〕ハイスループット・タンパク質解析チップの研究開発 〔松下電器産業(株)〕生体分子固定化技術の研究開発 〔(株)島津製作所〕一分子 DNA 解析システムの開発	受入額：11,340 受入額：10,500 受入額：11,093
川合 知二	文部科学省 科学技術振興費 ヒューマンボディービルディング	ナノテクノロジーを活用した人工臓器・人工感覚器の開発（超五感センサの開発）	28,000

[その他の競争的研究費]

川合 知二	科学技術振興機構 戦略的創造研究推進事業	プログラム自己組織化による人工生体情報材料創製	56,000 (大学への受託研究費含む)
田中 秀和	さきがけ研究 21	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	8,000
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	1,300
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	800
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	700
田中 秀和	大阪大学 産業科学研究所（所内分野間若手共同研究）	オントロジー工学に基づく複数領域間における材料知識体系化の試み	660

セラミック機能材料研究分野

教授	小林 光
助教授	高橋 昌男
助手	延谷 宏治、毎田 修
研究員	岩佐 仁雄、寺川 澄雄、長山、中村 唯生
大学院学生	小林 琢也、藤原 直澄、石川 幸男、劉 伶、任 星淳、内田 安紀子、田中 和樹、松葉 健氏、横谷 武士、岡藤 麻子
学部学生	小林 克稔、深山 権一
事務補佐員	西川 奈央、野桜 玲子

a) 概要

半導体技術は、急速に進歩する現代社会を支えているといっても過言ではありません。当研究分野では、半導体の界面を高感度に観測する方法を開発し、さらに半導体界面の物性を高度に制御することによって半導体デバイスの高性能化、さらに、新しい構造を持つ半導体デバイスの開発を目指して研究を行っています。半導体デバイスとしては、(1)エネルギー問題と環境問題の解決を目指した太陽電池、(2)LSIの基本構造である金属・酸化物・半導体 (MOS)デバイス、(3)液晶ディスプレイに用いられる薄膜トランジスターに関する基礎研究を行っています。また、大型コンピュータを利用した界面状態の理論計算も行っています。

b) 成果

・化学的手法を用いた Si MOS 構造の低温創製

LSI の集積度の増加に伴い MOS デバイスにおける SiO_2 膜の膜厚が減少し、これを流れるリーク電流が大きな問題となっている。本研究室では、シリコンを硝酸を用いて酸化することによって、低温で MOS 構造を作成する技術を開発している (NAOS 法)。シリコンを 123°C の共沸硝酸 (69.8%) に浸漬後、水素雰囲気中 200°C で加熱して形成した約 1.3 nm の SiO_2 膜を有する MOS 構造のリーク電流密度を、従来の熱酸化法で作製した同程度の酸化膜厚を有する MOS 構造のリーク電流密度の 1/4 以下に減少させることに成功した。今年度は、NAOS 法を用いて作製した SiO_2 膜の電気的特性と分光学的特性を詳細に検討した。

・新規化学反応を用いた半導体洗浄法の開発

金属汚染物濃度を $3 \times 10^9/\text{cm}^2$ 以下にできる新しい化学的半導体洗浄法を開発した。この洗浄法では、材料のエッチングを伴わず、かつ室温で金属汚染物を除去可能である。さらにこの洗浄法は、半導体中に存在する欠陥を消滅させることができ、半導体デバイスの特性も向上する。洗浄液中に高濃度の金属汚染物が存在してもその洗浄能力は低下せず、本洗浄溶液が繰り返し使用可能であることが分かった。本年度は、新規洗浄液の洗浄能力が pH の増加と共に大幅に向上して、pH を 10 に設定した場合 $10^{13}/\text{cm}^2$ オーダーの銅汚染物が室温で 10 秒間の洗浄によって $10^9/\text{cm}^2$ 以下にまで除去できることを見出した。

・バイアス印加 XPS 法を用いる SiC/SiO₂ 界面の高感度観測

本研究室で開発したバイアス印加 XPS 法は、ほぼバンドギャップ全領域の界面準位を観測することができる。この方法を用いて、電気測定から界面準位を求めることが困難なワイドギャップ半導体である SiC (バンドギャップエネルギー: 2.9 eV) の界面準位を観測した。界面準位のエネルギー分布は酸化膜の形成方法に大きく影響され、加湿酸化法で形成した場合は SiC の価電子帯から約 2eV 上方に幅の広い界面準位ピークが観測され、これをシリコンダングリングボンド界面準位と帰属した。酸化膜を乾燥酸化法で形成した場合、これに付け加えて 1.8eV に鋭いピークが観測され、界面に形成されたグラファイトによるものとした。SiC-MOS デバイスの電気特性は、1.8eV 界面準位ピークの存在により劣化する

ことがわかった。

・新規な欠陥消滅法を用いるアモルファスシリコン太陽電池の高性能化

アモルファスシリコン太陽電池は原料であるシリコンが地球上に豊富に存在する上、1 μm 以下の薄膜でも十分に光を吸収するため、最も安価な太陽電池として大規模な電力発電への利用が期待されている。アモルファスシリコン中の欠陥準位を消滅させる方法としてシアン処理法を開発した。これはアモルファスシリコンを KCN 溶液に浸漬しその後洗浄するという簡便かつ室温で行うことのできる処理である。水溶液シアン処理を *pin* 接合アモルファスシリコン太陽電池に施すことによってエネルギー変換効率を大幅に向上させることに成功した。この向上は、シアノイオンがアモルファスシリコン内の欠陥準位と選択的に反応することによって Si-CN 結合を形成し、これを消滅させることによると結論した。本年度は、シアン処理を施したアモルファスシリコンの微視的性質を詳細に研究した。

[原著論文]

Nitric acid oxidation of Si to form ultrathin silicon dioxide layers with a low leakage current density, H. Kobayashi, Asuha, O. Maida, M. Takahashi, and H. Iwasa, J. Appl. Phys., 94 [11] (2003) 7328-7335.

Experimental and theoretical studies of Si-CN bonds to eliminate interface states at Si/SiO₂ interface, O. Maida, A. Asano, M. Takahashi, H. Iwasa, and H. Kobayashi, Surf. Sci., 542 (2003) 244-252.

Spectroscopic and electrical properties of ultrathin SiO₂ layers formed with nitric acid, Asuha, T. Kobayashi, M. Takahashi, and H. Kobayashi, Surf. Sci., 547 (2003) 275-283.

Interface states at SiO₂/6H-SiC(0001) interfaces observed by x-ray photoelectron spectroscopy measurements under bias: Comparison between dry and wet oxidation, H. Kobayashi, T. Sakurai, M. Takahashi, and Y. Nishioka, Phys. Rev. B, 67 [11] (2003) 115305.

Elimination of interface states in the GaAs band-gap by cyanide treatment: XPS measurements under bias, T. Kubota, J. Ivanco, M. Takahashi, K. Yoneda, Y. Todokoro, and H. Kobayashi, Surf. Sci., 529 (2003) 329-337.

Passivation of defects in nitrogen-doped polycrystalline Cu₂O thin films by crown-ether cyanide treatment, Y. Okamoto, S. Ishizuka, S. Kato, T. Sakurai, N. Fujiwara, H. Kobayashi, and K. Akimoto, Appl. Phys. Lett., 82 [7] (2003) 1060-1062.

Passivation of defects in polycrystalline Cu₂O thin films by hydrogen or cyanide treatment, S. Ishizuka, S. Kato, Y. Okamoto, T. Sakurai, K. Akimoto, N. Fujiwara, and H. Kobayashi, Appl. Surf. Sci., 216 (2003) 94-97.

Photoluminescence properties of a-Si:H based thin films and corresponding solar cells, E. Pincik, H. Kobayashi, H. Gleskova, M. Kucera, L. Ortega, M. Jergel, C. Falcony, R. Brunner, T. Shimizu, V. Nadazdy, M. Zeman, M. Mikula, M. Kumeda, and R. A. C. M. M. van Swaij, Thin Solid Films, 433 (2003) 344-351.

Passivation of defect states in Si and Si/SiO₂ interface states by cyanide treatment: improvement of characteristics of pin-junction amorphous Si and crystalline Si-based metal-oxide-semiconductor

junction solar cells, N. Fujiwara, T. Fujinaga, D. Niinobe, O. Maida, M. Takahashi, and H. Kobayashi, *Acta Physica Slovaca*, 53 [3] (2003) 195-205.

Ultrathin silicon oxynitride formed by low-energy electron impact plasma nitridation and chemical oxidation methods, M. Takahashi, M. Tamura, Asuha, T. Kobayashi, and H. Kobayashi, *J. Appl. Phys.*, 94 [1] (2003) 726-731.

Silicon Nitride and Silicon Dioxide, H. Kobayashi, T. Kobayashi, A. Asano, O. Maida, and M. Takahashi, *Thin Insulating Films*, 7 (2003) 199-210.

On Optical, Electrical and Structural Properties of Amorphous Silicon Based semiconductors, E. Piňčík, H. Kobayashi, J. Müllerová, K. Gmucová, M. Jergel, R. Brunner, M. Zeman, and M. Zahoran, *Acta Physica Slovaca*, 53 [4] (2003) 267-278.

[特許]

「半導体装置の洗浄方法、ならびに半導体装置製造用機器の洗浄方法および洗浄装置」小林 光、特願 2003-178855.

「半導体装置の洗浄方法、ならびに半導体装置製造用機器の洗浄方法および洗浄装置（国内優先出願）」小林 光、特願 2004-092281.

「光電変換半導体装置、その製造方法及び、製造方法で用いる処理装置」小林 光、特願 2003-135474.

「半導体装置及びその製造方法、並びに処理装置」小林 光、特願 2003-271590.

「Si 太陽電池の製造方法及び太陽電池」小林 光、呉屋 真之、米倉 義道、呉屋 真之、森田 章二、特願 2003-382764.

「太陽電池素子およびその製造方法」小林 光、高橋 昌男、頼 高潮、和辻 隆、特願 2003-166349.

「酸化膜の形成方法、半導体装置、半導体装置の製造方法、および半導体装置の製造装置」小林 光、特願 2004-093695.

「酸化膜の形成方法、半導体装置、半導体装置の製造方法および半導体装置の製造装置」小林 光、特願 2004-093689.

「薄膜トランジスタ、および製造方法、表示装置、酸化膜の改質方法」小林 光、今井 繁規、猪口 和彦、特願 2004-093703.

「半導体装置製造用基板の製造方法と半導体装置の製造方法および半導体装置の製造装置」（日本国を除く全指定）小林 光、PCT/JP03/15063、特願 2003-342962 の国際出願

「シリコン基本表面の二酸化シリコン膜形成方法、および半導体装置の製造方法」小林 光、PCT/JP03-06348、特願 2003-022803（国内優先）

[国際会議]

Cyanide Treatment to Improve Electrical Characteristics of Si-based MOS Diodes with an Ultrathin

Oxide Layer, *H. Kobayashi, 203rd Meeting-Paris, Paris, France, Apr. 27-May 2, 2003.

Semiconductor Surface and Interface Passivation by Cyanide Treatment, *H. Kobayashi, O. Maida, M. Takahashi, K. Akimoto, III International Workshop on Semiconductor Surface Passivation-SSP' 03, Ustron, Poland, Sep. 14-17, 2003.

Defect Passivation Cleaning of Si by Use of Cyanide Solutions, *M. Takahashi, N. Fujiwara, I. Ryu, O. Maida, H. Kobayashi, III International Workshop on Semiconductor Surface Passivation-SSP' 03, Ustron, Poland, Sep. 14-17, 2003.

Defect Passivation by Cyanide Treatment and Improvement of Silicon device Characteristics, *H. Kobayashi, Technical Forum of Silicon Materials and Science, Shonan, Japan, Nov. 25-27, 2003.

New Si cleaning method for removal of Cu and Ni contaminants without chemical etching (Poster), *Masao Takahashi, Yueh-Ling Liu, Naozumi Fujiwara, Tadao Nakamura, Kenichi Fukayama, Hitoo Iwasa, and Hikaru Kobayashi, Second 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" & 7th SANKEN International Symposium, Suita, Osaka, Jan. 13-14, 2004.

Defect Passivation etch-less cleaning of Si at room temperature by use of new surface reactions, *H. Kobayashi, SNST 2004 Conference, Bratislava, Slovakia, Feb. 27-Mar. 4, 2004.

[外国雑誌の編集委員]

小林 光 Applied Surface Science (編集委員長)

[国内学会]

日本物理学会	2 件
応用物理学会	10 件
アモルファスセミナー	1 件

[取得学位]

修士 (理学)

内田 亜紀子	シリコン/アルミニウムの表面反応と太陽電池電極材料への応用
田中 和樹	極薄絶縁膜/シリコン構造の形成とその物性
松葉 健氏	シリコンの電気化学的低温酸化
横谷 武士	スパッター蒸着法による Cu ₂ O 薄膜の形成とその物性

博士 (理学)

藤原 直澄 Interaction of Cyanide Ions with Si: Passivation of Defects and Removal of Surface Copper

[科学研究費補助金]

単位: 千円

若手研究 (B)

毎田 修	ゲート絶縁膜中固定電荷による MOSFET のしきい値制御	2,500
------	-------------------------------	-------

[特別研究員奨励費]

長山	SiO ₂ /Si 構造の低温創製とリーク電流密度の低減	1,200
----	---	-------

[受託研究]

小林 光	科学技術振興事業団	新規化学結合を用いる欠陥準位の消滅法とメカニズムの研究	4,550
小林 光	新エネルギー・産業技術総合開発機構	Cat-CVD 法による太陽電池製造技術の研究開発	13,529
高橋 昌男	科学技術振興事業団	シアン処理による多結晶 Si 中のキャリア再結合の低減	1,216
小林 光	フロンティア・アソシエイツ	非エッチング欠陥修復型新規半導体洗浄技術の実用化研究	19,950

[その他の競争的研究資金]

小林 光	科学技術振興事業団	新規化学結合を用いるシリコン薄膜太陽電池戦略的基礎研究	65,290
------	-----------	-----------------------------	--------

セラミック構造材料研究分野

教授	新原 皓一
助教授	関野 徹
助手	楠瀬 尚史、中山 忠親
博士研究員	林 大和、山本 陽、Rajagopalan Ramaseshan、王 皓、長島 正明
研究員	紫垣 匠
大学院学生	金 範城、野本 琢也、日笠 暁生、和田 匡史、成 楽柱、金 允護、 Ari Hirvonen、金 成浩、田中 典一、河口 範明、澤田 知昭、溝口 紘晶、 鷓飼 武士、岡本 拓巳、佐々木 雅啓
学部学生	西條 佳孝、峠田 浩
事務補佐員	北浦 恵美子、末廣 理恵

a) 概要

21世紀の科学技術の基盤材料と期待されているセラミックス等の材料に関し、従来の概念・限界を突破して結晶粒の内部や粒界の構造をナノから原子レベルまで制御し、これによりバルク材料の各種性能の飛躍的改善のみならず、粒界・界面の性質を生かした新規ナノ複合材料の開発を目指している。この新しい材料設計コンセプトに基づいたナノ複合化技術をセラミックス系材料に応用することにより、材料強度を2～5倍、耐熱性は400～700℃、クリープ特性は3桁以上も改善することが可能であり、また条件によっては金属に匹敵する靱性、快削性、超塑性変形性を付与できることを世界に先駆けて見いだした。現在では同様の研究を更に進展させて特性の改善を図ると共に、セラミックス材料で見いだした新しい材料設計コンセプトを金属材料や高分子材料に展開すると共に、分子レベル複合材料の設計研究も遂行しており、これらの成果を基礎にして、複数の機能が調和して特性を発揮する高次機能材料（インターマテリアル）の開発を指向している。

b) 成果

・多機能調和型酸化物系セラミックスナノ複合材料の開発

酸化物セラミックスは、一般に高温構造材料となりうる優れた特性を持つが、・高温での強度低下が比較的低温から生じる、・高温でのクリープ特性に劣っている、・難加工性である、などの問題を抱えている。そのため、ナノサイズの第2相を分散させたナノ複合化による構造・組織制御を反応焼結法、In-situ析出複合法などを用いて効率よく行うことで、優れた室温・高温特性および制御された界面構造に由来して発現する機械加工性を兼ね備えたナノ複合材料の作製に成功した。

・新規な非酸化物系セラミックスナノ複合材料の開発

Si₃N₄セラミックスの高温での破壊強度は、焼結助剤とSi₃N₄の表面に存在するSiO₂に起因して粒界に生成する低融点の不純物相が高温で軟化するために、1200℃以上になると劣化することは良く知られている。本研究ではSi₃N₄/SiCナノ複合材料を種々の方法を用いて作製し、その微細組織制御法を確率すると共に、優れた耐クリープ性や超塑性変形能に関する機能発現メカニズムを解明した。また、種々の添加物や不純物を含んだ粉末を用いて高性能なナノコンポジット作製を行い、特性の改善手法とその指針を得た。

・金属分散セラミックス基ナノ複合材料の創製研究

セラミックスに新たな機能を導入することで優れた力学的性質と機能性（電気、磁気など）を兼ね備えたナノコンポジットの創製を目指した。このために、マトリックスに第2相分散相として種々の金属を添加した、セラミックス/金属ナノ複合材料の作製プロセスの検討と微細構造・界面構造の観察および機械的性質の解明を行うことで、ナノサイズ金属の持つ特異な機能性を有効に利用して力学的性質と

機能性を調和した材料の創成を行い。両者を共に改善した形で積極的に調和させた新規なナノ複合材料を開発した。また、これら材料の磁氣的応答性が外部応力に対して良好であることを見だし、リモートセンシングの可能性を示した。

・ナノ複合化による機能性セラミックスの高次機能調和化

ナノ複合化手法を機能性セラミックス（誘電体、圧電体、バリスタ、イオン導電体など）に応用することで、力学的に弱いこれら材料の高強度、高靱性化を行った。選択する第2相分散粒子の種類・サイズ・分散量・形態を最適化することで、機械的性質のみならずその機能性（誘電率、イオン導電率など）をも同時に改善可能なことを示している。特に、誘電体セラミックス/金属複合材料では比較的容易な手法でバルク複合体を製造でき、これまでにない高誘電率・低損失でかつ温度特性に非常に優れた材料の作製に成功した。これら材料の最適作製プロセスの探求とその機能発現メカニズムについて、微細組織や界面構造、結晶構造との相関などに基づいて解明している。

・原子/分子レベル複合材料の設計コンセプトの構築とその開発

原子または分子レベルでのセラミックス材料の構造設計のためのコンセプトの提案を行い、これに基づいて同材料の創成を行っている。Al₂O₃系セラミックス材料に極微量の添加物を加えることで原子、分子スケールで組成傾斜した、あるいは析出した構造の材料を得ており、その構造の詳細な観察を行うと共に、組織形成に及ぼすプロセス因子との相関関係、極微視的変形過程の解明、また材料物性との関連を明らかにした。

・金属的な変形機構を有する高靱性セラミックスナノ複合材料の創製

セラミックスは代表的な脆性変形（破壊）材料であるが、ナノ複合化手法を応用することで金属のような塑性変形挙動を付与することが可能であるとの材料設計コンセプトを提示し、これに基づいて窒化ケイ素/窒化ホウ素、アルミナ/窒化ホウ素、アルミナ/モナザイトナノコンポジットの作製を行った。力学的性質の評価、組織・界面構造の観察、また微視的変形過程の詳細な検討の結果、これら材料では金属のような塑性変形的な挙動を示すのにも関わらず、ナノコンポジット特有の非常に高い強度や優れた高温特性を示すことを明らかにし、これらがナノレベルのソフトな第2相の微視的破壊、或いは擬塑性的な変形挙動に由来していることを見いだした。

・バルク状ラティスコンポジットの創製と構造解析

ニオブ酸リチウム系材料に微量の添加物を加えることで、ナノメートル周期の超構造が形成される。この材料の作製プロセス等を詳細に検討することで、超構造を持つバルク型の材料の作製に成功した。電顕による詳細な構造観察の結果、添加物の量や焼成条件によって超構造の周期が変化すること、また、その構造の境界部分には絶縁体相が生成していることを見いだした。これら材料の誘電特性を高温まで測定することにより、1次あるいは2次の構造相転移に基づく誘電緩和現象の存在を発見し、特徴的な超構造との相関関係を明らかにした。そして、バルク体でも積層型の超構造に由来して物性発現が可能であることを見いだした。

・ナノ複合化技術による高機能有機系ナノコンポジットの開発

機械的性質に劣る有機系材料（ポリマー）の欠点を克服するために、ナノサイズのセラミックス粒子の分散について検討した。一般にセラミックスと有機材料の結合様式は全く異なるため、材料の作製プロセスが重要となる。本研究ではポリマー/セラミックス複合材料の作製手法、微細組織、物理的および力学的特性について詳細に検討した。作製プロセスと第2相粒子の分散状態の制御の結果、熱的な安定性や磨耗特性、破壊強度、靱性、硬度といった種々の機械的性質が顕著に改善でき、ナノセラミックス粒子分散の有効性が確認された。また、ナノ複合化技術をポリマー/セラミックス系へより積極的に導入し、電気的な性質の付与を目指すと共に、その微細組織との相関関係について調べることで実用化

に関する検討を行った。

・ナノクラスターコンポジット磁石の開発

希ガス中二元同時蒸発法により新規な銀/鉄ナノクラスターコンポジットを作製し、その磁気的特性を詳細に検討した。作製された磁性体は、100～200K以上の温度域において超常磁性を示した。また、鉄の酸化数ならびに粒子サイズを制御することにより、超常磁性プロッキング温度の制御が可能であることを見いだした。さらに、ナノ構造に基づく磁気熱量効果の増進について考察し、次世代型磁気冷凍動作物質の材料設計に関する指針を得た。

[原著論文]

Influence of Size Distribution on the Magnetocaloric Effect of Superparamagnetic Gold-magnetite Nanocomposite, T. Kinoshita, S. Seino, H. Maruyama, Y. Otome, K. Okitsu, T. Nakayama, K. Niihara, T. Nakagawa, and T. A. Yamamoto : J. Alloys and Comp., 365 (2004) 281-5.

Fabrication and Characteristics of Fine-grained BaTiO₃ Ceramics by Spark Plasma Sintering, W. Luan, L. Gao, H. Kawaoka, T. Sekino, and K. Niihara : Ceram. International, 30 (2004) 405-10.

Peculiar Surface Deformation of Sapphire: Numerical Simulation of Nanoindentation, R. Nowak, T. Manninen, K. Heiskanen, T. Sekino, A. Hikasa, K. Niihara, and T. Takagi : Appl. Phys. Lett., 83 [25] (2003) 5214-6.

Silicon Nitride Ceramics with Sodium Ion Conductive Grain Boundary Phase, H. Kawaoka, T. Sekino, T. Kusunose, and K. Niihara : J. Mater. Res., 18 [12] (2003) 2752-5.

Preparation of Multi-Layered Self-Healing Coating by Using Silica and Swelling Clay, A. Hikasa, T. Sekino, Y. Hayashi, and K. Niihara : Trans. Mater. Res. Soc. Japan, 28 (2003) 691-4.

Machinability and Contact Damage of Al₂O₃/BN Composites Fabricated through Chemical Processing, T. Kusunose, T. Nomoto, T. Sekino, B. -S. Kim, Y. Yamamoto, and K. Niihara : J. Ceram. Soc. Jpn., 111 [11] (2003) 821-5.

Preparation and Characterization of Metal/Ceramic Nanoporous Nanocomposite Powders, Y. -H. Choa, J. -K. Yang, B. -H. Kim, Y. -K. Jeong, J. -S Lee, T. Nakayama, T. Sekino, and K. Niihara : J. Magnetism and Magnetic Mater., 266 [1-2] (2003) 12-9.

Synthesis of Bismuth Sodium Titanate Nanosized Powders by Solution/Sol-Gel Process, C. -Y. Kim, T. Sekino, and K. Niihara : J. Am. Ceram. Soc., 86 [9] (2003) 1464-7.

Fabrication of Metastable ZrO_{2-x} Single Nano-sized Particles, M. Nagashima, T. Nakayama, S. Yamanaka, M. Fujikane, Y. Hayashi, T. Sekino, T. Kusunose, and K. Niihara : Mater. Lett., 57 [24-25] (2003) 4023-7.

Tribological and Microstructural Analysis of Al₂O₃/TiO₂ Nanocomposites to Use in the Femoral Head of Hip Replacement, S. -W. Lee, C. Morillo, J. Lira-Olivares, S. -H. Kim, T. Sekino, K. Niihara, and B. J. Hockey : Wear, 255 [7-12] (2003) 1040-4.

Mechanical and Magnetic Properties of Alumina/Nickel Nanocomposites Prepared by Pulse Electric Current Sintering, B. -S. Kim, T. Sekino, T. Nakayama, T. Kusunose, J. -S. Lee, and K. Niihara : J. Ceram. Soc. Jpn., 111 [7] (2003) 457-60.

Structural Characteristics of Diamond-like Nanocomposite Films Grown by PECVD, W. -J. Yang, Y. -H. Choa, T. Sekino, K. -B. Shim, K. Niihara, and K. -H. Auh : Mater. Lett., 57 [21] (2003) 3305-10.

Thermal Stability Evaluation of Diamond-like Nanocomposite Coatings, W. -J. Yang, Y. -H. Choa, T. Sekino, K. -B. Shim, K. Niihara, and K. -H. Auh : Thin Solid Films, 434 [1-2] (2003) 49-54.

Microstructural Characterization of Silicon Nitride/Boron Nitride Nanocomposites, T. Kusunose, H. Kondo, Y. Yamamoto, M. Wada, T. Adachi, T. Sekino, T. Nakayama, and K. Niihara : Ceramic Transactions -Ceramic Nanomaterials and Nanotechnology-, 137 (2003) 181-8.

Measurement of Microscopic Stress Distribution of Multilayered Composite by X-ray Stress Analysis, T. Adachi, T. Sekino, T. Nakayama, T. Kusunose, and K. Niihara : Mater. Lett., 57 [20] (2003) 3057-62.

Synthesis and Structure of Preferred-oriented $\text{Li}_2\text{O-Nb}_2\text{O}_5\text{-TiO}_2$ Thin Film with Superstructure, Y. Yamamoto, T. Sekino, H. Hayashi, T. Nakayama, T. Kusunose, and K. Niihara : Mater. Lett., 57 [18] (2003) 2702-6.

Phase Stability and Electrical Property of NiO-doped Yttria Stabilized Zirconia, H. Kondo, T. Sekino, T. Kusunose, T. Nakayama, Y. Yamamoto, and K. Niihara : Mater. Lett., 57 [9-10] (2003) 1624-8.

Pulse Electric Current Sintering of Alumina/Nickel Nanocomposites, B. S. Kim, T. Sekino, T. Nakayama, M. Wada, J. S. Lee, and K. Niihara : Materials Research Innovation, 7 [2] (2003) 57-61.

Microstructure and Dielectric Properties of Sintered Li-Nb-Ti-O Solid Solution Ceramics Having Superstructure, Y. Yamamoto, H. Hayashi, T. Sekino, T. Nakayama, H. Kondo, M. Wada, T. Adachi, and K. Niihara : Materials Research Innovation, 7 [2] (2003) 72-4.

Solid-Solution Effects of a Small Amount of Nickel Oxide Addition on Phase Stability and Mechanical Properties of Yttria-Stabilized Tetragonal Zirconia Polycrystals, H. Kondo, T. Sekino, T. Kusunose, T. Nakayama, Y. Yamamoto, M. Wada, T. Adachi, and K. Niihara : J. Am. Ceram. Soc., 86 [3] (2003) 523-5.

Preparation of Fine Alumina Dispersed Ytterbia Stabilized Cubic Zirconia Based Composites, M. Wada, T. Sekino, Y. -H. Choa, B. -S. Kim, T. Kusunose, T. Nakayama, and K. Niihara : Materials Science Forum, Eco-Materials Processing & Design, 439 (2003) 85-9.

Fracture and Tribological Behaviors of $\text{Al}_2\text{O}_3/5 \text{ vol.}\%$ SiC Nanocomposites, S. -H. Kim, Y. -H. Kim, S. -W. Lee, T. Sekino, and K. Niihara : Materials Science Forum, Eco-Materials Processing & Design, 439 (2003) 90-4.

Mechanical and Thermal Properties of Hot Pressed Si_3N_4 Added with AlN, R. J. Sung, S. W. Lee, T. Nakayama, T. Kusunose, T. Sekino, and K. Niihara : Materials Science Forum, Eco-Materials Processing & Design, 439 (2003) 119-27.

Properties of Hot Pressed AlN/BN Nanocomposites, T. Kusunose, T. Sekino, B. -S. Kim, Y. -H. Choa, T. Nomoto, Y. Yamamoto, and K. Niihara : Materials Science Forum, Eco-Materials Processing & Design, 439 (2003) 131-6.

Fabrication of Various Nano Noble Metal Composite Materials by Ecological Sono-Process, Y. Hayashi, T. Sekino, and K. Niihara : Materials Science Forum, Eco-Materials Processing & Design, 439 (2003) 233-7.

Fabrication of Metastable Oxide Ceramics with Oxygen Vacancy, M. Nagashima, T. Nakayama, S. Yamanaka, M. Fujikane, T. Sawada, Y. Hayashi, T. Sekino, T. Kusunose, and K. Niihara : Materials Science Forum, Eco-Materials Processing & Design, 439 (2003) 254-8.

Mechanical Properties and Microstructure for 3mol% Ytria Doped Zirconia/Silicon Carbide Nanocomposites, N. Bamba, Y. -H. Choa, T. Sekino, and K. Niihara : J. Eur. Ceram. Soc., 23 [5] (2003) 773-80.

Tribological Evaluation of Si-O Containing Diamond-like Carbon Films, W. -J. Yang, Y. -H. Choa, T. Sekino, K. -B. Shim, K. Niihara, and K. -H. Auh : Surface and Coatings Technology, 162 [2-3] (2003) 183-8.

Crack Propagation Behavior of Nano-sized SiC dispersed Multilayered $\text{Al}_2\text{O}_3/3\text{Y-TZP}$ Hybrid Composites, T. Adachi, T. Sekino, T. Kusunose, T. Nakayama, A. Hikasa, Y. -H. Choa, and K. Niihara : J. Ceram. Soc. Jpn., 111 [1] (2003) 4-7.

Magnetic Evaluation of Nanostructure of Gold-Iron Composite Particles Synthesized by a Reverse Micelle Method, T. Kinoshita, S. Seino, K. Okitsu, T. Nakayama, T. Nakagawa, and T. A. Yamamoto : J. Alloys and Compounds, 359 (2003) 46-50.

Magnetic Composite Nanoparticle of $\text{Au}/\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ Synthesized by Gamma-Ray Irradiation, S. Seino, T. Kinoshita, Y. Otome, K. Okitsu, T. Nakagawa, and T. A. Yamamoto : Chem. Lett., 32 [8] (2003) 690-1.

[解説、総説]

ナノコンポジットの新しい世界, 新原皓一、関野徹、中山忠親、楠瀬尚史 : ケミカルエンジニアリング, 48 [6] (2003) 409-15.

21 世紀のエンジニアリングセラミックスへの期待, 新原皓一、関野徹、楠瀬尚史、中山忠親 : セラミックス, 38 [4] (2003) 255-63.

気相合成法によるナノ構造を有するセラミックスの合成, 中山忠親、長島正明、新原皓一 : マテリアルインテグレーション, 16 [2] (2003) 54-9.

ナノ構造制御による多機能セラミックス, 新原皓一、関野徹、中山忠親、楠瀬尚史 : 機能材料, 23 [4](2003) 47-56.

[著書]

ナノコンポジット材料の創製と産業応用, 新原皓一、関野徹、楠瀬尚史、中山忠親、林大和, : 第 34 回 CS テクノセミナー「ナノテクノロジーの世界」別冊 ナノ材料をどう作るか(東洋精機製作所、2003), (2003) 37-60.

[特許]

「触媒粒子およびその製造方法」伊藤みほ、長谷川順、佐藤満里子、新原皓一、中山忠親、林大和、特願2003-366240

「圧電センサ」新原皓一、関野 徹、小川克己、奥村俊明、特願2004-074498

「圧力計測装置」新原皓一、関野 徹、駒水謙二、岩瀬雅則、田中亜貴人、岡本吉久、浜端喜幸、河原宏太郎、村田亘史、特願2004-82818

「AIN/BN 複合粉末の製造方法及び AIN/BN 複合焼結材料の製造方法」、新原皓一、楠瀬尚史、特願2003-196162

「導電性セラミックス及びその製造方法並びに半導体製造装置用部材」、新原皓一、楠瀬尚史、特願2003-275462

「IIIB族窒化物ナノ粒子の製造方法」、新原皓一、楠瀬尚史、特願2003-330777

「貴金属・磁性金属酸化物複合微粒子およびその製造法」山本孝夫、中川貴、興津健二、清野智史、特願2003-7261

[国際会議]

Radiation Induced Synthesis of Au/Fe Oxide Nanocomposite Particles for Magnetic Separation of Biomolecules, *S. Seino, T. Kinoshita, Y. Otome, T. Nakagawa, K. Okitsu, T. Nakayama, T. Sekino, K. Niihara, and T. A. Yamamoto, 2003 International Nano Ceramics / Crystals Forum and International Symposium on Intermaterials (NCF7 & IMA7), Hanyang University, Seoul, Korea, Sep. 25-28, 2003.

Synthesis of Metastable Nanomaterials by Gas Condensation Process, *T. Nakayama, M. Nagashima, S. Seino, T. Yamamoto, M. Fujikane, S. Yamanaka, H. Kume, Y. Nishikawa, T. Sawada, T. Shigaki, T. Sekino, T. Kusunose, and K. Niihara, 2003 International Nano Ceramics / Crystals Forum and International Symposium on Intermaterials (NCF7 & IMA7), Hanyang University, Seoul, Korea, Sep. 25-28, 2003.

Plasma Behavior of Electrically Conductive Zinc Oxide, *T. Yamamoto, T. Sekino, T. Kusunose, T. Nakayama, K. Niihara, and H. Haneda, 2003 International Nano Ceramics / Crystals Forum and International Symposium on Intermaterials (NCF7 & IMA7), Hanyang University, Seoul, Korea, Sep. 25-28, 2003.

Synthesis and Characterization of Self-structuralized TiO₂ Nanotube, *T. Sekino, K. Shibata, T. Okamoto, T. Kasuga, H. Kawaoka, Y. Hayashi, T. Nakayama, T. Kusunose, and K. Niihara, 2003 International Nano Ceramics / Crystals Forum and International Symposium on Intermaterials (NCF7 & IMA7), Hanyang University, Seoul, Korea, Sep. 25-28, 2003.

Multifunctional Nanocomposites and Their Industrial Applications, *K. Niihara, 2003 International Nano Ceramics / Crystals Forum and International Symposium on Intermaterials (NCF7 & IMA7), Hanyang University, Seoul, Korea, Sep. 25-28, 2003.

Radiation-Induced Synthesis of Magnetic Composite Nanoparticle of Iron Oxide and Noble Metal (Poster), *S. Seino, T. Kinoshita, Y. Otome, T. Nakagawa, T. A. Yamamoto, K. Okitsu, T. Nakayama, and K. Niihara, The 8th IUMRS International Conference on Advanced Materials (IUMRS-ICAM 2003), Yokohama, Japan, Oct. 8-13, 2003.

Manipulation of Biomolecules by Au/ γ -Fe₂O₃ Composite Nanoparticles, *T. Kinoshita, S. Seino, Y. Otome, T. Nakagawa, K. Okitsu, Y. Mizukoshi, T. Nakayama, T. Sekino, K. Niihara, and T. A. Yamamoto, 2003 MRS Fall Meeting, Boston, MA, USA, Dec. 1-5, 2003.

Gamma-Ray Synthesis of Nanocomposite Particles Composed of Magnetic Iron Oxide and Noble Metal, *S. Seino, T. Kinoshita, Y. Otome, T. Nakagawa, K. Okitsu, T. Nakayama, T. Sekino, K. Niihara, and T. A. Yamamoto, 28th International Cocoa Beach Conference and Exposition on Advanced Ceramics & Composites, Doubletree and Hilton Hotels, Cocoa Beach, Florida, USA, Jan. 25-30, 2004.

Fabrication of 3Y-TZP/TiNi composites by reduction sintering process, *N. Tanaka, T. Sekino, T. Kusunose, T. Nakayama, and K. Niihara, Student Seminar 2003 in Finland, Helsinki, Tampere, and Turku, Finland, Jan. 6-11, 2004.

Multi-functional Ceramic Nanocomposites and Their Applications (Invited), *K. Niihara, T. Sekino, T. Kusunose, and *T. Nakayama, The 8th CONFERENCE & EXHIBITION OF THE EUROPEAN CERAMIC SOCIETY 2003 The Istanbul Convention and Exhibition Centre, Istanbul, Turkey, Jul. 1, 2003.

Fabrication and Characterization of Metastable Single Nano Sized Particles (Poster), *T. Nakayama, M. Nagashima, S. Seino, T. Yamamoto, M. Fujikane, S. Yamanaka, H. Kume, Y. Nishikawa, T. Sawada, T. Shigaki, T. Sekino, T. Kusunose, and K. Niihara, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003) ISIR, Osaka University, Osaka, Japan, Dec. 9, 2003.

Synthesis of Metastable Single Nanosized Composites by Vapor Deposition Method (Poster), *T. Nakayama, S. Seino, M. Nagashima, T. Shigaki, Y. -H. Choa, T. A. Yamamoto, S. Yamanaka, T. Kusunose, T. Sekino, H. Kume, A. Nishikawa, and K. Niihara, The 5th International Symposium on Eco-Materials Processing and Design (ISEPD2004), Nagaoka Ground Hotel, Nagaoka, Niigata, Japan, Jan. 19 - 21, 2004.

Evaluation of Photocatalytic Activity of Zinc Oxide Powders: A Proposal of the Concept of Dye

Fading Factor (DFF), *T. Yamamoto, T. Sekino, T. Kusunose, T. Nakayama, K. Niihara, H. Nakamura, and E. Abe, The 5th International Symposium on Eco-Materials Processing and Design (ISEPD2004), Nagaoka Ground Hotel, Nagaoka, Niigata, Japan, Jan. 19 - 21, 2004.

Morphology and Magnetic Properties of Single Nano Sized Composites (Poster), *T. Nakayama, S. Seino, M. Nagashima, T. Shigaki, T. A. Yamamoto, Y. Hayashi, T. Sekino, T. Kusunose, S. Yamanaka, and K. Niihara, IUMRS-ICAM, Pacifico Yokohama, Yokohama, Japan, Oct. 10, 2003,

Residual Stress and Thermal Conductivity Control by Surface Nanocomposite Coating, *T. Sekino, T. Adachi, Y. Yamamoto, and A. Hirvonen, The 8th IUMRS International Conference on Advanced Materials (IUMRS-ICAM2003) Yokohama, Kanagawa, Japan, Oct. 8-13, 2003.

Design and Development of Multifunctional Nanocomposites (Invited), *T. Sekino, H. Kondo, B. S. Kim, T. Nakayama, T. Kusunose, and K. Niihara, The 1st International Symposium on Nanostructured Materials: Structural Applications, KIST, Seoul, Korea, Oct. 30-31, 2003.

Electrical Multifunctionalization of Structure Ceramics by Grain-boundary Control, *T. Sekino, T. Ukai, B. S. Kim, M. Wada, T. Nakayama, T. Kusunose, and K. Niihara, The 5th International Meeting of the Pacific Rim Ceramic Societies (PACRIM5), Nagoya Congress Center, Nagoya, Japan, Sep. 29 - Oct. 2, 2003.

Aluminum Nitride Based Ceramic Nanocomposites with Multifunctionality, *T. Kusunose, T. Sekino, H. Yotoh, T. Nakayama, and T. Sekino, The 5th International Meeting of the Pacific Rim Ceramic Societies (PACRIM5), Nagoya Congress Center, Nagoya, Japan, Sep. 29 - Oct. 2, 2003.

Study of Polymer / Clay Nano Composites for Conducting Polymer Sensors, *R. Rajagopalan, T. Sekino, and K. Niihara, The 5th International Meeting of the Pacific Rim Ceramic Societies (PACRIM5), Nagoya Congress Center, Nagoya, Japan, Sep. 29 - Oct. 2, 2003.

Study on the Properties and Microstructure of Mullite-Fe₂O₃ Composite, *H. Wang, T. Sekino, T. Kusunose, T. Nakayama, B. -S. Kim, and K. Niihara, The 5th International Meeting of the Pacific Rim Ceramic Societies (PACRIM5), Nagoya Congress Center, Nagoya, Japan, Sep. 29 - Oct. 2, 2003.

Fabrication of Y-TZP/Ferrite Nanocomposites (Poster), *M. Wada, T. Sekino, T. Kusunose, T. Nakayama, and K. Niihara, The 5th International Meeting of the Pacific Rim Ceramic Societies (PACRIM5), Nagoya Congress Center, Nagoya, Japan, Sep. 29 - Oct. 2, 2003.

Decomposition Behavior of Noble Metal Oxide by Ultrasonic Cavitation and its Application (Poster), *Y. Hayashi, T. Sekino, and K. Niihara, The 5th International Meeting of the Pacific Rim Ceramic Societies (PACRIM5), Nagoya Congress Center, Nagoya, Japan, Sep. 29 - Oct. 2, 2003.

Preparation and Corrosion Phenomena of Self-Healing Multi-Layered Coating by Silica and Swelling Clay (Poster), *A. Hikasa, T. Sekino, Y. Hayashi, T. Kusunose, T. Nakayama, and K. Niihara, The 5th International Meeting of the Pacific Rim Ceramic Societies (PACRIM5), Nagoya Congress Center, Nagoya, Japan, Sep. 29 - Oct. 2, 2003.

Fabrication of Alumina/Nickel Nanocomposite Films by Aqueous Monomer Suspension Coating Method (Poster), *B. -S. Kim, T. Sekino, T. Nakayama, T. Kusunose, and K. Niihara, The 5th International Meeting of the Pacific Rim Ceramic Societies (PACRIM5), Nagoya Congress Center, Nagoya, Japan, Sep. 29 - Oct. 2, 2003.

Effect of NiO Addition and Internal Reduction on Phase Development and Properties of Zirconia Ceramics, *T. Sekino, H. Kondo, B. -S. Kim, N. Tanaka, T. Nakayama, T. Kusunose, and K. Niihara, The 2nd Asian International Symposium on the Science of Engineering Ceramics (EnCera2003), in the conjunction of The 22nd Forum on Basic Science for High-temperature Ceramics and The 10th Seminar on Core University Program (CUP) between Japan and Korea, Gamagohri, Aichi, Japan, Nov. 10-13, 2003.

Electrical and mechanical Properties of Grain-Boundary-Phase Controlled Silicon Nitride, *Y. -H. Kim, T. Sekino, H. Kawaoka, T. Kusunose, T. Nakayama, and K. Niihara, The 5th International Meeting of the Pacific Rim Ceramic Societies (PACRIM5), Nagoya Congress Center, Nagoya, Japan, Sep. 29 - Oct. 2, 2003.

Residual Stress and Thermal Conductivity Control by Surface Nanocomposite Coating (Poster), *T. Sekino, T. Adachi, Y. Yamamoto, A. Hirvonen, T. Kusunose, T. Nakayama, and K. Niihara, The 2nd Asian International Symposium on the Science of Engineering Ceramics (EnCera2003), in the conjunction of The 22nd Forum on Basic Science for High-temperature Ceramics and The 10th Seminar on Core University Program (CUP) between Japan and Korea, Gamagohri, Aichi, Japan, Nov. 10-13, 2003.

Tribological Properties of Al₂O₃/SiC Nanocomposites, *S. -H. Kim, T. Sekino, T. Kusunose, T. Nakayama, S. -W. Lee, and K. Niihara, The 2nd Asian International Symposium on the Science of Engineering Ceramics (EnCera2003), in the conjunction of The 22nd Forum on Basic Science for High-temperature Ceramics and The 10th Seminar on Core University Program (CUP) between Japan and Korea, Gamagohri, Aichi, Japan, Nov. 10-13, 2003.

Forming of Ceramic/Metal Nanocomposites by Gelcasting, *B. -S. Kim, T. Sekino, T. Kusunose, T. Nakayama, and K. Niihara, The 2nd Asian International Symposium on the Science of Engineering Ceramics (EnCera2003), in the conjunction of The 22nd Forum on Basic Science for High-temperature Ceramics and The 10th Seminar on Core University Program (CUP) between Japan and Korea, Gamagohri, Aichi, Japan, Nov. 10-13, 2003.

The effect of Alumina Addition on the Martensitic Transformation in Zirconia-Yttria Ceramics (Poster), *N. Tanaka, T. Sekino, T. Kusunose, T. Nakayama, and K. Niihara, The 2nd Asian International Symposium on the Science of Engineering Ceramics (EnCera2003), in the conjunction of The 22nd Forum on Basic Science for High-temperature Ceramics and The 10th Seminar on Core University Program (CUP) between Japan and Korea, Gamagohri, Aichi, Japan, Nov. 10-13, 2003.

Preparation and Magnetic Properties of Mullite-Fe Nanocomposites (Poster), *H. Wang, T. Sekino, T. Kusunose, T. Nakayama, and K. Niihara, The 2nd Asian International Symposium on the Science

of Engineering Ceramics (EnCera2003), in the conjunction of The 22nd Forum on Basic Science for High-temperature Ceramics and The 10th Seminar on Core University Program (CUP) between Japan and Korea, Gamagohri, Aichi, Japan, Nov. 10-13, 2003.

Magnetic Nanocomposite Particles Composed of Noble Metals and Iron Oxides Synthesized by Gamma-ray Irradiation (Poster), *S. Seino, T. Kinoshita, Y. Otome, T. Nakagawa, K. Okitsu, T. Nakayama, T. Sekino, K. Niihara, and T. A. Yamamoto, The 2nd Asian International Symposium on the Science of Engineering Ceramics (EnCera2003), in the conjunction of The 22nd Forum on Basic Science for High-temperature Ceramics and The 10th Seminar on Core University Program (CUP) between Japan and Korea, Gamagohri, Aichi, Japan, Nov. 10-13, 2003.

Fabrication of Aluminum Nitride with Electrical Conductivity and High Thermal Conductivity, *T. Kusunose, T. Sekino, H. Yotoh, T. Nakayama, and K. Niihara, The 2nd Asian International Symposium on the Science of Engineering Ceramics (EnCera2003), in the conjunction of The 22nd Forum on Basic Science for High-temperature Ceramics and The 10th Seminar on Core University Program (CUP) between Japan and Korea, Gamagohri, Aichi, Japan, Nov. 10-13, 2003.

Fabrication of Aluminum Nitride/Boron Nitride with High Thermal Conductivity (Poster), *T. Kusunose, T. Sekino, T. Nakayama, and K. Niihara, The 2nd Asian International Symposium on the Science of Engineering Ceramics (EnCera2003), in the conjunction of The 22nd Forum on Basic Science for High-temperature Ceramics and The 10th Seminar on Core University Program (CUP) between Japan and Korea, Gamagohri, Aichi, Japan, Nov. 10-13, 2003.

Production and Evaluation of the Cordierite-Zirconia Nano Composite Ceramics as a Coating Material (Poster), *A. Hirvonen, Y. Yamamoto, T. Sekino, and K. Niihara, The 2nd Asian International Symposium on the Science of Engineering Ceramics (EnCera2003), in the conjunction of The 22nd Forum on Basic Science for High-temperature Ceramics and The 10th Seminar on Core University Program (CUP) between Japan and Korea, Gamagohri, Aichi, Japan, Nov. 10-13, 2003.

High Dimensionally Controlled Microstructure of LiNbO₃-based Crystal Composite (Poster), *Y. Yamamoto, J. K. Chung, T. Sekino, T. Kusunose, T. Nakayama, C. J. Kim, and K. Niihara, The 2nd Asian International Symposium on the Science of Engineering Ceramics (EnCera2003), in the conjunction of The 22nd Forum on Basic Science for High-temperature Ceramics and The 10th Seminar on Core University Program (CUP) between Japan and Korea, Gamagohri, Aichi, Japan, Nov. 10-13, 2003.

Thermoelectric Characteristics of GeO₃-NaCo₂O₄ Solid Solution (Poster), *M. Sasaki, T. Sekino, T. Kusunose, T. Nakayama, and K. Niihara, The 2nd Asian International Symposium on the Science of Engineering Ceramics (EnCera2003), in the conjunction of The 22nd Forum on Basic Science for High-temperature Ceramics and The 10th Seminar on Core University Program (CUP) between Japan and Korea, Gamagohri, Aichi, Japan, Nov. 10-13, 2003.

Fabrication and Properties of Electrically Conductive ZrO₂ Ceramics (Poster), *T. Ukai, T. Sekino, B. -S. Kim, and K. Niihara, The 2nd Asian International Symposium on the Science of Engineering Ceramics (EnCera2003), in the conjunction of The 22nd Forum on Basic Science for

High-temperature Ceramics and The 10th Seminar on Core University Program (CUP) between Japan and Korea, Gamagohri, Aichi, Japan, Nov. 10-13, 2003.

The Ionic Conductivity of Grain Boundary-Phase Controlled Silicon Nitride(posters), *Y. -H. Kim, T. Sekino, H. Kawaoka, T. Kusunose, T. Nakayama, and K. Niihara, The 2nd Asian International Symposium on the Science of Engineering Ceramics (EnCera2003), in the conjunction of The 22nd Forum on Basic Science for High-temperature Ceramics and The 10th Seminar on Core University Program (CUP) between Japan and Korea, Gamagohri, Aichi, Japan, Nov. 10-13, 2003.

Effect of Synthesis Condition on Structure and Properties of Titania Nanotube, *T. Sekino, T. Okamoto, K. Shibata, Y. Hayashi, T. Nakayama, T. Kusunose, T. Kasuga, and K. Niihara, 28th International Cocoa Beach Conference & Exposition on Advanced Ceramics & Composites In Conjunction with the 8th International Symposium on Ceramics for Energy Storage and Power Conversion Systems Doubletree/Hilton Hotels, Cocoa Beach, Fla. USA, Jan. 25-30, 2004.

Study of Polymer / Clay Nano Composites for Pressure Sensor, *R. Rajagopalan, T. Sekino, and K. Niihara, The 5th International Symposium on Eco-Materials Processing & Design (ISEPD 2004), Nagaoka, Japan, Jan. 19 -21, 2004.

Toward Creating New Industries Based on Nanocomposite Materials (Invited), *K. Niihara, The 5th International Symposium on Eco-Materials Processing & Design (ISEPD 2004), Nagaoka, Japan, Jan. 19 -21, 2004.

Aqueous Suspension Process of Multi-Dimensional Alumina/Nickel Nanocomposites, *B. -S. Kim, T. Ukai, T. Sekino, T. Nakayama, and K. Niihara, The 5th International Symposium on Eco-Materials Processing & Design (ISEPD 2004), Nagaoka, Japan, Jan. 19-21, 2004.

Fabrication and Microstructural Control of Cordierite-MSZ Composites, *Y. Yamamoto, A. T. Hirvonen, T. Sekino, T. Sekino, T. Kusunose, and K. Niihara, The 8th IUMRS International Conference on Advanced Materials, Yokohama, Japan, Oct. 8-13, 2003.

High Dimensionally Controlled Microstructure of LiNbO₃-based Crystal Composite (Poster), *Y. Yamamoto, J. K. Chung, T. Sekino, T. Kusunose, T. Nakayama, C. J. Kim, and K. Niihara, The 10th Seminar on Core University Program between Japan and Korea, Aichi, Japan, Nov. 10-12, 2003.

Materials with Stress/Microfracture Sensitivity, *K. Niihara, The 8th International Symposium on Synergy Ceramics, Shunagawa Prince Hotel, Tokyo, Japan, Feb. 5-6, 2004.

[国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員]

- 新原 皓一 The International Nano Ceramic Forum and The International Symposium on Internationals (NCF & IMA) (副委員長)
- 新原 皓一 Seminar on Core University Program between Japan and Korea (委員長)
- 新原 皓一 The 5th International Symposium on Eco-processing and Materials (委員長)
- 新原 皓一 The 3rd International Symposium on the Science of Engineering Ceramics (委員長)
- 新原 皓一 International Symposium on Nanostructured Materials (組織委員)

新原 皓一	International Symposium on Advanced Ceramic Materials, Indian Ceramic Society(国際委員)
新原 皓一	The Int. Symp. On Synergy Ceramics (実行委員長)
新原 皓一	Journal of Korean Ceramics Society (編集委員)
新原 皓一	Advances in technology of Materials and Materials Processing Journal (ATM) (編集委員)
新原 皓一	Journal of Nanoscience and Nano Technology (編集委員)
新原 皓一	Materials Integration (編集代表)
新原 皓一	Journal of the Chinese Ceramic Society (編集委員)
新原 皓一	Journal of Ceramic Processing Research (編集委員)
新原 皓一	The 3 rd International Symposium on Advanced Ceramics (国際組織委員)
新原 皓一	Int'l Japan-Korea Seminar on Ceramics (組織委員)
新原 皓一	11 th International Conference on Fracture (ICF11) (顧問委員)
関野 徹	The 3 rd International Symposium on the Science of Engineering Ceramics (組織委員)
関野 徹	International Conference on New Frontiers of Processing Science and Engineering in Advanced Materials (PSEA'04) (顧問委員)
関野 徹	Materials Integration (編集委員)

[国内学会]

日本セラミックス協会	10 件
粉体粉末冶金協会	4 件
日本金属学会	1 件
日本応用磁気学会	2 件
その他	6 件

[取得学位]

学士(工学)

西條 佳孝	超音波ナノ粒子による Rubber 材料の高多機能化
峠田 浩	有機 無機系感圧ナノセンサの作製と高機能化

修士(工学)

河口 範明	新しい複合酸化物系熱電変換材料の創製に関する基礎研究
澤田 知昭	酸化物基セラミック複合材料の合成と熱及び電気的特性
溝口 紘晶	GaN ナノ粒子の合成に関する研究

博士(工学)

日笠 暁生	自己応答型多層粘土複合コーティングに関する研究
和田 匡史	多機能調和型酸化物系複合材料の作製と評価に関する研究
野本 琢也	生体適合性を有するリン酸カルシウム系複合骨セメントの開発
山本 陽	高次に制御された超構造セラミック複合体の作製と評価

[科学研究費補助金]

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

基盤研究(A)(2)

新原 皓一	原子・分子及びナノレベルで構造制御したセラミックス材料の開発と新機能の付与	5,100
-------	---------------------------------------	-------

萌芽研究

関野 徹	酸化物ナノチューブの合成・構造解析と機能化	1,000
------	-----------------------	-------

中山 忠親	ナノクラスターレベル複合化による酸化物への水素貯蔵能の付与	800
-------	-------------------------------	-----

[特別研究員奨励費]

清野 智史	機能向上を狙った内部構造を持つシングルナノ粒子の放射線場での合成	1,100
金 允護	粒界相制御による電子伝導性を付与した高強度セラミック基複合体の創製	1,000

[受託研究]

新原皓一	経済産業省(地域新生コンソーシアム)	高性能ヒューマンインターフェースナノセンサの研究開発	11,600
関野 徹	NEDO(ナノテクノロジープログラム:ナノコーティング)	in-situ 構造制御によるナノコンポジットコーティング材料の研究開発	5,565

[共同研究]

新原 皓一	日本学術振興会	拠点大学方式による学术交流事業	31,300
新原 皓一	ファインセラミックス技術研究組合	応力や微小破壊に対する検知機能材料に関する研究	10,554
新原 皓一	株式会社ニッカトー	粒界ナノ構造制御セラミックスの開発に関する研究	5,000

[その他の競争的研究資金]

楠瀬 尚史	NEDO(平成13年度産業技術研究助成事業)	多機能調和型ナノコンポジットの半導体および医療分野への応用展開	7,150
中山 忠親	NEDO(平成14年度産業技術研究助成事業)	新しいシングルナノ複合化による高効率触媒材料の創製	15,405
楠瀬 尚史	徳山科学技術振興財団研究助成	多機能調和型 AlN/BN ナノ複合材料の開発	2,000
楠瀬 尚史	池谷科学技術振興事業団研究助成	YSiO ₂ N 粒界相による窒化ケイ素セラミックスの強靱化	1,000
楠瀬 尚史	マツダ財団研究助成	高熱伝導性を有する導電性 AlN セラミックスの放電加工とその絶縁復帰	1,200

エネルギー材料研究分野

教授	谷村 克己
助教授	田中 慎一郎
助手	西浦 徹也、石川 憲一
大学院学生	稲見 栄一、
学部学生	鶴田 淳二
事務補佐員	田辺 恵美、野澤 幸代

a) 概要

本研究分野では、固体の電子系が励起された場合に発生する原子過程（電子励起誘起原子過程）の機構を解明し、原子過程を制御・組織化して新規な高次機能構造を創製する事、を目指している。このような励起状態を発生・制御した固体構造創製の研究は、従来の手法が有していた熱力学的平衡条件の制約を大きく打破し得る、新しい材料科学・物質科学の1つの展開方向である。固体の励起手法として、レーザー光、軌道放射光、電子線、量子ビーム、反応性プラズマ、等多彩な励起源を駆使して各励起状態を選択的に発生させ、誘起される原子過程を、固体内の原子の振動周期よりも速いフェムト秒領域で動力学的に直接追跡すると共に、走査型トンネル顕微鏡を用いて、原子分解能で構造変化を直接観察する研究を行っている。主な研究内容は、擬1次元系結晶における光誘起構造相転移のフェムト秒動力学的研究、半導体表面における電子励起による高次機能ナノ構造創製の基礎過程の研究、反応性プラズマとイオンビーム等を用いた機能性材料表面創製の研究である。

b) 成果

1 擬1次元結晶における光誘起構造相転移機構の研究

・ジアセチレン結晶の光誘起重合の基礎過程の研究

ジアセチレン結晶の光誘起固相重合は、電子系励起を通じてのみ発現する新規物質相創製の典型例である。しかしながら、光誘起重合の初期過程である2量体ジラジカル生成機構は、今までの長年の研究によっても十分な解明がなされていなかった。我々は、5,7-dodecadiyne-1,12-diol bis[phenyl carbamate] (TCDU)結晶を対象にして、この光誘起重合初期過程の機構解明をめざす研究を行った。その結果、

- 1) TCDU結晶においては、1重項励起子と3重項励起子が異なる形態で自己束縛を誘起すること、
- 2) 2量体ジラジカルは、3重項自己束縛励起子が、もう1つの励起子と励起子融合することによって形成されるものである事、を明らかにした。これによって、初めて、ジアセチレン結晶の固相重合機構が解明されたことになる。

・擬1次元共役 電子系ポリジアセチレン結晶の光誘起構造相転移の基礎過程の研究

擬1次元共役 電子系を持つポリジアセチレンは、光励起によって、共役長の異なるA、B相の相転移を誘起する。その基礎過程を明らかにするために、すべての温度領域でA相、B相の結晶が存在する5,7-dodecadiyne-1,12-diol bis[phenyl carbamate] (TCDU)結晶を用いて、フェムト秒時間分解反射分光の研究を行い、A、B両相における励起の緩和動力学を明らかにする研究を行った。その結果、

- 1) A、Bいずれの構造相においても、光励起後の反射強度変化は、300fsと2psの時定数で特徴付けられる2段階の変化を示すが、励起状態の失活は、2psのプロセスで発生する事、
- 2) その際、励起前の基底構造ではなく、共役長の短い準安定擬1次元鎖構造へ遷移し、その後、マイクロ秒の時間領域で元の構造へ最終的に遷移する事、が明らかとなった。この成果は、ポリジアセチレ

ンの光誘起構造相転移機構を明らかにする上で、きわめて重要な知見を提供する。

・擬 1 次元電荷移動有機錯体結晶における光誘起相転移の基礎過程の研究

擬 1 次元電荷移動有機錯体結晶 tetrathiafulvalene-p-chloranil (以下 TTF-CA と略す) において発生する光誘起によるイオン性相から中性相への相転移 (NI 転移) の動力学を明らかにし、相転移機構を解明する事を目的にした研究をおこなった。今までの研究によって、光誘起相転移過程が、前駆体生成過程、局所的増殖過程、中性相秩序形成過程、の 3 つの連続する基礎過程から成る事が明らかにされている。今年度は特に、各素過程の温度依存性を明確にして、2 種の構造相の自由エネルギー差が相転移の動力学に与える効果、を中心に研究を進めた。その結果、

- 1) 前駆体形成過程は、基本的に温度に依存せず、局所的増殖過程と中性秩序形成過程が大きく温度に依存する事、
- 2) その温度依存性は、相転移するフラクションの増加のみならず、構造変化速度の増加となって発現する事、が明らかとなった。これらの研究成果は、光誘起 NI 転移機構の微視的理解に本質的寄与をなすものである。

II 半導体表面における光誘起構造変化現象の研究

・化合物半導体 InP 表面における光誘起原子過程の研究

固体表面からの極微量の脱離中性原子種を同時かつ超高感度に検出可能なフェムト秒火共鳴イオン化分光法と走査型トンネル顕微鏡による表面原子像測定を併用して、InP 表面における光誘起原子過程の研究を展開した。その結果、

- 1) 結晶価電子のフェルミ準位を異にする n 型結晶表面と p 型結晶表面では、光励起によって発生する表面 P 原子空孔の形態に大きな変化が現れ、n 型結晶表面では、表面正孔と負に帯電した表面 P 原子空孔とのクーロン引力によって空格子クラスターが優先的に発生するのに対し、p 型結晶表面では、正に帯電した表面 P 原子空孔と表面正孔のクーロン斥力のために孤立空格子が優先的に生ずること、
- 2) n 型結晶表面では、表面 P 原子空孔への表面正孔の優先的捕獲によってナノ秒光パルス照射中に生成している表面正孔濃度が減少し、表面 P 原子空孔の生成率は照射時間の増加とともに大きく減少する事、が明らかとなった。これらの結果は、半導体表面における光誘起構造変化機構が、表面正孔の 2 正孔局在機構によるものであるとする我々の従来からの提案を、実証する結果を与えている。

・III-V 族化合物半導体表面における自発非金属原子空孔形成に対する理論的研究

GaAs や InP の (110)-(1x1) 表面では、超高真空・室温条件下で非金属原子空孔生成を伴う自発的な構造崩壊が発生し、その効率が結晶のフェルミ準位に大きく依存する現象が発見されている。我々は、この現象の機構を理論的に研究し、フェルミ準位によって表面状態への 2 正孔局在確率が変化し、その結果、自発的な構造崩壊の効率がフェルミ準位に依存するものであることを理論的に明らかにした。この結果は、レーザーと固体表面との相互作用によって発生する非平衡的效果と、半導体表面の熱的效果との概念的にリンクさせる、極めて重要な視点を提供するものである。

・Si(111)-(2x1) 表面における光誘起表面構造変化現象の研究

典型的な擬 1 次元再構成構造を有する Si(111)-(2x1) 表面に対する表面構造変化の今までの研究の結果、純粋な結晶価電子系励起によって、表面構成原子のボンド切断が発生する事、ボンド切断効率は、励起強度に非線形的に依存する事、単一サイトでの Si 原子のボンド切断によって発生する空格子周辺原子が優先的にボンド切断を引き起こし、1 次元的に配列した Si 原子鎖に沿う 1 次元的空格子クラスターが効果的に発生する事、を明らかにしてきた。今年度は、その機構解明を目指すために、波長可変フ

フェムト秒レーザーを用い、2500nm 領域の赤外線光パルスを用いて、この表面の表面光学遷移のみを励起する条件下での研究を行った。その結果、表面の占有状態に発生した正孔によって、直接的に3配位Si原子のボンド切断が発生することを明らかにした。この成果は、半導体表面における光誘起構造変化機構が、表面正孔の非線形局在によるものであることを実証するものである。

・高分解能低エネルギー電子ビーム励起によるSi(111)-(7x7)表面の構造変化機構の研究

励起誘起表面構造変化現象を表面ナノ構造プロセッシングに適応するための基礎研究として、最も代表的な半導体表面である、Si(111)-(7x7)を対象として、高分解能低エネルギー電子ビーム励起による表面構造変化を研究した。その結果、

1) 低エネルギー電子ビーム励起によって、Si(111)-(7x7)表面を構成する adatom の選択的ボンド切断が発生し、その選択性は、レーザー光励起の場合と基本的に同一の特性を示すこと、

2) ボンド切断効率、電子ビーム強度にほぼ比例して発生し、レーザー励起の場合のような非線形的依存性を示さないこと、

が明らかとなった。1)の結果は、光励起と電子ビーム励起が同一の機構を誘起することを強く示唆するが、励起強度依存性に見られる光パルスと電子ビーム励起の相違は、励起過程における両者の相違を示している。その相違の理由を明らかにすることは、今後の課題である。

・フェムト秒2光子光電子分光による表面励起動力学の研究

半導体表面上で発生する光誘起原子過程の動力学をフェムト秒時間領域において直接的に明らかにする為に、フェムト秒2光子光電子分光の手法を用いて、表面励起電子・正孔の動力学に関する研究を展開した。昨年に引き続き、Si(001)-(2x1)表面を対象とした研究の結果、

1) 結晶伝導体から表面非占有状態への電子遷移確率が励起密度に強く依存する過程である事を、間接遷移領域のみならず、L点での直接光学遷移が発生する光子エネルギー領域においても、一般的に発生する効果であることを実証した。

2) 表面非占有状態の寿命は、10ps程度ときわめて短く、励起後30ps以降の占有数変化は、結晶伝導体における励起電子数変化を直接的に反映する事、

を明らかにした。これらの知見は、従来の表面キャリア動力学の解釈を大きく変更させる革新的な知見であり、表面励起状態の動力学的研究や、表面励起種が直接的に関与する励起誘起の表面構造変化研究に、大きなインパクトを与えるものである。

III 絶縁性固体における励起誘起原子過程の基礎に関する研究

・アルカリハライド結晶の温度に依存する価電子励起誘起格子欠陥生成効率の機構の解明

アルカリハライド結晶の価電子励起によって誘起されるフレンケル型格子欠陥生成は、固体内部における励起誘起の構造不安定性現象の最も典型的かつ代表的例である。しかし、約半世紀におよぶ研究にもかかわらず、NaClやKIに代表される1群の結晶の欠陥生成効率の温度依存性の微視的機構は、今まで不明なまま謎とされていた。フェムト秒時間分解分光の手法を用いてこの機構を解明のための研究を行い、

1) 電子正孔対生成からフレンケル型格子欠陥生成への遷移は、励起後10psで終了する動的な電子正孔対の緩和過程に支配される事、

2) 温度上昇に伴う格子の非調和性に起因した格子の熱膨張によって、励起子緩和エネルギーがより効率的にフレンケル型格子欠陥生成に必要な原子の運動エネルギーに変換され、生成効率が温度とともに増大するものであること、を明らかにした。これによって、アルカリハライド結晶における固体内部の励起誘起構造不安定性にかかわる最後の謎が解明された。

・アモルファス SiO₂ における自己束縛正孔に関する研究

電子格子相互作用と格子の静的な乱れが相乗的に作用する結果、アモルファス SiO₂ 中では、自己束縛正孔 (STH) 状態が形成されることが電子スピン共鳴 (ESR) の研究によって明らかにされていたが、STH による光学遷移がいかなる光子エネルギー領域において生ずるかは、実験、理論の大きな論争的であった。我々は、アモルファス SiO₂ 中のアモルファス構造の固有性を明確にすべく、作成過程の異なる 3 種の高純度アモルファス SiO₂ を用いて試料に依存する化学的不純物の寄与を除去し、STH による光学遷移エネルギーを決定するための研究を行った。その結果、ESR で明らかにされていた 2 種の STH は、それぞれ、2.16eV と 2.60eV に光学遷移ピークを示す事、その遷移は、隣接酸素原子から正孔局在原子への電荷移動遷移に起因するものである事を明らかにした。これによって、この研究以前に提案されていた赤外領域の吸収帯が、固有なアモルファス構造とは無縁であり、なんらかの既存構造欠陥に起因するものである事を明確にし、今後の第一原理計算を含むより高度な研究に対して、重要な実験的基礎を提示した。

IV 励起効果を用いた非平衡材料プロセッシングの研究

・荷電粒子照射及びプラズマプロセスを利用した材料改質

粒子線照射・プラズマプロセス複合工程表面直接改質法を用いて、種々の金属材料の表面の高機能セラミック化し、耐超高温性、高熱伝導性、高硬度、耐摩耗性等の高機能性付与を目標とした研究を行った。今年度は、そのプロセス化の為に、真空条件化での複合工程を実現すべく、真空チャンバー内での稼動電極装置の考案し、その試作と条件設定のための研究を展開した。試作した装置は、今後の複合工程の実現を十分に可能にする性能を示し、今後の展開に強い可能性を与えるものである。

[原著論文]

Exciton self-trapping and formation of diradical intermediates in 5,7-dodecadiyne-1,12-diol bis[phenylcarbamate](TCDU) crystals at low temperatures, C. Itoh, T. Kondoh, and K. Tanimura, J. Chem. Phys. 118, (2003) 7572-7577.

Bond rupture of threefold-coordinated Si atoms at intrinsic sites on the Si(111)-(2x1) induced by 1.16-eV photon excitation, E. Inami, K. Ishikawa, and K. Tanimura, Surf. Sci. Lett. 540, (2003) L587-L592.

Optical transitions of self-trapped holes in amorphous SiO₂, Y. Sasajima and K. Tanimura, Phys. Rev. B 68, (2003) 014204-1-7.

Role of two-hole localization in anion-vacancy formation on the (110) surfaces of InP and GaAs at the third regime of Langmuir evaporation, K. Tanimura, Phys. Rev. B 69, (2004) 03301-1-4.

[解説、総説]

光励起による半導体表面原子のボンド切断と構造変化, 谷村克己, 生産と技術 55, 40-42 (2003)

[国際会議]

Optical transitions of self-trapped holes in amorphous SiO₂, *Y. Sasajima and K. Tanimura, the 10th International Conference on the Physics of Non-Crystalline Solids, Parma, Italy, July 14-17, 2003.

A conventional low-energy ion source for light/heavy ion beams, *M. Nunogaki, S. Emura, and K. Tanimura, International Symposium on Science and Industrial Nanotechnology, Osaka, Japan, December 8-9, 2003.

[国内学会]

物理学会

8 件

[取得学位]

学士

鶴田淳二 化合物半導体表面における光誘起構造変化機構の研究

[科学研究費補助金]

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

基盤研究 (B) (2)

谷村 克己 時間分解ラマン散乱分光による擬 1 次元有機結晶の光誘起構造相転移の研究 11,100

若手研究 (B) (2)

石川 憲一 シリコン(111)-(2x1)表面における光誘起構造変化 2,200

機能分子科学研究部門

概要

本研究部門は有機金属化合物研究分野、医薬品化学研究分野、有機物性化学研究分野、励起分子化学研究分野、分子合成化学研究分野からなり、有機化学に基礎を置いて、有機化合物によってもたらされる種々の機能を様々な観点から追求している。有機化学は有機分子を対象とする学問体系であり、有機分子は生命体における多種多様の機能を担っているのをはじめ、各種機能性材料や医薬品として広く用いられている。これら有機分子の機能は分子や分子集合体の種類・構造と深く関係している。したがって、本研究部門においては有機金属化合物、医薬品用化合物、複合金属錯体、放射線や光によって励起された分子、パイ電子系を含む有機分子などの種々の有機化合物について、それらの設計・合成、合成法の開発、反応性・反応機構の検討などを通して新規触媒反応、医薬品、新規有機合成法などの開発や光・電子機能、分子認識能などの新機能発現を目指して研究を行っている。

成果

- ・白金189原子を含む白金アセチリド dendrimer の合成に成功した
- ・側鎖に金属-ポルフィリンをもつらせん状ポリイソシアニドの合成
- ・側鎖にフェロセニル基をもつ電場応答性のらせんキラルポリイソシアニドの合成
- ・アレルアルコールのカルボニル化によるラクトンおよびラクタムの選択的合成法を開発
- ・面不斉シクロペンタジエニルテニウム錯体の立体選択的反応の開発
- ・自己組織化による遷移金属イオン・ピリジン系超分子錯体の合成
- ・クロスリンカーとしてのエポキシドを持つペプチドミミックライブラリーの構築
- ・ナノ共役化合物の合成と機能および分子エレクトロニクスへの応用
- ・リン原子架橋ピチオフェンを基本骨格とする高発光材料
- ・メチル化シクロデキストリンを被覆剤とする分子ワイヤの絶縁効果に関する基礎研究
- ・分子機械“分子筋肉”および“分子気孔”の構築
- ・DNAのビーム化学
- ・マルチレーザー多段階光化学
- ・レーザー多光子化学と同位体分離
- ・人工タンパクの光化学制御
- ・複数の配位子を構成要素とする不斉触媒の固定化
- ・新規不斉配位子の開発と応用
- ・不斉触媒能を有する球状粒子の合成
- ・有機反応の解析と設計

有機金属化合物研究分野

教授	高橋 成年
助教授	鬼塚 清孝
助手	周 大揚
教務職員	武井 史恵
研究支援推進員	山本 育宏
大学院学生	大原 直子、児玉 大輔、末次 聖、林 彰、森 朋子
事務補佐員	梶 洋子

a) 概要

当分野では、新しい有機金属化合物を合成して、その性質や反応性を検討する基礎的な研究だけでなく、有機金属化合物を触媒や反応試剤として精密有機合成・精密高分子合成・環境低負荷型物質合成に利用する研究や有機金属化合物の特徴を生かした機能性材料の開発研究などが行われている。特に、面不斉やヘリカル不斉などをもつ新規な光学活性有機金属錯体の合成研究、省資源・省エネルギーを目指した高選択的かつ効率的な触媒反応の開発、水を水素源とする有機合成や一酸化炭素を用いる有用複素環化合物の合成など環境にやさしい合成プロセスの開発研究、リビング重合を中心とした高分子の精密合成法の開発と単分子機能性材料を目指したナノサイズの有機金属巨大分子の開発研究に重点が置かれている。

b) 成果

・有機遷移金属高分子錯体の合成と性質

白金と 1,3,5-トリエチルベンゼンから構成される 3 次元構造をもつ有機金属 dendrimer の合成法を既に確立しているが、今年度は有機金属化合物に特有の化学反応を駆使して、ダイバージェント法を使って $C_{6279}H_{10278}P_{378}Pt_{189}Si_{192}$ の化学組成をもつ分子量 139,750 の第 6 世代 dendrimer の合成に成功した。

・有機遷移金属化合物を用いる精密重合

2 核金属アセチリド錯体を開始剤に用いるイソシアニドのらせん方向識別重合法を開発し、右巻あるいは左巻構造を持つらせんキラルなポリイソシアニドの合成に成功しているが、本年度は特に外部刺激によるらせん構造の制御を目指した。優れた酸化還元特性を有するフェロセンを側鎖置換基にもつらせんキラルなポリマーを合成し、その側鎖フェロセニル基の酸化還元に伴って主鎖のらせん構造も可逆的に変化することが分かった。また、フリーベースポルフィリンと亜鉛ポルフィリンを側鎖に有するトリブロックポリイソシアニドを合成し、THF 溶液中で 420 或いは 556nm の光を照射すると亜鉛ポルフィリンからフリーベースポルフィリンへの分子内エネルギー移動が起こることを見いだした。

・錯体触媒を用いる新規な高選択的有機合成反応の開発

不飽和炭化水素の触媒的カルボニル化反応の開発を行っているが、本年度はルテニウムカルボニル錯体を触媒に用いて、アレニルアルコールあるいはアレニルアミンを反応させるとラクトンあるいはラクタムが選択的に生成する新しいタイプの環化カルボニル化反応を見いだした。これらのアレンのカルボニル化反応はアトムエコノミーが 100% の全く無駄のない反応である。

[原著論文]

A Divergent Approach to the Precise Synthesis of Giant Organometallic Dendrimers Using Platinum-Acetylides as Building Blocks, K. Onitsuka, A. Shimizu, and S. Takahashi: Chem. Commun., (2003) 280-281.

Preparation and Photochemical Properties of Polyisocyanides with Regularly Arranged Porphyrin Pendants, F. Takei, S. Nakamura, K. Onitsuka, A. Ishida, S. Tojo, T. Majima, and S. Takahashi: Chem. Lett., 32 (2003) 506-507.

Synthesis and Property of Helical-Chiral Polyisocyanides Bearing Ferrocenyl Groups as Pendants, N. Hida, F. Takei, K. Onitsuka, K. Shiga, S. Asaoka, T. Iyoda, and S. Takahashi: Angew. Chem. Int. Ed., 42 (2003) 4349-4352.

Chiroptical Properties of Helical Poly(aryl isocyanide)s Bearing *m*-Substituted Azobenzene Moiety, K. Shiga, K. Ishii, T. Miura, J. Abe, T. Yamagishi, S. Asaoka, T. Iyoda, F. Takei, K. Onitsuka and S. Takahashi : Trans. Mater. Res. Soc. Jpn., 28 (2003), 557-560.

Ruthenium-Catalyzed Cyclocarbonylation of Allenyl Alcohols and Amines: Selective Synthesis of Lactones and Lactam, E. Yoneda, S.-W. Zhang, D.-Y. Zhou, K. Onitsuka, and S. Takahashi: J. Org. Chem., 68 (2003), 8571-8576.

[解説、総説]

Metallodendrimers Composed of Organometallic Building Blocks, K. Onitsuka and S. Takahashi : Top. Curr. Chem., 228 (2003), 36-63.

[国際会議]

Asymmetric Catalysis of Planar-Chiral Cyclopentadienyl-Ruthenium Complexes in Allylic Substitution (Poster), *K. Onitsuka and S. Takahashi, The 2nd Gratama Workshop 2003, Utrecht University, Utrecht, The Netherlands, May 12-15, 2003.

Synthesis and Properties of Polyisocyanides Bearing Porphyrin and Metallo-Porphyrin (Poster), *F. Takei, K. Onitsuka, S. Tojo, T. Majima and S. Takahashi, 10th IUPAC International Symposium on Macromolecule-Metal Complexes, Moscow State University, Moscow, Russia, May 18-23, 2003.

Ruthenium-Catalyzed Alkoxy carbonylation of Allene (Poster), *D.-Y. Zhou, K. Onitsuka and S. Takahashi, The 9th International Kyoto Conference on New Aspects of Organic Chemistry, Kyoto Park Hotel, Kyoto, Japan, Nov. 10-14, 2003.

Synthesis and Properties of Polyisocyanides Bearing Porphyrin and Metallo-Porphyrin as Pendants (Poster), *F. Takei, K. Onitsuka, S. Tojo, T. Majima and S. Takahashi, The 9th International Kyoto Conference on New Aspects of Organic Chemistry, Kyoto Park Hotel, Kyoto, Japan, Nov. 10-14, 2003.

Synthesis and Properties of Helical-chiral Poly(ferrocenyl isocyanide)s (Poster), *F. Takei, N. Hida, K. Onitsuka, S. Takahashi and T. Iyoda, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003, Osaka University, Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

A Novel Type of Asymmetric Catalyst: Planar-Chiral Cyclopentadienyl-Ruthenium Complexes (Poster), *K. Onitsuka, Y. Matsushima and S. Takahashi, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003, Osaka University, Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Ruthenium-Catalyzed Carbonylation of Allene in Alcohols: Direct Synthesized Methacrylate Bearing a Functional Group (Poster), *D.-Y. Zhou, K. Onitsuka and S. Takahashi, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003, Osaka University, Osaka, Japan, Dec 8-9, 2003.

Mechanistic Study on Asymmetric Allylic Alkylation Catalyzed by Planar-Chiral Cyclopentadienyl-Ruthenium Complexes (Poster), *K. Onitsuka, Y. Matsushima and S. Takahashi, Second 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" and 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science, Osaka University, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Cyclocarbonylation of Azobenzene Derivatives (Poster), *D.-Y. Zhou, T. Koike, S. Suetsugu, K. Onitsuka and S. Takahashi, Second 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" and 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science, Osaka University, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Helical Structural Change in Polyisocyanides Having Ferrocenyl Pendants in Response to Electrochemical Stimuli (Poster), *F. Takei, N. Hida, K. Onitsuka, S. Takahashi and T. Iyoda, Second 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" and 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science, Osaka University, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Precise Synthesis of Organometallic Macromolecules Composed of Transition Metal Acetylide Units (Invited), *K. Onitsuka and S. Takahashi, The 227th ACS National Meeting, Anaheim Convention Center, Anaheim, USA, March 28-April 1, 2004.

[国内学会]

日本化学会春季年会	6 件
有機金属化学討論会	1 件
高分子討論会	1 件

[取得学位]

修士 (理学)

大原 直子	トリ(エチルフェニル)アミンを架橋配位子とする有機ルテニウム dendrimer の合成と性質
児玉 大輔	側鎖にポルフィリンを有するポリフェニルイソシアニドの合成と機能
末次 聖	ヘテロ不飽和化合物の環化カルボニル化による複素環化合物の直接合成
森 朋子	オルト位に嵩高い置換基を持つフェニルイソシアニドポリマーの合成と性質

[科学研究費補助金]

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

特定領域研究(2)

高橋 成年	炭素-炭素不飽和化合物から多元素環状化合物の一段合成法の開発	1,900
-------	--------------------------------	-------

基盤研究(A)(2)

高橋 成年	巨大有機金属分子の精密合成	7,400
-------	---------------	-------

若手研究(B)

武井 史恵	らせん構造を持つイソシアニドポリマーの合成と機能	2,100
-------	--------------------------	-------

医薬品化学研究分野

教授 加藤 修雄
助手 新田 孟、河野 富一
教務職員 原 道寛

a) 概要

当研究分野は、医薬品のリード化合物の創製および薬物と薬物受容体との相互作用など医薬品の作用機構解明を研究目的としている。この目的達成のために、天然有機化合物を含む有機低分子化合物を用いたタンパク質の機能解析と、その結果に基づく創薬を目指し、特に、細胞内信号伝達経路上にあって重要な役割を担うタンパク質のリン酸化・脱リン酸化過程の制御を主たる研究標的としている。また、生理活性化合物の立体選択的合成・コンビナトリアル合成手法の開発・生体分子型人工超分子の創製についても研究を展開している。

b) 成果

・生体分子型超分子の創製

2-ピリジルエチニル基を配位サイトに持つ新規な多座配位子を合成した。これら配位子は遷移金属イオンと自己組織化し、DNA 型の二重らせん、あるいはコラーゲン型の三重らせん構造をとる超分子錯体を与えることを単結晶 X 線構造解析によって明らかにした。

・クロスリンカーを持つ化合物ライブラリーの構築手法の開発

標的タンパク質の特定・weak hit の拾得・母ライブラリーとしての利用などを意図して、エポキシドをクロスリンカーとする化合物ライブラリーの固相合成法の開発を検討し、基本概念の具現化に成功した。

・ジテルペン配糖体・フシコクシンの誘導化

細胞内信号伝達経路上で重要な役割を果たす 14-3-3 タンパク質の機能モデュレータとして知られるフシコクシンの誘導化に着手した。本年度は特に、類縁のコチレニンとの動物細胞に対する活性の相違を明らかにすべく、コチレニン型アグリコンを有するフシコクシン誘導体への変換を検討し、今後の研究展開の基盤となる成果を得た。

[原著論文]

High-pressure Cycloaddition Reaction of 1,3-Diphenylisobenzofuran with 6,6-Diphenylfulvene, K. Kubo, K. Hirowatari, N. Kato, and A. Mori: *Heterocycles*, 59 (2003) 47-50.

A Silver(I) Ion Mediated One-Dimensional Helical Coordination Polymer from 1,3-Bis(2-pyridylethynyl)-2-methylbenzene, T. Kawano, C.-X. Du, T. Araki, and I. Ueda: *Inorg. Chem. Commun.*, 6 (2003) 165-167.

(+)-Menthol and Its Hydroxy Derivatives, Novel Fungal Monoterpenols from the Fusicoccin-producing Fungi, *Phomopsis amygdali* F6a and Niigata 2, T. Sassa, H. Kenmoku, M. Sato, T. Murayama, and N. Kato: *Biosci. Biotechnol. Biochem.*, 67 (2003) 475-479.

Copper(I) Ion Mediated Self-Assembly of Triple-Stranded Helicates from Oligo(2-ethynylpyridines): Synthesis, Structure, and Properties, T. Kawano, T. Kato, C.-X. Du, and I. Ueda: *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, 76 (2003) 709-719.

Self-Assembly and Substituent Effect of Copper(I) Complexes with 1,2-Bis(2-pyridylethynyl)benzene Ligands, T. Kawano, J. Kuwana, and I. Ueda: Bull. Chem. Soc. Jpn., 76 (2003) 789-797.

Photochemical Reactions of 2-Bromotropone and 2,7-Dibromotropone with 9,10-Dicyanoanthracene, A. Mori, H. Kawakami, N. Kato, S.-H. Wu, and H. Takeshita: Org. Biomol. Chem., 1 (2003) 1730-1736.

[国際会議]

Preparation of Fusicoccin Derivatives Utilizing Synthetic/Biosynthetic Transformations (Invited), *N. Kato, 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Synthesis of β -Strand Peptidomimetics Bearing an Epoxide Cross-linker (Poster), *T. Kawano, M. Kahn, and N. Kato, 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Rapamycin and Cotylenin A Cooperatively Induce G1 Arrest and Have an Anti-tumor Effect on Human Breast Carcinoma MCF-7 Cells Grown in Nude Mice (Poster), *Y. Honma, Y. Ishii, T. Kasukabe, N. Kato, and T. Sassa, Advances in Cancer Research: Molecular and Cellular Biology, Genomics and Proteomics, Targeted Therapeutics, Novel Clinical Trials, Molecular and Genetic Epidemiology/Prevention, Hawaii, USA, Jan. 25-29, 2004.

Clarification of Terpenoid Biosynthesis to Provide Derivatives of Parent Natural Products: Fusicoccin Case Study, *N. Kato, International Workshop on Recent Progress in Organic Chemistry, Osaka, Japan, March 1-3, 2004.

[国内学会]

分析化学討論会	1 件
生体機能関連化学・バイオテクノロジー部会合同シンポジウム	1 件
日本化学会	1 件
日本農芸化学会	1 件

[科学研究補助金]

(代表者として配分されたもの) 単位：千円

基盤研究 (B) (2)
加藤修雄 細胞内信号伝達経路の解明と制御に対する Chemogenomic アプローチ 8,400

(分担者として配分されたもの) 単位：千円

基盤研究 (A) (1) (代表者：佐々武史)
加藤修雄 生理活性環状微生物テルペン類における生合成環化反応の全容解明と開発 1,200
基盤研究

[その他の競争的研究資金]

河野富一 文部科学省在外研究 Chemical genomic アプローチによる細胞内信号伝達経路の解明に関する調査研究 1,260
(創造開発研究)

有機物性化学研究分野

教授	安蘇 芳雄
助教授	兼田 隆弘
助手	家 裕隆
教務員	朝野 芳織
大学院学生	藤本 辰彦、福原 学、山本 若奈、
学部学生	津田 進

a) 概要

有機物質の機能を分子のレベルで解明し制御することを基盤として、優れた電子・光機能を有する有機分子の開発および分子エレクトロニクスへの応用を目的に、新規な拡張共役系を有する電子/光機能分子材料、本格的分子ワイヤを志向したナノスケール 共役分子材料の設計・合成と物性化学の研究を行っている。また、超分子構造を主体とする有機化合物の新しい物性を構造物性相関の観点から理解を深め、さらなる新規物性を発現する有機超分子材料を設計および開発する研究を行っている。具体的には次のような研究課題に取り組んでいる。

(1) 分子エレクトロニクス素子に適したナノスケール機能分子材料の開発を目的として、新規な拡張共役系を有する発光材料やキャリア輸送材料の合成と物性評価を行う。

(2) 次世代分子配線材料としての応用を目指して、電導性をもつオリゴチオフェンを絶縁性の嵩高い置換基やシクロデキストリンで被覆した分子ワイヤを合成し、分子ワイヤ1本の電導性を評価する。

(3) ある制限域内で自由な可動性を保証する“機械的結合”によって構築される高次組織化超分子は、次世代分子デバイスへの応用が期待されている。そのような超分子あるいは超分子機械を目指して、シクロデキストリン骨格にアゾベンゼン、スチルベン、トラン誘導体を共有結合で連結した分子内1対1ホスト-ゲスト連結系の自己会合現象を研究する。

b) 成果

・分子エレクトロニクス材料の開発

優れた電気・光学的物性を示す新規 共役化合物の合成および物性について研究を進めている。リン原子架橋が 共役化合物の平面性や物性に与える影響を検討するため、リン原子架橋型ピチオフェン及び共役拡張誘導体を遷移金属触媒カップリング反応で合成し、物性評価を行った。これらはいずれも良好な蛍光量子収率を示し、吸収・発光波長のチューニングが可能であることが明らかとなった。

・超分子材料の開発

プロトタイプの分子機械である“分子筋肉”と“分子バルブ”を構築することができた。

[原著論文]

TTF-porphyrin Dyads as Novel Photoinduced Electron Transfer Systems, S. Sadaike, K. Takimiya, Y. Aso, and T. Otsubo: *Tetrahedron Lett.*, 44 [1] (2003) 161-165.

Organic Field-Effect Transistor Using Oligoselenophene as an Active Layer, Y. Kunugi, K. Takimiya, K. Yamane, K. Yamashita, Y. Aso, and T. Otsubo: *Chem. Mater.*, 15 [1] (2003) 6-7.

Photoexcitation and Electron Transfer Properties of Rod- and Coil-Type Oligo(thienylene-ethynylene)s, M. Fujitsuka, T. Makinoshima, O. Ito, Y. Obara, Y. Aso, and T. Otsubo: *J. Phys. Chem. B*, 107 [3] (2003) 739-746.

Synthetic Studies of Extraordinarily Long Oligothiophenes, T. Otsubo, Y. Aso, K. Takimiya, H. Nakanishi, and N. Sumi: *Synth. Metals*, 133-134 (2003) 325-328.

Oligothiophene/fullerene Dyads as Active Photovoltaic Materials, N. Negishi, K. Yamada, K. Takimiya, Y. Aso, T. Otsubo, and Y. Harima: *Chem. Lett.*, 32 [4] (2003) 404-405.

Synthesis and Spectroscopic Properties of a Series of β -Blocked Long Oligothiophenes up to the 96-mer: Reevaluation of Effective Conjugation Length, T. Izumi, S. Kobashi, K. Takimiya, Y. Aso, and T. Otsubo: *J. Am. Chem. Soc.*, 125 [18] (2003) 5286-5287.

"Molecular Magic": Formation of a Self-inclusion Complex from a Dumbbell-shaped Permethylated β -Cyclodextrin Derivative, T. Yamada, G. Fukuhara, and T. Kaneda: *Chem. Lett.* 32 [6] (2003) 534-535.

Synthesis and Characterization of the First Pair of an Unlocked and a Locked Self-inclusion Complex from a Permethylated α -Cyclodextrin Derivative, G. Fukuhara, T. Fujimoto, and T. Kaneda: *Chem. Lett.* 32 [6] (2003) 536-537.

Identification of Face-to-Face Inclusion Complex Formation of Cyclodextrin Bearing an Azobenzene Group by Electrospray Ionization Mass Spectrometry, R. Arakawa, T. Yamaguchi, A. Takahashi, T. Fujimoto, and T. Kaneda: *J. Am. Soc. Mass Spectrom.*, 14 [10] (2003) 1116-1122.

ESR Studies on Polarons in Long Oligothiophenes, K. Kanemoto, T. Kato, Y. Aso, and T. Otsubo: *Phys. Rev. B*, 68 [9] (2003) 092302-1-4.

[国際会議]

Synthesis and Spectroscopic Properties of a Series of β -Blocked Long Oligothiophenes up to the 96-mer (Invited), *Y. Aso, T. Izumi, S. Kobashi, K. Takimiya, and T. Otsubo, International Symposium on Novel Carbon-Rich Organic Materials, Osaka, Sep. 29-30, 2003.

Insulated Molecular Wires from Functionalised Cyclodextrins, Fujimoto (Poster), *T. Fujimoto, A. Nakamura, M. Taniguchi, T. Wada, T. Kawai, Y. Inoue, R. Kuroda, T. Kaneda, and H. L. T. Anderson, International Symposium on Novel Carbon-Rich Organic Materials, Osaka, Sep. 29-30, 2003.

The First Supramolecular Dual Piston-Cylinder System (Poster), *G. Fukuhara, T. Fujimoto, Y. Sakata, and T. Kaneda, International Symposium on Novel Carbon-Rich Organic Materials, Osaka, Sep. 29-30, 2003.

Oligothiophene/fullerene Dyads as Active Photovoltaic Materials (Invited), *Y. Aso, N. Negishi, K. Takimiya, T. Otsubo, and Y. Harima, Second 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science - Perspectives in Nanoscience -, Osaka, Jan. 13-14, 2004.

Lipophilic Cyclodextrin-based [2]Rotaxane and Janus [2]Rotaxane (Poster), *S. Tsuda, G. Fukuhara, T. Fujimoto, Y. Ie, Y. Aso, and T. Kaneda, Second 21st Century COE "Towards Creating New

Industries Based on Inter-Nanoscience" 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science - Perspectives in Nanoscience -, Osaka, Jan. 13-14, 2004.

Synthesis and Properties of Phosphorus-Bridged Oligothiophenes (Poster), *Y. Ie, T. Tanaka, M. Fujitsuka, S. Tojo, T. Majima, and Y. Aso, Second 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science - Perspectives in Nanoscience -, Osaka, Jan. 13-14, 2004.

[国内学会]

日本化学会	10件
シクロデキストリンシンポジウム	1件
構造有機化学討論会	3件
日本物理学会	2件
高分子討論会	1件
分子構造総合討論会	1件
日本化学会西日本大会	6件
光化学討論会	2件
ヘテロ原子化学討論会	1件

[取得学位]

修士(工学)

福原 学 アゾ色素修飾完全メチル化シクロデキストリンを基盤とした自己組織化超分子体の構築

博士(工学)

藤本 辰彦 修飾シクロデキストリンを用いた自己組織化超分子体及び被覆分子導線

[科学研究費補助金]

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

萌芽研究(2)

安蘇 芳雄 絶縁被覆分子ワイヤー型ナノスケールオリゴチオフェンの創製 500

萌芽研究(2)

兼田 隆弘 二次元分子機械“分子虹彩”の合成研究 1,500

[特別研究員奨励費]

藤本 辰彦 シクロデキストリン自己組織化オリゴマーの合成 1,000

[受託研究]

安蘇 芳雄 化学技術振興機構 被覆型分子ワイヤーの構築 260

[その他の競争的研究資金]

家 裕隆 小笠原科学技術振興財団 被覆型分子ワイヤーの合成と物性評価 1,000

励起分子化学研究分野

教授	真嶋 哲朗
助教授	藤塚 守
助手	藤乗 幸子、川井 清彦
非常勤研究員	蔡 喜臣、立川貴士
研究支援推進研究員	杉本 晃
大学院学生	高田 忠雄、中山 公志、岡田 亜弓、木村 巧、坂本 雅典、城山 郁枝、 城山 高志、上垣 真介、佐守 真悟、吉田 浩子
学部学生	小阪田 泰子、吉田 明洋
事務補佐員	富永 早苗
特任教官（教授相当）	朴 鐘震(2004.1-3)
特任教官（助教授相当）	趙 大源(2004.1-2)

a) 概要

本分野は、光および放射線により誘起される励起分子化学と機能分子化学を基盤として、ビーム制御化学や分子・反応場制御化学の手法を用いた新しい「ビーム機能化学」の研究を行っている。ビーム制御化学とは空間的・時間的に制御した多種多様なビームの複合照射によって、求める反応活性種・中間体を逐次的、局所的、選択的に発生させ、かつそれらのエネルギーを制御することによって、反応を制御することである。また、マルチビームの利用によって、新しい反応活性種の発生と、それによる新しい反応・プロセスや複合反応への展開が可能である。分子・反応場制御化学とは、分子設計された反応基質（DNA、タンパク）、超分子、メゾスコピック分子などの分子場や、気体・液体・固体、表面、薄膜、液晶などからなる複合系、多成分系、液体希ガス、極低温などの反応場の立体的・電子的・構造的・化学的性質を利用することによって、反応を制御することである。「ビーム機能化学」の目指す方向は、高次元反応制御、新合成化学、新機能性分子・高機能性材料への展開である。

b) 成果

・マルチビーム化学

安定分子への第1のビーム（レーザーパルスまたは電子線パルス）照射によって生成させた短寿命活性種を出発分子とし、これの吸収に合わせた波長の第2のレーザーパルスを照射することによる2段階励起ビーム化学、さらに、第2のレーザー反応で生成した短寿命活性種に第3のレーザー励起をすることで起こる3段階励起ビーム化学を調べることができる。このような、複数のビームを同期発振させた多段階励起法によって反応中間体・短寿命活性種を原料とする光化学、短寿命活性種の光励起状態や高励起状態の動的挙動などのマルチビーム化学について研究を行っている。今年度は、2波長2レーザー2段階励起法により生じる高励起3重項状態の寿命などの物性を種々の有機化合物について明らかにするとともに、高励起3重項状態に特有の反応としてナフチルメチル-酸素結合などの結合解離反応を見出した。さらに、短寿命である高励起3重項状態の直接観察にピコ秒レーザーを用いることで成功した。また、スチルベンの二光子イオン化過程を検討することでラジカルカチオン生成収率の定量的評価法を確立し、収率の決定因子を明らかにした。

・光機能界面

TiO₂光触媒反応における光機能界面上での種々の有機物の分解機構の解明を目的に、ナノ秒時間分解拡散反射分光法によりTiO₂表面に吸着した有機物の一電子酸化反応過程について詳細に検討した。TiO₂表面上における基質（芳香族スルフィド、ピフェニル誘導体など）の吸着量とTiO₂の正孔との一電子酸

化反応によって生成した基質のラジカルカチオン生成量との関係を調べ、一電子酸化効率について評価した。その結果、各基質について得られた一電子酸化効率は、基質の酸化電位のみならず TiO₂ 表面との電子的な相互作用の強さに著しく依存することが明らかになった。また、同様の手法を用い、TiO₂ 表面上で生成したラジカルカチオンの反応性について検討した。基質吸着量の増加により、TiO₂ 表面上に生成したラジカルカチオンと表面吸着した基質との間でダイマーラジカルカチオンが形成されることを見出した。さらに、TiO₂ 表面上に生成したラジカルカチオンと溶液中に存在するフリーな基質との間でホール移動反応の直接観測に成功し、非吸着分子の一電子酸化反応機構についての知見を得た。

・ 生体分子のビーム化学

光線力学療法 (PDT) の高効率化法の開発、および光増感 DNA 損傷に基づく老化・発ガンの防止を目指し、光増感 DNA 損傷機構をより詳細に理解することを目的とし研究を行なった。今年度は、光増感剤を DNA に共有結合で結合した修飾 DNA を合成し、レーザー照射により生じる電荷分離寿命の測定を行った。その結果、アデニン上に生じた電荷が DNA 中の 30 Å におよぶ距離を、 10^8 s^{-1} 以上の速度で高速にホッピングにより移動することを見出した。これらの結果は、この DNA 中の高速電荷移動が、光増感 DNA 酸化反応において電荷再結合を抑制し、DNA 損傷を誘発する要因となることを示唆した。レーザーを用いた過渡吸収測定による速度論の解明と、HPLC を用いた実際の DNA 損傷の定量を組み合わせた解析法により、DNA 中のアデニン間的高速ホッピングにより引き起こされる電荷分離状態の寿命が DNA 損傷量に良く対応することを見出した。これにより、DNA 中のホッピングによる高速電荷移動が DNA 損傷を引き起こす原因となっていることを見出した。

[原著論文]

Formation of Pyrene Dimer Radical Cation in DNA Reflecting DNA Dynamics in the Time Range of 1 μs to 1 ms, K. Kawai, K. Miyamoto, S. Tojo, and T. Majima: *J. Am. Chem. Soc.*, 125 [4] (2003) 912-915.

A Two-Color Laser Photolysis Methods for Determining Reaction Rates of Short-Lived Intermediates by Product Analysis: Application to the o-inodimethane Problem, A. Ouchi, Z. Li, M. Sakuragi, and T. Majima: *J. Am. Chem. Soc.*, 125 [4] (2003) 1104-1108.

Naphthalene in the Higher Triplet Excited State, X. Cai, M. Hara, K. Kawai, S. Tojo, and T. Majima: *Chem. Commun.*, 2 (2003) 222-223.

Sensitized Reactions of Benzophenone in the Higher Triplet Excited State, X. Cai, M. Hara, K. Kawai, S. Tojo, and T. Majima: *Chem. Phys. Lett.*, 371 [1-2] (2003) 68-73.

Hole Transfer in DNA: DNA as a Scaffold for Hole Transfer between Two Organic Molecules, T. Takada, K. Kawai, S. Tojo, and T. Majima: *Tetrahedron Lett.*, 44 (2003) 3851-3854.

Kinetics of Weak Distance Dependent Hole Transfer in DNA by Adenine Hopping Mechanism, K. Kawai, T. Takada, S. Tojo and, T. Majima: *J. Am. Chem. Soc.*, 125 [23] (2003) 6842-6843.

Preparation and Photochemical Properties of Polyisocyanides with Regularly Arranged Porphyrin Pendants, F. Takei, S. N, K. Onitsuka, A. Ishida, S. Tojo, T. Majima, and S. Takahashi: *Chem. Lett.*, 32 [6] (2003) 506-507.

Three-color Three-laser Photochemistry of Di(*p*-methoxyphenyl)methyl Chloride, M. Hara, S. Tojo, and T. Majima: *J. Phys. Chem. A*, 107 [24] (2003) 4778-4783.

Ionization and Fragmentation of Some Chlorinated Compounds and Dibenzo-*p*-dioxin with an Intense Femtosecond Laser Pulse at 800 nm, H. Harada, M. Tanaka, M. Murakami, S. Shimizu, T. Yatsunami, N. Nakashima, S. Sakabe, Y. Izawa, S. Tojo, and T. Majima: *J. Phys. Chem. A*, 107 [34] (2003) 6580-6586.

Transient Phenomena of Dibenz[*a,h*]anthracene in the Higher Triplet Excited States, X. Cai, M. Hara, K. Kawai, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Tetrahedron Lett.*, 44 [32] (2003) 6117-6120.

Photoisomerization of 2'-Deoxyribofuranosyl and Ribofuranosyl 2-Phenylazoimidazole, M. Endo, K. Nakayama, Y. Kaida, and T. Majima: *Tetrahedron Lett.*, 44 [36] (2003) 6903-6906.

Rapid cleavage of Naphthylmethyl-O bond in the Higher Triplet Excited States, X. Cai, M. Sakamoto, M. Hara, S. Tojo, M. Fujitsuka, A. Ouchi, and T. Majima: *Chem. Commun.*, (2003) 2604-2605.

Benzophenones in the Higher Triplet Excited States, X. Cai, M. Sakamoto, M. Hara, A. Sugimoto, S. Tojo, K. Kawai, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Photochem. Photobiol. Sci.*, 2 (2003) 1209-1214.

Tandem Double Helix Nano-Structures Using Interstrand Crosslinked DNA with Maleimide Linkers, M. Endo and T. Majima: *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.*, (2003) 5744-5747.

Control of A Double Helix Assembly by Use of Crosslinked Oligonucleotides, M. Endo and T. Majima, *J. Am. Chem. Soc.*, 125 [45] (2003) 13654-13655.

Long-lived Charge-Separated State Leading to DNA Damage through Hole Transfer, K. Kawai, T. Takada, T. Nagai, X. Cai, A. Sugimoto, M. Fujitsuka, and T. Majima: *J. Am. Chem. Soc.*, 125 (2003) 16198-16199.

Effects of Base Pairing on the One-electron Reduction Rate of Cytosine, K. Kawai, A. Yokooji, S. Tojo, and T. Majima: *Chem. Commun.*, (2003) 2840-2841.

One-electron Oxidation of Aromatic Sulfides Adsorbed on the Surface of TiO₂ Particles Studied by Time-resolved Diffuse Reflectance Spectroscopy, T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Chem. Phys. Lett.*, 382 (2003) 618-625.

Excess Electron Transfer in DNA Studied by Pulse Radiolysis and γ -Radiolysis of Naphthalimide and Iodouridine Containing ODN, K. Kawai, T. Kimura, K. Kawabata, S. Tojo and T. Majima: *J. Phys. Chem. B*, 107 [46] (2003) 12838-12841.

Kinetics of multi-step hole transfer in DNA by Monitoring the Transient Absorption of Pyrene Radical Cation, T. Takada, K. Kawai, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima: *J. Phys. Chem. B*, 107 [50] (2003) 14052-14057.

[解説、総説]

ピレン修飾 DNA を用いた DNA 中のホール移動, 川井清彦、真嶋哲朗: 有機合成化学協会誌, 61 (2003) 614-619.

[特許]

「生体分子損傷方法、および生体分子損傷装置」真嶋哲朗、川井清彦、特願 2003-338082.

[国際会議]

Photochemical Control of Protein Activity, *T. Majima, The 21 Century COE Symposium -Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience- (INS-2003), 2003, Osaka, Japan, March 12, 2003.

Photo-regulation of Hole Transfer in DNA Studied by Pulse Radiolysis-laser Flash Photolysis Combined Method (Poster), *T. Takada, K. Kawai, and T. Majima, 25th ACS National Meeting, New Orleans, LA, USA, March 22-27, 2003.

Photochemistry of Short-lived Molecules (Invited), *T. Majima, CLEO Satellite meeting on Applications of Ultrafast Laser Systems, Baltimore, MD, USA, June 4, 2003.

Hole Transfer in DNA by Adenine Hopping Mechanism (Invited), *T. Majima, 21st International Conference on Photochemistry (ICP21), Nara, Japan, July 26-31, 2003.

Reactions Sensitized by Aromatic Hydrocarbons in the Higher Triplet Excited States (Poster), X. Cai, M. Hara, K. Kawai, S. Tojo, M. Fujitsuka, and *T. Majima, 21st International Conference on Photochemistry (ICP21), Nara, Japan, July 26-31, 2003.

Hole Transfer Causes Long-Lived Charge Separated State which Leads to DNA Damage (Poster), *K. Kawai, and T. Majima, 21st International Conference on Photochemistry (ICP21), Nara, Japan, July 26-31, 2003.

Charge Transfer in DNA via Consecutive Adenine Hopping (Poster), *T. Takada, K. Kawai, and T. Majima, 21st International Conference on Photochemistry (ICP21), Nara, Japan, July 26-31, 2003.

Hole Transfer in DNA Studied by Pulse Radiolysis, K. Kawai, T. Takada, and *T. Majima, 12th International Congress on Radiation Research, Brisbane, Australia, August 17-22, 2003.

Radiation Chemical and Photochemical Study of Z-DNA Modified by 2-Aminopurine and 8-Bromodeoxyguanosine (Poster), *T. Kimura, K. Kawai, and T. Majima, 12th International Congress on Radiation Research, Brisbane, Australia, Aug. 17-22, 2003.

Fast Hole Transfer by Adenine-Hopping for DNA Molecular Wire (Invited), K. Kawai, T. Takada, and *T. Majima, 10th Symposium of Intelligent Electrophotonic Materials and Molecular Electronics (SIEMME'10), Beijing, P.R. China, Oct. 31-Nov. 1, 2003.

One-electron Oxidation during TiO₂ Photocatalytic Reactions Studied by Transient Absorption Measurements (Invited), T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, and *T. Majima, 10th Symposium of Intelligent Electrophotonic Materials and Molecular Electronics (SIEMME'10), Beijing, P.R. China, Oct. 31-Nov. 1, 2003.

Fast Hole Transfer by Adenine-Hopping for DNA Molecular Wire, K. Kawai, T. Takada, and *T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

DNA Damaging using a Combination of Two-color Pulses (Poster), *K. Kawai, X. Cai, A. Sugimoto, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Hole Transfer Causes Long-Lived Charge Separated State Leading to DNA Damage (Poster), *K. Kawai, T. Takada, T. Nagai, X. Cai, A. Sugimoto, M. Fujitsuka, and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Charge Transfer in DNA via Adenine Hopping Mechanism (Poster), T. Takada, K. Kawai, and *T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

One-electron Oxidation of Aromatic Sulfides during TiO₂ Photocatalytic Reactions Studied by Time-resolved Diffuse Reflectance Measurements (Poster), *T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

One-electron Oxidation of Aromatic Sulfides during TiO₂ Photocatalytic Reactions Studied by Time-resolved Absorption Measurements (Poster), *S. Tojo, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Photochemistry of Oligothiophenes in the Higher Triplet Excited States Studied by Two-color Two-laser Flash Photolysis (Poster), *M. Fujitsuka, Y. Oseki, M. Hara, and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Photochemical Regulation of Protein Activity by Manipulating the Dimer Interface (Poster), *M. Endo, K. Nakayama, and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Construction of DNA Nanostructures by Control of Double Helix DNA Assembly using Crosslinked Oligonucleotides (Poster), *M. Endo and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Aromatic Hydrocarbons in the Higher Triplet Excited States Studied by Two-color Two-laser Flash Photolysis (Poster), *M. Fujitsuka, X. Cai, M. Sakamoto, M. Hara, and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Multi-laser Photochemistry (Invited), *M. Fujitsuka and T. Majima, Singapore International Chemical Conference 3 Frontiers in Physical and Analytical Chemistry, Singapore, Dec. 8-9, 2003.

Oligothiophenes in the Higher Triplet Excited States (Poster), *M Fujitsuka, Y. Oseki, M. Hara, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Rapid Exciton Migration and Fluorescent Energy Transfer in Helical Polyisocyanides with Regularly Arranged Porphyrin Pendants (Poster), *M. Fujitsuka, A. Okada, S. Tojo, F. Takei, K. Onitsuka, S. Takahashi, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

DNA Damaging by Two Lasers (Poster), *K. Kawai, X. Cai, A. Sugimoto, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Effects of Hole Transfer on Photosensitized DNA Damaging (Poster), *K. Kawai, T. Takada, T. Nagai, X. Cai, A. Sugimoto, M. Fujitsuka, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

One-electron Oxidation of Aromatic Sulfides during TiO₂ Photocatalytic Reactions: Part 1. Time-resolved Absorption Measurements (Poster), *S. Tojo, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

One-electron Oxidation of Aromatic Sulfides during TiO₂ Photocatalytic Reactions: Part 2. Time-resolved Diffuse Reflectance Measurements (Poster), *S. Tojo, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Photochemical Regulation of a Restriction Endonuclease *Bam*HI by Manipulation of the Dimer Interface (Poster), *M. Endo, K. Nakayama, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Construction of DNA Nanostructures Using Crosslinked Oligonucleotides (Poster), *M. Endo and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Transient Absorption Measurement of Stilbene Radical Cation in the Higher Excited using ns and ps Two-laser Flash Photolysis (Poster), *M. Hara, S. Samori, X. Cai, M. Fujitsuka; and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Resonant Three Photon Ionization of Stilbene Derivatives using Two-color Two-laser Laser Flash Photolysis (Poster), *M. Hara, S. Samori, X. Cai, M. Fujitsuka; and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Rapid Cleavage of Naphthylmethyl-oxygen Bond in the Higher Triplet Excited States Studied by Two-color Two-laser Flash Photolysis (Poster), *X. Cai, M. Sakamoto, M. Hara, S. Tojo, K. Kawai, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization

of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -", Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Energy Transfer vs Electron Transfer during the Bimolecular Quenching of Aromatic Hydrocarbons in the Higher Triplet Excited States (Poster), *X. Cai, M. Sakamoto, M. Hara, S. Tojo, K. Kawai, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on "Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -", Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

One-electron Oxidation of Biphenyl Derivatives Strongly Coupled with TiO₂ Surface (Poster), *T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on "Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -", Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Hole Transport to Non-adsorbed Chemicals during TiO₂ Photocatalytic Reactions (Poster), *T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on "Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -", Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Competitive Quenching Processes of Naphthalene Derivatives in the Higher Triplet Excited States – Energy Transfer vs Electron Transfer (Poster), *M. Sakamoto, X. Cai, M. Hara, M. Fujitsuka, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on "Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -", Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Photochemical Control of Caspase-3 Activity for Induction of Apoptosis (Poster), *K. Nakayama, M. Endo, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on "Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -", Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

2-Aminopurine-cytidine-7-deazaguanine (5'-ApC^{dz}G-3') Trimer as a Fluorescent Unit for a Z-DNA Probe (Poster), *T. Kimura, K. Kawai, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on "Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -", Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Kinetics of Long-Distance Hole Transfer in DNA (Poster), *T. Takada, K. Kawai, M. Fujitsuka, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on "Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -", Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Long-Lived Charge-Separated State in DNA (Poster), *T. Takada, K. Kawai, M. Fujitsuka, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on "Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -", Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Charge Separation in DNA using the Consecutive Adenine Hopping (Poster), *K. Kawai, T. Takada, and T. Majima, International workshop on Advances in Molecular Electronics: From molecular materials to single-molecule devices, Dresden, BRD, Feb. 23-27, 2004.

Photosensitized Oxidation of DNA, *T. Majima, International Workshop on Recent Progress in Organic Chemistry, Osaka, Japan, March 1-3, 2004.

DNA Supramolecular Chemistry, *M. Endo and T. Majima, International Workshop on Recent Progress in Organic Chemistry, Osaka, Japan, March 1-3, 2004.

Manipulation of the Dimer Interface for Photochemical Regulation of the Activity of an Endonuclease *Bam*HI (Poster), *K. Nakayama, M. Endo, and T. Majima, 227th ACS National Meeting, California, USA, March, 2004.

[国際会議の組織委員]

真嶋 哲朗 21st International Conference on Photochemistry (ICP21) (組織委員)

[国内学会]

日本化学会第 83 春季年会	6 件
光化学討論会	8 件
第 45 回放射線化学討論会	2 件
第 51 回有機反応討論会	1 件
第 24 回日本光医学・光生物学会	3 件
日本化学会第 84 春季年会	18 件

[取得学位]

博士(工学)

原 道寛 芳香族化合物の多光子化学およびマルチレーザー化学

修士(工学)

城山 高志 ポルフィリン-DNA超分子の合成と性質

[科学研究費補助金]

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

基盤研究(A)(2)

真嶋哲朗 修飾DNAの機能化による分子デバイス 1,300

特定領域研究(A)(2)

真嶋哲朗 光機能界面における有機物の反応機構の解明 24,600

基盤研究(C)(2)

藤乗幸子 光触媒を用いる有機環境汚染物質の新しい分解法の開発 光触媒・多重光励起法 2,600

若手研究(B)(2)

藤塚守 機能化フラレンのナノ構造組織化による光誘起電子移動性発現 1,500

若手研究(B)(2)

川井清彦 2波長2レーザー照射による高効率DNA切断
分子合成化学研究分野 2,600

教授 笹井 宏明

助教授	山高 博
助手	市原 潤子、Doss Jayaprakash
非常勤研究員	Mahesh L. Patil
学振博士研究員	Chinnasamy Muthiah、篠原 俊夫
客員研究員	Stefanie Kalsow、Cilamkoti Venkat Laxman Rao、Priti Koranne
大学院学生	加藤 考浩、松井 嘉津也、丸林 千能、米澤 浩司、浅野 泰明、川楠 哲生、川瀬 敬啓、下元 愛、脇田 和彦、辻原 哲也、吉田 友和、渡口 桂吾
研究生	原 敬司
事務補佐員	中島 美佳子

a) 概要

不斉触媒は極微量の使用で、医薬品や液晶材料の原料となる光学活性有機化合物を大量供給可能とする。実用的な高活性不斉触媒を開発することは、限りある資源を有効に活かし環境汚染物質の排出を最小限にとどめるために重要である。当研究分野では、新しい触媒的不斉合成法の開発とその反応メカニズムの解明に積極的に取り組み、酵素的な作用機序で働く多機能な不斉触媒の開発に成功している。既存の触媒の不斉化と異なり、新しい反応活性化機構に基づく新規反応の開拓的研究である。現在、これら多機能不斉触媒の固定化、強固な不斉骨格を有する新規光学活性配位子および有機分子触媒のデザインを重点的に推進している。また、新規反応の開発のためには、素反応に関する深い理解が不可欠であり、速度論や理論計算に基づく詳細な反応メカニズムの解析を進めている。

b) 成果

・複合金属触媒の開発と固定化

複合金属錯体 Al-Li-bis(binaphthoxide) (ALB)や La-Li-tris(binaphthoxide) (LLB)は、二つの異なる金属と複数の不斉配位子から構成される。中心金属がルイス酸として、アルカリ金属-酸素結合がブレンステッド塩基として機能し、異なる二つの基質を活性化するとともに、触媒の多数の不斉配位子が基質の配向を高度に制御する不斉触媒である。今回、不斉ホモカップリング反応のような同一種の二分子の基質の活性化に有効な新規二重活性化機構を有する触媒の開発に成功した。R体のジホルミルピナフトールとアミノ酸である *tert*-(S)-ロイシンから導かれるジイミン体に対し四当量の酸化硫酸バナジウム (VO₂SO₄) を添加することにより新規バナジウム二核錯体を合成した。本触媒は、空気雰囲気下、2-ナフトールのカップリング反応において、光学収率 93%でカップリング体を与えた。本反応の二重活性化機構は、反応速度解析等から支持された。

触媒の回収や再利用が容易となる固定化触媒の開発は、環境調和型プロセスを構築する重要な研究課題となっている。しかし、例えば、ALB 錯体のように複数の配位子を含む触媒をポリマー上に固定化するには、配位子の相対配置を適切に制御する新規な方法論が必要となる。そこで、複数の配位子を有する触媒の汎用性に富む固定化法として、触媒と類似の構造を有し化学的に安定な「触媒アナログ」を共重合した後、固相触媒に変換する手法を開発した。デンドリマーの合成の煩雑さを解消すべく、デンドロンを重合させる手法を用い、複数の配位子の相対配置を精密に制御したポリマーを容易に合成することに成功した。これら固定化配位子は、不斉マイケル反応、不斉カルボニル-エン反応および不斉エポキシ化反応に有効であった。

・新規不斉スピロ型ビスイソオキサゾリン配位子の開発

様々な分子骨格を有するイソオキサゾリン配位子を合成して、イソオキサゾリン配位子の特異な能力とスピロ不斉の生み出す特徴的な不斉環境の有用性を明らかにした。スピロ骨格にイソオキサゾール環、オキサゾリン環およびピラゾール環を有する光学的に純粋な配位子の合成に成功した。イソオキサゾールが不斉配位子として機能することを初めて示した。パラジウム-イソオキサゾリン錯体を用いて、触媒的不斉アミノカルボニレーションの開発に成功した。現在のところ、我々が開発したイソオキサゾリン配位子以外に本不斉反応を促進する不斉配位子は見出されていない。

・機能性球状粒子の効率的合成法の開発と機能評価

表層に不斉触媒能を有する球状粒子の効率的構築法の開発を検討した。界面活性モノマーの形成する球状ミセルを水中で重合反応により固定した。得られた球状ポリマーに BINOL を担持した結果、有機溶媒中で合成した直鎖型ポリマーよりも配位子の担持率は高く、その触媒活性も高かった。一方、金と硫黄の親和力を利用して、金属クラスター担持触媒を調製し、金属クラスターが固相触媒として十分機能することを明らかにした。これは金属クラスター担持 BINOL の初めての合成及び反応例である。現在、更なる高次機能を持つ球状機能性ナノ粒子の合成とその応用を検討している。

・光学活性な新規イオン性液体と有機分子触媒の開発

環境低負荷型不斉反応プロセス開発に重要な光学活性イオン性液体と有機分子触媒のデザインおよび合成を行った。スピロ骨格にイミダゾリウム塩、ピリジニウム塩およびアンモニウム塩を導入した新規有機塩を創製した。合成したイミダゾリウム塩の中に、室温で液化する有機塩を見いだすことが出来た。ルイス塩基性を示すホスフィンあるいはアミンユニットを導入した BINOL 誘導体が、特に不斉 aza-MBH 反応において、両基質を同時に活性化して高選択的に反応を促進する有機分子触媒として機能することを見出した。

・有機反応の解析と設計

いくつかの基本的な有機化学反応に関してメカニズムを調べた。中でも、有機反応の経路が必ずしも反応のエネルギー図上の遷移状態を通らず、高エネルギーではあっても反応のダイナミクスによって支配される経路を経るという "Dynamics-Driven Reaction Path" の概念を示した事は、有機反応論の根底に関わる問題として重要である。また、電子移動反応と置換反応生成物が共通の遷移状態から生じることを分子動力学計算から明らかにした。

・グリーンケミストリーを指向した、有機溶媒を用いない固相系触媒反応の開発

アパタイトは環境への負荷が小さいバイオマテリアルである。グリーンケミストリーを考慮して、有機溶媒を用いず、アパタイトを固体分散相とする新しい触媒反応プロセスの開発を行ってきた。アルケンやアルケニルアルコールのエポキシ化反応に対して、ドデカタングステン酸セチルピリジニウム塩触媒/urea-H₂O₂/フッ素アパタイトを用いた固相系システムを Green Reaction System として開発した。この固相系システムでは、常温常圧下、無溶媒条件で効率よく反応を促進した。しかも回収した固相触媒相はリサイクル使用できた。この固相系の特徴は、これまでの過酸化水素水を用いる溶液系反応とは異なり、パーオキシ型活性種が、元のポリ酸クラスター骨格を大きく崩すことなく保持している点にある。

[原著論文]

Design and Synthesis of Novel Spiro Pyridinium and Quinolinium Salts. M. L. Patil, S. Takizawa, and H. Sasai: *Heterocycles* 61, (2003) 581-586.

Metal-bridged Polymers as Insoluble Multicomponent Asymmetric Catalysts with High Enantiocontrol: An Approach for the Immobilization of Catalysts without Using any Support. S. Takizawa, H. Somei, D. Jayaprakash, and H. Sasai: *Angew. Chem. Int. Ed.* 42, (2003) 5711-5714.

Monolayer-protected Au Cluster (MPC)-supported Ti-BINOLate Complex. K. Marubayashi, S. Takizawa, T. Kawakusu, T. Arai, and H. Sasai: *Org. Lett.* 5, (2003) 4409-4412.

Synthesis of Novel Chiral Spiro Bis(pyrazole) Ligands. S. Takizawa, Y. Honda, M. A. Arai, T. Kato, and H. Sasai: *Heterocycles* 60, (2003) 2551-2556.

Polymer Supported BisBINOL Ligands for the Immobilization of Multicomponent Asymmetric Catalysts. T. Sekiguti, Y. Iizuka, S. Takizawa, D. Jayaprakash, T. Arai, and H. Sasai: *Org. Lett.* 5, (2003) 2647-2650.

Enantioselective Synthesis of α -Methylene- γ -butyrolactones Using Chiral Pd(II)-SPRIX Catalyst. C. Muthiah, M. A. Arai, T. Shinohara, T. Arai, S. Takizawa, and H. Sasai: *Tetrahedron Lett.* 44, (2003) 5201-5204.

Enantioselective Epoxidation of α,β -Unsaturated Ketons Using Polymer-supported Lanthanoid-BINOL Complexes. D. Jayaprakash, Y. Kobayashi, S. Watanabe, T. Arai, and H. Sasai: *Tetrahedron: Asymmetry* 14, (2003) 1587-1592.

Catalytic Asymmetric Epoxidation of α,β -Unsaturated Ketons Using Polymeric BINOL. D. Jayaprakash, Y. Kobayashi, T. Arai, Q.-S. Hu, X.-F. Zheng, L. Pu, and H. Sasai: *J. Mol. Catal. A: Chem.* 196, (2003) 145-149.

"Catalyst Analogue": A Concept for Constructing Multicomponent Asymmetric Catalysts (MAC) Using a Polymer Support. T. Arai, T. Sekiguti, K. Otsuki, S. Takizawa, and H. Sasai: *Angew. Chem. Int. Ed.* 42, (2003) 2144-2147.

Synthesis of New Chiral Bis(isoxazoline) Ligands Containing Spiro[5.5]undecane Skeleton. M. A. Arai, M. Kuraishi, T. Arai, and H. Sasai: *Chirality* 15, (2003) 101-104.

The First Enantioselective Intramolecular Amino-carbonylation of Alkynes Promoted by Pd(II)-Spiro Bis(isoxazoline) Catalyst. T. Shinohara, M. A. Arai, K. Wakita, T. Arai, and H. Sasai: *Tetrahedron Lett.* 44, (2003) 711-714.

Synthesis and Character of New Bis(isoxazoline) Ligands. T. Shinohara, K. Wakita, M. A. Arai, T. Arai, and H. Sasai: *Heterocycles* 59, (2003) 587-593.

Dynamics-driven Reaction Pathway in an Intramolecular Rearrangement. S. C. Ammal, H. Yamataka, M. Aida, and M. Dupuis: *Science* 299, (2003) 1555-1557.

Nitroalkane Anomaly: Computational Study with Cluster and Continuum Modeling. H. Yamataka and S. C. Ammal: *ARKIVOC* (2003) 59-68.

Ab Initio Molecular Dynamics Studies on Substitution vs. Electron Transfer Reactions of Substituted Ketyl Radical Anions with Chloroalkanes: How Do the Two Products Form in a Borderline Mechanism? H. Yamataka, M. Aida, and M. Dupuis: *J. Phys. Org. Chem.* 16, (2003) 475-483.

The 1-N-(methoxycarbonyl-2-phenylethyl)imino-2,2,2-trifluoroethanephosphonate Systems Are Not Stable Enols of Carboxylic Esters. J. Song, H. Yamataka, and Z. Rappoport: *J. Fluor. Chem.* 124, (2003) 119-122.

Linear Free Energy Relationship and Kinetic Isotope Effects as Measures for the Transition State Variation. A Computational Study. S. C. Ammal, M. Mishima, and H. Yamataka: *J. Org Chem.* 68 (2003) 7772-7778.

The Catalytic Activities of Nanoclusters Dispersed on Apatite. J. Ichihara, K. Iteya, H. Kawaguchi, Y. Sasaki, H. Nakayama, and S. Yamaguchi: *J. Ceram. Process. Res.* 4, (2003) 42-44.

Cetylpyridinium Dodecatungstate on Fluorapatite: Efficient and Reusable Solid Catalyst for Solvent-Free Epoxidation. J. Ichihara, A. Kambara, K. Iteya, E. Sugimoto, T. Shinkawa, A. Takaoka, S. Yamaguchi, and Y. Sasaki: *Green Chem.* 5, (2003) 491-493.

New Approach to Environmentally Benign Epoxidation: The Solid-Phase-System Using Urea-H₂O₂ and Recyclable Dodecatungstate on Apatite. J. Ichihara, K. Iteya, A. Kambara, and Y. Sasaki: *Catal. Today*, 87, (2003) 163-169.

[著書]

Addition of Lithium Derivatives to Doubly-bonded Compounds. H. Yamataka, K. Yamada, and K. Tomioka, In *Chemistry of Functional Groups*, Vol. 104, Z. Rappoport and I. Marek, Eds., Wiley. (2003)

[特許]

エポキシ化合物の製造方法、市原潤子、佐々木洋、山口俊郎、野須勉、特願 2003-340095

スピロキラリティーを有する四級アンモニウム塩及びその利用、笹井 宏明、特開 2003-335780

両親媒性分子化合物、粒子状高分子および高分子希土類化合物、笹井 宏明、特開 2003-81927

高分子パイノール誘導体、高分子金属パイノールアート化合物およびパイノール誘導体、笹井 宏明、特開 2003- 55412

[国際会議]

Development of Multifunctional Asymmetric Catalysts (MAC) for Morita-Baylis-Hillman (MBH) Reaction (Poster), *K. Matsui, S. Takizawa, and H. Sasai, 12th Symposium on Organo-metallic Chemistry Directed Toward Organic Synthesis (OMCOS 12), Toronto, Canada, July 6-10, 2003.

Design and Synthesis of Novel Spiro-Type Ligands (Poster), *T. Kato, K. Wakita, T. Shinohara, C. Muthiah, M. A. Arai, S. Takizawa, and H. Sasai, 12th Symposium on Organo-metallic Chemistry Directed Toward Organic Synthesis (OMCOS 12), Toronto, Canada, July 6-10, 2003.

Development of Novel Multifunctional Asymmetric Catalysts (Poster), *S. Takizawa, H. Somei, K. Murai, T. Arai, D. Jayaprakash, and H. Sasai, The International Symposium on Dynamic Complexes (ISDC 2003), Tokyo, Japan, Aug. 4, 2003.

Enantioselective Catalysis Using Novel Spiro-type Ligands (Poster), *K. Wakita, M. A. Arai, T. Shinohara, T. Kato, C. Muthiah, S. Takizawa, T. Arai, and H. Sasai, The 15th International Symposium on Chirality (Chirality 2003), Shizuoka, Japan, Oct. 20-23, 2003.

Enantioselective Catalysis Using Novel Spiro-type Ligands (Poster), *K. Wakita, T. Kato, T. Shinohara, C. Muthiah, M. A. Arai, S. Takizawa, T. Arai, and H. Sasai, The 9th International Kyoto

Conference on New Aspects of Organic Chemistry (IKCOC-9), Kyoto, Japan, Nov. 10-14, 2003.

Effective Immobilization of Multifunctional Asymmetric Catalysts. (Poster), *D. Jayaprakash, T. Sekiguti, Y. Iizuka, S. Takizawa, T. Arai, and H. Sasai, The 9th International Kyoto Conference on New Aspects of Organic Chemistry (IKCOC-9), Kyoto, Japan, Nov. 10-14, 2003.

Dual Activation in a Homolytic Coupling Reaction Promoted by an Enantioselective Dinuclear Vanadium(IV) Catalyst (Poster), H. Somei, Y. Asano, T. Yoshida, *S. Takizawa, H. Yamataka, and H. Sasai, The 9th International Kyoto Conference on New Aspects of Organic Chemistry (IKCOC-9), Kyoto, Japan, Nov. 10-14, 2003.

Metal-bridged Polymers as Insoluble Multicomponent Asymmetric Catalysts (MACs) with High Enantiocontrol: An Approach for the Immobilization of Catalysts without Using any Support (Poster), *S. Takizawa, H. Somei, D. Jayaprakash, and H. Sasai, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Monolayer-protected Au Cluster (MPC)-supported Ti-BINOLate Complex (Poster), *T. Kawakusu, K. Marubayashi, S. Takizawa, T. Arai, and H. Sasai, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Metal-bridged Polymers as Insoluble Multicomponent Asymmetric Catalysts (MACs) with High Enantiocontrol: An Approach for the Immobilization of Catalysts without Using any Support (Poster), *S. Takizawa, H. Somei, D. Jayaprakash, and H. Sasai, International Symposium on Organic Reactions 2003 (ISOR-2003), Osaka, Japan, Dec. 19-21, 2003.

Immobilization of Enantioselective Catalysts onto the Surface of Spherical Nanoparticles (Poster), *K. Marubayashi, S. Takizawa, F. Yonezawa, T. Kawakusu, D. Jayaprakash, M. L. Patil, T. Arai, T. Hanada, and H. Sasai, Second 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science -Perspectives in Nanoscience-, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

The aza-Morita-Baylis-Hillman (aza-MBH) Reaction Promoted by Chiral Phosphine-BINOL as an Organocatalyst (Poster), *K. Matsui, S. Takizawa, and H. Sasai, Second 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science -Perspectives in Nanoscience-, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Design and Synthesis of Novel Spiro Chiral Phase Transfer Catalysts (Poster), *M. L. Patil, C. V. L. Rao, S. Takizawa, and H. Sasai, Second 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science -Perspectives in Nanoscience-, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Enantioselective Reactions Promoted by Pd(II)-SPRIX Catalysts (Poster), *C. Muthiah M. A. Arai, T. Shinohara, T. Arai, S. Takizawa, and H. Sasai, Second 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science -Perspectives in Nanoscience-, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

New Approach for the Immobilization of Multicomponent Asymmetric Catalysts with High Enantiocontrol (Poster), *S. Takizawa, D. Jayaprakash, H. Somei, T. Sekiguti, K. Otsuki, T. Arai, and H. Sasai, Second 21st Century COE “Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience” 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science -Perspectives in Nanoscience-, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Effective Immobilization of Multifunctional Asymmetric Catalysts (Poster), *D. Jayaprakash, T. Sekiguti, Y. Iizuka, T. Arai, and H. Sasai, Second 21st Century COE “Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience” 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science -Perspectives in Nanoscience-, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Dual Activation in a Homolytic Coupling Reaction Promoted by an Enantioselective Dinuclear Vanadium(IV) Catalyst (Poster), H. Somei, Y. Asano, *T. Yoshida, S. Takizawa, and H. Sasai, Second 21st Century COE “Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience” 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science -Perspectives in Nanoscience-, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Design and Synthesis of Novel Spiro-Type Ligands (Poster), *T. Tsujihara, K. Wakita, T. Kato, T. Shinohara, M. A. Arai, S. Takizawa, T. Arai, and H. Sasai, Second 21st Century COE “Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience” 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science -Perspectives in Nanoscience-, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Immobilization of Multicomponent Asymmetric Catalysts (Oral), *S. Takizawa and H. Sasai, International Workshop on Recent Progress in Organic Chemistry, Osaka, Japan, March 1-3, 2004.

Some Enantioselective Reactions Using Spiro Chiral Compounds (Oral), *H. Sasai, International Workshop on Recent Progress in Organic Chemistry (Oral), Osaka, Japan, March 1-3, 2004.

Immobilization of Multifunctional Asymmetric Catalysts (MACs) (Oral), D. Jayaprakash, S. Takizawa, T. Arai, and *H. Sasai, 227th ACS National Meeting, California, USA, March 28 - April 1, 2004.

Enantioselective Catalysis Using Novel Spiro-type Ligands (Oral), *H. Sasai, 227th ACS National Meeting, California, USA, March 28 - April 1, 2004.

Dynamics-driven Reaction Pathway: In What Case Is a Reaction Controlled by Dynamics? (Oral), *H. Yamataka and S. C. Ammal, 9th European Symposium on Organic Reactivity, Oslo, Norway, July 12-17, 2003.

Can Enol of Carboxylic Acid Halides Be Prepared? (Oral), Z. Rappoport, S. C. Ammal, and *H. Yamataka, 10th Kyushu International Symposium on Physical Organic Chemistry, Fukuoka, Japan, September 30 - Oct. 3, 2003.

Theoretical Study on the Mechanism of Halogen Exchange Reaction of Alkyl Halide in Aqueous Solution (Oral), M. Ohisa, M. Aida, and *H. Yamataka, 10th Kyushu International Symposium on

Physical Organic Chemistry, Fukuoka, Japan, Sep. 30 - October 3, 2003.

Cetylpyridinium Dodecatungstate Dispersed on Apatite: A Reusable, Efficient Solid-catalyst-phase in the H₂O₂-epoxidations (Poster), Y. Sasaki, *A. Kanbara, K. Iteya, J. Ichihara, and S. Yamaguchi, The 9th Korea-Japan Symposium on Catalysis, Pohang, Korea, May 20-21, 2003.

Catalytic Activities and Active Species in Phosphomolybdate/Urea-H₂O₂/Apatite Solid-phase System (Poster), J. Ichihara, *K. Iteya, K. Ushimaru, H. Kawaguchi, Y. Sasaki, S. Yamaguchi, and H. Nakayama, The 9th Korea-Japan Symposium on Catalysis, Pohang, Korea, May 20-21, 2003.

Clean Polyoxometalate/Apatite Solid-Phase-System for Oxidation of Sulfides to Sulfoxides and Sulfones (Poster), *J. Ichihara, K. Ushimaru, and Y. Sasaki, 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Are Kinetic Isotope Effects a Good Measure of Transition State Variation? A Combined Experimental-theoretical Study (Invited), *H. Yamataka and S. C. Ammal, 3rd International Isotope Effect Conference, Uppsala, Sweden, June 22-27, 2003.

The Effect of Dynamics in Molecular Rearrangements and Isomerizations (Invited), *H. Yamataka, S. C. Ammal, Y. Ohga, and T. Asano, 10th Kyushu International Symposium on Physical Organic Chemistry, Fukuoka, Japan, Sep. 30 - October 3, 2003.

[国内学会]

基礎有機化学連合討論会	3 件
日本化学会年会	17 件
分子構造総合討論会	1 件
理論化学討論会	2 件
反応と合成の進歩シンポジウム	3 件
有機金属討論会	1 件
GSC シンポジウム	2 件
有機合成シンポジウム	1 件
希土類討論会	1 件
触媒討論会	3 件
第 1 回次世代を担う有機化学シンポジウム	1 件
有機反応懇談会	4 件
高分子学会	1 件
複素環化学討論会	2 件

[取得学位]

修士 (理学)

浅野 泰明	二重活性化機構を有する不斉二核遷移金属錯体の開発とエナンチオ選択的反応への応用
川楠 哲生	新規金属クラスター担持型不斉触媒の合成
川瀬 敬啓	ジケテンを用いる不斉アルドール型反応の開発
下元 愛	新規光学活性スピロ型第四級アンモニウム塩の開発と触媒的不斉反応への応用
脇田 和彦	スピロキラリティーを有する新規不斉配位子の創製と応用

博士（理学）

加藤 考浩 スピロ骨格を有する新規含窒素配位子の開発と触媒的不斉反応への応用

松井 嘉津也 新規多機能触媒による不斉 Morita-Baylis-Hillman (MBH)反応の開発

[科学研究費補助金]

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

特定研究(A)(2)

笹井 宏明 新規ナノ粒子構築法に基づく機能性多元素化合物の合成と応用 2,300

笹井 宏明 触媒活性部位での多元的協調作用を活用する人工酵素の開発 1,900

基盤研究(C)(2)

山高 博 有機溶媒を考慮した反応メカニズム：速度論的実験と新規 QM/MM 法の開発 2,400

[特別研究員奨励費]

笹井 宏明 概念的に新しい触媒的不斉合成の開発 1,200

笹井 宏明 光学活性なスピロ化合物の特性を利用する新規不斉反応の開発 1,000

[その他の競争的研究資金]

笹井 宏明 (財)医薬資源研究 振興会研究助成金 スピロ骨格を有する新規不斉触媒を用いた非天然型光学活性アミノ酸誘導体の効率的合成研究 1,000

笹井 宏明 (財)ノバルティス 科学振興財団研究 奨励金 スピロキラリティーを活用する機能性物質の創製 1,000

知能システム科学研究部門

概要

膨大な情報がデジタル化され、ネットワークを通じ世界中を飛び交うようになった今日の高度情報化社会では、知的情報処理は日常生活を含む社会のあらゆる局面で必要不可欠な要素となりつつある。本研究部門は人間の知能を科学し、高度な知識情報処理機能を計算機に付与し広く工学的諸問題の解決や知的活動支援全般へ応用することを目指した、互いに有機的に関連する4研究分野で構成されている。研究内容はオントロジー工学、知識の共有、再利用の研究（知識システム分野）、多元的な情報の利用と多角的な処理の研究（複合知能メディア分野）、人間と計算機との理想的な相互作用の形態を追求したインターフェイスおよびエージェントの研究（知能アーキテクチャ分野）、データマイニング、知識発見、機械学習の研究（高次推論方式分野）など、人間の知的活動の根源に関する諸問題を情報科学/工学の観点から追求している。各研究分野は、それぞれの方野名によって代表される観点から独自性を重視しつつ研究を進めているが、その一方で、互いに連携を保った研究開発も同時に推進している。また、当研究所の他部門との間においても、上記のような目標を追求する過程において得られる成果を研究開発支援ツールとして提供する一方、逆に他部門からは実際の適用課題についての示唆を受けるなどの形で、相互に協調性を図りながら研究を進めている。

成果

- ・分散オントロジー開発環境
- ・オントロジー工学に基づく機能的知識の体系化とその実証
- ・高度ナレッジマネジメントと学習支援
- ・協調学習インタラクション分析とメタ認知モデル構成
- ・オーサリングタスクオントロジーの開発と革新的オーサリングシステムアーキテクチャ
- ・マルチメディア理解に基づく連続メディアの構造化
- ・全方位ビジョンのセンサデザインとその視覚情報処理
- ・3次元空間モデリングと可視化
- ・全方位監視シウテムと人物行動解析
- ・帰納学習のための新属性の自動生成
- ・適応エージェント
- ・Web-based Learning 支援環境
- ・ナビゲーション知識の共有
- ・ハイパー空間におけるメタ認知支援
- ・協調学習のためのインストラクショナルデザイン支援環境
- ・専門家からの知識獲得に関する研究
- ・グラフ構造データからの知識発見に関する研究
- ・多様なデータ形式を対象とする検索手法に関する研究
- ・数値データからの時間依存法則式の発見に関する研究
- ・数値属性を有するデータに対する相関規則の導出に関する研究

知識システム研究分野

教授	溝口 理一郎
助教授	來村 徳信
助手	角 薫、稲葉 晶子（10月1日より）
ポスドク研究員	Larisa Soldatova
大学院学生	林 浩一、唐木 拓磨、砂川 英一、武内 雅宇、小路 悠介 田中 庸平、垂水 晋也
学部学生	河野 裕一郎、治村 寛信, Mesbahy Houda
事務補佐員	馬野 直美

a) 概要

情報科学の進展はめざましく、「情報」を越えた「知識」がますますその重要性を増すと考えられている。実社会においては小型化が極限にまで進化したコンピュータと地球規模に発達したコンピュータネットワークによって「大量情報/知識の知的処理」が一般家庭にまで浸透しつつある。学界における知識処理研究は「考える, 判断する, 推論する」といった人間固有の知的機能を計算機で実現する「知的機能代行型」の研究から、人間と共生する「知的パートナーとしてのコンピュータ」の研究へと展開している。当分野では学術的に優れた研究成果をあげつつこれらの社会的状況に応えることを目指して、次世代の知識処理システム構築のための新しい基礎理論と基盤技術としての「オントロジー工学」を提唱し、それに関連する幅広い研究を行っている。具体的には、オントロジー基礎論に基づく開発方法論とその環境、知識の体系化に基づく知的設計支援システム、知識の共有・再利用、知的教育・訓練システムとオントロジーに基づくオーサリングシステムに関する研究を行っている。

b) 成果

・オントロジー構成論

知識工学の基礎理論としてオントロジー構成論を展開している。知識ベースシステムの知的振る舞いは人間の知的振る舞いを模倣したものであり、その源は人間にある。また、それがサービスを提供する対象もまた人間である。にも関わらず、知識ベースシステムの大多数においては、人間が持つ概念体系の豊かな意味あいが見失われ、人間からみて従来型のソフトウェアと本質的な差異を認めることができないという問題がおこっている。この問題は、知識ベースの共有・再利用の困難さや、人間からみたソフトウェアの振る舞いの「硬さ」といった問題に通じている。これは、人間が知識ベースシステムを「作る」、あるいは「使う」ときのための基礎的理論が確立していないことに原因がある。オントロジーに関する理論は、人間の対象に対する認識の世界とソフトウェアの中に作り出される世界を明確に対応づけながら知識工学的成果を積み重ね、それに基づいて現実の問題に応用するための必要不可欠な基礎理論である。オントロジー構成論に関して当分野では、オントロジー研究の意義、機能と役割、研究すべき課題などを整理した「オントロジー工学序説」「オントロジー研究の基礎と応用」「オントロジー工学基礎論」と題する啓蒙的な論文を公表するなど我が国において先導的立場で研究を行って来た。まず基礎となる理論を確立すべく、人間が認識する概念の成り立ちを独自の観点で分析し、その結果を新しい基礎理論として定式化し公表し、「知識」に関する情報科学的に重要な疑問に解答を与え始めている。さらに、基礎論から実践的研究への展開に向けて、既存の情報基盤技術との連携技術について重点的に検討している。これらの成果は当分野で開発したオントロジー工学研究の基盤ツール「法造」におけるオントロジーエディタ、技術ドキュメントからのオントロジー抽出過程を支援する概念工房、そしてオントロジーサーバとして実装した。本年度は、法造の実用ツールへ向けた強化とセマンティックウェブを指向した分散環境でのオントロジー開発支援システムを開発した。

・工学的知識体系化の枠組みの開発とその知識記述・共有における利用

昨今の工業社会において大きな役割を果たしている工学的知識の中で、数値や形状に関する詳細なデータレベルの知識は計算機ネットワークの発達に伴い共有されるようになってきたが、機能などの概念レベルの工学的知識は属人的かつ暗黙的になっており、明示化されたとしても領域固有で一般性が低く、一貫性もないことが多い。共有・再利用可能な知識を記述するためには、共通の一貫した視点に基づいて知識を捉え、知識に用いられる概念を統一することが必要である。本研究では、人工物の概念レベルモデルの成り立ちを深く考察し、工学的知識の枠組みを与える概念体系（オントロジー）の構築を目標としている。本年度まででは、工業製品や生産工程における機能的な知識を対象として、それらを捉える際の概念体系として物理的対象を「装置」という観点から捉える視点を提供するデバイスオントロジーと、機能的知識の語彙を提供する機能概念オントロジーを構築した。本枠組みはある大手製造業企業において生産装置・工程に関する知識共有に活用されており、大きな成果を上げている。本年度は本枠組みに基づいたソフトウェアのユーザーズグループを組織し、多くの企業において実用化をめざした活動を行った。また、企業におけるさまざまな既存の知識表現形式に現れる知識を統合する知識表現形式について研究を行った。

・学習支援システムの構築方法論

学習支援システムに関する研究領域では、教育という人間の知的活動を部分的に計算機システムに代行させることを目的として、様々な方面から基礎と応用の両面から研究がなされてきている。しかし、残念ながらその知見は散発的で、工学的な方法論の確立には集約していないというのが実状である。このような状況を打開するためには、基礎理論とシステム構築方法論の対応関係を明確にするための枠組みが必要である。その中核となる技術として我々が提唱しているのがオントロジー工学である。オントロジーは、対象に関して人間が持っている専門的知識と、それを埋め込んだソフトウェアの構造や振る舞いとへの対応関係を、人間にとって分かり易い形態で明確にするための知識工学の理論である。本研究では、教育タスクのオントロジーを明確にし、それに基づいた人間に親和性の高いオーサリングツール（教育システム構築環境）を開発することを目標とし、これまでに積み重ねられた様々な教育システムを解析し、その構成原理をオントロジーとして明確にする作業を進めている。これまでに、この理論を企業内教育に適用し、Ontology-Awareness という概念を提案し、従来疎遠であった学習理論や教授理論までを包含したオントロジーを開発して、教育タスクオントロジーと合わせた包括的なオントロジーに基づいた新しいオーサリング環境を実現している。また、これまでの成果を踏まえて企業内の人的資源開発・管理を包括的に支援する枠組みへと展開するための基礎研究として、能力概念のオントロジーと、それを基礎においたツール群の開発も行っている。本年度は、オーサリングタスクオントロジーとそれに基づく革新的なオーサリングシステムのプロトタイプ設計、協調学習におけるインタラクション分析システムの開発、メタ認知機能のモデル化を行った。

・知識の継承・創造支援のための情報基盤

人間の社会は、長い歴史の中で知識を生み出し・継承し、洗練することで成長している。そのための媒体として書物が永く使われてきたが、近年は情報インフラが整備され、ネットワークで有機的に結合されたコンピュータが主な媒体として定着しつつある。本研究では、組織論・経営学の知見を参照しながら情報基盤を基礎とした組織知識の成長のモデルを提示し、それを核にした情報基盤の全体構想の構築と情報システムの開発を進めている。この研究テーマは、オントロジー工学と教育情報システムという本分野が世界的に先駆けている2つの領域の専門性を複合して初めて可能になる独創的なものである。この構想の基礎として本年度までに様々な方向からアプローチし、協調学習支援システム、組織知メモリ、知識創造コミュニティの形成支援システムを実現している。本年度は、学習と実践の双方に適した協調場設計支援システム、協調場設計意図説明機能、学習を指向したナレッジマネジメントシステムの開発を行った。

・協調型合意形成システムの開発

人間同士がコミュニケーションにおいて、概念の相違が原因で、意思疎通に困難を感じることもある。

このようなもやもやしている状況においては、現状での話のくい違いを自ら表現することは難しく、そのままコミュニケーションを続けるとより混乱を招くことがある。本研究では、コンピュータの支援により、ユーザ間の概念の相違を明示的に表したり、それをお互いの理解に役立てたり、概念の修正の支援となるシステムを提案した。本システムが、ユーザにユーザ間の概念の相違や共通点を見つけさせたり、対象世界の理解やディスカッションを促進することを期待している。提案したシステムの実装および評価を行った。

[原著論文]

Ontology-based Description of Functional Design Knowledge and its Use in a Functional Way Server , Y. Kitamura and R. Mizoguchi : Expert Systems with Application, 24[2] (2003) 153-166.

Kfarm: An Ontology-aware Support Environment for Learning-Oriented Knowledge Management, Y. Hayashi, H. Tsumoto, M. Ikeda and R. Mizoguchi : 教育システム情報学会英文論文誌, 1[1] (2003). 80-89.

オントロジーアウェアな学習コンテンツ設計環境, 林 雄介, 山崎龍太郎, 池田 満, 溝口理一郎 : 情報処理学会論文誌 , 44[1] (2003) 195-208.

協調学習におけるインタラクション分析支援システム, 稲葉晶子, 大久保亮二, 池田満, 溝口理一郎 : 情報処理学会論文誌, 44[11] (2003) 2617-2627.

Communication Support System Adapted to a User's Background Knowledge and the Topic Context, K. Sumi and T. Nishida: Systems and Computers in Japan, 34[7] (2003) 87-98.

Cell Signaling Networks Ontology, T. Takai-Igarashi and R. Mizoguchi: In Silico Biol. 4, 0008 (2003)

[解説、総説]

対象モデリングの視点から見た知識表現, 溝口理一郎, 池田満, 來村徳信 : 人工知能学会誌 18[2] (2003) 183-192.

Tutorial on Ontological Engineering - Part 1: Introduction to Ontological Engineering, R. Mizoguchi : New Generation Computing 21[4] (2003) 365-384.

[著書]

Ontology Engineering Environments, R. Mizoguchi, In Handbook on Ontologies, S. Staab and R. Studer (editors), (2003) 275-295.

[国際会議]

Management of Dependency between Two or More Ontologies in an Environment for Distributed Development, E. Sunagawa, *K. Kozaki, Y. Kitamura and R. Mizoguchi, International Workshop on Semantic Web Foundations and Application Technologies (SWAFT), Nara, Japan, Mar. 12, 2003

An Ontological Schema for Sharing Conceptual Engineering Knowledge (Poster), *Y. Kitamura and R. Mizoguchi, The International Workshop on Semantic Web Foundations and Application Technologies, Nara, Japan, Mar. 12, 2003.

Learning Goals and Design Rationales in Collaborative Learning - An Ontological Approach to Support Design of Collaborative Learning, *A. Inaba, M. Ikeda and R. Mizoguchi, The International Symposium of the Institute of Scientific and Industrial Research (ISIR Symposium), Osaka, Japan, Mar. 10-11, 2003

Modeling Learner-To-Learner Interaction Process in Collaborative Learning - An Ontological Approach to Interaction Analysis, *A. Inaba, R. Ohkubo, M. Ikeda and R. Mizoguchi, The International Conference on Computer Support for Collaborative Learning (CSCL2003), Bergen, Norway, Jun. 14-18, 2003

How do Computers help a Learner to Master Self-regulation Skill?, *M. Kayashima and A. Inaba, The International Conference on Computer Support for Collaborative Learning (CSCL2003), Bergen, Norway, Jun. 14-18, 2003.

Process-aware Authoring of Web-based Educational Systems, *L. Aroyo and R. Mizoguchi, The First International Workshop of Semantic Web for Web-based Learning (SW-WL03), Velden, Austria, Jun. 16, 2003

The Proposal of an Expression of the Instructional Model of Information Education based on Ontology Theory, *T. Kasai, H. Yamaguchi and R. Mizoguchi, World Conference on Educational Multimedia and Hypermedia (ED-MEDIA'03), Honolulu, Hawaii, Jun. 23-28, 2003.

Ontology of Tests, *L. Soldatova and R. Mizoguchi, Computers and Advanced Technology in Education, Rhodes, Greece, Jun. 30 – Jul. 2, 2003

Who is a Person of High Intellectual Reputation in an Organization?, *Y. Hayashi, M. Ikeda and R. Mizoguchi, The International Conference on Artificial Intelligence in Education (AIED2003), Sydney, Australia, Jul. 20-24, 2003.

What Learning Patterns are Effective for a Learner's Growth? - An ontological support for designing collaborative learning, *A. Inaba, M. Ikeda and R. Mizoguchi, The International Conference on Artificial Intelligence in Education (AIED2003), Sydney, Australia, Jul. 20-24, 2003.

Towards Helping Learners Master Self-Regulation Skills, *M. Kayashima and A. Inaba, The International Conference on Artificial Intelligence in Education (AIED2003), Sydney, Australia, Jul. 20-24, 2003.

Difficulties in Mastering Self-Regulation Skill and Supporting Methodologies, *M. Kayashima and A. Inaba, The International Conference on Artificial Intelligence in Education (AIED2003), Sydney, Australia, Jul. 20-24, 2003.

An Ontological Approach for Supporting the Instructional Design Process of Information Education, *T. Kasai, H. Yamaguchi and R. Mizoguchi, The International Conference on Artificial Intelligence in Education (AIED'03), Sydney, Australia, Jul. 20-24, 2003.

Authoring Support Framework for Intelligent Educational Systems, *L. Aroyo and R. Mizoguchi, The International Conference on Artificial Intelligence in Education (AIED2003), Sydney, Australia, Jul. 20-24, 2003.

Ontology Development at the Conceptual Level for Theory-Aware ITS Authoring Systems, *V. Psyché, R. Mizoguchi and J. Bourdeau, The International Conference on Artificial Intelligence in Education (AIED03), Sydney, Australia, Jul. 20-24, 2003.

Organizing Knowledge about Functional Decomposition, *Y. Kitamura and R. Mizoguchi, The 14th International Conference on Engineering Design (ICED 03), Stockholm, Sweden, Aug. 19-21, 2003.

Testing of Understanding by Use of an Ontology Methodology, *L. Soldatova and R. Mizoguchi, Joint Workshop of Cognition and Learning, Berlin, Germany, Sep. 8-9, 2003.

Document Exchange Model for Augmenting Added Value of B2B Collaboration, *K. Hayashi and R. Mizoguchi, Fifth International Conference on Electric Commerce, Pittsburgh, U.S.A., Sep. 30 - Oct 3, 2003.

An Environment for Distributed Ontology Development Based on Dependency Management, *E. Sunagawa, K. Kozaki, Y. Kitamura and R. Mizoguchi, The Second International Semantic Web Conference (ISWC2003), Sanibel Island, FL, USA, Oct. 20-23, 2003.

A Collaborative Learning Design Environment to Harmonize Sense of Participation, *M. Takeuchi, R. Odawara, Y. Hayashi, M. Ikeda, and R. Mizoguchi, The International Conference on Computers in Education (ICCE2003), Wanchai, HongKong, Dec. 2-5, 2003.

Models and Vocabulary to Represent Learner-to-Learner Interaction Process in Collaborative Learning, *A. Inaba, R. Ohkubo, M. Ikeda and R. Mizoguchi, Proceedings of the International Conference on Computers in Education (ICCE2003), Wanchai, HongKong, Dec. 2-5, 2003.

The Model of Metacognitive Skill and How to Facilitate Development of the Skill, *M. Kayashima, and A. Inaba, The International Conference on Computers in Education (ICCE03), Wanchai, Hong Kong, Dec. 2-5, 2003.

Development of a System that Support Teachers of IT Education in the Instructional Design Process based on Ontology, *T. Kasai, H. Yamaguchi and R. Mizoguchi, International Conference on Computers in Education (ICCE2003), Wanchai, Hong Kong, Dec. 2-5, 2003.

OntoAIMS: Ontological Approach to Courseware Authoring, *L. Aroyo, R. Mizoguchi and C. Tzolov, The International Conference on Computers in Education (ICCE2003), Wanchai, Hong Kong, Dec. 2-5, 2003.

Generation of Test Based on Test Ontology, *L. Soldatova and R. Mizoguchi, The International Conference on Computers in Education (ICCE2003), Wanchai, Hong Kong, Dec. 2-5, 2003.

[国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員]

- 溝口理一郎 International Conference on Computers in Education 2003(ICCE2003) (会議議長)
- 溝口理一郎 International Conference on Artificial Intelligence in Education 2003(AIED2003) (会議議長)
- 溝口理一郎 International Conference on Computers and Advanced Technology in Education 2003 (CATE-2003) (プログラム委員会委員)
- 溝口理一郎 The 8th Ibero-American Conference on Artificial Intelligence IBERAMIA'03 (プログラム委員会委員)
- 溝口理一郎 The Second International Semantic Web Conference 2003 (ISWC2003)(プログラム委員会委員)
- 溝口理一郎 The 9th International Conference on User Modeling (UM03) (プログラム委員会委員)
- 溝口理一郎 IEEE International Conference on Advanced Learning Technologies (ICALT 2003) (プログラム委員)
- 溝口理一郎 La Conferencia de la Asociación Española para la Inteligencia Artificial (CAEPIA2003)(プログラム委員)
- 溝口理一郎 International Conference on the Convergence of Knowledge, Culture, Language and Information Technologies (Convergences03) (プログラム委員)
- 溝口理一郎 The 1st European Semantic Web Symposium (ESWS2004) (プログラム委員)
- 溝口理一郎 IEEE International Workshop on Wireless and Mobile Technologies in Education (WMTE2003) (プログラム委員)
- 溝口理一郎 President of Asia-Pacific Chapter of AACE (国際学会会長)
- 溝口理一郎 President of International Artificial Intelligence in Education Society (国際学会会長)
- 溝口理一郎 International Journal of Advanced Engineering Informatics (編集委員)
- 溝口理一郎 International Journal of Artificial Intelligence in Education (編集委員)
- 溝口理一郎 International Journal of Web Semantics (編集委員)
- 溝口理一郎 International Journal of Computer and Engineering Management (編集委員)
- 溝口理一郎 International Journal of Web Engineering and Technology (編集委員)

[国内学会]

- 人工知能学会 11 件
- 教育システム情報学会 3 件

[取得学位]

修士 (工学)

- 砂川 英一 依存関係管理に基づくオントロジー分散構築支援システム
- 武内 雅宇 組織知の創造・継承における実践・教育複合型協調場の設計支援システムの開発
- 小路 悠介 オントロジーに基づく補助機能の設計意図モデルとその知識変換

博士 (工学)

- 林 浩一 ドキュメントと業務コンテキストの統合管理によるコラボレーション支援

[科学研究費補助金]

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

基盤研究 (A)(2)			
溝口理一郎	Theory-Aware オーサリングワークベンチの開発		9,600
特定研究 (2)			
溝口理一郎	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		5,100
稲葉晶子	インストラクショナルデザインのための「先人の知」リポジトリの構築		3,200
若手研究 (B)			
來村徳信	機能的設計知識の共有のための機能オントロジーに関する研究		1,300
稲葉晶子	協調学習におけるインタラクションのモデル化		1,700
(分担者として配分されたもの)			
基盤研究 (A)(1)			
溝口理一郎	人間中心の(ヒューマンセンタード)セマンティック Web		2,820
[受託研究]			
溝口理一郎	(株)ギャラクシーエクスプレス	ITを活用した大規模システムの運用支援システムの構築	2,100
[共同研究]			
溝口理一郎	(社)化学工学会ナノマテリアセンター	材料技術の知識の構造化プロジェクト 研究項目 「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	5,250
溝口理一郎	宇宙航空研究開発機構	衛星設計・運用支援へのオントロジー技術適用の研究	4,300
溝口理一郎	住友電気工業(株)	技術体系化ツールの開発	2,520

複合知能メディア研究分野

教授	八木 康史
助手	佐川 立昌
特任教員	越後 富夫
大学院学生	小原 ゆう、前田 卓志、中南 和宏、藤本 喜彦、八尾 智幸、栗田 尚樹
学部学生	濱野 康裕、山上 恭廣、山口 聖二
事務補佐員	岩田 千香子、家村 雅子、安井 紀子、大西 彩子

a) 概要

本研究分野では、コンピュータビジョンとメディア処理に関する基礎から応用の研究を行っている。計算機や知能ロボットのための知覚機能の研究として、外界情報を獲得するためのセンシング技術からその情報から実世界を認識し行動するための視覚情報処理技術、さらにこれらの技術を統合した知能システムの研究を行っている。特に、周囲 360 度を一度に撮影できる全方位カメラに関する研究を中心に、デジタルアーカイブ、セキュリティシステム、人物行動解析、知能移動ロボット やマイクロロボットの研究をしている。

b) 成果

・コンテンツ記述言語 NWCDL を用いた実空間と Web 空間のシームレスな統合の実現
近年注目を集めつつある位置情報を利用したサービスでは、実世界の情報を如何にして表現するかがサービスの質を決定する上で重要なポイントとなる。我々が存在する実世界においては、自分を含む周辺の状況が絶えず変化し続けており、このような環境の中で、時間とともに変化する実世界の状況を反映した情報を獲得することは非常に困難である。本稿では、実世界の情報には、時間的、位置的、質的な軸があると考え、各軸の特徴を踏まえた形で実世界の情報を記述するためのコンテンツ記述言語 NWCDL (Navigation and Web Contents Description Language) を提案する。1990 年代の半ばよりインターネットでは、Web サイトが急速に広まりつつあるが、Web サイトのコンテンツは前述の 3 つの軸のうちの質的な軸のみを考慮した情報と捉えることができる。このコンテンツを NWCDL で内包することで、実空間と Web 空間の対応付けが成され、その結果、ユーザにとって実空間と Web 空間の情報がシームレスに結合されたかのような情報環境が実現可能となる。さらに、実空間における時間的変化の記述形式も定義することにより、刻々と変化する実世界の情報も地理情報システム、さらには Web サイトに利用可能となる。本研究では、NWCDL の具体的な応用対象として遊園地を取り上げ、園内を案内するガイドシステムを試作した。本システムを遊園地において実際に被験者に利用してもらい、実世界の位置情報を記述可能にしたことに対する有効性の検証した。システムを用いた検索の場合と既存の枠組で検索した場合の所用時間の比較を実施した。さらに、本システムの有効性や改善点をアンケートによって考察した。その結果、既存の枠組よりも良好な結果が得られ、NWCDL が有効であることが確認できた。

・全方位視覚センサによる店舗内の顧客の行動解析

不審者の発見、独居老人の安全確保、マーケティングを目的とした顧客の行動調査など人の行動解析への必要性が高まっており、これまでに様々な行動解析システムが提案、実用化されている。我々は、広域空間の観察をシームレスに行える全方位視覚センサを用いた人物行動解析システムの構築を目指し、実時間人物情報計測手法や個人認証手法などを実現してきた。本稿では、我々が構築してきた実時間人物情報計測手法を用いて、コンビニエンス・ストアなどの店舗内における顧客の行動を解析するシステムを提案する。提案システムは、店舗内に設置した全方位視覚センサによって得た映像から顧客の位置や移動速度を推定し、それらの情報をもとに“店内をどのように移動したか”、“どの商品に興味を示したか”といった顧客の活動状況を時間と場所を対応付けて監視者に提示するものである。試作システムを実際の店舗で撮影した映像に適用した結果、顧客全体の店内における分布、各顧客の移動軌跡

および停留状況などをユーザに提示可能であることを確認した。さらに、提案システムを使用することによって、売れ筋商品の把握や店舗のレイアウト変更など、より幅広い応用が可能になると考えられる。

・テレビ視聴行動からの個人的選好獲得システムの提案と構築

ユーザの興味や嗜好といった個人的選好を考慮し、各ユーザの好みに合った情報を提供する個人適応型サービスの重要性が増大している。そこで本研究では、ユーザのテレビ視聴時の行動を認識し、視聴映像のコンテンツ情報を利用することで個人的選好に関する情報を自動的に獲得するシステムを提案する。テレビ視聴時には、視聴映像に対する興味の度合いによって視聴者の行動は変化すると考えられる。そこで、まずは一般的に視聴者がテレビ視聴時に起こし得る行動について心理学的理論に基づいて検討する。提案システムでは、ユーザがテレビを視聴している環境をカメラとマイクを用いてセンシングし、得られた画像と音声进行处理することでユーザのテレビ視聴行動を認識する。認識する各視聴行動には、視聴映像に対するユーザの興味の度合いを示す値を設定しておく。ある行動を起こした場合に、その瞬間に流れている映像のコンテンツ情報を参照することで、ユーザが視聴映像中の何に対してどの程度興味を示したか、あるいは示さなかったかを推定する。検討した視聴行動の中から個人的選好の推定に有効であると考えられるいくつかの視聴行動に絞り、それらの行動を認識する試作システムを実装し、視聴者の視聴映像に対する興味区間を推定する実験を実施した。また、テレビ視聴時の行動と人間の感情や心理状態との関係を検証する実験も行った。興味区間の推定実験では、5人中4人の被験者については比較的うまく興味区間を推定することができた。しかし、残りの1人については、試作システムの認識する視聴行動のみからはうまく推定することができず、認識する視聴行動の追加が必要であることを確認した。視聴行動の検証実験では、より正確に個人的選好を推定するためには表情や細かい姿勢の変化などを認識することが有効であるという知見を得た。

[原著論文]

Rolling and Swaying Motion Estimation for Mobile Robot by using Omnidirectional Optical Flows, Y. Yagi, W. Nishi, N. Benson, M. Yachida, International Journal of Machine Vision and Applications, 14[2] (2003) 112-120.

Superresolution Modeling Using an Omnidirectional Image Sensor, H. Nagahara, Y. Yagi, M. Yachida, IEEE Transactions on Systems, Man, and Cybernetics, Part B: Cybernetics, 33[4] (2003) 607-615

視点依存の微小面を用いた複雑な表面形状をもつ物体の表示手法, 山崎 俊太郎, 佐川 立昌, 川崎 洋, 池内 克史, 坂内 正夫, 電子情報通信学会論文誌, J86-DII [10], (2003) 1441-1449

[国際会議]

Contents Description Language ``NWCDL" for Integrating Web Contents with Navigation, *K. Nakaminami, F. Shibata, N. Babaguchi, the 6th SANKEN(ISIR) International Symposium, Osaka, Japan, Mar. 10-11, 2003.

Wide Field of View Head Mounted Display for Tele-presence with An Omnidirectional Image Sensor, *H. Nagahara, Y. Yagi, M. Yachida, Workshop on Omnidirectional Vision and Camera Networks, Madison Wisconsin, USA, Jun. 21, 2003.

Parallel Alignment of a Large Number of Range Images, *T. Oishi, R. Sagawa, A. Nakazawa, R. Kurazume, K. Ikeuchi, 3DIM 2003, Banff, Alberta, Canada, Oct. 6-10, 2003.

Iconic Memory-based Omnidirectional Route Panorama Navigation, *Y. Yagi, K. Imai, M. Yachida, IEEE International Conference on Robotics and Automation, pp.564-570, Taipei, Taiwan, Sep. 16-18, 2003.

Wide Field of View Catadioptrical Head-Mounted Display, *H. Nagahara, Y. Yagi, M. Yachida, In IEEE/RSJ International Conference on Intelligent Robots and Systems, Las Vegas, Nevada, U.S.A., Oct. 27-31, 2003.

Super Wide View Tele-operation System, *H. Nagahara, Y. Yagi, H. Kitamura, M. Yachida, IEEE Conference on Multisensor Fusion and Integration for Intelligent Systems, Tokyo, Japan, Jul. 30-Aug. 1, 2003.

Super-resolution Modeling, *H. Nagahara, Y. Yagi, M. Yachida, IEEE Conference on Multisensor Fusion and Integration for Intelligent Systems, Tokyo, Japan, Jul. 30- Aug. 1, 2003

Walking Person Identification Dealing With Resolution and Appearance Changes, *Y. Ohara, R. Sagawa, T. Echigo, Y. Yagi, SANKEN International Workshop on Intelligent Systems, Dec. 17, 2003.

Super Wide Viewer Using Catadioptrical Optics, *H. Nagahara, Y. Yagi, M. Yachida, 10th ACM Symposium on Virtual Reality Software and Technology, Osaka, Japan, Oct. 1-3, 2003.

Real-time Human Feature Acquisition and Human Tracking by Omnidirectional Image Sensor, T. Mituyosi, *Y. Yagi, M. Yachida, IEEE Conference on Multisensor Fusion and Integration for Intelligent Systems, Tokyo, Japan, Jul. 30- Aug. 1, 2003.

Taking Consensus of Signed Distance Field for Complementing Unobservable Surface, *R. Sagawa, K. Ikeuchi, 3DIM 2003, Banff, Alberta, Canada, Oct. 6-10, 2003.

Effective Nearest Neighbor Search for Aligning and Merging Range Images, *R. Sagawa, T. Masuda, K. Ikeuchi, 3DIM 2003, Banff, Alberta, Canada, Oct. 6-10, 2003.

[国際会議の組織委員 , 外国雑誌の編集委員]

- 八木 康史 OMNIVIS'04 The fifth Workshop on Omnidirectional Vision, Camera Networks and Non-classical cameras (プログラム委員)
- 八木 康史 10th ACM Symposium on Virtual Reality Software and Technology (プログラム委員)
- 八木 康史 Omnivis 2003: Omnidirectional Vision and Camera Networks 2003 (副委員長)
- 八木 康史 the International Journal of Automation and Computing (編集委員)

[国内学会]

情報処理学会

1 件

[取得学位]

修士(工学)

中南 和宏 コンテンツ記述言語 NWCDL を用いた実空間と Web 空間のシームレスな統合の実現
 藤本 喜彦 全方位視覚センサによる店舗内の顧客の行動解析
 八尾 智幸 テレビ視聴行動からの個人的選好獲得システムの提案と構築

[科学研究費補助金]

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

基盤研究 (B) (2)

八木 康史 タスク指向型全方位視覚センサに関する基礎研究 4,800

特定領域研究(2)

八木 康史 人間の行動観察のためのセンシングシステムの構築 5,100

[その他の競争的研究資金]

八木 康史 戦略的研究拠点育成プログラム 全方位ビジョンで見張り番 6,400
 ラム阪大フロンティア研究
 機構戦略的研究テーマ

八木 康史 JST 大学発ベンチャー創出 全方位ビジョンを用いた医療技術の開発 29,000
 事業

知能アーキテクチャー研究分野

教授	沼尾 正行
助教授	柏原 昭博 (1 1 月 3 0 日まで)
助手	稲葉 晶子 (9 月 3 0 日まで)
研究員	Sukree Sinthupinyo (8 月 1 日から)
大学院学生	Roberto Legaspi、小西 信宏、清水 健二
特別研究生	Cholwich Nattee、城 敦、高田 哲生
研究生	福井 健一

a) 概要

パソコンを初めとする情報環境が普及するにつれて、インタフェースの悪さに起因するテクノストレスや、スパムメール、多量データによる情報洪水の問題に社会の関心が集まっている。本研究部門では、これらの原因がコンピュータシステムの柔軟性の欠如にあることを早くから指摘し、その対策として適応能力を持ったコンピュータの開発を提唱してきた。心理実験と高度な機械学習技術の組合せにより、こうした課題の克服を目指している。具体的な研究課題は、以下の通りである。

【研究課題】

- 1 . 構成的適応インタフェース
- 2 . Web-based Learning 支援環境
- 3 . 協調学習設計支援

b) 成果

・構成的適応インタフェース

基本的な研究テーマとして、学習機能を持ったコンピュータの開発を進めており、高効率化のためのアルゴリズム、学習のための背景知識の獲得、ITS (Intelligent Tutoring System) への応用など、数々の新技術を開発し、情報環境の整備を支援してきている。これらは、適応ユーザインタフェースの技術として定着しつつある。これまでの適応ユーザインタフェースは、あらかじめ用意されている反応の中から過去のユーザの振る舞いに適応して、適切な反応を選択するものであった。これだけでも現在の複雑で扱いにくいユーザインタフェース、たとえばナビゲーションシステムなどを相当に改良できる。しかし、人間の知性や創造性を刺激するには、不十分である。そこで適切な反応を選択するだけでなく、新たなコンテンツを構成する手法の研究を行っている。その技術を背景として、極めてユニークな研究テーマとして、感性獲得機構を提案し、ユーザの個性と感情に適応して自動作曲を行うシステムを開発した。

・Web-based Learning 支援環境

Web は、従来の学習・教育環境では困難であった学習活動を可能とするプラットフォームとして注目を集めている。Web の特徴を活かした主要な学習活動として、(a) 既存の学習向けコンテンツ (学習リソース) の活用、(b) 情報発信による自己表現と知識共有、(c) 自発的な学習コミュニティの形成、などをあげることができる。いずれの学習活動においても、学習者の主体性が大きいほど高い効果を期待することができる。本研究では、この中でも (a) を取り上げ、主体的学習を効果的に支援する環境について検討している。本年度は、特に学習リソースが提供するハイパー空間での主体的・構成的学習の難しさに着目して、ハイパー空間におけるメタ認知支援に関する検討を行った。

(1) 適応的ナビゲーションプランニング支援

Web における既存の学習リソースは、通常複数の Web ページとページ間を連結するリンクからなるハイパー空間を学習者に提供する。学習者は、この空間内をナビゲーションしながら、学ぶべきページお

よびその順序(ナビゲーションパス)を主体的に決め、学習リソースが提供する学習内容を順次理解していくことができる。しかしながら、ページ内容の理解に加えて、そのメタ認知的活動として、ナビゲーションパスの見通しを立てる(ナビゲーションプランニング)ことを同時並行的に行う必要がある。しかしながら、ハイパー空間が複雑すぎたり、ページ内容の理解に注意が奪われると、モニタリングを維持・継続することは容易ではなくなり、しばしばナビゲーションに行き詰まりが生じる。そこで、本研究では、ハイパー空間での学習を、ページ内容の理解とナビゲーションプランニングに明確に区別し、プランニングの文脈に合わせてナビゲーションパスのプレビューを与える手法について検討した。本支援では、ページプレビューによる適応的なページコンテンツの概要表示機能、パスプレビューによる学習パス表示機能、マップによるハイパー空間の構造表示機能を実現した。これらの機能によって、学習者はナビゲーションプランニングに注意を向けることができ、またナビゲーション過程の見通しが良くなるためナビゲーション効率の向上が期待できる。

(2) 適応的リフレクション支援

ハイパー空間では、主体的に学ぶべきページおよびナビゲーションパスを決め、訪れたページごとに学んだ内容を関係づけて知識を構成していくことができる。しかしながら、ナビゲーションが進むにつれて、何を・何故探究してきたのかが不明瞭になり、知識の積み上げに失敗することがしばしば起こる。そこで、本研究では、ハイパー空間において学習者が得てきた知識のリフレクションを支援するために Adaptive Postviewer、ナビゲーションプロセス履歴(インタラクティブヒストリーによって生成される履歴)比較メカニズム、および知識外化環境を開発した。Adaptive Postviewerでは、これまでに開発してきたインタラクティブヒストリーによって生成されるナビゲーションプロセス履歴および知識マップをベースに、学習者が訪問した Web ページで学んだコンテンツを推定・表示する。特に、ナビゲーション文脈に対して適応的に学んだ内容を同定することができるようになっている。さらに、本研究では、リフレクションへの動機付けを与えるために、他の学習者のナビゲーションプロセス履歴との比較を行う機能、および知識マップを学習者自身に書かせる知識外化環境に関する検討も行った。

・協調学習設計支援

複数の学習者が協力して問題解決を行う協調学習は、社会的文脈の中での現実的な学習として注目を集めている。ネットワークの進展により、コンピュータを介した協調学習が可能となり、協調学習環境の設計、学習過程のモニタ、結果の分析・評価等において、コンピュータによる有益な支援が求められている。本研究においては、学習者の目的達成のために効果的な協調学習環境とその構成原理、分析や評価のためのインタラクションのモデルを明らかにし、それらに基づく協調学習の設計と施行、分析のトータルな支援を目的とする。そのために、教育学、心理学、認知科学、社会学等幅広い研究領域に散在する知見(学習理論と呼ぶ)を収集し、それらを表現するための共通の記述様式を提案した。これにより、理論を意識することなく目的指向で効果的な協調学習環境を設計することが可能になる。本年度は、視覚的・直感的なインタフェースを通じて協調学習過程を設計するツールを開発し、複数の学習者の目的や参加条件、学習内容、インタラクション等を段階的に設計し、実行することを可能にした。さらに、学習者間のインタラクションについても視覚的に表現し、設計者の意図との相違を認識することを支援するツールを開発した。

[原著論文]

ハイパー空間における主体的学習プロセスのリフレクション支援, 柏原昭博, 坂本雅直, 長谷川忍, 豊田順一: 人工知能学会論文誌, 18 [5] (2003) 245-256.

ハイパー空間における構成的学習のための知識外化支援環境, 長谷川忍, 柏原 昭博, 鈴木涼太郎, 豊田順一: 教育システム情報学会誌, 20 [2](2003) 106-118.

協調学習におけるインタラクション分析支援システム, 稲葉晶子, 大久保亮二, 池田満,

溝口理一郎： 情報処理学会論文誌, 44[11] (2003) 2617-2627.

e-Learning Library with Local Indexing and Adaptive Navigation Support for Web-based Learning, S. Hasegawa, A. Kashihara, and J. Toyoda: Journal of Educational Multimedia and Hypermedia, AACE 12 [1] (2003), 91-111.

A Local Indexing for Learning Resources on WWW, S. Hasegawa, A. Kashihara, and J. Toyoda: Systems and Computers in Japan, 34 [3] (2003), 1-9.

[国際会議]

Self-evaluated Learning Agent in Multiple State Games, *K. Moriyama, and M. Numao, European Conference on Machine Learning 2003, Cavtat-Dubrovnik, Croatia, Sep. 22-26, 2003.

Mining Chemical Compound Structure Data Using Inductive Logic Programming, *C. Nattee, S. Sinthupinyo, M. Numao, and T. Okada, Second International Workshop on Active Mining, Maebashi, Japan, Oct. 28, 2003.

Relational Mining for Temporal Medical Data, *R. Ichise and M. Numao, The Second IASTED International Conference on Information and Knowledge Sharing (IKS2003), Scottsdale, AZ, USA, Nov. 17-19, 2003.

Discovery of Temporal Relationships using Graph Structures, *R. Ichise and M. Numao, The Second International Workshop on Active Mining, Maebashi, Japan, Oct. 28, 2003.

Towards Designing Meta-Navigation Space for Self-directed Learning on the Web, *N. Konishi, A. Kashihara, and M. Numao, International Conference on Computers in Education 2003, Hong Kong, Dec. 2-5, 2003.

Designing Intelligent Self-Directed Learning Platform on the Web, *A. Kashihara, and S. Hasegawa, 11th International Conference on Artificial Intelligence in Education, Sydney, Australia, Jul. 20-24, 2003.

LearningBench: A Self-Directed Learning Environment on the Web, *A. Kashihara, and S. Hasegawa, World Conference on Educational Multimedia, Hypermedia & Telecommunications 2003, Honolulu, Hawaii, USA, Jun. 23-28, 2003.

A Digital Repository of Navigational Learning Histories on the Web, *A. Kashihara, S. Yoshimoto, S. Hasegawa, and J. Toyoda, Telecommunications+Education Workshop in 10th International Conference on Telecommunications, Papeete, Tahiti, French Polynesia, Mar. 1, 2003.

Learning Goals and Design Rationales in Collaborative Learning - An Ontological Approach to Support Design of Collaborative Learning, *A. Inaba, M. Ikeda and R. Mizoguchi, International Symposium of the Institute of Scientific and Industrial Research (ISIR Symposium), Osaka, Japan, Mar. 10-11, 2003

Modeling Learner-To-Learner Interaction Process in Collaborative Learning - An Ontological

Approach to Interaction Analysis, *A. Inaba, R. Ohkubo, M. Ikeda and R. Mizoguchi, International Conference on Computer Support for Collaborative Learning (CSCL2003), Bergen, Norway, Jun. 14-18, 2003

How Do Computers Help a Learner to Master Self-regulation Skill?, *M. Kayashima and A. Inaba, International Conference on Computer Support for Collaborative Learning (CSCL2003), Bergen, Norway, Jun. 14-18, 2003.

What Learning Patterns Are Effective for a Learner's Growth? - An ontological support for designing collaborative learning, *A. Inaba, M. Ikeda and R. Mizoguchi, International Conference on Artificial Intelligence in Education (AIED2003), Sydney, Australia, Jul. 20-24, 2003.

Towards Helping Learners Master Self-Regulation Skills, *M. Kayashima and A. Inaba, International Conference on Artificial Intelligence in Education (AIED2003), Sydney, Australia, Jul. 20-24, 2003.

Difficulties in Mastering Self-Regulation Skill and Supporting Methodologies, *M. Kayashima and A. Inaba, International Conference on Artificial Intelligence in Education (AIED2003), Sydney, Australia, Jul. 20-24, 2003.

Models and Vocabulary to Represent Learner-to-Learner Interaction Process in Collaborative Learning, *A. Inaba, R. Ohkubo, M. Ikeda and R. Mizoguchi, International Conference on Computers in Education (ICCE2003), Wanchai, HongKong, Dec. 2-5, 2003.

The Model of Metacognitive Skill and How to Facilitate Development of the Skill, *M. Kayashima, and A. Inaba, International Conference on Computers in Education (ICCE03), Wanchai, Hong Kong, Dec. 2-5, 2003.

[国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員]

- | | |
|-------|--|
| 沼尾 正行 | New Generation Computing (エリアエディター) |
| 沼尾 正行 | 6th Annual Symposium on Japanese-American Frontiers of Science (プランニング・グループ・メンバー) |
| 沼尾 正行 | The 3rd International Joint Conference on Autonomous Agents and Multi Agent Systems (プログラム委員) |
| 沼尾 正行 | 14th International Symposium on Methodologies for Intelligent Systems (プログラム委員) |
| 沼尾 正行 | The 8th Pacific Rim International Conference on Artificial Intelligence (プログラム委員) |
| 沼尾 正行 | The IEEE/WIC/ACM International Conference on Web Intelligence/Intelligent Agent Technology (プログラム委員) |
| 柏原 昭博 | Journal of International Forum of Educational Technology&Society (編集委員) |
| 柏原 昭博 | ED-MEDIA 2003 (World Conference on Educational Multimedia, Hypermedia & Telecommunications) (プログラム委員) |
| 柏原 昭博 | e-Society 2003 IADIS (International Association for Development of the Information Society) International Conference (プログラム委員) |

[国内学会]

人工知能学会	9 件
情報処理学会	5 件
教育システム情報学会	3 件
電子情報通信学会	6 件

[取得学位]

博士(工学)

Nattee	Learning First-order Rules from Multiple-part Data
Cholwich	

修士(工学)

小西 信宏	Web 教材におけるメタ空間の設計
城 敦	データマイニングのための前処理プランニング
高田 哲生	感性獲得機構のためのサンプリング手法

[科学研究費補助金]

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

特定領域研究(2)

沼尾 正行	多段階学習方式によるデータ収集と前処理の自動化	8,400
稲葉 晶子	インストラクショナルデザインのための「先人の知」リポジトリの構築	3,200

基盤研究(B)(2)

沼尾 正行	データマイニングにおけるデータ収集過程の見習い獲得手法	3,100
-------	-----------------------------	-------

基盤研究(C)(2)

柏原 昭博	ハイパー空間における学習プロセスの自己モニタリング支援に関する研究	1,700
-------	-----------------------------------	-------

若手研究(B)

稲葉 晶子	協調学習におけるインタラクションのモデル化	1,700
-------	-----------------------	-------

高次推論方式研究分野

教授	元田 浩
助教授	鷲尾 隆
助手	吉田 哲也、大原 剛三
博士研究員	Chien Phu Nguyen
大学院学生	猪口 明博、足立 史宜、Warodom Geamsakul、藤本 敦
学部学生	光永 悠紀、茂木 明
事務補佐員	小八木 香奈

a) 概要

推論能力は人間の知的活動の基本である。人間は外在する事実、過去の知見、経験を知識として内的資源に取り込み、推論や学習により新たなものを創造する。しかし、人間の情報処理能力には認知的・生理的な限界がある。そのため少量のデータであれば意味理解などの高度な知的処理が可能であるが、非常に大量のデータから短時間に有意な情報を汲み取ることは不可能に近い。当分野では、一般的な数学的制約や統計的組み合わせ探索機構を用いて、大量データが示す規則性を知識として効率よく発見する手法の研究を行なっている。今年度は専門家とデータからの知識獲得に関する研究、グラフ構造データからの知識発見に関する研究、多様なデータ形式を対象とする検索手法に関する研究、数値データからの時間依存法則式の発見に関する研究、数値属性を有するデータに対する相関規則の導出に関する研究に関し、以下の成果を得た。

b) 成果

・専門家とデータからの知識獲得に関する研究

一般に、自分が問題解決に使った知識を明示的に記述することは難しいが、具体的な事例に関し、その正当性や非正当性を的確に指摘することは容易である。人間のこのような認知的な特徴を活かした知識獲得法にリップルダウンルール法(RDR)がある。この手法は知識ベースを逐次的に構築する方法で、知識の追加によって新しい問題が解けるようになると同時に、新たな知識の追加によって前に正しく解けた問題が解けなくなるということがないことを保証する。この手法の有効性を高めるため、昨年度までに、以下の主要成果を得ている。

- 1) すべての知識を使っても答えが出ない場合に使うデフォルト知識に何を選定すべきかについて、最小記述量最大化の原理を提案し、これが種々の知識ベースの構築に有効であることを確認した。
- 2) 環境変化によって正しくなくなった知識を、知識ベースから効果的に削除する手法について検討し、知識の正しさが刻々変化する動的環境下においても、RDR が知識獲得の有用な手段であることを確認した。
- 3) 専門家からの知識獲得に加え、多量に蓄積されるデータからの知識獲得手法をも利用可能なように、性質の違う知識獲得法を統合化する手法を新たに開発した。これにより、異種の知識源からの効果的な知識獲得が可能となった。
- 4) データが来るのを受動的に待つだけでなく、積極的に RDR の方から専門家に質問する機能を追加し、知識獲得の効率化を一層促進する手法を検討し、専門家には生成された事例に対する RDR の判断の是非のみを依頼するだけで自動的に知識ベースに知識を追加する手法を提案した。精度評価を実施した結果、専門家が直接知識ベースに知識を追加する場合と同等の予測精度が得られることを確認した。
- 5) 環境変化への対応と人間の専門家とデータの両方からの逐次的な知識獲得を統合した解析を実施し、より現実的な状況へ適用可能であることを実証した。
- 6) 不要な知識の削除機能に加え、汎化能力の向上のための知識の枝刈り機能を追加し、多くのデータで、性能を検証した。

本年度は知識源の変更、環境変化への対応の多様な組み合わせに対し、専門家とデータの両方からの知識獲得が可能な場合に、専門家を完全に信用する場合と専門家の知識をデータから得られる情報で修正する場合の効果を比較検討し、後者の方が一般的に良好な性能が得られることを確認した。これで本研究は一段落したものと考える。

・グラフ構造データからの知識発見に関する研究

近年、データ発掘に関して多くの研究があるが、多くは通常の関係データベースを念頭においたものである。複雑なデータ構造に対しても有効な手法はなく、当研究室では、数年前から、一般の知識や概念はグラフ構造で記述できることに注目し、グラフ構造データからの知識発見を種々の観点から試みている。グラフ構造の共起相関に関する厳密解を求める問題は、数学的に非多項式時間でしか解けない難解なものであることが分かっている難しい問題である。昨年度までの成果を以下に要約する。

- 1) 有向グラフ中に頻繁に現われる特徴的なパターンを隣接する2つのノードを逐次チャンクすることによって発見するグラフに基づく帰納推論 GBI を提唱して来た。この手法を、有向グラフの根ノードを予測するための分離規則の発見が可能なように拡張し、ユーザインターフェイスの一機能であるコマンド予測とWWWサイトのブラウジングログデータ中に頻繁に現われるブラウジングパターンの発見に適用し、良好な結果を得ている。この手法は過剰学習を避けるため枝刈り機能も有している。
- 2) 記号間の共起相関関係を分析するバスケット分析手法のデータ前処理を工夫することによってサブグラフノードの共起相関関係を分析する手法を開発した。この手法はよく知られている Apriori アルゴリズムに何ら変更を加えることなくグラフ構造データを扱う簡便な手法であるが、各ノードにはそれぞれ別のラベル付けが必要との強い制約がある。
- 3) グラフを隣接行列で表現し、同型なグラフを正準形に変換するアルゴリズムを考案することにより、上の制約を取り除き、さらに非連結誘導部分グラフ間の共起相関を扱うことができるようにした、新たな手法 AGM を開発した。この手法は、ノードやリンクがラベルを有し自己ループリンクも含むようなもっとも汎用な有向、無向グラフを扱うことができ、かつ GBI のような近似解を求めるのではなく、厳密解を効率よく探索することができる。
- 4) GBI の汎用性をさらに高めるため、各ノードが多入力多出力で、ループ（自己ループも含む）構造を許す任意のグラフ構造中の特徴パターンを発見できるよう手法を拡張し、人工データで手法の妥当性を確認した。逐次チャンクは近似解法であるため、最適解を保証しないが、グラフの大きさにほぼ比例した計算時間で処理できる特徴がある。
- 5) AGM のさらなる高速化を図るため、グラフを計算機内部で表現する際のコード表現の拡張、正準形の定義の変更、探索手法の改良など、データ構造やアルゴリズム上の無駄を省く改良を行い、計算速度を数十倍から数百倍に向上させた。実際、これまでの AGM では発ガン性や変異原性を有する化学物質の構造式グラフの分析に膨大な計算時間を費やしていたが、この改良によりある程度実用レベルの時間で処理を行うことができるようになった。
- 6) GBI の利点を損なうことなく、さらなる性能向上を図るため、チャンキングに用いる指標と更新されたグラフから部分構造を取り出す指標を区別し、非単調性に関する問題を克服した。また、履歴が違うチャンキングの同型性判定を AGM と同様、正準形を用い厳密に評価するようにした。これにより無向グラフ、有向きグラフの取扱上の区別を不要にした。さらに、探索にビーム法を採用することにより探索空間を拡大し、重要なパターンの探索もれを減少させた。
- 7) GBI を肝炎データ解析に適用し、前処理、グラフへの変換、特徴部分グラフの抽出、専門医による評価のサイクルを繰り返し、その中で、チャンキングの方向にバイアスをかけるなど、現場での解析から生じたニーズを組み上げ、手法をさらに改良した。
- 8) GBI を決定木の各ノードの属性構築に再帰的に使用する、グラフ構造データ向きの決定木構築法 (DT-GBI) を提案し、肝炎データの予備解析を実施した。
- 9) AGM 内部の基本的グラフ表現である隣接行列の要素を、グラフのエッジのラベルを陽に表現可能な

ように拡張を行った。これによって、グラフノードのみでなくグラフエッジに多様なラベルが付いたグラフの多頻度パターンマイニングを一般的枠組みで高速かつ完全に行うことが可能となった。

- 10) AGM が多頻度グラフ候補を探索する際に用いる結合探索において、バイアスと呼ぶ制約を加えることによって、誘導部分グラフのみならず、一般部分グラフ及び連結部分グラフの多頻度パターンもマイニング可能な AcGM を開発した。特に連結部分グラフのマイニングは非常に高速な探索を可能にし、実用上のニーズも高い多くの化学物質の生理活性相関解析に適用して有用な成果を得た。
- 11) AGM の上記バイアスをさらに拡張し、部分グラフのみならず、部分順序木、部分非順序木、部分経路、部分系列などの多頻度パターンマイニングが可能な B-AGM を開発した。これにより、AGM の適用領域が飛躍的に拡大した。
- 12) AGM をグラフの各ノードの3次元座標を反映した多頻度立体部分グラフ構造を完全探索できるよう拡張した。これにより、3次元分子構造と物性の相関関係などの解析が可能となった。

本年度は DT-GBI を用いて本格的な肝炎データ解析を実施した。生検データを用いず、安価で患者に苦痛を与えない血液検査結果だけから肝硬変の程度が予測できるかどうか、B型肝炎かC型肝炎かの判定が可能であるか、インターフェロンが効くか効かないかの予測が可能であるかどうかを検討した。また、この過程で部分グラフ同型問題を近似的に解くアルゴリズムを提案した。一方、上記 AcGM 及び B-AGM のアルゴリズムを改良し、一層高速なデータマイニングが可能ないように改良した。これにより世界最速級のデータマイニングツールを得た。更に AcGM をオープンフリーソフトとして公開し、社会的成果還元を行った。また、複雑なグラフ構造データを柔軟に表現可能な XML 表現言語のサブセット規格である PMML (Predictive Model Markup Language) の標準規格を提案した。現状の各種グラフマイニングツールは、それぞれ固有のグラフ表現を用いており、データや結果共有が困難であった。しかし、この標準規格の提案により、多くのツールやシステムを結合した強力なグラフマイニング環境の実現が可能となった。

・多様なデータ形式を対象とする検索手法に関する研究

近年の情報革命の中で、計算機内やインターネットにはテキスト文書ばかりでなく、映像や音声、暗号化データ、各アプリケーションプログラムに特化したデータなど、多種多様な形式の膨大なデータが蓄積されるようになってきている。この状況の中で、サーチエンジンに代表されるデータ検索システムの多くは、未だに単語キーワードをベースにしたテキスト文書の検索に留まっている。映像や音声など、個々のデータ形式に特化した検索手法も提案されているが、日々生まれる新たなデータ形式に検索手法の開発が追いつけない状態が続いている。当研究室では、昨年度からテキスト文書に限らず多様なデータを対象に、指定した条件に近いデータファイルを検索する汎用検索手法を開発している。昨年度は以下の成果を得ている。

- 1) 検索対象情報にある種の変換を施すことにより、多様なデータ形式について同じ原理で検索を実行できる枠組みを開発した。
- 2) 上記変換としては、検索対象情報のバイト列のある程度の変形に関して変換結果が影響を受けにくい、変換不変性を有する数学的変換として高速フーリエ変換を適用した。
- 3) この検索原理を、テキストデータファイルを検索対象とするキーワード検索のみならず、バイナリーデータ変換されたワードプロセッサファイルに対する検索にも適用し、良好な検索性能を確認した。
- 4) データ検証範囲をより多種類のバイナリーデータ文書ファイルに広げると共に、検索プログラムの更なる高速化改良を行った。類似する数理変換結果を有する部分の冗長な検索を極力省くアルゴリズムを実装することにより検索速度の1桁向上が得られ、実用性を確保できた。
- 5) 画像など2次元バイナリーデータに関しても同様な原理による検索を行えるように、プログラムの一部を拡張した。本来、汎用な検索手法であるためプログラムの一部の拡張だけで容易に2次元バイナリーデータの検索を良好な性能で実行可能であることを確認した。

今年度は、上記手法の実用化研究として、大量の不定形文章として送りつけられてくるスパムメール

のみを膨大なメールデータから検索し、除去する応用手法の開発実装を産学共同として行った。

・ 数値データからの時間依存法則式の発見に関する研究

観測値として得られる大量の数値データからデータ間の関係を支配する第一原理法則を、対象領域に依存しない数学的知識のみを用いて発見する方法を追求している。昨年までに、以下の主要成果を得ている。

- 1) 測定量の尺度の性質や恒等性に関する制約を用いて測定データ間に許される関係式を一般的に求めることに成功し、幾つかの重要な定理を証明し、これに基づき表現された関係式の範囲の中から実験操作可能な系について実際に得られた観測データを説明できる具体的な関係式を求めるアルゴリズムを開発し、それを実装した科学的知識発見システムを構築した。
- 2) 実験操作系ではなく受動的な観測しか許されない系に関しても第一原理法則式を発見可能な手法を確立している。
- 3) 同一現象に関する異なる数量の観測データと各観測数量が有するスケールタイプの情報から、より信憑性の高い法則式を求める手法の開発を行った。
- 4) 受動的な観測しか許されない場合に、観測データから連立方程式で表される複雑な法則式モデルを発見する手法の開発を行った。連立方程式の制約構造が有する数学的不変性、対称性、束構造を明らかにし、データだけから対象が何本の方程式で表され、かつ何れの数量が何れの方程式に現れるかを知ることのできる原理を確立した。その原理に基づいて、計算機が自動的にデータから連立方程式法則モデルを導くアルゴリズムの確立、実装を行った。そして、プロセスプラントや社会現象から得られるデータを用いて、実際に正しいモデルを発見できる能力を確認した。

以上の研究は、すべて時間情報を含まない瞬間的な対象状態に成立する法則式の発見手法である。これに対して、今年度は時系列観測データなど対象の時間依存ダイナミクス情報を含むデータから、それを支配する法則式として満たすべき数学的制約に従う微分方程式を発見する手法の開発に取り組んだ。微分法則方程式の条件、その探索原理の検討を行い、原理的見通しを得た。

・ 数値属性を有するデータに対する相関規則の導出に関する研究

従来、記号属性のみからなるデータ中で共起する記号組合せパターンやそれら相互の生起関係を表す相関規則を効率的かつ完全に探索する手法として、バスケット分析が用いられている。しかしながら、現実の多くのデータは記号属性に留まらず数値属性データやその記号属性との混合によって構成されている。そのため、数値属性も含めてデータ中で共起する組合せパターンやそれら相互の生起関係を表す相関規則を効率的かつ完全に探索できれば、バスケット分析の適用範囲は飛躍的に拡大し、かつそこから多くの実際的成果が得られると期待される。この問題に関連するものとして、昨年度までに以下の成果を得ている。

- 1) 数値属性の値を離散化して記号属性とする前処理を施し、データ全体を記号属性データのみからなるものに変換し、それに従来のバスケット分析を適用する。この前処理の開発によって、数値属性が含まれるデータに関しても、一定の粗さの下でデータ中で共起する組合せパターンやそれらの相関規則を導出できることを確認した。

しかしながら、数値属性を前処理で離散化することによって、数値本来が持つ詳細な情報が本解析の前に粗視化されてしまい、解析精度の低下や本来存在するはずの相関規則を見逃してしまうという問題点があった。そこで、今年度は数値属性を離散化せずに、そのまま数値属性データの共起関係を探索可能なようにバスケット分析手法そのものを拡張する原理の検討を行い、その実現可能性について見通しを得た。

[原著論文]

データマイニングとそのBiomedical Engineeringへの適用, 鷲尾 隆, 金 智隆, 北風政史: 日本エム・イー学会誌, 生体工学, 41[Supp1.1] (2003) 32.

医療情報に対する新しいデータ解析手法の適用, 金 智隆, 磯村 正, 鷲尾 隆, 北風政史, 日本エム・イー学会誌, 生体工学, 41[Supp1.1] (2003) 35.

Complete Mining of Frequent Patterns from Graphs: Mining Graph Data, A. Inokuchi, T. Washio and H. Motoda: Machine Learning, 50 [3] (2003) 321-354.

A G Mアルゴリズムの高速化と立体構造解析への適用, 西村芳男, 鷲尾隆, 吉田哲也, 元田 浩, 猪口明博, 岡田 孝: 人工知能学会論文誌, 18 [5C] (2003) 257-268.

[解説、総説]

State of the Art of Graph-based Data Mining, T. Washio and H. Motoda: SIGKDD Explorations, 5 [1] (2003) 59-68.

MUSASHIでらくらくデータマイニング, 羽室行信, 加藤直樹, 矢田勝俊, 鷲尾 隆 : Software Design 2003年10月号, (2003) 83-91.

[著書]

「知識マネジメント」(大澤幸生 編著) 鷲尾 隆, オーム社, (2003) 77-84, 117-125.

[国際会議]

Active Feature Selection Using Classes, H. Liu, L. Yu, D. Manoranjan and *H. Motoda, The 7th Pacific-Asia Conference on Knowledge Discovery and Data Mining (PAKDD2003), Seoul, Korea, Apr. 30-May 2, 2003.

Classifier Construction by Graph-Based Induction for Graph-Structured Data, *W. Geamsakul, T. Matsuda, T. Yoshida, H. Motoda and T. Washio, The 7th Pacific-Asia Conference on Knowledge Discovery and Data Mining (PAKDD2003), Seoul, Korea, Apr. 30-May 2, 2003.

On Personalizing Video Portal System with Metadata, *K. Ohara, T. Ogura and N. Babaguchi, The 7th International Conference on Knowledge-Based Intelligent Information and Engineering Systems (KES2003), Oxford, UK, Sep. 3-5, 2003.

Constructing a Decision Tree for Graph Structured Data, W. Geamsakul, T. Matsuda, T. Yoshida, *H. Motoda and T. Washio, The First International Workshop on Mining Graphs, Trees and Sequences (MGTS-2003) in the 14th European Conference on Machine Learning (ECML'03) and the 7th European Conference on Principles and Practice of Knowledge Discovery in Databases (PKDD'03), Cavtat-Dubrovnik, Croatia, Sep. 23, 2003.

Specific Biases for Mining Frequent Substructures, A. Inokuchi, *T. Washio and H. Motoda, The First International Workshop on Mining Graphs, Trees and Sequences (MGTS-2003) in the 14th European Conference on Machine Learning (ECML'03) and the 7th European Conference on

Principles and Practice of Knowledge Discovery in Databases (PKDD'03), Cavtat-Dubrovnik, Croatia, Sep. 23, 2003.

Performance Evaluation of Decision Tree Graph-Based Induction, *W. Geamsakul, T. Matsuda, T. Yoshida, H. Motoda and T. Washio, The 6th International Conference on Discovery Science (DS2003), Sapporo, Japan, Oct. 17-19, 2003.

Development of Generic Search Method Based on Transformation Invariance, *F. Adachi, T. Washio, H. Motoda, A. Fujimoto and H. Hanafusa, The 14th International Symposium on Methodologies for Intelligent Systems (ISMIS03), Maebashi, Japan, Oct. 28-31, 2003.

Extracting Diagnostic Knowledge from Hepatitis Dataset by Decision Tree Graph-Based Induction, *W. Geamsakul, T. Yoshida, K. Ohara, H. Motoda and T. Washio, The 2nd International Workshop on Active Mining (AM2003), Maebashi, Japan, Oct. 28, 2003.

Data Mining Oriented CRM Systems Based on MUSASHI: C-MUSASHI, *K. Yada, Y. Hamuro, N. Katoh, T. Washio, I. Fusamoto, D. Fujishima and T. Ikeda, The 2nd International Workshop on Active Mining(AM2003), Maebashi, Japan, Oct. 28, 2003.

Effect of Personalization on Retrieval and Summarization of Sports Video, *N. Babaguchi, K. Ohara and T. Ogura, The 4th International Conference on Information, Communications & Signal Processing/4th IEEE Pacific-Rim Conference On Multimedia (ICICS-PCM03), Singapore, Dec. 15-18, 2003.

[国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員]

- 元田 浩 Intelligent Data Analysis: An International Journal (編集委員)
- 元田 浩 Advanced Engineering Informatics (編集委員)
- 元田 浩 International Journal of Human-Computer Studies (編集委員)
- 元田 浩 Knowledge and Information Systems: An International Journal (編集委員)
- 元田 浩 Discovery Science Conference (運営委員会委員長)
- 元田 浩 Pacific-Asia Conference on Knowledge Discovery & Data Mining (運営委員会委員長)
- 元田 浩 Pacific Rim International Conference on Artificial Intelligence (運営委員会委員)
- 元田 浩 First International Workshop on Data Mining Lessons Learned (組織委員長)
- 元田 浩 Fourth Pacific Rim Knowledge Acquisition for Knowledge-Based Systems Workshop: PKAW04 (名誉委員長)
- 元田 浩 International Workshop on Active Mining: AM-2003 (組織委員)
- 元田 浩 The 6th IFIP International Conference on Information Technology for BALANCED AUTOMATION SYSTEMS in Manufacturing and Services, Track D: Machine learning and data mining in industry (プログラム委員)
- 元田 浩 The 14th International Conference on Knowledge Engineering and Management - EKAW 2004 (プログラム委員)
- 元田 浩 The 15th European Conference on Machine Learning ECML (プログラム委員)
- 元田 浩 The 8th European Conference on Principles and Practice of Knowledge Discovery in Databases PKDD (プログラム委員)
- 元田 浩 The 16th European Conference on Artificial Intelligence, ECAI2004 (プログラム委員)
- 元田 浩 The 5th Pacific Rim Knowledge Acquisition for Knowledge-Based Systems Workshop: PKAW04,

- 2004 (プログラム委員)
- 元田 浩 The 8th Pacific-Asia Conference on Knowledge Discovery & Data Mining: PAKDD04 (プログラム委員)
- 元田 浩 The First International Workshop on Mining Graphs, Trees and Sequences (MGTS-2003) (プログラム委員)
- 元田 浩 The 2nd International Workshop on Multi Relational Data Mining (MRDM-2003) (プログラム委員)
- 元田 浩 The 2003 International Workshop on Data Mining for Software Engineering and Knowledge Engineering (DMSK'03) (プログラム委員)
- 元田 浩 The International Workshop on Foundation of Data Mining and Discovery (プログラム委員)
- 元田 浩 The 7th Pacific-Asia Conference on Knowledge Discovery & Data Mining (プログラム委員)
- 元田 浩 The 2003 IEEE International Conference on Data Mining (ICDM '03) (プログラム委員)
- 元田 浩 The 14th European Conference on Machine Learning (ECML-2003) (プログラム委員)
- 元田 浩 the 7th European Conference on Principles and Practice of Knowledge Discovery in Databases (PKDD-2003) (プログラム委員)
- 元田 浩 The 14th International Symposium for Methodology of Intelligent Systems: ISMIS2003, (プログラム委員)
- 鷺尾 隆 New Generation Computing (編集委員)
- 鷺尾 隆 The 2003 IEEE International Conference on Data Mining (ICDM03) (プログラム委員)
- 鷺尾 隆 Thirteenth International Workshop on Principles of Diagnosis (DX'03) (プログラム委員)
- 鷺尾 隆 Tenth International Conference on Machine Learning (ICML-2003) (プログラム委員)
- 鷺尾 隆 Web Intelligence Research and Development (Proc. of First Asia Pacific Conf., WI2003 (プログラム委員))
- 鷺尾 隆 Fifth International Conference on Data Warehousing and Knowledge Discovery (DaWaK 2003) (プログラム委員)
- 鷺尾 隆 First International Workshop on Mining Graphs, Trees and Sequences (MGTS-2003) In conjunction with 14th European Conference on Machine Learning (ECML'03) and 7th European Conference on Principles and Practice of Knowledge Discovery in Databases (PKDD'03) (ワークショップチェア)
- 吉田 哲也 International Workshop on Active Mining (AM-2003) (プログラム委員)
- 吉田 哲也 2003 IEEE/WIC International Conference on Web Intelligence (WI2003) (プログラム委員)
- 吉田 哲也 2003 International Conference on Active Media Technology (ICAMT2003) (プログラム委員)
- 吉田 哲也 International Symposium for Methodology of Intelligent Systems (ISMIS2003) (プログラム委員)

[国内学会]

人工知能学会	7 件
電子情報通信学会	4 件
日本エム・イー学会	2 件
日本情報処理学会	1 件

[取得学位]

博士 (工学)

猪口 明博 一般構造を有するパターンのマイニングに関する研究

修士（工学）

Warodom Decision Tree Graph-Based Induction を用いたグラフ構造データに対する決定木の
Geamsakul 構築

[科学研究費補助金]

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

特定領域研究

元田 浩 「情報洪水時代におけるアクティブマイニングの実現」の推進と評価 7,900
元田 浩 構造データからのアクティブマイニング 16,400

基盤研究（B）（2）

元田 浩 環境変化に追従する可塑性型知識獲得システムの開発 3,100

萌芽研究

鷲尾 隆 多様な形式データからの特徴抽出に基づく一元的検索手法の開発 900

若手研究（B）

吉田 哲也 ラベル付き・ラベル無しデータを統合的に活用する共学習システムの構築 1,600
方法に関する研究
大原 剛三 学習システムとユーザのインタラクションからの制約的知識獲得に関 1,600
する研究

生体応答科学研究部門

概要

生体応答科学研究部門は生体触媒科学、生体膜分子学、生体情報制御学の3つの研究分野によって構成されており、物質変換反応、情報受容と制御、エネルギー変換、膜輸送、遺伝子発現制御など生物にとって最も基本的な反応に注目し、いずれの分野の研究も生体膜やタンパク質に重点をおいている。研究対象は各種細菌、酵母、線虫、植物、哺乳動物と多岐にわたっており、生物の普遍的な理解と共に生物の多様性にも目を向けている。各分野は生化学、分子生物学、細胞生物学の手法を駆使してそれぞれの分担の研究を進めている。同時に、生物を対象とする当研究所の部門としての特色ある幅広い共同研究が行なわれようとしている。理学研究科（生物科学専攻）、工学研究科（応用生物学専攻）、薬学研究科（分子薬科学専攻）及び生命機能研究科から大学院学生を受け入れており、広い視野を持つ研究者の教育を目指している。

成果

- ・ 銅アミン酸化酵素反応における還元的半反応の立体化学的解析
- ・ キノヘムプロテイン・アミン脱水素酵素生成過程における鉄・イオウタンパク質の関与
- ・ トパキノン補酵素依存性銅アミン酸化酵素の触媒機構：還元的半反応中間体の構造解析
- ・ 神経軸索誘導関連タンパク質 FEZ の分子細胞生物学的研究
- ・ 神経軸索誘導関連タンパク質 FEZ1 ホモログ FEZ2 の構造と機能に関する研究
- ・ F-型、および V-型 ATPase におけるエネルギー共役機構（回転作動機構）
- ・ 酸性オルガネラの内部 pH の形成機構
- ・ 酸性オルガネラの形成機構と情報伝達における役割
- ・ 肺胞上皮、破骨細胞などの酸性オルガネラの果たす高次機能
- ・ 大腸菌主要異物排出トランスポーター AcrB の X 線結晶構造決定
- ・ 異物排出装置の作動機構解明に向けた AcrB の結晶構造に基づく系統的部位特異変異導入と解析
- ・ 大腸菌二成分情報伝達系レスポンスレギュレーターの強制発現ライブラリ構築と薬剤耐性制御機構の解析
- ・ Quorum sensing を中心とした異物排出蛋白質制御ネットワークの全貌解明
- ・ 新規 ABCA ファミリー遺伝子 ABCA5 ノックアウトマウスの解析
- ・ 血小板からのスフィンゴシン 1 リン酸排出機構の立証と、血小板特異的に発現する排出トランスポーターのクローニング
- ・ マウス新規 RND 型トランスポーターの探索とクローニング

生体触媒科学研究分野

教授	谷澤 克行
助教授	黒田 俊一
助手	立松 健司
学振特別研究員	鈴木 健二、Andrés D. Maturana
博士研究員 (COE)	邱 彦成 (2003.6 まで)
博士研究員 (受託)	山崎 智子 (2003.8 から)
研究支援員 (COE)	出射 真奈 (2003.5 から)
研究支援員 (JST)	長尾 節子 (2004.3 から)
大学院学生	北口 大輔、藤田 敏次、岩田 美紀、良元 伸男、小野 和利、朴井 伸行、 生田 潤子、村川 武志、岸上 健、臼井 将之
事務補佐員	村田 真由美

a) 概要

当研究分野では、広く生化学、分子生物学、細胞生物学などの立場から、生命現象を担う種々の生体機能分子の構造と機能の相関を分子レベルで解明することを目指して研究を行っている。物質代謝やエネルギー代謝を担う生体触媒“酵素”を対象として、活性部位構造や立体構造、触媒反応機構を明らかにするべく研究を展開している。特に、銅アミン酸化酵素のトパキノン補酵素をはじめとして、最近相次いで発見されているアミノ酸残基由来の新規な共有結合型補酵素（いわゆるペプチド・ビルトイン型補酵素）の構造と触媒機能、タンパク質翻訳後修飾による生合成機構の解明に力を注いでいる。一方では、細胞内情報伝達機構において中心的な役割を果たすプロテインキナーゼ群と相互作用する新規なタンパク質の同定とその構造と機能の解析を通じて、シグナル伝達分子の細胞内ネットワークの解明を目指している。また、生体認識分子を提示するバイオナノ中空粒子を用いる細胞及び組織特異的な遺伝子導入法やドラッグデリバリー法の開発を行っている。

b) 成果

・銅アミン酸化酵素反応における還元的半反応の立体化学的解析

銅アミン酸化酵素は各種の生物に存在し、種々の一級アミン類を基質とする。これらの一級アミン基質の α 位炭素には2個のプロキラル水素が存在するが、触媒塩基 (Asp) によるプロトン引き抜きの立体選択性は酵素の起源により異なっている。しかし、X線結晶解析により立体構造が明らかになったマメ科植物、細菌、酵母由来の本酵素の活性部位構造に大きな違いはなく、このプロトン引き抜きの立体特異性の違いが何に起因するのかが不明に残されている。そこで、土壌細菌 *Arthrobacter globiformis* 由来の銅アミン酸化酵素 (AGAO) を用い、本酵素反応における基質アミンの α -H の引き抜きに対する立体特異性について検討するとともに、AGAO の立体構造に基づきこの立体選択性を考察した。まず、2個の α 位水素を立体特異的に重水素標識した基質は、芳香族アミノ酸脱炭酸酵素を用いて合成した。これらの重水素標識基質を用い定常状態における AGAO の反応速度論的解析を行なった結果、(R)-[1-²H]-チラミンに対する V_{\max} 値は非標識チラミンとほぼ同等であったが、(S)-[1-²H]-および[1,1-²H₂]-チラミンにおいては、約 1/3 に低下していた。従って、チラミン酸化反応全体の律速段階は α -H 引き抜き過程にあると考えられた。しかし、フェニルエチルアミンを基質とした場合には、 k_{cat} 値における H/D 同位体効果は小さく（約 1.2~1.4）、律速段階は別の過程にあると結論された。一方、生成物のアルデヒドを酢酸エチルで抽出し GC-MS により測定した結果、フェニルエチルアミンとチラミンのいずれの基質を用いた場合にも、 α -H の引き抜きは 99%以上の立体選択性で *pro-S* 水素特異的であった。AGAO の立体構造を用いチラミンとの SSB のモデリングを行ったところ、触媒塩基 (Asp298) とチラミンの α -位 *pro-S* 水素が約 3.6 Å の距離に位置することが判明した。これらの結果より、各種生物起源の銅アミン酸化酵素では、基質アミンの遠位 (distal) 部分と酵素との結合様式により α -H 引き抜きの立体選択性が決定され

ると考えられる。

・キノヘムプロテイン・アミン脱水素酵素生成過程における鉄・イオウタンパク質の関与
キノヘムプロテイン・アミン脱水素酵素 (QHNDH) は、グラム陰性細菌の *Pseudomonas putida* や *Paracoccus denitrificans* のペリプラズム画分に誘導生成する酵素で、 $\alpha\beta\gamma$ のヘテロ三量体サブユニット構造をもつ。約 60 kDa の α -サブユニットには 2 分子のヘム *c* が、約 9 kDa の γ -サブユニットには構造未知のビルトイン型キノ補酵素が含まれていると考えられた。両菌の QHNDH の X 線結晶構造解析を行った結果、両酵素の一次構造の相同性はそれほど高くないが、立体構造は非常に類似することが判明した。最も小さなサイズの γ -サブユニットは、遺伝子の塩基配列から推定されるアミノ酸配列中 (79 及び 82 残基) では 4 個の Cys 残基と 5 個の Trp 残基を含むが、そのうち 1 個の Cys 残基と 1 個の Trp 残基が分子内で架橋していることが判明した。この分子内架橋と同時に、トリプトファン残基のインドール環の 6、7-位がオルトキノ型に酸化されており、新規なペプチド・ビルトイン型キノ補酵素 CTQ を形成していた。さらに、残り 3 個の Cys 残基も Asp 残基または Glu 残基のメチレン炭素にそれぞれチオエーテル結合していた。QHNDH の結晶構造解析に並行して、*Ps. putida* および *P. denitrificans* の両酵素遺伝子をクローニングした結果、両酵素の 3 つのサブユニット遺伝子は、4~5 個のオープンリーディングフレーム (ORF) を含む領域にコードされていることが明らかになった。ノーザン解析より、これらがアミン類により誘導されるオペロンを形成していることが強く示唆され、*n-butylamine utilization (bau)* オペロンと名付けた。QHNDH の 3 つのサブユニットは、いずれも α -サブユニットが第 1 番目の ORF (*bauA*) に、 β -サブユニットが第 4 番目の ORF (*bauD*) に、 γ -サブユニットが第 3 番目の ORF (*bauC*) にそれぞれコードされていた。非常に興味深いことに、*bau* オペロンの 2 番目の ORF (*bauB*) は、本酵素のどのサブユニットとも対応しておらず、約 55 kDa の未知タンパク質をコードしていた。このタンパク質は、ビタミン類 (ビオチン、リポ酸など) の生合成に関わる酵素や種々の酵素活性化因子と、[Fe-S] クラスタ結合配列および *S*-アデノシルメチオニン (SAM) 結合配列を共有しており、ラジカル SAM スーパーファミリーに属することが明らかになった。ラジカル SAM タンパク質は、SAM からアデノシルラジカルを生成し、炭素-硫黄結合の導入や環化反応などを触媒する。このことから α -サブユニットと γ -サブユニットの両遺伝子間に挟まれてコードされている BauB タンパク質は、 γ -サブユニットポリペプチドに作用して、CTQ 補酵素の生成、あるいはチオエーテル架橋形成に関与すると考えられた。実際、相同的組換え法を用いて *P. denitrificans* の *bauB* 遺伝子を破壊したところ、 α -サブユニットと β -サブユニットのタンパク質は生成しているにも関わらず、酵素活性は全く検出されなかった。さらに、*bauB* 遺伝子を広域宿主発現ベクターに組み込み *bauB* 破壊株に導入した結果、QHNDH 活性が復活した。これらの結果から、BauB タンパク質は CTQ 補酵素や分子内チオエーテル架橋の形成など QHNDH (特に γ -サブユニット) の生成過程に関与することが強く示唆された。

・トパキノ補酵素依存性銅アミン酸化酵素の触媒機構：還元的半反応中間体の構造解析
銅アミン酸化酵素 (EC 1.4.3.6) は、微生物から哺乳動物に至る生物界に広く分布し、種々の生理活性アミン類の酸化的脱アミノ反応 ($RCH_2NH_3 + O_2 + H_2O \rightarrow RCHO + NH_4^+ + H_2O_2$) を触媒する酵素である。本酵素は分子量 約 70,000 ~ 95,000 のホモダイマー構造をもち、各サブユニットは、補欠金属の 2 価銅イオンとキノ補酵素の一種、トパキノ (2,4,5-trihydroxyphenylalanine quinone; TPQ と略称) を含有している。この TPQ 補酵素は、タンパク質の翻訳後修飾により生成するペプチド・ビルトイン型補酵素で、アポタンパク質中の前駆体チロシン残基が銅イオンの存在下で自動的に酸化修飾されて生成する。本酵素の触媒過程は、TPQ の酸化還元状態により、480 ~ 500 nm に極大吸収を有する酸化型 TPQ が基質により還元され還元型 TPQ と第一生成物のアルデヒドが生成する‘還元的半反応’と、還元型 TPQ が分子状酸素により再酸化されアンモニアと過酸化水素が生じる‘酸化的半反応’に大きく分けられる。Cu(II) は TPQ 補酵素生成だけでなく、触媒反応 (特に酸化的半反応) においても必須の役割を果たす。本酵素の活性部位には、これら銅イオン、TPQ 補酵素以外に、さまざまな生物種由来の酵素で高度に保存されているいくつかのアミノ酸残基が存在する。このうち、還元的半反応において基質が TPQ に結合した中

間体からプロトンを引き抜く塩基として機能すると考えられているアスパラギン酸残基は最も重要である。本研究では、土壌細菌 *Arthrobacter globiformis* 由来の銅アミン酸化酵素 (AGAO) の活性部位アミノ酸残基に変異を導入し、詳細な反応速度論的解析と X 線結晶解析を行うことにより、本酵素の精密な触媒反応機構を解明することを目的とした。本酵素の触媒過程の還元的半反応においては、基質アミンは先ず TPQ の C5 位カルボニル基と反応し、基質シッフ塩基 (SSB) を生成する。次いで、触媒塩基 (Asp298) により α 位プロトンが引き抜かれ、生成物シッフ塩基 (PSB) に変換される。この Asp298 残基の触媒塩基としての機能をさらに詳細に明らかにするため、Ala に置換した変異型酵素 D298A を作製した。D298A における TPQ 生成速度は野生型酵素の約 1/2 に低下していたが、Asp298 は TPQ 生成には必須ではないことが判明した。しかし、触媒反応における k_{cat} は野生型酵素の約 $1/10^6$ に低下しており、触媒塩基としての必須性を裏付けた。すなわち Asp298 はオーバーオール k_{cat} を 10^6 倍に加速する。この反応加速率がプロトン引き抜き過程のみに由来するか否かを確かめるため、還元的半反応における D298A の分光学的解析を行った。嫌気条件下で基質フェニルエチルアミン (PEA) を加え、TPQ の吸収スペクトルの変化を追跡した結果、310 nm に吸収を示す分子種がゆっくりと生成 ($k_{obs} = \sim 1.6 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$; 野生型酵素では $>1000 \text{ s}^{-1}$) し、その後、さらに遅い速度で 385 nm に吸収を示す分子種が蓄積することが判明した。野生型酵素や TPQ モデル化合物のスペクトルとの比較から、前者は SSB、後者は PSB の吸収に対応すると考えられた。これらの結果は、Asp298 が SSB からのプロトンの引き抜きだけでなく、SSB の形成や PSB の加水分解にも関与することを示している。SSB の生成速度の低下は、阻害剤フェニルヒドラジンとの反応速度が著しく低下したことも一致する。恐らく、Asp298 はミカエリス複合体を形成する前の基質アミンの脱プロトン化や PSB 形成後の加水分解過程におけるプロトン授受にも直接的な役割を果たしていると推定される。次に、SSB と PSB の化学構造を明らかにするため、D298A の結晶に PEA を加えて複合体を形成させた後、X 線結晶解析を行った。基質導入 1 時間後と 7 日後の結晶の回折データを解析した結果、ともに PEA-TPQ 複合体が形成されていることが判明した。電子密度図 ($2F_o - F_c$) において、シッフ塩基二重結合に対する基質 N-C α -C β 間の結合角度の違いに基づいてモデルをあてはめることにより、1 時間後の結晶では SSB の構造、7 日後の結晶では PSB の構造が決定できた。興味深いことに、SSB における基質の α 位 *pro-S* 水素原子 (モデルから自動的に発生させた) は TPQ-シッフ塩基平面に対してほぼ垂直に配向しており、 σ - π 電子相互作用が増大してプロトンが脱離しやすい構造をとっていた。実際、D298A におけるプロトン引き抜きの立体化学を解析した結果、*pro-S* 水素原子が立体選択的に引き抜かれることが明らかになった。

・神経軸索誘導関連タンパク質 FEZ の分子細胞生物学的研究

プロテインキナーゼ C ζ (PKC ζ) は、神経細胞において神経成長因子 (NGF) シグナル等により活性化され、分化誘導及びアポトーシス抑制を行う。当研究室では、PKC ζ が関与する神経細胞内シグナル伝達機構の解明を目的として、FEZ1 (Fasciculation and Elongation protein Zeta-1) を PKC ζ 結合タンパク質として単離した。FEZ1 は線虫由来の神経軸索誘導関連タンパク質 UNC-76 と構造的に類似し、線虫 *unc-76* 変異体が示す軸索形成不全を機能相補することから、UNC-76 の哺乳類オルソログであると結論された。さらに、FEZ1 と常活性型変異体 PKC ζ を共発現する PC12 細胞は Neuron 様に分化することから、FEZ1/PKC ζ 複合体が神経軸索形成に重要な役割を担うと考えられた。一方、FEZ1 ホモログとして FEZ2 も同定されているが、その機能については不明である。本研究では、FEZ/PKC ζ が関与する神経軸索誘導機構について調べた。ラット成体での FEZ の発現についてノーザンプロットで調べたところ、FEZ1 mRNA は脳特異的に、FEZ2 mRNA は脳を含む全組織で発現していた。またマウス胎児では、FEZ1 mRNA は脳神経系の発生開始時期から、FEZ2 mRNA は発生初期から発現していた。次に、脳神経系特異的な FEZ1 に焦点を当て、PC12 細胞をモデルとして FEZ1/PKC ζ が関与する神経軸索誘導機構について調べた。PC12 細胞では、内在性 FEZ1 の発現が NGF 処理により著しく誘導された。また、内在性 FEZ1 は NGF 処理の有無に関係なくミトコンドリアと共局在しており、NGF 処理後には PKC ζ とも部分的に共局在していた。さらに、PC12 細胞では NGF 処理後 24 ~ 72 時間で FEZ1/PKC ζ 複合体が一過性に形成されることが免疫沈降法によって判明した。次に、FEZ1 のミトコンドリア輸送への関与について

調べた。プルダウン法により、FEZ1 と KIF5B (ミトコンドリア輸送を担うモータータンパク質) および tubulin (ミトコンドリア輸送のレールタンパク質) の結合が観察された。さらに、PC12 細胞においても NGF 処理後に FEZ1/PKC ζ /KIF5B/tubulin 複合体が形成されることが免疫沈降法によって判明した。また、FEZ1-GFP を安定発現する PC12 細胞では、神経様突起伸長速度がコントロール細胞の約 1.5 倍であった。以上の結果から、PC12 細胞では NGF 処理により FEZ1 の発現が誘導され、NGF 処理後 24 ~ 72 時間に形成される FEZ1/PKC ζ /KIF5B/tubulin 複合体が微小管に沿ったミトコンドリア輸送を促すことで、神経様突起先端へのエネルギー供給をサポートし、その結果として神経様突起の伸長が促進されることが考えられる。

・神経軸索誘導関連タンパク質 FEZ1 ホモログ FEZ2 の構造と機能に関する研究

当研究室では 1999 年、酵母 Two-Hybrid 法によりセリン・トレオニンキナーゼの一種である PKC ζ の脳特異的基質として、約 45 kDa のコイルドコイルタンパク質 FEZ1 を同定した。FEZ1 は線虫の神経軸索誘導に必須のタンパク質 UNC-76 と約 63% の同一性を示し、線虫において *unc-76* 変異 (行動異常、神経束形成不全) を機能相補することから、UNC-76 の哺乳類オルソログと考えられた。また、常活性型変異体 PKC ζ と FEZ1 を強制発現する PC12 細胞においてニューロン様突起形成を有意に促したことから、リン酸化 FEZ1 は哺乳類神経軸索誘導機構において重要な役割を果たすと考えられた。一方、当研究室では FEZ1 と類似のタンパク質、FEZ2 の完全長 cDNA 遺伝子も単離同定した。FEZ2 はほとんど全ての臓器に存在する約 42 kDa のコイルドコイルタンパク質であり、FEZ1 と約 50%、UNC-76 と約 29% の相同性を示すことから、FEZ1 ホモログであることが判明した。本研究では、FEZ1 とそのホモログである FEZ2 の構造と機能を *In vitro* 及び *In vivo* レベルで比較し、FEZ1、FEZ2 及び UNC-76 に共通する役割の解析を目指す。線虫 *unc-76* 変異株に FEZ2 タンパク質を強制発現させたところ、FEZ1 と同様に行動異常及び神経束形成不全を不完全ではあるが相補した。また、PC12 細胞に FEZ2 と常活性型変異体 PKC ζ を強制発現させたところ、FEZ1 と同様に NGF 非存在下でニューロン様突起を伸長させた。さらに、各種 PKC サブタイプとの結合を免疫沈降実験で調べたところ、FEZ1 と FEZ2 は PKC ζ だけではなく PKC α , β I と結合し、この時 FEZ1 は FEZ2 との相同性が高い C 末端側半分 (162-393aa) で PKC ζ と結合していた。また、*in vitro* リン酸化アッセイでは、FEZ2 は FEZ1 と同様に PKC ζ によってリン酸化されることも明らかになり、FEZ2 も C 末端側で PKC ζ と結合しリン酸化を受けると予想された。以上の結果から、FEZ1 と FEZ2 は発現部位及び時期は異なるが、生化学的には極めて類似することが判明した。FEZ1 は主として神経系細胞において PKC ζ と相互作用して神経束形成・軸索伸長に関与しており、FEZ2 は非神経細胞において FEZ1 と類似した機構で細胞の増殖及び分化の制御に関与すると考えられる。

[原著論文]

Identification of a Tissue-non-specific Homologue of Axonal Fasciculation and Elongation Protein Zeta-1, T. Fujita, J. Ikuta, J. Hamada, T. Okajima, K. Tatematsu, K. Tanizawa, and S. Kuroda: *Biochem. Biophys. Res. Commun.*, 313 (2003) 738-744.

Stereochemistry of 2-Phenylethylamine Oxidation Catalyzed by Bacterial Copper Amine Oxidase, M. Uchida, A. Ohtani, N. Kohyama, T. Okajima, K. Tanizawa, and Y. Yamamoto: *Biosci. Biotechnol. Biochem.*, 67 (2003) 2664-2667.

Overexpression of *Nell-1*, a Craniosynostosis-Associated Gene, Induces Apoptosis in Osteoblasts During Craniofacial Development, X. Zhang, D. Carpenter, N. Bokui, C. Soo, S. Miao, T. Truong, B. Wu, I. Chen, H. Vastardis, K. Tanizawa, S. Kuroda, and K. Ting: *J. Bone and Mineral Res.*, 18 (2003) 2126-2134.

Phospholipase D from *Streptovercillium cinnamoneum*: Protein Engineering and Application for

Phospholipid Production, C. Ogino, S. Kuroda, S. Tokuyama, A. Kondo, N. Shimizu, K. Tanizawa, and H. Fukuda: *J. Mol. Cat. B*, 23 (2003) 107–115.

Alteration of Substrate Specificity of Leucine Dehydrogenase by Site-directed Mutagenesis, K. Kataoka, and K. Tanizawa: *J. Mol. Cat. B*, 23 (2003) 299–309.

Chemical and Kinetic Reaction Mechanisms of Quinohemoprotein Amine Dehydrogenase from *Paracoccus denitrificans*, D. Sun, K. Ono, T. Okajima, K. Tanizawa, M. Uchida, Y. Yamamoto, F. S. Mathews, and V. L. Davidson: *Biochemistry*, 42 (2003) 10896–10903.

A Neuron-specific EGF family protein, NELL2, Promotes Survival of Neurons through Mitogen-activated Protein Kinases, K. Aihara, S. Kuroda, N. Kanayama, S. Matsuyama, K. Tanizawa, and M. Horie: *Molecular Brain Research*, 116 (2003) 86–93.

Disrupted-in-Schizophrenia 1, a Candidate Gene for Schizophrenia, Participates in Axonal Outgrowth, K. Miyoshi, A. Honda, K. Baba, M. Taniguchi, K. Oono, T. Fujita, S. Kuroda, T. Katayama, and M. Tohyama: *Mol. Psychiatry*, 8 (2003) 685–694.

Nanoparticles for the Delivery of Genes and Drugs to Human Hepatocytes, T. Yamada, Y. Iwasaki, H. Tada, H. Iwabuki, M. K. L. Chuah, T. VandenDriessche, H. Fukuda, A. Kondo, M. Ueda, M. Seno, K. Tanizawa, and S. Kuroda: *Nature Biotechnol.*, 21 (2003) 885–890.

Detection of Protein-Protein Interactions on SiO₂/Si Surfaces by Spectroscopic Ellipsometry, S. Koderu, T. Okajima, H. Iwabuki, D. Kitaguchi, S. Kuroda, T. Yoshinobu, K. Tanizawa, M. Futai, and H. Iwasaki: *Anal. Biochem.*, 321 (2003) 65–70.

The Active Site Structure of Quinohemoprotein Amine Dehydrogenase Inhibited by *p*-Nitrophenylhydrazine, A. Satoh, O. Adachi, K. Tanizawa, and K. Hirotsu: *Biochim. Biophys. Acta*, 1647 (2003) 272–277.

A PKC ϵ -ENH-Channel Complex Modulates N-type Ca²⁺ Channels, Y. Maeno-Hikichi, S. Chang, K. Matsumura, M. Lai, H. Lin, N. Nakagawa, S. Kuroda, and J. F. Zhang: *Nature Neuroscience*, 6 (2003) 468–475.

Role of Copper Ion in Bacterial Copper Amine Oxidase: Spectroscopic and Crystallographic Studies of Metal-substituted Enzymes, S. Kishishita, T. Okajima, M. Kim, H. Yamaguchi, S. Hirota, S. Suzuki, S. Kuroda, K. Tanizawa, and M. Mure: *J. Am. Chem. Soc.*, 125 (2003) 1041–1055.

[解説、総説]

中空バイオナノ粒子によるピンポイントドラッグデリバリーシステム, 近藤昭彦, 黒田俊一, 谷澤克行, 妹尾昌治, 上田政和: *化学工学*, 67 (2003) 686–688.

新しいペプチド・ビルトイン型キノン補酵素: その構造と触媒機能および生合成機構, 谷澤克行: *ビタミン*, 77 (2003) 275–283.

ペプチド・ビルトイン型補酵素研究の新展開. 酵素の多彩な触媒機能発現のための“しかけ”を探って, 岡島俊英, 谷澤克行: *蛋白質核酸酵素*, 48 (2003) 740–746.

バイオナノ粒子を用いる遺伝子・薬剤のピンポイントドラッグデリバリーシステム, 妹尾昌治, 黒田俊一,

近藤昭彦、多田宏子、谷澤克行、上田政和：バイオインダストリー，4 (2003) 54–62.

Nanoparticle-directed Tissue-specific Delivery System for Genes and Drugs, S. Kuroda, T. Yamada, and K. Tanizawa: *Discovery Medicine*, 3 (2003), No. 18, 56–57.

[著書]

ナノバイオテクノロジーの最新技術 (植田充美編著), 黒田俊一、近藤昭彦、妹尾昌治、上田政和、谷澤克行 (分担執筆): CMC 出版, (2003) 295–304.

ナノパーティクル・テクノロジー (細川益男監修・野城清編著), 黒田俊一、近藤昭彦、妹尾昌治、上田政和、谷澤克行 (分担執筆): 日刊工業新聞社, (2003) 122–126.

ナノパーティクル・テクノロジー (細川益男監修・野城清編著), 黒田俊一、近藤昭彦、妹尾昌治、上田政和、谷澤克行 (分担執筆): 日刊工業新聞社, (2003) 171–178.

[特許]

「血友病治療薬用薬剤及びそれを用いた血友病治療方法」上田政和、黒田俊一、谷澤克行、妹尾昌治、近藤昭彦、シエリー・バンデンドリエッシェ、マリニー・チュア：特願 2003-071788.

「表面プラズモン共鳴を用いたプロテインキナーゼ活性の網羅的解析方法」稲森和紀、京基樹、谷澤克行、黒田俊一、立松健司、片山佳樹、喜多康浩：特願 2003-080645.

「レセプター結合性物質のスクリーニング方法」近藤昭彦、黒田俊一、植田充美、石井純、福田秀樹、立松健司：特願 2003-417482.

「心肥大及びそれに起因する心疾患を予防又は治療するための医薬組成物」谷澤克行、岩田美紀、黒田俊一：米国特許出願 60/496935.

[国際会議]

Conformation of Substrate Schiff-Base in the Active Site of Copper Amine Oxidase Defines the Stereospecificity of Proton Abstraction from Substrate (Poster), *T. Okajima, Y.-C. Chiu, M. Uchida, Y. Yamamoto, H. Hayashi, and K. Tanizawa, Protein Society, Boston, MA, USA, July 26–30, 2003.

Stereospecificity of α -Proton Abstraction by Copper Amine Oxidase Is Defined by Conformation of Substrate Schiff-Base Intermediate Formed in the Active Site (Invited), Y.-C. Chiu, T. Okajima, S. Kuroda, and *K. Tanizawa, 8th International Congress on Amino Acids and Proteins, Rome, Italy, Sep. 5–9, 2003.

Mechanistic Studies of Topaquinone-dependent Copper Amine Oxidase (Invited), *K. Tanizawa, Dutch-Japanese Workshop on Biocatalysis, Noordwijk, Netherlands, Sep. 24–27, 2003.

Mechanism of Reductive Half-reaction of Bacterial Copper/TPQ-dependent Amine Oxidase (Invited), *K. Tanizawa, Y.-C. Chiu, T. Murakawa, and T. Okajima, Gordon Research Conferences on Protein Derived Cofactors, Radicals and Quinones, Ventura, CA, USA, Jan. 11–16, 2004.

Involvement of a Hypothetical [Fe-S]-binding Protein in the Biogenesis of Quinohemoprotein Amine Dehydrogenase (Poster), *K. Ono, T. Okajima, and K. Tanizawa, Gordon Research Conferences on Protein Derived Cofactors, Radicals and Quinones, Ventura, CA, USA, Jan. 11–16, 2004.

Mechanism of Reductive Half-reaction of Bacterial Copper/TPQ-dependent Amine Oxidase (Poster), *T. Murakawa, Y.-C. Chiu, T. Okajima, and K. Tanizawa, Gordon Research Conferences on Protein Derived Cofactors, Radicals and Quinones, Ventura, CA, USA, Jan. 11–16, 2004.

[国内学会]

日本生化学会大会	7 件
日本分子生物学会年会	2 件
日本農芸化学会大会	1 件
日本蛋白質科学会	1 件
ビタミン B 研究委員会	2 件

[取得学位]

修士 (理学)

生田 潤子 神経軸索誘導関連タンパク質 FEZ1 ホモログ FEZ2 の構造と機能に関する研究

博士 (理学)

藤田 敏次 神経軸索誘導関連タンパク質 FEZ に関する分子細胞生物学的研究

[科学研究費補助金]

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

特定領域研究 (B)(2)

谷澤 克行 キノン型ビルトイン補酵素及び金属イオンを含有するコンポジット触媒の分子設計 8,100

特定領域研究 (C)(2)

黒田 俊一 生体認識分子を融合したナノ粒子による新規な生体内ピンポイント遺伝子導入法の開発 5,900

基盤研究 (B)(2)

黒田 俊一 神経冠由来細胞分化に関係する 2 種類の NE L L タンパク質のシグナル伝達機構の解明 10,300

特別研究員奨励費

Andrés D. 心肥大化シグナルカスケードにおける PDZ-3LIM タンパク質 ENH1 を含 1,200
Maturana むシグナル分子複合体の役割

鈴木 健二 表面微細構造を用いた脂質二重層膜の安定化と膜タンパク質の分離精 1,100
製への応用

(分担者として配分されたもの)

21 世紀 COE 研究

谷澤 克行 バイオナノ粒子ドラッグデリバリーシステム開発と蛋白質構造情報に基づ 13,000

		く分子設計指針		
藤田 敏次		神経軸索伸長関連タンパク質FEZIを含む神経細胞内でのミトコンドリア輸送機構の解明		400
良元 伸男		バイオミサイル分子を用いる細胞内病因タンパク質の選択的除去システムの開発		800
小野 和利		ラジカル SAM プロテインによるナノ構造制御機構の解析		400
村川 武志		トパキノン依存性銅アミン酸化酵素のナノ構造に基づく触媒機構		400
[共同研究]				
谷澤 克行	大阪大学 COE 研究	高次機能調和材料創成の原子・分子プロセッシング		3,000
[受託研究]				
谷澤 克行	農林水産技術会議	キノン型ビルトイン補酵素含有酵素の構造と機能の解析及びデノボデザイン		3,554
谷澤 克行	三菱電機株式会社 (NEDO 基盤技術研究促進事業)	ゲノム研究成果産業利用のための細胞内シグナル網羅的解析技術		4,200
谷澤 克行	科学技術振興機構 戦略的創造研究推進事業 (CREST)	医療に向けた化学・生物系分子を利用したバイオ素子・システムの創製：中空バイオナノ粒子を用いる遺伝子導入法の開発		1,157
黒田 俊一	文部科学省	脳・神経系の総合プロテオミクスプロジェクト (タンパク 3000 プロジェクト)		5,000
黒田 俊一	大阪科学技術センター (経済産業省中小企業地域新生コンソーシアム事業)	コンビバイオによるプロテオーム創薬システムの開発		2,100
黒田 俊一	科学技術振興機構 プラザ大阪育成研究事業	実験動物各臓器や培養細胞に対して遺伝子・タンパク質・薬剤をピンポイントに送達する中空バイオナノ粒子の開発		0
[その他の競争的研究資金]				
谷澤克行	ビタミン B 研究委員会	ビルトイン型キノン補酵素に関する研究		350

生体膜分子学研究分野

教授	二井 將光
助教授	和田 洋
助手	孫 戈虹
特別研究員	豊村 隆男、西尾 和晃
事務補佐員	中島 美佳子、島村 幸子
大学院生	村上 秀昭、国貞 祐哉、日中 善昭、細川 浩之、加賀田 繁
学部学生	清水 寛之、井上 佳
技術員	村田 佳子、青山 美奈子
実験補助員	福山 章紀

a) 概要

生物のエネルギー貨幣である「ATPの合成・分解とイオン輸送の共役はどのような機構によるのか?」、生物は「イオンをどのようにして認識するのか?」また細胞の中には「なぜいろいろな内部酸性pHを示すオルガネラとか、骨吸収窩のような酸性コンパートメントがあるのか?」、また、「これらオルガネラとコンパートメントの間には関連があるのか?」という生物学上の基本的な疑問に答えることを究極の目的として研究を進めている。研究の対象としてはイオントランスポーター、アニオンチャネル、V-ATPase(液胞型ATPase)、F-ATPase(ATP合成酵素)、P型ATPase、トランスポーター、オルガネラ形成に関わる因子(Syntaxin, mVam2, mVam6, Sorting Nexinなど)である。モデル生物として、酵母、線虫、動物培養細胞、マウスなどを用いて普遍的な結論に迫ろうとしている。F-ATPaseとV-ATPaseがサブユニットの回転を伴うナノマシンであること、V-ATPaseが多彩なサブユニットイソフォームを持っていることは最近の大きな発見である。

b) 成果

マウスとヒトに於いてV-ATPaseのC, E, G, dサブユニットにイソフォームがあることを発見した。いずれも特異的な細胞に局在するものと普遍的なものがあつた。C2は肺胞のII型細胞、E1は精子のアクロソーム、G2はシナプス小胞、G3は尿細管の介在細胞の形質膜に局在した。いずれもそれぞれのイソフォームを持つV-ATPaseが局在することが結論できた。以上の結果はV-ATPaseがイソフォームを取り替えることによって、特異的な細胞に局在することを示している。さらに、組織特異的なイソフォームが特異的にassemblyし、普遍的に存在するV-ATPaseと異なる酵素性質を示すことを発見した。さらに、破骨細胞の形質膜にG3イソフォームを持つV-ATPaseが局在し、これが前駆細胞のリソソームに由来することを実証した。

当研究室では精製したF-ATPaseが回転を伴うプロトンポンプであることを示してきたが、さらにF-ATPaseが膜に於いて回転していることを明らかにした。この成果は平面膜を簡便に調製する方法を確立することによって得られたのである。さらに同じ方法を用い酵母の液胞V-ATPaseのサブユニットがATP加水分解に伴って回転することを実証した。

[原著論文]

Subunit Rotation of Vacuolar-Type Proton Pumping ATPase: Relative Rotation of the G as to c Subunit, T. Hirata, A. Iwamoto-Kihara, G.-H. Sun-Wada, T. Okajima, Y. Wada, and M. Futai: J. Biol. Chem., 278 [26] (2003) 23714-23719.

Detection of Protein-Protein Interactions on SiO₂/Si Surfaces by Spectroscopic Ellipsometry, S. Kodera, T. Okajima, H. Iwabuki, D. Kitaguchi, S. Kuroda, T. Yoshinobu, K. Tanizawa, M. Futai, and H. Iwasaki: Anal. Biochem., 321 [1] (2003) 65-70.

Specific Recognition of *Leishmania major* Poly- β -galactosyl Epitopes by Galectin-9: Possible Implication of Galectin-9 in Interaction between *L. major* and Host Cells, I. Pelletier, T. Hashidate,

T. Urashima, N. Nishi, T. Nakamura, M. Futai, Y. Arata, K. Kasai, M. Hirashima, J. Hirabayashi, and S. Sato: J. Biol. Chem., 278 [25] (2003) 22223-22230.

Revised Nomenclature for Mammalian Vacuolar-type H⁺-ATPase Subunit Genes, A.N. Smith, R.C. Lovering, M. Futai, J. Takeda, D. Brown, F.E. Karet: Mol. Cell, 12 [4] (2003) 801-803.

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 [1-2] (2003) 147-153.

Mouse Proton Pump ATPase C Subunit Isoforms (C2-a and C2-b) Specifically Expressed in Kidney and Lung, Sun-Wada, G.-H., Y. Murata, M. Namba, A. Yamamoto, Y. Wada, and M. Futai: J. Biol. Chem., 278 [45] (2003) 44843-44851.

Involvement of Syntaxin 7 in Human Gastric Epithelial Cell Vacuolation Induced by the *Helicobacter pylori*-Produced Cytotoxin VacA, J. Suzuki, H. Ohnishi, A. Wada, T. Hirayama, H. Ohno, N. Ueda, H. Yasuda, T. Iiri, Y. Wada, M. Futai, and H. Mashima: J. Biol. Chem., 278 [28] (2003) 25585-25590.

From Lysosomes to Plasma Membrane: Localization of Vacuolar Type H⁺-ATPase with the α3 Isoform during Osteoclast Differentiation, T. Toyomura, Y. Murata, A. Yamamoto, T. Oka, G.-H. Sun-Wada, Y. Wada, and M. Futai: J. Biol. Chem., 278 [24] (2003) 22023-22030.

[解説、総説]

Lysosome and Lysosome-Related Organelles Responsible for Specialized Functions in Higher Organisms, G.-H. Sun-Wada, Y. Wada, and M. Futai: Cell Struct. Func., 28 (2003) 455-463.

Vacuolar H⁺ Pumping ATPases in Luminal Acidic Organelles and Extracellular Compartments: Common Rotational Mechanism and Diverse Physiological Roles, G.-H. Sun-Wada, Y. Wada, and M. Futai: J. Bioenerg. Biomembr., 35 (2003) 347-358.

高等生物の多彩な分化形質を支えるエンドソーム・リソソーム, 和田洋、孫戈虹、二井將光: 実験医学, 21 [14] (2003) 162-167.

[著書]

「ポストシーケンスタンパク質実験法」(大島泰郎、鈴木紘一、藤井義明、松村喬編集), 孫(和田)戈虹、前田正知、二井將光, 東京化学同人出版社, (2003) 139-155.

[国際会議]

Subunit Isoforms of Proton Pump V-ATPase for Diverse Endomembrane Organelles (poster), *G.-H. Sun-Wada, Y. Wada, and M. Futai, Experimental Biology 2003, San Diego, CA, USA, Apr. 19-24, 2003.

Subunit Rotation of ATP Synthase Embedded in Membranes: α or β Subunit Rotation Relative to the c Subunit Ring (invited), *M. Futai, K. Nishio, A. Iwamoto-Kihara, A. Yamamoto, and Y. Wada, Experimental Biology 2003, San Diego, CA, USA, Apr. 19-24, 2003.

α2-Subunit of V-ATPase Localizes in Endosomes and Interacts with ARNO in Kidney Proximal Tubule Epithelial Cells (poster), *A. Hurtado-Lorenzo, J. El-Annan, S. Bechoua, M.

Futai, S. Bourgojn, J.E. Casanova, D. Brown, D.A. Ausiello, and V. Marshansky, American Society of Nephrology Renal Week, San Diego, CA, USA, Nov. 12-17, 2003.

V-ATPase: Rotational Catalysis and Diverse Isoforms (invited), *M. Futai, Gordon Research Conference on Molecular & Cellular Bioenergetics, Meriden, NH, USA, Jun. 22-27, 2003.

Vo and V₁ Subunit Isoforms of Mouse Vacuolar Proton ATPase V₁Vo (poster), *G.-H. Sun-Wada, T. Yoshimizu, Y. Murata, T. Oka, Y. Wada, and M. Futai, Gordon Research Conference on Molecular & Cellular Bioenergetics, Meriden, NH, USA, Jun. 22-27, 2003.

Rotation mechanisms in the ATP synthase (invited), *M. Futai, FASEB Conference in transport ATPase, Vermont, NH, USA, Jul. 12-17, 2003.

Subunit Isoforms of Proton Pump V-ATPase for Diverse Endomembrane Organelles (invited), *Y. Wada. FASEB Conference in Transport ATPase, Vermont, NH, USA, Jul. 12-17, 2003.

Subunit Rotation of ATP Synthase in Membranes, *M. Futai (invited) The Human Proteome Organization (HUPO) 2nd Annual and the International Union of Biochemistry and Molecular Biology (IUBMB) XIX Joint World Congress, Montreal, Canada, Oct. 8-11, 2003.

Mouse Proton Pump ATPase C Subunit Isoforms Specifically Expressed in Kidney and Lung (poster), * G.-H. Sun-Wada, Y. Wada, and M. Futai, The American Society for Cell Biology, 43rd Annual Meeting, San Francisco, CA, USA, Dec. 14-17, 2003.

[国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員]

二井 將光 Arch. Biochem. Biophys. (USA, 編集委員)
二井 將光 J. Bioenerg. Biomembr. (USA, 編集委員)
二井 將光 J. Biol. Chem. (USA, 編集委員)
二井 將光 Biological Chemistry (Germany, 編集委員)

[国内学会]

日本生化学会 5 件
日本分子生物学会 3 件
日本細胞生物学会 1 件
日本生体エネルギー研究会 1 件

[取得学位]

修士 (工学)

國定 祐哉 新たな手法を用いた knock-in/knock-out ベクターの構築と組織特異的 Cre 発現マウスの作製

[科学研究費補助金]

(代表者として配分されたもの)

単位 : 千円

特定領域研究 (B)(2)

二井 將光 生物ナノ・モーターポンプ ATPase の作動

17,900

基盤研究 (A)(2)

二井 将光	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		11,100
特定領域研究 (B)(2)			
和田 洋	発生・分化を担うエンドソーム・リソソームのメンブレンダイナミクス		23,800
萌芽的研究			
和田 洋	マウス遺伝子改変の高効率化：ターゲティングベクターの正確、かつ迅速な構築法		1,900
若手研究 (A)			
孫 戈虹	プロトンポンプの高次細胞機能の発現と疾病に関する研究		8,580
[特別研究員奨励費]			
豊村 隆男	マウスの液胞型 H^+ -ATPase の α サブユニットの多様性と機能解析		1,200
西尾 和晃	ATP 合成酵素の回転・反応機構の解明		1,100
[受託研究]			
二井 将光	科学技術振興事業団	高効率ナノモーターとしてのプロトンポンプの分子機構解明	2,860
和田 洋	応用酵素協会	サブユニットの回転運動を伴うプロトンポンプの作動機構	1,000
和田 洋	野田産研研究助成	液胞機能の改変による新規有用酵母の創成	2,000
孫 戈虹	医薬資源研究振興会	破骨細胞における分泌性リソソーム・形質膜のダイナミクス	500
孫 戈虹	長瀬科学技術振興財団	マウスの液胞型 H^+ -ATPase のサブユニットの多様性に関する解析	300
孫 戈虹	公益信託林女性自然科学者研究助成基金	液胞型 H^+ -ATPase の II 型肺胞細胞における機能	150
[その他の競争的研究資金]			
二井 将光	科学技術振興事業団	戦略的基礎研究 高効率ナノモーターとしてのプロトンポンプの分子機構解明	27,700

生体情報制御学研究分野

教授	山口 明人
助手	村上 聡、平田 隆弘
学振特別研究員(PD)	中島 良介
CREST 研究員(PD)	松本 崇
21 世紀 COE 研究員(PD)	久保 義行
大学院学生	田村 憲久、小林 伸好、平川 秀忠、大川 祐子、斉藤 恵亮、関谷 明香、 山田 純子、 石橋 史旭、稲角 嘉彦、小林 直木、橋本 聡
学部学生	正木 猛、山本 慎也
技術員	村上 千佳子、田村 京子、戸塚 昌子、竹中 ちえみ
技術補佐員	岩田 歩
事務補佐員	西田 真理

a) 概要

生物界には、生体異物排出ポンプとよばれる一群の膜輸送体が広く分布していて、細胞レベルにおけるもっとも基本的な生体防御機構となっていることが近年注目されてきている。本研究分野では、細菌から動物細胞まで、生体異物排出ポンプの構造と機能、生理的役割の解析から、新規排出タンパク遺伝子の検索まで幅広く研究活動を展開している。その研究活動は大きく3つに区分される。(1) 異物排出タンパクの結晶構造解析：異物排出タンパクは、化学構造の大きく異なる幅広い化合物を認識し排出する。そのようなことを可能にする異物認識の分子機構が、基質認識部位のどのような分子構造に支えられているのかはきわめて興味深い未解決のテーマである。この解明は究極的には分子の立体構造を決定することによってしかなされない。私たちは昨年度、細菌の AcrB 多剤排出蛋白質の立体構造決定に世界に先駆けて成功した。これは、異物排出蛋白質として初めてかつプロトン共役型の輸送体としても初の原子立体構造の決定である。(2) 細菌異物排出タンパク遺伝子資源の解析と異物排出タンパク機能と構造に関する分子生物学的解析：我々は既に推定される異物排出タンパク候補遺伝子を細菌の多剤耐性遺伝子資源としてとらえて、すべて発現クローニングし、あらかじめライブラリを構築して解析を進め、この過程で、多数の全く新しい異物排出タンパク遺伝子を発見するとともに、細菌の普遍的な環境適応情報伝達系である二成分情報伝達系が原因となって多剤排出タンパク遺伝子発現が高進して多剤耐性になるという新しい耐性機構を発見した。さらに、昨年度は、二成分情報伝達系の制御因子を32個を全てクローニングし、その薬剤耐性に対する関わりについても調べた。本年度は、二成分情報伝達系やヒストン様蛋白と薬剤耐性因子の発現制御に関して詳細に解析し、Quorum sensing 因子を含むセンサー刺激物質の解明にも迫った。(3) 動物細胞情報伝達物質分泌輸送系の検索とノックアウトマウスによる解析：エキソサイトーシスによって分泌されるのでない、脂質メディエーターなどの情報伝達物質はどのような経路で分泌されているのか全く不明である。私たちは、これらの情報伝達物質も、異物排出タンパクに近縁の ABC 輸送体によって排出されているに違いないと考え、脳および血小板を材料に新規排出タンパク遺伝子の検索を進め、ノックアウトマウスを作成してそれら遺伝子の生理的役割の解明を目指している。

b) 成果

- ・異物排出タンパク AcrB の結晶構造解析、AcrB の部位特異的及びランダム変異導入による重要アミノ酸の解析

私たちは昨年度、異物排出タンパク AcrB の結晶構造解析に成功した。これは、異物排出タンパクで初めての結晶構造決定であるのみならず、プロトン輸送と共役する膜輸送タンパク質では初めての構造決定である。この構造決定によって、初めて溶質の膜輸送が具体的な分子機構に基づいて理解することが可能になり、構造情報と分子生物学的手法による蛋白工学とを組み合わせることで輸送機構の全貌解明を目指している。本年度は、三量体により形成される Central Hole が膜貫通領域中央に存在し、基質透過

経路となっている可能性があるので、Central Hole に面する膜貫通領域 8 番全域と膜貫通領域 8 番上方の Flexible Region に含まれる 5 残基の計 28 個の Cys 変異体を構築し、NEM との結合により環境を調べたが、すべて NEM と反応しなかったため、Central Hole は脂質で満たされた環境にあり、基質透過経路ではないと結論した。結晶構造から異物は側面の溝を基質透過経路として flip-flop 様式により膜輸送されると推定した。膜貫通領域 9 番の変異体では、G908C と A912C が多くの化合物に対し耐性が低下しこの推定を支持した。また、変異導入したシステイン間の架橋形成により、構造情報から推定していた TolC と AcrB のドッキングを、初めて生化学的にその存在を明らかにした。現在プロトン透過経路に関しても解析を進めている。また、耐性が低下するランダム変異導入を行い、TolC docking, Pore, Transmembrane の各 domain から約 80 の変異体を得て解析を行い、さらに基質特異性の異なる AcrD と AcrB のキメラ蛋白質の作製も行っており、詳細な基質輸送経路も解明を目指している。

・細菌の情報伝達による異物排出蛋白質の発現制御ネットワークの解明

我々は、大腸菌のゲノム上に 20 種類の異物排出蛋白質が存在していることを明らかにしたが、そのほとんどは標準培地中では発現していないと考えられている。大腸菌には病原因子などの遺伝子発現調節を行う細胞間情報伝達物質として AI-2 やインドールなどが知られており、それらの細胞外への分泌は厳密に制御されていると考えられる。そこでこれらの物質が排出蛋白質の発現を誘導するのではないかと考え検証を行い、インドールによって 7 種類の異物排出蛋白質 (acrD, acrE, cusB, emrK, mdtA, mdtE, yceL) の発現が顕著に誘導されることを見出した。二成分情報伝達系 BaeSR、CpxAR を欠損させた株では acrD と mdtA の発現誘導が大きく抑制された。酸条件下で機能する転写制御因子 GadX を欠損させた場合には mdtE の発現誘導が完全に消失した。mdtE や yji0 をはじめとする数種類の排出蛋白質遺伝子の転写量が Quorum sensing 因子である AI-2 によって発現誘導が観察された。また、MdtEF は幅広い範囲の化合物を基質として排出しているが、MdtEF の基質となる化合物は顕著な発現誘導を示さず、細胞壁構成成分の N-アセチルグルコサミンを加えたときに発現が約 10 倍上昇した。異物排出蛋白質の発現量はインドールや AI-2 といった細胞間情報伝達シグナルや細胞壁構成成分によって調節されていることが明らかとなった。また、異物排出蛋白質を負に制御する因子の探索、H-NS や Hfq などの核様体蛋白質による異物排出蛋白質の発現制御にも受けていることも見出した。

・脳に発現する新規 ABC 輸送体 ABCA5 のクローニングとノックアウトマウスの解析

我々はマウス脳に発現する新規 ABC 輸送体 ABCA5 をクローニングし、その臓器発現を調べ、脳、精巣に主に発現していることを明らかにしている。その脳における機能を調べるため、ノックアウトマウス作成に成功した。ノックアウトマウスは発育不良であり、多頻度で拡張型心筋症を引き起こして 10 から 12 週令以降に高頻度で致死となる。心臓以外には甲状腺の崩壊も生じ、また脂肪の蓄積や肝の肥大、眼球突出などの異常も観察された。ラットリンパ節法により抗マウス ABCA5 モノクローナル抗体を作成し蛋白レベルでの発現解析に成功した。ABCA5 が強制発現細胞内ではリソゾームに局在し、組織においては、脳、肺、心臓、甲状腺で検出され、特に脳内ではオリゴデンドロサイトに分布していることを明らかにした。

・血小板におけるスフィンゴシン 1 リン酸の放出輸送体の同定

血小板は、S1P の開裂酵素が欠損しスフィンゴシンのリン酸化酵素の活性が高いため S1P が多量に蓄積している。無刺激時に蓄積されている S1P はトロンピンなどの刺激により血小板の外へと放出される。我々はこの放出反応が排出輸送体によって担われていると考え、輸送体のエネルギー源を明らかとするために種々のイオノフォアの効果を検討した。その結果、トロンピン刺激に伴う放出反応は水素イオン、ナトリウムイオン、カリウムイオン勾配に依存しないことが明らかとした。今後、この輸送に関わるエネルギー源を明らかにするとともに、反転膜内への S1P の取込みの測定系を確立し輸送体の同定を試みる。

・新規マウス RND 型膜蛋白質の検索と発現解析

バクテリアの RND 型膜輸送体である AcrB は異物排出を担い、バクテリアの薬剤耐性に関与している。高等動物において、AcrB と相同性を有する蛋白質として Niemann-Pick 病原因遺伝子 NPC1 が知られている。NPC1 のような哺乳類型 RND 膜輸送体が他にも存在するとすれば、その生態における役割は大変に重要であると予想される。本年度、我々は哺乳類型 RND 膜輸送体と考えられる新規遺伝子を相同解析により検索し、Sterol-sensing domain (SSD) をもつ 3 種の新規遺伝子を得た。また、その転写レベルでの臓器解析を行なった結果、各遺伝子が特異的な臓器発現を示したことから臓器特異的な役割をもつことが期待された。特にその新規遺伝子の 1 つである RNDEu-3 はその発現経時変化から精巢の成熟に関与する可能性も考えられた。

[原著論文]

Comprehensive Studies of Drug Resistance Mediated by Overexpression of Response Regulators of Two-Component Signal Transduction Systems in *Escherichia coli*, H. Hirakawa, K. Nishino, T. Hirata, and A. Yamaguchi : J. Bacteriol., 185, (2003) 1851-1856.

Global Analysis of Genes Regulated by EvgA of the Two-Component Regulatory System in *Escherichia coli*, K. Nishino, Y. Inazumi, and A. Yamaguchi : J. Bacteriol., 185, (2003) 2667-2672.

Cloning of Rat ABCA7 and Its Preferential Expression in Platelets, M. Sasaki, A. Shoji, Y. Kubo, S. Nada, and A. Yamaguchi: Biochem. Biophys. Res. Commun., 304, (2003) 777-782.

Membrane Topology of ABC-type Macrolide Antibiotic Exporter MacB in *Escherichia coli*, N. Kobayashi, K. Nishino, T. Hirata, and A. Yamaguchi: FEBS Lett., 546, (2003) 241-246.

Roles of TolC-dependent Multidrug Transporters of *Escherichia coli* in Resistance to β -lactams, K. Nishino, J. Yamada, H. Hirakawa, T. Hirata, and A. Yamaguchi: Antimicrob. Agents Chemother., 47, (2003) 3030-3033.

β -lactam Resistance Modulated by the Overexpression of Response Regulators of Two-Component Signal Transduction Systems in *Escherichia coli*, H. Hirakawa, K. Nishino, J. Yamada, T. Hirata, and A. Yamaguchi: J. Antimicrob. Chemother., 52, (2003) 576-582.

Crystal Structure of Bacterial Multidrug Efflux Transporter AcrB, A. Yamaguchi, S. Murakami, R. Nakashima and E. Yamashita: FASEB J. 17, (2003) A1185(part2) suppl. S.

Mechanisms of Drug/H⁺ Antiport: Complete Cysteine-Scanning Mutagenesis and the Protein Engineering Approach, N. Tamura, S. Konishi, and A. Yamaguchi: Curr. Opin. Chem. Biol., 7 (2003) 570-579.

Multidrug-Exporting Secondary Transporters, S. Murakami, and A. Yamaguchi: Curr. Opin. Struct. Biol., 13 (2003) 443-452.

[解説、総説]

異物排出トランスポーターの結晶構造、ついに決まる、村上 聡、山口 明人: 蛋白質・核酸・酵素, 48,

(2003), 26-32.

多剤排出トランスポーターAcrBの結晶構造解析, 村上 聡: 生物工程 81, (2003)155-160.

大腸菌多剤排出トランスポーターAcrBの結晶構造解析, 村上聡、中島良介、山下栄樹、山口明人:
放射光 16 (2003) 204.

大腸菌多剤排出トランスポーターAcrBの結晶構造解析, 村上聡、中島良介、山下栄樹、山口明人:
日本結晶学会誌 45 (2003) 256-261

薬剤排出蛋白質遺伝子資源の解析に関する研究 (黒屋奨学賞受賞論文), 西野邦彦: 日本細菌学雑誌、
58 (2003) 581-594.

[国際会議]

Crystal Structure of Bacterial Multidrug Efflux Transporter AcrB (Invited), *A. Yamaguchi, S. Murakami, R. Nakashima and E. Yamashita ASBMB Annual Meeting 2003 San Diego Convention Center, USA, April 12-16, 2003.

Comprehensive Analysis of Two-component Signal Transduction System Induced Multidrug Resistance in *Escherichia coli*. (Poster) *H. Hirakawa, K. Nishino, J. Yamada, Y. Inazumi, T. Hirata, A. Yamaguchi, American Society for Microbiology 103rd General Meeting, Washington DC Convention Center, USA, May 18-22, 2003.

Histone-like Protein H-NS Controls the Expression of AcrEF and YhiUV Multidrug Transporters in *Escherichia coli*. (Poster) *K. Nishino, T. Hirata, T. Honda and A. Yamaguchi, American Society for Microbiology 103rd General Meeting, Washington DC Convention Center, USA, May 18-22, 2003.

Identification of Functional Amino Acids in AcrB Multidrug Transporter of *Escherichia coli*. (Poster) A. Saito, *T. Hirata, S. Murakami and A. Yamaguchi, American Society for Microbiology 103rd General Meeting, Washington DC Convention Center, USA May 18-22, 2003.

Crystal Structure of Bacterial Multidrug Efflux Transporter AcrB (Invited), *S. Murakami, R. Nakashima, T. Matsumoto, E. Yamashita and A. Yamaguchi: International Symposium on Diffraction Structural Biology, Tsukuba, Japan, May 28-31, 2003.

Crystal Structure of Multidrug Efflux Transporter AcrB and Its Functional Implications (Invited) *A. Yamaguchi, S. Murakami, R. Nakashima and E. Yamashita: Gordon Research Conferences (Molecular & Cellular Bioenergetics) Kimball Union Academy, USA, June 22-29, 2003.

X-ray Crystallographic Analysis of Multidrug Efflux Transporter AcrB (Invited): *S. Murakami, RIKEN/BBSRC Joint Symposium, Japan-UK Membrane Protein Structure Biology -Towards high-throughput membrane protein crystallography and related technology- SPring-8 Public Relation Hall, Harima, Himeji, Japan, Sep. 11, 2003.

Structure and Function of the Xenobiotic Efflux Transporter (Invited), *A. Yamaguchi: International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), ISIR,

Osaka Univ, Osaka, Japan Dec. 8-9, 2003.

Research Developments in the Nano-Bioscience Group (Invited), *A. Yamaguchi, M. Futai, K. Tanizawa, H. Sasai, T. Majima, H. Iwasaki and N. Kato: Second 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience", 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science - Perspectives in Nanoscience -, Ichō-Kaikan, Osaka Univ. Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Comprehensive Analysis of Two-component Signal Transduction System Induced Multidrug Resistance in *Escherichia coli*, (Poster) *H. Hirakawa, J. Yamada, Y. Inazumi, T. Masaki, T. Hirata and A. Yamaguchi: Second 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience", 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science - Perspectives in Nanoscience -, Ichō-Kaikan, Osaka Univ. Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Structure and Function of Multi-drug Efflux Transporter (Poster), *S. Murakami and A. Yamaguchi: Second 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience", 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science - Perspectives in Nanoscience -, Ichō-Kaikan, Osaka Univ. Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Structure and Function of Multi-drug efflux transporter (Invited), *S. Murakami and A. Yamaguchi, ISCINN'04: International Symposium on the Creation of Novel Nanomaterials, Ichō-Kaikan, Osaka Univ. Osaka, Japan, Jan. 20-22, 2004.

[国内学会]

第76回日本細菌学会総会	6 件
第50回日本生化学会近畿支部例会	5 件
「膜輸送ナノマシンの構造・作動機構とその制御」公開シンポジウム	1 件
第32回薬剤耐性菌シンポジウム	1 件
第16回微生物シンポジウム	1 件
第76回日本生化学会大会	10 件
第25回生体膜と薬物の相互作用シンポジウム	3 件
第50回日本化学療法学会東日本支部会、第52回日本感染症学会地方会、 および第86回日本細菌学会関東支部会の合同学術集会	1 件
第26回日本分子生物学会年会	4 件
日本生体エネルギー研究会(JBEG)第29回討論会「膜と輸送とエネルギー」	3 件
「大学と科学」公開シンポジウム-タンパク質のかたちから生命のなぞを解く	1 件
熊本大学拠点形成B「原子レベルの生命機能と細胞システムへの展開」主催 ミニシンポジウム 「原子レベルで見た膜蛋白質」	1 件
日本薬学会第124年会	7 件

[取得学位]

修士(薬学)

大川 裕子	大腸菌主要異物排出蛋白 AcrB ランダム変異導入による機能解析
齋藤 恵亮	新規 ABCG ファミリー遺伝子のクローニングと解析
関谷 明香	新規 ABCA ファミリー遺伝子 ABCA5 ノックアウトマウスの解析
山田 純子	大腸菌異物排出蛋白による -ラクタム剤耐性と発現制御機構

[科学研究費補助金]

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

特定領域研究 (B)

山口 明人 アンチポーター型有機物質排出トランスポーターのナノ構造と作動機構 29,700

基盤研究 (S)

山口 明人 細菌異物排出タンパク遺伝子資源のポストゲノム解析と新しい耐性機構の解明 20,000

特別研究員奨励費

中島 良介 異物排出膜輸送体の X 線構造解析 1,200

田村 憲久 ポリトピック型膜タンパク質トポロジー形成原理の解明 1,000

小林 伸好 グラム陰性菌初の ABC 型薬剤排出輸送体 MacAB の構造 900

[研究助成金]

平田 隆弘 アストラゼネカ株式会社 2,000

[受託研究]

山口 明人 科学技術振興事業団 異物排出トランスポーターの構造機能解析と 43,200
CREST 多剤耐性機構の解明

山口 明人 科学技術振興事業団 同上 4,550
CREST (受託)

村上 聡 科学技術振興事業団 薬剤耐性化問題の克服を目指した多剤排出蛋 9,480
さきがけ研究 21 白質の薬剤認識機構の解明とその応用

村上 聡 科学技術振興事業団 同上 650
さきがけ研究 21(受託)

平田 隆弘 農業技術研究機構 (受託) 大腸菌の薬剤耐性獲得に関する分子制御機構 3,000
解明

(上記の他に分担者として配分されたもの)

山口 明人 科学研究費補助・COE 形成 高次機能調和材料創成の原子・分子プロセッ 7,000
基礎研究費 シング

21 世紀 COE

山口 明人 新産業創造指向インターナノサイエンス 6,941
(異物排出蛋白結晶構造解析)

村上 聡 人工酵素の開発 1,000

田村 憲久 大腸菌異物排出ナノマシン AcrB-ToIC の複合体形成について 400

小林 伸好 血小板におけるスフィンゴシン 1 リン酸の放出輸送体の同定 400

平川 秀忠 細菌の情報伝達による異物排出ナノマシン (蛋白質) の発現制御ネット 400
ワークの解明

量子ビーム科学研究部門

概要

量子ビームとは量子力学的な現象を物質や材料に誘起する全ての種類の放射線ビームの総称である。量子ビームには、レーザー、X線、放射光、 γ 線や自由電子レーザーなどの光量子ビームと、電子線、陽電子線、ミュオンビームやイオンビームなどの荷電粒子ビーム、ならびに中性子ビーム等多くの種類がある。量子ビーム科学は放射線科学から発展して来た研究領域であるが、近年著しく発展しつつある新しい高輝度・高品質の量子ビームの発生・制御・計測の研究と、この新しい量子ビームが物質中で引き起こす基礎過程の研究、ならびにこの量子ビーム誘起現象の正確な理解に基づいた物質科学への応用に関する研究を行う。

量子ビーム科学研究部門は、量子ビーム発生科学研究分野と量子ビーム物質科学研究分野より構成される。量子ビーム発生科学研究分野では量子ビーム発生の主要な装置である加速器に関する研究とそれに基づいた新しい量子ビームの発生や制御ならびに計測の研究を行い、量子ビーム物質科学研究分野では量子ビーム誘起現象を解明する基礎研究と、その物質科学への応用、すなわち新しい機能性材料や極限材料等の物質創製と応用に関する基礎研究を行う。両者は量子ビームの発生とその物質科学への応用という観点で密接な関係を持ち研究を進める。さらに当部門は放射線実験所との密接な協力のもとに国立研究所等とは視点の異なる大学の特徴を活かした先端的な研究を行う。また、近年、新しい種類の高輝度・高品質ビームの発生や物質科学へのビーム応用が行える多くの加速器が国内外で開発・建設されているが、これらの新しい加速器を開発するための共同研究や加速器からのビームを利用した研究も積極的に進めていく。

成果

- ・Lバンド電子ライナックの大規模改修とその立上げを行なった。
- ・エッジ集束ウイグラーと名付けた強い集束力を持つウイグラーの試作機を作製してその特性を評価する研究を行っている。
- ・タイの放射光光源加速器システム（Siam Photon Source）の性能向上を目指した研究を行っている。四極磁石のコイルに問題が有るのが分かり、状態の悪い4個のコイルを交換してビーム寿命を伸ばすことに成功した。
- ・代表的な高分子材料の放射線化学反応を初めて初期過程から系統的に明らかにした。
- ・フェムト秒電子線パルスとフェムト秒レーザーを同期させた新規のパルスラジオリシスを用いて、2ピコ秒の時間領域で初めて放射線化学反応を直接観測するのに成功した。
- ・半導体の超微細加工の主反応である高感度レジストの光・放射線反応機構を解明した。
- ・新規材料である σ 共役系高分子の物性解明と量子ビームによる高機能化を行った。
- ・高分子のイオン照射効果の実験に基づいて、架橋・分解の理論の見直しを行った。
- ・低速陽電子を用いて、高分子材料の機能発現機構の解明と高機能化の研究を行った。

量子ビーム発生科学研究分野

教授	磯山 悟朗
助教授	加藤 龍好
助手	池田 稔治、柏木 茂
大学院学生	井合 哲也、三原 彰仁、岡本 主税、野田 典孝
学部学生	古林 健司

a) 概要

粒子加速器は基礎科学から産業まで広く利用されている。当研究分野は、高輝度電子ビームや光、陽電子ビームなど量子ビームの発生という観点から加速器をとらえて研究している。加速器は人工物であるが、極限性能を追求すると非線形性や集団運動などの興味有る物理の基本問題が現れる。新しい量子ビームは人が見る事の出来る世界を広げるので基礎研究から応用まで広い範囲の利用が期待できる。具体的には、電子線形加速器による高エネルギー・高輝度電子ビームの発生とそれに伴う電子ビームのダイナミクスの研究や線形加速器からの電子ビームを用いて赤外からミリ波までの自由電子レーザー（FEL）の実用化へ向けての開発研究、X線レーザーを実現する有力な手法と期待されている SASE（Self-Amplified Spontaneous Emission）の赤外領域での基礎研究を行っている。これに加えてタイ国立放射光科学研究所と光源加速器に関する共同研究を行っている。

b) 成果

・Lバンド電子ライナックの改造

14年3月末に発注したLバンドライナックの機器が全て納入され、4月からは、現場で個別機器の性能確認試験を行った。5月に老朽化した制御用配線と出入力配線を撤去し、6～7月に計算機制御系を構築した。8～9月で初期の動作試験と制御ソフトウェアの修正を行い、10月から本格的な試験運転を開始した。12月にはデータベースシステムが稼動を開始して、機器の不具合の発見に利用されている。

納入された機器の中で最も重要なクライストロン用パルスモジュレーターのパルスごとの変動は、充電電圧のモニター回路の見直しにより、仕様である0.1%以内を達成した。長パルスモードでのパルス平坦度に関しては、全長8 μ sの内5.5 μ sで0.1%を達成した。問題があった箇所は、RF輸送路での放電である。バンチャー系輸送路に使われる2台の90度回転器とプリバンチャー系の方向性結合器、バンチャー系の移相器である。2台の90度回転器とプリバンチャー用方向性結合器には放電対策を行い、問題を解決した。バンチャー用移相器は、新しいものを製作して交換することにした。最終的に残された問題は、クライストロンから出力されるRFパワーに細かい不規則な変動が観測されることである。現在原因の究明を進めている。

・SASE用高性能ウイグラーの開発研究

電子ビームに強い集束力を与えてビームサイズを絞り、SASEの増幅率を高める新しい型のウイグラーを開発している。このウイグラーは磁石の角集束を利用したHalbach型ウイグラーであり、エッジ集束ウイグラーと名付けた。5周期のモデルウイグラーを試作して、磁場測定を行いその特性を評価した。モデルウイグラーの主要なパラメータは、遠赤外FELとSASEの開発研究に使用しているウイグラーと同様に周期長6cmで磁極ギャップ30mmの時0.43Tの最大磁場を発生する。我々が使用する電子ビームエネルギー10MeVから20MeVの範囲では、ウイグラーの鉛直方向の集束力が強いので、弱集束方式により水平と鉛直方向に対して同時にほぼ等しい力で電子ビームを集束するようにエッジ角を2度とした。また、永久磁石が持つ磁化強度と磁化軸角度誤差を打ち消して、理想的なウイグラー磁場を作る新しい方式を提案して、モデルウイグラーで実際に試験をした。磁場測定とデータ解析は現在進行中である。

・放射光光源の開発研究

Siam Photon Source と名付けられた放射光光源加速器システムの性能向上に関する研究をタイの国立放射光研究所と共同で進めている。昨年度は、ストレージリングの最大貯蔵電流も 150 mA を越え、立ち上げ成功後の性能向上に取り組んでいた。しかし、電子ビームの寿命が延びないことや、しばしば電子ビームの入射が不能になるなど、予想外の事態が起きた。ストレージリングのベータatron関数の測定を行ったところ、ストレージリングが本来持つべき4回対称性が大きく乱されていること、ベータatron関数の最大値が 50 m を越える部分があることが判明した。四極磁石の不具合が疑われたので、コイルの電極間電圧を測定したところ、多くのコイルで、内部短絡があることが分かった。中でも、短絡が時間的に起こるコイルが3個見付き、これが運転状態の再現性の無さや突然のビーム損失の原因であることが分かった。もっとも問題のある4個のコイルを緊急に作り交換すると、入射効率と貯蔵電流、ビーム寿命が大幅に改善し、最大電流は 200 mA を越え、寿命も 100 mA で7時間まで延びた。そこで SORETC から寄贈されたストレージリング用4極磁石16台のコイル64個全てを交換することにして、準備を進めている。

[原著論文]

Proposal for the Edge-Focusing Wiggler for SASE, G. Isoyama, M. Fujimoto, R. Kato, S. Yamamoto, K. Tsuchiya: Nucl. Instr. and Meth. A507 (2003) 234-237.

Characteristic Measurements of Higher Harmonics Generated in the SASE-FEL, R. Kato, M. Fujimoto, T. Igo, S. Isaka, T. Onishi, S. Furukawa, S. Okuda, S. Suemine, G. Isoyama: Nucl. Instr. and Meth. A507 (2003) 409-412.

Control System for Siam Photon Source, R. Apiwatwaja, G. Hoyes, G. Isoyama, T. Ishii and W. Pairsuan: Nucl. Instr. Meth. B199 (2003) 517-519.

[国際会議]

Development of the Edge-Focusing Wiggler for SASE, (Poster) *S. Kashiwagi, A. Mihara, R. Kato, G. Isoyama, S. Yamamoto and K. Tsuchiya, The 25th International Free electron Laser Conference, Tsukuba, Ibaraki, Japan, Sep. 8-12, 2003.

Stability Analysis of the RF Linac Based on an AR Model, (Poster) *R. Kato, S. Isaka, H. Sakaki, S. Kashiwagi and G. Isoyama, The 25th International Free electron Laser Conference, Tsukuba, Ibaraki, Japan, Sep. 8-12, 2003.

Upgrade of the L-band Linac at ISIR, Osaka University for Highly Stable Operation, (Poster) *R. Kato, G. Isoyama, S. Kashiwagi, T. Yamamoto, S. Suemine, Y. Yoshida, Y. Honda, T. Kozawa, S. Seki and S. Tagawa, The 25th International Free electron Laser Conference, Tsukuba, Ibaraki, Japan, Sep. 8-12, 2003.

Measurement of the Longitudinal Wake Field in the L-band Linac at ISIR, (Poster) *T. Igo, R. Kato, S. Kashiwagi, A. Mihara, C. Okamoto, T. Noda, K. Kobayashi and G. Isoyama, The 25th International Free electron Laser Conference, Tsukuba, Ibaraki, Japan, Sep. 8-12, 2003.

Development of the Far-Infrared FEL and SASE at ISIR, Osaka University, (Poster) *G. Isoyama, R. Kato, S. Kashiwagi, S. Suemine, T. Igo, A. Mihara, C. Okamoto, T. Noda and K. Kobayashi, The 25th International Free electron Laser Conference, Tsukuba, Ibaraki, Japan, Sep. 8-12, 2003.

Oxidative Degradation of CR-39 Track Detector in the Surface Region during Gamma-Radiation, (Poster) *T. Yamauchi, Y. Somaki, H. Nakai, K. Oda, T. Ikeda, H. Honda and S. Tagawa, The 5th International Symposium on Ionizing Radiation and Polymers, Sainte-Adele, Quebec, Canada, September, 2003.

[国内学会]

リニアック技術研究会	7 件
加速器科学研究発表会	4 件
日本放射線安全管理学会第 2 回学術大会,研究交流センター, つくば市	1 件
第 17 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, つくば国際会議場, つくば市	2 件

[取得学位]

修士(理学)

三原 彰仁 エッジフォーカスウイグラーの開発研究

[科学研究費補助金]

(代表者として配分されたもの)

単位: 千円

萌芽研究

磯山 悟朗 新しい手法による放射光光源加速器の高輝度化	2,600
-----------------------------	-------

[共同研究]

(代表者として配分されたもの)

単位: 千円

磯山 悟朗 KEK 共同開発研究 X 線 SASE 実現のための長波長領域での基礎研究	1,000
---	-------

量子ビーム物質科学研究分野

教授	田川 精一
助教授	山本 幸男
助手	小林 一雄、佐伯 昭紀
事務補佐員	木藤 穂
大学院学生	寺島 孝武、佃 諭志、藤堂 統之、宮本 浩次、小泉 美子、山本 洋揮
学部学生	土井 雄介、山上 隆平
学振特別研究員	田代 睦、Anjali ACHARYA

a) 概要

量子ビーム物質科学研究分野は放射線化学初期過程や照射効果における線質効果の研究、高機能性高分子、マイクロエレクトロニクス用高分子、生体分子に対する光・放射線反応についての研究、及びこれら高分子材料応用のための物性研究を行っている。現在の研究の中心は、1)放射線化学初期過程や照射効果における線質効果 2)非炭素骨格を持つ高分子や 共役高分子等の高機能性高分子の設計・合成や、量子ビームを用いた電子構造解析・物性評価、放射線誘起反応の研究 3)半導体プロセス中で使用される高分子材料であるレジスト材料の反応解明・制御 4)生体における放射線損傷過程の解明として、活性酸素やラジカル種と生体分子との反応中間体の挙動、電子移動過程 等について研究を進めている。

b) 成果

・放射線化学初期過程の解明

放射線化学初期過程は、放射線と物質の相互作用の出発点であり、放射線化学反応全体を知る上でも重要である。放射線実験所との共同で、レーザー同期ピコ秒パルスラジオリシス法により、有機凝縮相中におけるラジカル、励起状態、電子などの生成に伴う過渡吸収分光を行い、世界で初めてサブピコ秒の時間領域で起こる反応のダイナミクスを直接観測することに成功した。高分子材料等の過渡活性種の挙動についての研究が進行している。

芳香族分子の放射線誘起反応の研究

芳香族系高分子は放射線に対する高いエッチング耐性を示し、多くのレジストにおいてベース樹脂として利用されている。このような芳香族系高分子の放射線誘起反応機構を理解することは、次世代ナノリソグラフィ用レジストの開発指針を得るために重要であると考えられる。本研究ではベンゼン、トルエン等の芳香族分子をモデル化合物としてとらえ、ナノ・ピコ・サブピコ秒パルスラジオリシス法、低温マトリクス法により、これらの芳香族分子の放射線誘起反応を解明した。また分子科学的にも重要であるラジカルカチオン種に着目し、このダイナミクスの解明を行った。

・主鎖共役高分子についての研究

飽和高分子ながら分子内に広がった共役系を有すると考えられるポリシラン・ポリゲルマンは、1次元らせん骨格構造をとると考えられ、このらせんの「巻き」を制御することにより、主鎖共役系がダイナミックに変化することを明らかにした。光伝導性や高分子反応等の物理的特性・物理化学反応過程が大きく変化し、高分子骨格のミクロ構造と物性との強い相関を示すとともに、各種機能を有するシリコン・ゲルマニウム骨格高分子の設計指針の確立と1次元量子細線としての可能性を指摘した。

・化学増幅型レジストの反応機構

次世代電子線・X線用レジストとして開発が進められている化学増幅型レジストの放射線反応過程をパルスラジオリシス法およびX線露光後の分光分析により調べ、酸発生機構におけるイオン分子反応の役割を明確にした。また次世代のリソグラフィ技術であるエキシマレーザー暴露に伴う反応を追跡し

放射線による反応との違いを明確にした。

・イオンビーム照射効果の基礎過程

荷電粒子ビームの全く新しい応用形態として、これらビームによる高密度エネルギー付与・励起を利用し、新しいナノスケール素子の形成手法を提案した。特に高分子中にイオンビームが入射した際、飛跡に沿ってトラック構造と呼ばれる非常に高密度の反応中間体集合が形成され、ここでの特殊な物理化学反応から、トラック外部には全く影響を与えずに元の形質を維持したまま、非常に微細な空間領域にのみ新しい微細構造体を形成すると同時に、極めて高度にサイズ・構造制御されたナノ構造集合体の形成に成功した。

・パルスラジオリシス法を用いた生体系の研究

DNA の放射線損傷における直接効果におけるモデル反応として、有機溶媒に可溶性 DNA の調製法を確立させ、アントラキノンの光増感により DNA 塩基上にホールを生成させ、その電荷移動過程を時間分解マイクロ波吸収法により測定した。

[原著論文]

Subpicosecond Pulse Radiolysis Study of Geminate Ion Recombination in Liquid Benzene, K. Okamoto, A. Saeki, T. Kozawa, Y. Yoshida, and S. Tagawa: Chem. Lett. 32 (2003) 834.

Direct Observation of Guanine Radical Cation Deprotonation in Duplex DNA Using Pulse Radiolysis, K. Kobayashi and S. Tagawa: J. Am. Chem. Soc. 125 (2003) 10214.

The Interaction between Polymer Thin Films and Positron from Slow Positron Beam, K. Miyamoto, Y. Terashima, M. Tashiro, Y. Honda, and S. Tagawa: J. Photopolym. Sci. Technol. 16 (2003) 411.

Relation between spatial resolution and reaction mechanism of chemically amplified resists for electron beam lithography, T. Kozawa, A. Saeki, A. Nakano, Y. Yoshida, and S. Tagawa: J. Vac. Sci. Technol. 21 (2003) B3149.

Dependence of Outgassing Characters at a 157 nm Exposure on Resist Structures, Y. Matsui, S. Umeda, S. Seki, S. Tagawa, S. Ishikawa, and T. Itani: Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2003) 3894.

Pulse Radiolysis Study of Radical Cations of Polysilanes, T. Kawaguchi, S. Seki, K. Okamoto, A. Saeki, Y. Yoshida, and S. Tagawa: Chem. Phys. Lett. 374 (2003) 353.

Transient Absorption Spectroscopy of Radical Ions of Rigid Anti- and Syn-tetrasilane, S. Seki, Y. Matsui, S. Tagawa, H. Tsuji, and A. Toshimitsu, K. Tamao: Chem. Phys. Lett. 380 (2003) 141.

Nonisothermal Crystallization Kinetics of Biodegradable Random Poly(3-hydroxybutyrate-co-3-hydroxyvalerate) and Block one, S. Chanprateep, K. Kikuya, H. Shimizu, S. Seki, S. Tagawa, and S. Shioya: J. Chem. Eng. Jpn. 36 (2003) 639.

Nano-wire Formation and Selective Adhesion on Substrates by Single Ion Track Reaction in Polysilanes, S. Seki, S. Tsukuda, Y. Yoshida, T. Kozawa, S. Tagawa, M. Sugimoto, and S. Tanaka: Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2003) 4159.

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, and S. Tagawa: Radiat. Phys. Chem. 68 (2003) 501.

Influence of Radiation-induced Species on Positronium Formation in Poly(methylmethacrylate) at Low Temperature, M. Tashiro, C.Y. Tseng, S. Seki, Y. Honda, and S. Tagawa: Radiat. Phys. Chem. 68 (2003) 475.

Study of Nano-Space in Au-Polysilane Interfaces by Slow Positron Beam, Y. Terashima, S. Seki, M. Tashiro, Y. Honda, and S. Tagawa: J. Photopolym. Sci. Technol. 16 (2003) 445.

The Study of Nano-space in polyhydroxystyrene/polystyrene bilayer by slow positron beam, Y. Terashima, M. Tashiro, K. Miyamoto, Y. Honda and S. Tagawa: Radiat. Phys. Chem. 68 (2003) 589.

Cross-linked Polymer Nanowires with Controlled Shape and Orientation by High Energy Single Ion Hitting, S. Tsukuda, S. Seki, S. Tagawa, M. Sugimoto, A. Idesaki, and S. Tanaka: J. Photopolym. Sci. Technol. 16 (2003) 433.

Promotion of Thermal Dehydration of Poly(vinyl alcohol) Film by Diphenyliodonium Salt, Y. Yamamoto and S. Tagawa: Chem. Lett. 31 (2003) 572.

Effect of Poly(vinyl alcohol) on Radiation-induced Acid-generation of Diphenyliodonium Salt, K. Sakai, Y. Yamamoto, and S. Tagawa : J. Photopolym. Sci. Technol. 16 (2003) 19.

Behavior of positronium in polystyrene and its derivatives, Y. Honda, M. Watanabe, M. Tashiro, Y. Terashima, K. Miyamoto, N. Kimura and S. Tagawa: Radiat. Phys. Chem. 68 (2003) 463.

Dependence of Outgassing Characters and Total Amount of Outgassed Species at 157 nm Exposure on the Structures of Resist Base Polymer, Y. Matsui, S. Umeda, S. Matsui, S. Seki, S. Tagawa, S. Ishikawa, T. Itani: Proc. SPIE 5039 (2003) 121.

[総説、解説]

Study of Organic Polymer Thin Film Etching by Plasma Beam Irradiation", A. Egami, K. Kurihara, T. Yagishita, Y. Yamaoka, M. Nakamura, T. Kawachi, S. Seki, and S. Tagawa, Proc. DPS 55, 2003

[国際会議]

Outgassed Species from Various Triphenylsulfonium Salts during 157 nm, Y. Matsui, S. Seki, S. Tagawa, S. Irie, T. Itani: 4th International Symposium on 157 nm Lithography, Tokyo, Japan, Aug. 25-28, 2003.

Effects of Ester Groups on Proton Generation and Diffusion in Polymethacrylate Marices, A. Nakano, K. Okamoto, T. Kozawa, and S. Tagawa: Microprocess and Nanotechnology Conference, Tokyo, Japan, Oct.28-31, 2003.

Polymer Screening Method for Chemically Amplified Electron Beam and X-Ray Resists, H. Yamamoto, A. Nakano, K. Okamoto, T. Kozawa and S. Tagawa: Microprocess and Nanotechnology Conference, Tokyo, Japan, Oct. 28- 31, 2003.

Outgassed Species from 157-nm-Irradiated Triphenylsulfonium Salts, Y. Matsui, S. Seki, S. Tagawa, S. Irie, T. Itani: Microprocess and Nanotechnology Conference, Tokyo, Japan, Oct. 28- 31, 2003.

Applications of Polysilanes for a Negative-Tone Resist in Ion Beam Lithography, Y. Matsui, S. Seki, S. Tsukuda, T. Kozawa, and S. Tagawa: Microprocess and Nanotechnology Conference, Tokyo, Japan, Oct. 28- 31, 2003.

Fabrication of Molecular Photoelectronic Device Using Polysilane Nanowires, S. Tsukuda, S. Seki, A. Saeki, T. Kozawa, S. Tagawa, M. Sugimoto, A. Idesaki, S. Tanaka: Microprocess and Nanotechnology Conference, Tokyo, Japan, Oct. 28- 31, 2003.

Pulse Radiolysis Study on Proton and Charge Transfer Reactions in Poly (Methyl Methacrylate), A. Nakano, K. Okamoto, T. Kozawa and S. Tagawa: 12th International Congress of Radiation Research, Brisbane, Australia Aug. 17-22, 2003.

Adjacent Effect on Positive Charge Transfer from Radical Cation of n-Dodecane to Scavenger Studied by Subpicosecond Pulse Radiolysis, Statistical and Monte Carlo Approach, A. Saeki, T. Kozawa, Y. Yoshida and S. Tagawa: 12th International Congress of Radiation Research, Brisbane, Australia Aug. 17-22, 2003.

Oriented Nano-Wire Formation by Single Ion Track Reaction in Polysilane, S. Seki, S. Tsukuda, S. Tagawa, M. Sugimoto, A. Idesaki, S. Tanaka and A. Oshima, Idesaki, S. Tanaka and A. Oshima, 12th International Congress of Radiation Research 2003, Aug. 17-22, Brisbane, Australia.

Subpicosecond Pulse Radiolysis Study of Solvated Electron in Alcohols, T. Kozawa, Y. Numata, A. Saeki, K. Okamoto, Y. Yoshida, and S. Tagawa, 12th International Congress of Radiation Research 2003, Aug 17-22, Brisbane, Australia.

Modeling of Nano-Wires by Single Ion Hitting for Si-Based Polymers, S. Tsukuda, S. Seki, S. Tagawa, 12th International Congress of Radiation Research 2003, Aug. 17-22, Brisbane, Australia.

The Relation between Spatial Resolution and Reaction Mechanism of Chemically Amplified Resists for Electron Beam Lithography, T. Kozawa, A. Saeki, A. Nakano, Y. Yoshida and S. Tagawa The 47th International Conference on Electron, Ion and Photon Beam Technology and Nano-fabrication 2003, May 27-30, Florida, USA.

Cross-linked Polymer Nanowires with Controlled Shape and Orientation by High Energy Single Ion Hitting, S. Tsukuda, S. Seki, S. Tagawa, M. Sugimoto, A. Idesaki, S. Tanaka: The 20th Conference of Photopolymer Science and Technology, Chiba, Japan, June 24-27, 2003.

The Interaction between Polymer Thin Films and Positron from Slow Positron Beam, K. Miyamoto, Y. Terashima, M. Tashiro, Y. Honda, S. Tagawa: The 20th Conference of Photopolymer Science and Technology, Chiba, Japan, June 24-27, 2003.

Study of Nano-Space in Au-Polysilane Interfaces by Slow Positron Beam, Y. Terashima, S. Seki, M. Tashiro, Y. Honda, S. Tagawa: The 20th Conference of Photopolymer Science and Technology, Chiba, Japan, June 24-27, 2003.

Study of Interfaces in Polymer bilayers by Slow Positron Beam, Y. Terashima, S. Seki, K. Miyamoto, M. Tashiro, Y. Honda, S. Tagawa: The 13th International Conference on Positron Annihilation, Kyoto, Japan, Sept. 7-12, 2003.

[国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員]

田川 精一 13th Microprocess and Nanotechnology Conference (組織委員)

田川 精一 International Nuclear Conference '02 (組織委員)

[国内学会]

日本放射線化学会	14 件
応用物理学会	3 件
日本化学会	2 件
日本原子力学会	1 件
日本高分子学会	1 件
リニアック技術研究会	7 件
加速器科学研究会	9 件
日本生化学会	1 件
日本分子生物学会	1 件

[取得学位]

博士(工学)

寺島孝武 低速陽電子ビームを用いた高分子多層膜における層間構造の研究

修士(工学)

藤堂 統之 凝縮相中での放射線誘起反応による芳香族ラジカルカチオン種の挙動に関する研究

佃 諭志 高エネルギーイオンビームを用いた高分子ナノ構造体の形成と制御

宮本 浩次 陽電子寿命測定法によるナノ空隙と Ps 形成の高分子構造依存性の研究

[科学研究費補助金]

(代表者として配分されたもの) 単位：千円

基盤研究(A)(2)

田川 精一 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 13,800

基盤研究(B)(2)

小林 一雄	パルスラジオリシス法を用いた末端酸化酵素における電子駆動型 プロトン輸送機構の解明	4,300
-------	--	-------

特定領域研究 (B) (2)

小林 一雄	短寿命活性種をシグナルとするセンサー蛋白質の構造と機能	6,000
-------	-----------------------------	-------

特別研究員奨励費

寺島 孝武	低速用電子ビームによる高分子薄膜材料中のナノ空隙評価	900
-------	----------------------------	-----

[受託研究]

田川 精一	技術研究組合超先端電 子技術開発機構	有機層間絶縁膜のプラズマ反応基礎過程の解 明及び高密着性薄膜開発のための基礎研究	5,250
田川 精一	技術研究組合超先端電 子技術開発機構	化学増幅レジストの反応機構の研究	1,575
田川 精一	半導体先端テクノロジー	F 2 リソグラフィ用レジストのアウトガス発 生機構の解明	4,000

〔附 2〕各付属研究施設の組織と活動

産業科学ナノテクノロジーセンター

センター長 川合 知二
事務補佐員 長谷 真奈美

概要

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ことを目的とした研究センターである。

原子・分子の配列をナノスケールで直接的に制御しながら、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、量子ビームと総称される電子線やX線、レーザー、陽電子ビームなどを用いてナノファブ리케이션やナノ空間・フェムト秒に至る極短時間領域での反応解析、ナノテクノロジーに必要な不可欠な高輝度・高安定の新しい量子ビームの開発研究、ビームプロセスの基礎となる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、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考えら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研究部門の3部門があり、各々は多彩な研究分野から構成されている。

ナノマテリアル・デバイス研究部門

概要

ナノレベルで機能が調和し、巧みな情報変換・伝達を行い、自らが判断する知能を有する“人工生体情報ナノマテリアル”を創成する。

有機、無機、金属といった従来の枠組みにとらわれず、個々の物質の持つ機能を最大限に利用する方法を確立する。量子効果が支配的となるナノスケールでの物質の性質を評価すること、エネルギー・情報変換、伝達機構を明らかにすること、ナノテクノロジーの1つである原子・分子層制御人工格子形成技術などのボトムアップ技術を駆使し、空間的、エネルギーレベル的に最適な配置・組み合わせを考慮した原子・分子配列を有する材料創製を目指す。

単一分子の物性計測を可能とする合成・測定技術を開発し、単一・少数分子系の新規物理化学現象を開拓する。分子スケールエレクトロニクスを見据えて、単一分子機能が発現する自己組織的デバイス構築に必要な要素技術の確立を行う。

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。

タンパク質を中心とする生体素子やその集合体をナノバイオデバイスと位置付け、それらのナノ構造と機能の解析を行う。さらに、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に関する研究などを行う。

成果

- ・原子・分子層制御結晶成長による生体情報材料人工格子の制御形成
- ・ナノスケール構造と物性相関の評価
- ・ナノスケール有機/無機/界面制御
- ・新規ボトムアップ材料形成装置の開発
- ・学習・判断機能をもつ脳型メモリ素子の創成
- ・分子自己集積現象を利用したデバイス形成の研究
- ・表面化学修飾による選択的微細加工プロセスの開発
- ・単一分子物性計測
- ・走査プローブ顕微鏡/走査電子顕微鏡複合装置の開発
- ・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
- ・自己組織化によるナノ粒子の創製
- ・機能性高分子合成と機能化による分子デバイス創製
- ・ナノバイオデバイスの構造と機能の解析
- ・超高感度バイオセンサーの開発
- ・分子モーターを含むナノマシンの創製

人工生体情報ナノマテリアル分野

教授	田畑 仁
助手	佐伯 洋昌
特任教員	松井 裕章
学部学生	土井 敦裕
事務補佐員	池田 恵

a) 概要

「生体の特長を見習った人工材料」、「スピンエレクトロニクスを含む機能調和人工格子の作製と評価」、「バイオエレクトロニクス」を柱とするナノテクノロジー指向の研究を行っている。これらは、レーザー-MBE法を用いて原子層毎に組成を制御する人工格子作製、通常の平衡相図上では実現できない新機能を顕示する物質・材料等を人工的に創成、および走査プローブ顕微鏡によるDNAなどのバイオ分子の観察、バイオデバイスを実現することに挑戦している。

主要研究課題としては、レーザープロセスによるスピンエレクトロニクス材料および機能調和人工格子の創成、原子制御した超高誘電体・リラクサー強誘電体の設計と開発、バイオ分子プログラム自己組織化によるナノ構造制御形成、バイオデバイス等の開発、が挙げられる。

b) 成果

・「機能調和人工格子」および「スピンエレクトロニクス」

基板結晶の方位特性を生かしてエピタクシー膜を作製することにより、構成原子配列構造を制御したBaTiO₃-BaZrO₃系のリラクサー人工超格子の作製に成功した。人工格子手法により、原子配列の秩序性を制御し、秩序度25%付近で双極子ガラス状態を示し、その特性が室温以上の温度で発現する新規リラクサー誘電体を開発した。これは環境有害なPbを構成元素に含まない点から、環境調和型リラクサー誘電体が創製出来たといえる。

スピネル型自然超格子化合物ZnFe₂O₄、NiFe₂O₄、CoFe₂O₄をベースとした一連の化合物において、クラスターガラス状態を示すこと、Tiなどの付与により電荷再分配機能を有すると、光誘起磁性が発現することを明らかにした。

スピンエレクトロニクス関連研究の一環として、ワイドギャップ酸化物半導体であるZnO薄膜を用いて、透明トランジスタを作製し、アモルファスシリコンTFTと同程度の性能を示すことを実証するとともに、Co, Vなどの遷移金属を組み込むことで、室温動作の磁性半導体ZnOを作製し、これがスピンエレクトロニクスに重要なキーマテリアルとなりうる事を論じた。磁気光学特性評価(MCD, XMCD等)により、Znサイトを置換した2価の遷移金属が強磁性発現を担っていることを明らかにした。さらに、CMP等の特殊処理により、原子レベルで平滑なZnO単結晶のZn面、O面を作り分けることに成功し、今後の2次元電子ガス系への展開が期待できる成果を得た。

・「ナノバイオエレクトロニクス」

プログラム特性を有する核酸塩基等のバイオ関連分子がSi等の固体表面上に自己組織化パターンを形成する、プログラム自己組織化によるナノ構造制御形成技術を推進した。特に、キャピラリーフォース(毛細管現象)を利用することにより、DNAネットワークをテンプレートとして、Auの超微粒子を付着させることにより、金修飾を施したネットワーク作製に成功した。本手法は、機能性ナノ粒子が、正電荷、負電荷、中性電荷いずれの場合にも適用可能であり、シンプルでかつ極めて優れたナノパターン形成技術であるといえる。DNAヘインターカレートする蛍光分子を用いて修飾し、DNA分子との相互作用および、修飾有り、無しによる光電特性の差異を比較した。poly[d(G-C)]・poly[d(G-C)](合成DNA)とBAVD蛍光分子との組み合わせで、顕著な光励起キャリアの長寿命化が可能となった。

さらに、ボトムアップナノ構造形成技術として、ナノインプリンティング、ナノインクジェット技術

を利用した、サブミクロンパターニングや、IS-FET の電気信号検出特性を利用した非蛍光修飾型 DNA チップの開発を試み、実用化への道を拓く 100mV 以上の大きな信号を得ることができた。

[原著論文]

Electrical Conducting Properties of DNA Molecules in a Metal (tip)/DNA/Highly Oriented Pyrolytic Graphite Configuration, S. Tanaka, L. T. Cai, H. Tabata and T. Kawai : Jpn. J. Appl. Phys., 42 (2003) 2818-2823.

Toward the DNA electronics, H. Tabata, L. T. Cai, J.-H. Gu, S. Tanaka, Y. Otsuka, Y. Sacho, M. Taniguchi and T. Kawai : Synthetic Metals, 133-134 (2003) 469-472.

Transparent Thin Films Transistors Using ZnO as an Active Channel Layer and their Electrical Properties, S. Masuda, K. Kitamura, Y. Okumura, S. Miyatake, H. Tabata and T. Kawai : J. Appl. Phys., 93 (2003) 1624-1630.

Influence of Co-doping with Ga on the Electrical and Optical Properties of N-doped ZnO Films, H. Matsui, H. Saeki, H. Tabata and T. Kawai : J. Electrochem. Soc., 150 (2003) G508-G512.

Role of Ga for Co-doping of Ga with N in ZnO Films, H. Matsui, H. Saeki, H. Tabata and T. Kawai : Jpn. J. Appl. Phys., 42 (2003) 5494-5499.

Artificial Control of Order Degree State of B-Site Ions in Ba(Zr,Ti)O₃ by a Superlattice Technique, Y. Hotta, G. W. J. Hassink, T. Kawai and H. Tabata : Jpn. J. Appl. Phys., 42 (2003) 5908-5912.

Humidity Dependence of Electrical Resistivity in Poly(dG)•Poly(dC) DNA Thin Film, M. Taniguchi, Y. Otsuka, H. Tabata and T. Kawai : Jpn. J. Appl. Phys., 42 (2003) 6629-6630.

[解説、総説]

DNA エレクトロニクス, 田畑 仁、谷口 正輝、田中 裕行、大塚 洋一、田中 慎一、川合 知二 : 表面科学, 24 [11] (2003) 677-683.

ナノワイヤーとしての DNA, 田畑 仁 : 高分子, 52 [3] (2003) 126-129.

DNA を用いたボトムアップ半導体プロセス, 田畑 仁 : M&E, 12月号 (2003) 168-175.

DNA 半導体, 田畑 仁 : 日経バイオビジネス, 6月号 (2003) 78-79.

[著書]

「薄膜工学」(金原 繁〔監修〕白木 靖寛/吉田 貞史〔編著〕), 田畑 仁, 丸善株式会社, (2003) 231-243.

「イオン工学ハンドブック」(水野 博之〔監修〕平尾 孝〔編集委員長〕), 田畑 仁, (株)イオン工学研究所, (2003) 944-948.

[特許]

「導電性材料、導電性薄膜、複合膜、及び導電性材料の製造方法」田畑 仁、川合 知二、Mathew

Joseph、特許番号 3472791

「強誘電体メモリおよびその製造方法」川合 知二、小林 光、田畑 仁、六田 英治、特開 2003-060167

[国際会議]

DNA Nano- electronics: Physical and Electrical Properties of DNA (Invited), *H. Tabata, T. Kawai, The 7th World Multi-Conference on Systemics, Cybernetics and Informatics (SCI2003), Florida, U.S.A., Jul. 27-30, 2003.

Grain Size Dependence of Electrical and Magnetic Properties of Polycrystalline NiFe₂O₄ Spinel, A. A.K.M. Hossain, M. Seki, T. Kawai, *H. Tabata, 10th International Workshop on Oxide Electronics, Augsburg, Germany, Sep. 11-13, 2003.

Magnetism of Vanadium-doped ZnO Thin Films (Poster), *H. Saeki, H. Tabata, 10th International Workshop on Oxide Electronics, Augsburg, Germany, Sep. 11-13, 2003.

Polarity Effect of ZnO Homoepitaxial Films Grown Using Laser Molecular Beam Epitaxy (Poster), H. Matsui, H. Saeki, A. Sasaki, M. Yoshimoto and *H. Tabata, 10th International Workshop on Oxide Electronics, Augsburg, Germany, Sep. 11-13, 2003.

Correlation Between Relaxor Behaviour and Ordered-disordered State in Ba(Zr_xTi_{1-x})O₃ : a Study Using Monte-Carlo Simulations and Artificial Superlattices (Poster), *Y. Hotta, G.W.J. Hassink, D.H.A. Blank, T. Kawai and H. Tabata, 10th International Workshop on Oxide Electronics, Augsburg, Germany, Sep. 11-13, 2003.

Spin (Cluster) Glass State and Photo-Induced Magnetization on Spinel and Garnet Ferrites Thin Films (Poster), *M. Seki, A.K.M. Akther Hossain, K. Tanimura, T. Kawai and H. Tabata, 10th International Workshop on Oxide Electronics, Augsburg, Germany, Sep. 11-13, 2003.

Synthesis of Long Strand DNA with Specific Sequences Using Enzymatic Reaction, Poly(dA)-Poly(dT) (Poster), *S. Tanaka, H. Tanaka, M. Taniguchi, H. Tabata, S. Fujiwara, S. Uchiyama, K. Fukui and T. Kawai, Materials Chemistry Forum• Materials Discussion 6 -Controlled Polymer Architectures from Micro to Meso Scale-, Durham, UK, Sep. 12-14, 2003.

Synthesis of Long Poly(dG)-Poly(dC) without Structural Defects Using Enzymatic Reaction (Poster), *S. Tanaka, M. Taniguchi, H. Tabata, S. Fujiwara, S. Uchiyama, K. Fukui and T. Kawai, Materials Chemistry Forum• Materials Discussion 6 -Controlled Polymer Architectures from Micro to Meso Scale-, Durham, UK, Sep. 12-14, 2003.

Ferroelectric Relaxor Behaviors in BaTiO₃/BaZrO₃ Superlattices Depending on Ordered-Disordered State of the B-site Cations, *H. Tabata and Y. Hotta, The 5th International Meeting of Pacific Rim Ceramic Societies (PacRim5), Nagoya, Japan, Sep. 29-Oct. 2, 2003.

Relaxor-type Ferroelectric Superlattices. -Ordered/disordered Control of B-site Ions- (Invited), *H. Tabata and Y. Hotta, The 8th IUMRS International Conference on Advanced Materials (IUMRS-ICAM2003), Yokohama, Japan, Oct. 11-13, 2003.

Ordered-disordered Control of B-site Ions in the BaTiO₃-BaZrO₃ Relaxor Superlattices (Invited), *H. Tabata and Y. Hotta, 204th Meeting of The Electrochemical Society (ECS), Florida, U.S.A., Oct. 12-17, 2003.

Electric and Magnetic Properties of Hetero and Homo Epitaxial Thin Films of ZnO on Sapphire and Polarity Controlled ZnO Single Crystals, *H. Tabata, H. Matsui, H.Saeki, S.Choopun and T. Kawai, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003, Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Homoepitaxy in ZnO: Zn-polar Growth (Poster), *H. Matsui, H. Saeki, A. Sasaki M. Yoshimoto, M Tsubaki and H.Tabata, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003, Osaka, Japan, Dec.8-9, 2003.

Immobilization of Probe DNA on Ta₂O₅ Thin Film and Detection of Hybridized Helix DNA by Using IS-FET (Poster), *T. Ohtake, C. Hamai, T. Uno, H. Tabata and T. Kawai, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003, Osaka, Japan, Dec.8-9, 2003.

Fabrication of Nano-Gap Electrode without Lithography Technique and Electrical Characteristics of Nano structured Molecules (Poster), *Y.Otsuka, Y. Naitoh, W. Mizutani, T. Matsumoto, H. Tabata, T. Kawai, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003, Osaka, Japan, Dec.8-9, 2003.

Measuring Electrical Conductivity of Molecules with Nano-Gap Electrode (Poster), *Y.Otsuka, Y. Naitoh, W. Mizutani, T. Matsumoto, H. Tabata, T. Kawai, The 11th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, Atagawa, Japan, Dec. 11-13, 2003

Nanoscale Electrical Characterization Techniques for Molecular Nanoelectronics, *Y.Otsuka, Y. Naitoh, W. Mizutani, T. Matsumoto, H. Tabata, T. Kawai, 21st Century COE Nanomaterial Group Student Seminar 2003, Finland, Jan. 7-10, 2004.

Characteristics of Zn-polar ZnO and ZnMgO Films Grown Using Homo-epitaxy Technique Towards Quantum Structures (Poster), *H. Matsui, H. Saeki and H. Tabata, 2nd 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" 7th SANKEN International Symposium, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

DNA Nano-patterning with Self-organization by Using Nanoimprint (Poster), *T.Ohtake, K.Nakamatsu, S.Matsui, H.Tabata and T.Kawai, 2nd 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" 7th SANKEN International Symposium, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Large Negative Magnetoresistance in Spinel type Zn_{1-x}Ni_xFe₂O₄ and Zn_{1-x}Co_xFe₂O₄ Ferrites (Poster), *A. K. M. Akther Hossain, M. Seki, T. Kawai, H. Tabata, 2nd 21st Century COE

"Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" 7th SANKEN International Symposium, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Direct Detection of DNA Using ISFET based on PNA (Poster), *T.Uno, T.Ohtake, H.Tabata and T.Kawai, 2nd 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" 7th SANKEN International Symposium, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Interdisciplinary Nano-Technology of Bottom-Up and Top-Down for DNA and Bio-Electronics (Invited), *H. Tabata, T. Ohtake, T. Uno, Y. Otsuka and T. Kawai, International Workshop on Plasma Nano-Technology and Its Future Vision, Takayama, Japan, Feb. 5-6, 2004.

Interdisciplinary Nano-Technology of Bottom-Up and Top-Down for DNA and Bio-Electronics (Poster), H. Tabata, *T. Ohtake, T. Uno, Y. Ohtsuka and T. Kawai, International Workshop on Plasma Nano-Technology and Its Future Vision, Takayama, Japan, Feb. 5-6, 2004.

Large Negative Magnetoresistance in Spinel type Ni and Co doped Zinc Ferrites, *A. K. M. Akther Hossain, M. Seki, T. Kawai, H. Tabata, Annual APS March Meeting 2004, Montreal, Canada, Mar. 22-26, 2004.

Fabrication of Nano-gap Electrodes Without Lithography Technique and Electrical Characteristics of Nano Structured Molecules, *Y. Otsuka, Y. Naitoh, T. Matsumoto, W. Mizutani, H. Tabata, T. Kawai, Annual APS March Meeting 2004, Montreal, Canada, Mar. 22-26, 2004.

[国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員]

- 田畑 仁 2003年 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2003) (論文委員会委員)
- 田畑 仁 The Seventh International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures (出版委員会委員)
- 田畑 仁 International Conference on Solid Films and Surfaces (ICSFS-12) (プログラム委員会委員)
- 田畑 仁 The fifth Japan-Korean Conference on Ferroelectrics (論文出版委員会委員)

[国内学会]

- | | |
|--------|-----|
| 応用物理学会 | 19件 |
| 日本物理学会 | 1件 |
| 高分子学会 | 1件 |
| その他 | 13件 |

[科学研究費補助金]

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

基盤研究(C)(2)

- 田畑 仁 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 1,400

特定領域研究(2)「超機能グローバル」

- 田畑 仁 完全界面制御プロセスによる機能調和素子創成 14,000

特定領域研究（B）（2）「強誘電体薄膜」			
田畑 仁	新強誘電体薄膜の探索		2,900
[産学連携等研究費]			
田畑 仁	科学技術振興調整費 先導的研究等の推進	酸化物磁性半導体ベースのデバイス創製に関する研究	25,645
[その他の競争的研究資金]			
田畑 仁	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	4,800
田畑 仁	住友精化	酸化窒素ガスを用いた酸化物半導体薄膜形成	1,050
田畑 仁	コニカミノルタ（株）	機能性酸化物薄膜における光特性の研究	500
田畑 仁	デプト（株）	自己組織化金属を用いたナノテクノロジー応用開発	600

単分子素子集積デバイス分野

教授	川合 知二
助教授	松本 卓也
助手	谷口 正輝
研究員	高木 昭彦

a) 概要

単分子の物性計測を可能とする合成・測定技術を開発し、単一・小数分子系の新規物理化学現象を開拓する。分子スケールエレクトロニクスを見据えて、単一分子機能が発現する自己組織的デバイス構築に必要な要素技術の確立を行う。

次世代の新しいエレクトロニクスの担い手として、分子スケールデバイスが注目されている。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ある。この視点から 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る。

また、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、リソグラフィーなどのトップダウンテクノロジーとの融合が必要である。さらに、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である。本分野では、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る。

b) 成果

・「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）として期待される。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た。

配列が制御された Poly(dA)・Poly(dT)、Poly(dG)・Poly(dC) DNA 薄膜を 30 から 50nm 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った。電流・電圧測定を行ったところ、Poly(dG)・Poly(dC)DNA の伝導度は 100 分後に約 7 千倍に到達した。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た。さらに、の時間依存性を測定から、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った。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る。

・「DNA の色素修飾」

DNA の光機能化を目指して、DNA-ポルフィリン結合体形成を行った。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] が形成されることを明らかにした。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を見出した。

・「DNA をテンプレートとした金属微粒子の配列」

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することで DNA ネットワークに沿った金微粒子の配列を形成した。

・「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と考えられる。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、SiO₂に100nm程度のギャップを持つ平坦電極の作製を行った。

電子線描画により電極パターンを形成した後、RIE(Reactive Ion Etching)によりエッチングを行い、酸素プラズマによりレジストを除去した。この後、Ti、Au膜の順に作製し、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、電極を平坦化した。6 x 10¹⁷ions/cm²のドーズ量で、平坦性が2nmの平坦電極の作製に成功した。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ある。

・「点接触電流画像化原子間力顕微鏡」

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点接触電流画像化原子間力顕微鏡を開発した。これを用いてカーボンナノチューブ試料を測定し探針と試料の接触抵抗に依存しない、ナノチューブ間の接触抵抗の測定に成功した。

・「電荷移動力顕微鏡 / 分光法」

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する新しい方法として、電荷移動力顕微鏡 / 分光法を開発した。ポルフィリン針状結晶の電子構造の測定に成功した。

[原著論文]

Point-contact current-imaging atomic force microscopy: Measurement of contact resistance between single-walled carbon nanotubes, Y. Otsuka, Y. Naitoh, T. Matsumoto, and T. Kawai : Appl. Phys. Lett., [82] (2003) 1944-1946.

Nanoscale obserbation of room-temperature ferromagnetism on ultrathin (La, Ba)MnO₃ films, T. Kanki, R.-W. Li, Y. Naitoh, H. Tanaka, T. Matsumoto, and T. Kawai : Appl. Phys. Lett. [83] (2003) 1184.

Electronic transport properties of free-base tape-porphyrin molecular wires studied by self-consistent tight-binding calculations, K. Tagami, M. Tsukada, T. Matsumoto, and T. Kawai : Phys. Rev. B [67] (2003) 245324.

Theoretical prescriptions for improving conductance of short DNA segments sandwiched between metal electrode, K. Tagami, T. Matsumoto, T. Kawai, and T. Tsukada : Jpn. J. Appl. Phys. [42] (2003) 5887.

Nanoscale observation of room-temperature ferromagnetism on ultrathin (La, Ba)MnO₃ films, T. Kanki, R. -W. Li, Y. Naitoh, H. Tanaka, T. Matsumoto, and T. Kawai : Appl. Phys. Lett. [83] (2003) 1184.

点接触電流イメージング原子間力顕微鏡の開発, 大塚洋一、内藤泰久、寺脇歩、松本卓也、川合知二 : 表面科学 [24] (2003) 573.

STM imaging of individual porphyrin hexamers; *meso-meso* singly linked orthogonal hexamer and *meso-meso*, β - β , β - β tiply-linked planear hexamer on Cu(100) surface, A. Takagi, Y. Yanagawa, A. Tsuda, N. Aratani, T. Matsumoto, A. Osuka and T. Kawai : Chem. Commun. (2003) 2986-2987.

Toward the DNA electronics, H. Tabata, L. T. Cai, J. -H. Gu, S. Tanaka, Y. Otsuka, Y. Sacho, M.

Taniguchi, and T. Kawai: Synth. Met., [133-134] (2003) 469-472.

Humidity dependence of electrical conductivity in Poly(dG)•Poly(dC) DNA, M. Taniguchi, Y. Ohtsuka, H. Tabata, and T. Kawai : Jpn. J. Appl. Phys., [42] (2003) 6629-6630.

[解説、総説、翻訳]

ナノテスター：点接触電流画像化原子間力顕微鏡の開発，松本卓也、川合知二：応用物理 [72] (2003) 602-604.

DNA エレクトロニクス，田畑仁、谷口正輝、田中裕行、大塚洋一、田中慎一、川合知二：表面科学 [24] (2003) 677-683.

[国際会議]

Charge transfer force microscopy/ spectroscopy, *Y. Naitoh, T. Matsumoto, and T. Kawai, 3rd International Symposium on Scanning Probe Spectroscopy and Related Methods, Poznam-Malta, Poland, Jul. 16-19, 2003.

Charge transfer force microscopy/ spectroscopy and their application for molecular systems, *Y. Naitoh, T. Matsumoto, and T. Kawai, 12th International Conference on Scanning Tunneling Microscopy/ Spectroscopy and Related Techniques, Eindhoven, the Netherlands, Jul. 21-25, 2003.

Superparamagnetism of Fe nanoclusters observed by non-contact magnetic force microscopy, *T. Matsumoto, Y. Naitoh, K.Sato, Y. Hirotsu, and T.Kawai, 12th International Conference on Scanning Tunneling Microscopy/ Spectroscopy and Related Techniques, Eindhoven, the Netherlands, Jul. 21-25, 2003.

Structure and electronic properties of DNA-metal nanoparticle complexes, *F. Yamada, H. Tanaka, T. Matsumoto, and T. kawai, 12th International Conference on Scanning Tunneling Microscopy/ Spectroscopy and Related Techniques, Eindhoven, the Netherlands, Jul. 21-25, 2003.

Structure and electronic properties of DNA-dye complex, *C. Takatoh, T. Matsumoto, and T. Kawai, 12th International Conference on Scanning Tunneling Microscopy/ Spectroscopy and Related Techniques, Eindhoven, the Netherlands, Jul. 21-25, 2003.

Photo-coincident time-resolved force detection by non-contact atomic force microscopy, *T. Matsumoto, and T. Kawai, Sixth International Conference on Noncontact Atomic Force Microscopy, Dingle Ireland, Aug. 31-Sep. 3, 2003.

Electronic Properties of Biomolecular Systems: Towards the Realization of Bottom-up Molecular-scale Electronics(Invited), *T. Matsumoto, and T. Kawai, The5th RIES-Hokudai Symposium on Advanced Nanoscience, Sapporo Japan, Dec. 1-2, 2003.

Electrical conductivity of cytochrome c on a promoter-modified substrate, *T. matsumoto, M. Kataoka, and T. Kawai, The 11th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, Atagawa Japan, Dec. 11-13, 2003.

DNA-templated assembly of gold nanoparticles, *F. Yamada, Y. Otsuka, T. Matsumoto, H. Tanaka, and T. Kawai, The 11th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, Atagawa Japan,

Dec. 11-13, 2003.

Measuring Electrical Conductivity of Molecules with Nano-gap electrodes, *Y. Otsuka, Y. Naitoh, T. Matsumoto, W. Mizutani, H. Tabata, and T. Kawai, The 11th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, Atagawa Japan, Dec. 11-13, 2003.

Discrimination of Escherichia coli Ribosomal Subunits by Atomic Force Microscopy, *T. Matsuura, K. Kobayashi, H. Tanaka, T. Matsumoto, and T. Kawai, The 11th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, Atagawa Japan, Dec. 11-13, 2003.

Alignment of Au nano-particle on HOPG surface, *K. Ojima, K. Adachi, K. Yamada, T. Matsumoto, and T. Kawai, The 11th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, Atagawa Japan, Dec. 11-13, 2003.

Structure and electronic properties of DNA-metal nanoparticle complex, *F. Yamada, H. Tanaka, T. Matsumoto, and T. Kawai, International Symposium on Scientific and Industrial nanotechnology, Osaka Japan, Dec. 8-9, 2003.

Fabrication of Nano-gap Electrodes Without Lithography Technique and Electrical Characteristics of Nano Structurde molecules, *Y. Otsuka, Y. Naitoh, T. matsumoto, W. Mizutani, H. Tabata, and T.Kawai, International Symposium on Scientific and Industrial nanotechnology, Osaka Japan, Dec. 8-9, 2003.

Synthesis of Long Strand DNA with Specific Sequences Using Enzymatic Reaction: Poly(dA)Poly(dT), *S. Tanaka, H. Tanaka, M. Taniguchi, H. Tabata, S. Fujiwara, S. Uchiyama, K. Fukui, and T. Kawai, Royal Society of Chemistry, U.K., Sep. 12-14, 2003.

Synthesis of Long Poly(dG)Poly(dC) without Structural Defects Using Enzymatic Reation, *S. Tanaka, M. Taniguchi, H. Tabata, S. Fujiwara, S. Uchiyama, K. Fukui, and T. Kawai, Royal Society of Chemistry, U.K., Sep. 12-14, 2003.

Electronic structure of DNA under the chemical-doping condition, M. Furukawa, M, Tanuguchi, H. S. Kato, T. Hatsui, N. Kosugi, T. Kawai, and M. Kawai, Suroconference of spin and charge transport in nanostructures, Spain, Sep. 1-5, 2003.

Complex Incorporation in DNA Duplexes, K. Adachi, M. Taniguchi, T. Kawai, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology, Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003,

[国内学会]

日本物理学会	4 件
応用物理学会	2 件
日本化学会	1 件
その他	8 件

[科学研究費補助金]

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

基盤研究(B)(2)

松本 卓也	有機分子の単一電気伝導度測定		3,800
萌芽研究			
松本 卓也	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		1,300
21 世紀 COE 若手研究 A			
谷口 正輝	ナノ電極を用いたナノ粒子の電気特性評価		1,000
[受託研究]			
松本 卓也	独立行政法人科学技術振興機構	巨大ポルフィリンアレーメゾスコピック構造デバイス	1,200
[その他の競争的研究資金]			
松本 卓也	独立行政法人科学技術振興機構、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	11,000 (人件費含む)
谷口 正輝	信越化学工業株式会社	ポリマーFETの開発	1,000
	関西エネルギー・リサイクル科学研究振興財団	インクジェットプロセスによる高移動度ポリマー電界効果トランジスタの開発	1,000

超分子プロセス分野

教授 真嶋 哲朗 (兼)
助手 遠藤 政幸、滝澤 忍

a) 概要

本分野は、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。また、限りある資源の有効活用および環境汚染物質の排出を最小限にとどめる、実用的な固定化不斉触媒の開発研究を推進する。以下の課題を中心に研究を行っている。

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

b) 成果

・DNA超分子によるナノ構造の構築

ナノスケールの分子操作を行うため、自己集合に基づき、分子を空間的な配置を制御して規則的に集積する技術が求められている。この目的のため、本研究では、自己集合分子としてDNAを利用した超分子構造の構築、さらに、その超分子をユニットとしたナノ構造までの組み上げ及びその機能化を行った。DNAは塩基配列によって分子集合を行えるため、より複雑な組み合わせで分子集合を行うことも可能である。規則的かつ剛直なDNA超分子構造を構築するため、複数の2本鎖DNAをジスルフィド結合、ビスマレイミドリンカー及びポルフィリン誘導体を介して共有結合させた架橋型DNAを合成し、2本鎖DNA集合体の構造を制御した。合成した2本の架橋分子に相補鎖DNAを組み合わせると制御可能で安定なDNA集合体を形成した。この集合体をユニットとして自己集合とDNAリガーゼによる結合で1次元に整列したナノ構造体の構築を行った。AFMによって観測するとより自由度の制約された直線的な構造が確かめられた。同様にして、DNA集合体をユニットに用いて2次元構造の構築も行い、シート状のナノ構造の構築について検討した。このようにして、自己集合による分子の配置を制御できる技術と場の構築をDNA超分子構造の組み上げによって行えることが明らかとなり、分子操作の新たな方法と機能化への応用も可能であると考えられる。

・金属架橋型高分子触媒

触媒の回収や再利用が容易となる固定化触媒の開発は、環境調和型プロセス創製に重要な研究の一つとなっている。複数の配位子を含む触媒をポリマー上に固定化するには、配位子の相対配置を適切に制御する新規な方法論が必要となる。そこで、複数の配位子を有する触媒の汎用性に富む固定化法として、金属架橋型高分子触媒の開発をおこなった。その結果、(R,R)-6,6'-bi(BINOL)の自己集合を利用し、高い触媒能を有する高分子の合成に成功した。LiとAlを架橋因子に持つポリマーは、マイケル反応において最高98% eeと高い不斉誘起能を示し、Tiにより架橋したポリマーはカルボニルエン反応に有効であった。

[原著論文]

Formation of Pyrene Dimer Radical Cation in DNA Reflecting DNA Dynamics in the Time Range of 1 μ s to 1 ms, K. Kawai, K. Miyamoto, S. Tojo, and T. Majima: J. Am. Chem. Soc., 125 [4] (2003) 912-915.

A Two-Color Laser Photolysis Methods for Determining Reaction Rates of Short-Lived Intermediates by Product Analysis: Application to the *o*-inodimethane Problem, A. Ouchi, Z. Li, M. Sakuragi, and T. Majima: *J. Am. Chem. Soc.*, 125 [4] (2003) 1104-1108.

Naphthalene in the Higher Triplet Excited State, X. Cai, M. Hara, K. Kawai, S. Tojo, and T. Majima: *Chem. Commun.*, 2 (2003) 222-223.

Sensitized Reactions of Benzophenone in the Higher Triplet Excited State, X. Cai, M. Hara, K. Kawai, S. Tojo, and T. Majima: *Chem. Phys. Lett.*, 371 [1-2] (2003) 68-73.

Hole Transfer in DNA: DNA as a Scaffold for Hole Transfer between Two Organic Molecules
T. Takada, K. Kawai, S. Tojo, and T. Majima: *Tetrahedron Lett.*, 44 (2003) 3851-3854.

Kinetics of Weak Distance Dependent Hole Transfer in DNA by Adenine Hopping Mechanism
K. Kawai, T. Takada, S. Tojo and, T. Majima: *J. Am. Chem. Soc.*, 125 [23] (2003) 6842-6843.

Preparation and Photochemical Properties of Polyisocyanides with Regularly Arranged Porphyrin
Pendants, F. Takei, S. N, K. Onitsuka, A. Ishida, S. Tojo, T. Majima, and S. Takahashi: *Chem. Lett.*,
32 [6] (2003) 506-507.

Three-color three-laser photochemistry of di(*p*-methoxyphenyl)methyl chloride, M. Hara, S. Tojo,
and T. Majima: *J. Phys. Chem., A* 107 [24] (2003) 4778-4783.

Ionization and Fragmentation of Some Chlorinated Compounds and Dibenzo-*p*-dioxin with an
Intense Femtosecond Laser Pulse at 800 nm, H. Harada, M. Tanaka, M. Murakami, S. Shimizu, T.
Yatsuhashi, N. Nakashima, S. Sakabe, Y. Izawa, S. Tojo, and T. Majima: *J. Phys. Chem., A* 107
[34] (2003) 6580-6586.

Transient Phenomena of Dibenz[*a,h*]anthracene in the Higher Triplet Excited States, X. Cai, M.
Hara, K. Kawai, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Tetrahedron Lett.*, 44 [32] (2003) 6117-
6120.

Photoisomerization of 2'-Deoxyribofuranosyl and Ribofuranosyl 2-Phenylazoimidazole, M. Endo,
K. Nakayama, Y. Kaida, and T. Majima: *Tetrahedron Lett.*, 44 [36] (2003) 6903-6906.

Rapid cleavage of naphthylmethyl-O bond in the higher triplet excited states, X. Cai, M. Sakamoto,
M. Hara, S. Tojo, M. Fujitsuka, A. Ouchi, and T. Majima: *Chem. Commun.*, (2003) 2604-2605.

Benzophenones in the higher triplet excited states, X. Cai, M. Sakamoto, M. Hara, A. Sugimoto, S.
Tojo, K. Kawai, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Photochem. Photobiol. Sci.*, 2 (2003)
1209-1214.

Tandem Double Helix Nano-Structures Using Interstrand Crosslinked DNA with Maleimide
Linkers, M. Endo and T. Majima: *Angew. Chem. Int. Ed. Eng.*, (2003) 5744-5747.

Control of A Double Helix Assembly by Use of Crosslinked Oligonucleotides, M. Endo and T.
Majima: *J. Am. Chem. Soc.*, 125[45] (2003) 13654-13655.

Long-lived Charge-Separated State Leading to DNA Damage through Hole Transfer, K. Kawai, T. Takada, T. Nagai, X. Cai, A. Sugimoto, M. Fujitsuka, and T. Majima: *J. Am. Chem. Soc.*, 125 (2003) 16198-16199.

Effects of base pairing on the one-electron reduction rate of cytosine, K. Kawai, A. Yokooji, S. Tojo, and T. Majima: *Chem. Commun.*, (2003) 2840-2841.

One-electron oxidation of aromatic sulfides adsorbed on the surface of TiO₂ particles studied by time-resolved diffuse reflectance spectroscopy, T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Chem. Phys. Lett.*, 382 (2003) 618-625.

Excess Electron Transfer in DNA Studied by Pulse Radiolysis and α -Radiolysis of Naphthalimide and Iodouridine Containing ODN, K. Kawai, T. Kimura, K. Kawabata, S. Tojo and T. Majima: *J. Phys. Chem., B* 107/46 (2003) 12838-12841.

Kinetics of multi-step hole transfer in DNA by Monitoring the Transient Absorption of Pyrene Radical Cation, T. Takada, K. Kawai, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima: *J. Phys. Chem., B*, 107(50) (2003) 14052-14057.

Design and Synthesis of Novel Spiro Pyridinium and Quinolinium Salts, M. L. Patil, S. Takizawa, and H. Sasai: *Heterocycles*, 61 (2003) 581.

Metal-bridged Polymers as Insoluble Multicomponent Asymmetric Catalysts with High Enantiocontrol: An Approach for the Immobilization of Catalysts without Using any Support. S. Takizawa, H. Somei, D. Jayaprakash, and H. Sasai: *Angew. Chem. Int. Ed.*, 42 (2003) 5711.

Monolayer-protected Au Cluster (MPC)-supported Ti-BINOLate Complex, K. Marubayashi, S. Takizawa, T. Kawakusu, T. Arai, and H. Sasai: *Org. Lett.*, 5 (2003) 4409.

Synthesis of Novel Chiral Spiro Bis(pyrazole) Ligands, S. Takizawa, Y. Honda, M. A. Arai, T. Kato, and H. Sasai: *Heterocycles*, 60 (2003) 2551.

Polymer Supported BisBINOL Ligands for the Immobilization of Multicomponent Asymmetric Catalysts, T. Sekiguti, Y. Iizuka, S. Takizawa, D. Jayaprakash, T. Arai, and H. Sasai: *Org. Lett.*, 5 (2003) 2647.

Enantioselective Synthesis of α -Methylene- γ -butyrolactones Using Chiral Pd(II)-SPRIX Catalyst, C. Muthiah, M. A. Arai, T. Shinohara, T. Arai, S. Takizawa, and H. Sasai: *Tetrahedron Lett.*, 44 (2003) 5201.

"Catalyst Analogue": A Concept for Constructing Multicomponent Asymmetric Catalysts (MAC) Using a Polymer Support, T. Arai, T. Sekiguti, K. Otsuki, S. Takizawa, and H. Sasai: *Angew. Chem. Int. Ed.*, 42 (2003) 2144.

[解説、総説]

ピレン修飾 DNA を用いた DNA 中のホール移動, 川井清彦、真嶋哲朗: *有機合成化学協会誌*, 61

(2003) 614-619.

[特許]

「生体分子損傷方法、および生体分子損傷装置」真嶋哲朗、川井清彦、特願 2003-338082.

[国際会議]

Photochemical Control of Protein Activity, *T. Majima, The 21 Century COE Symposium - Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience- (INS-2003), 2003, Osaka, Japan, Mar. 12, 2003.

Photo-regulation of Hole Transfer in DNA Studied by Pulse Radiolysis-laser Flash Photolysis Combined Method (Poster), *T. Takada, K. Kawai, and T. Majima, 25th ACS National Meeting, New Orleans, LA, USA, Mar. 22-27, 2003.

Photochemistry of Short-lived Molecules (Invited), *T. Majima, CLEO Satellite meeting on Applications of Ultrafast Laser Systems, Baltimore, MD, USA, Jun. 4, 2003.

Hole Transfer in DNA by Adenine Hopping Mechanism (Invited), *T. Majima, 21st International Conference on Photochemistry (ICP21), Nara, Japan, Jul. 26-31, 2003.

Reactions Sensitized by Aromatic Hydrocarbons in the Higher Triplet Excited States (Poster), X. Cai, M. Hara, K. Kawai, S. Tojo, M. Fujitsuka, and *T. Majima, 21st International Conference on Photochemistry (ICP21), Nara, Japan, Jul. 26-31, 2003.

Hole Transfer Causes Long-Lived Charge Separated State which Leads to DNA Damage (Poster), *K. Kawai, and T. Majima, 21st International Conference on Photochemistry (ICP21), Nara, Japan, Jul. 26-31, 2003.

Charge Transfer in DNA via Consecutive Adenine Hopping (Poster), *T. Takada, K. Kawai, and T. Majima, 21st International Conference on Photochemistry (ICP21), Nara, Japan, Jul. 26-31, 2003.

Hole Transfer in DNA Studied by Pulse Radiolysis, K. Kawai, T. Takada, and *T. Majima, 12th International Congress on Radiation Research, Brisbane, Australia, Aug. 17-22, 2003.

Radiation Chemical and Photochemical Study of Z-DNA Modified by 2-Aminopurine and 8-Bromodeoxyguanosine (Poster), *T. Kimura, K. Kawai, and T. Majima, 12th International Congress on Radiation Research, Brisbane, Australia, Aug. 17-22, 2003.

Fast Hole Transfer by Adenine-Hopping for DNA Molecular Wire (Invited), K. Kawai, T. Takada, and *T. Majima, 10th Symposium of Intelligent Electrophotonic Materials and Molecular Electronics (SIEMME'10), Beijing, P.R. China, Oct. 31-Nov. 1, 2003.

One-electron Oxidation during TiO₂ Photocatalytic Reactions Studied by Transient Absorption Measurements (Invited), T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, and *T. Majima, 10th Symposium of

Intelligent Electrophotonic Materials and Molecular Electronics (SIEMME'10), Beijing, P.R. China, Oct. 31-Nov. 1, 2003.

Fast Hole Transfer by Adenine-Hopping for DNA Molecular Wire, K. Kawai, T. Takada, and *T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

DNA Damaging using a Combination of Two-color Pulses (Poster), *K. Kawai, X. Cai, A. Sugimoto, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Hole Transfer Causes Long-Lived Charge Separated State Leading to DNA Damage (Poster), *K. Kawai, T. Takada, T. Nagai, X. Cai, A. Sugimoto, M. Fujitsuka, and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Charge Transfer in DNA via Adenine Hopping Mechanism (Poster), T. Takada, K. Kawai, and *T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

One-electron Oxidation of Aromatic Sulfides during TiO₂ Photocatalytic Reactions Studied by Time-resolved Diffuse Reflectance Measurements (Poster), *T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

One-electron Oxidation of Aromatic Sulfides during TiO₂ Photocatalytic Reactions Studied by Time-resolved Absorption Measurements (Poster), *S. Tojo, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Photochemistry of Oligothiophenes in the Higher Triplet Excited States Studied by Two-color Two-laser Flash Photolysis (Poster), *M. Fujitsuka, Y. Oseki, M. Hara, and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Photochemical Regulation of Protein Activity by Manipulating the Dimer Interface (Poster), *M. Endo, K. Nakayama, and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Construction of DNA Nanostructures by Control of Double Helix DNA Assembly using Crosslinked Oligonucleotides (Poster), *M. Endo and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Aromatic Hydrocarbons in the Higher Triplet Excited States Studied by Two-color Two-laser Flash Photolysis (Poster), *M. Fujitsuka, X. Cai, M. Sakamoto, M. Hara, and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Multi-laser Photochemistry (Invited), *M. Fujitsuka and T. Majima, Singapore International Chemical Conference 3 Frontiers in Physical and Analytical Chemistry, Singapore, Dec. 8-9, 2003.

Oligothiophenes in the Higher Triplet Excited States (Poster), *M Fujitsuka, Y. Oseki, M. Hara, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Rapid Exciton Migration and Fluorescent Energy Transfer in Helical Polyisocyanides with Regularly Arranged Porphyrin Pendants (Poster), *M. Fujitsuka, A. Okada, S. Tojo, F. Takei, K. Onitsuka, S. Takahashi, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

DNA Damaging by Two Lasers (Poster), *K. Kawai, X. Cai, A. Sugimoto, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Effects of Hole Transfer on Photosensitized DNA Damaging (Poster), *K. Kawai, T. Takada, T. Nagai, X. Cai, A. Sugimoto, M. Fujitsuka, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

One-electron Oxidation of Aromatic Sulfides during TiO₂ Photocatalytic Reactions: Part 1. Time-resolved Absorption Measurements (Poster), *S. Tojo, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

One-electron Oxidation of Aromatic Sulfides during TiO₂ Photocatalytic Reactions: Part 2. Time-resolved Diffuse Reflectance Measurements (Poster), *S. Tojo, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Photochemical Regulation of a Restriction Endonuclease *Bam*HI by Manipulation of the Dimer Interface (Poster), *M. Endo, K. Nakayama, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Construction of DNA Nanostructures Using Crosslinked Oligonucleotides (Poster), *M. Endo and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Transient Absorption Measurement of Stilbene Radical Cation in the Higher Excited using ns and ps Two-laser Flash Photolysis (Poster), *M. Hara, S. Samori, X. Cai, M. Fujitsuka; and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Resonant Three Photon Ionization of Stilbene Derivatives using Two-color Two-laser Laser Flash Photolysis (Poster), *M. Hara, S. Samori, X. Cai, M. Fujitsuka; and T. Majima, 7th SANKEN

International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Rapid Cleavage of Naphthylmethyl-oxygen Bond in the Higher Triplet Excited States Studied by Two-color Two-laser Flash Photolysis (Poster), *X. Cai, M. Sakamoto, M. Hara, S. Tojo, K. Kawai, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Energy Transfer vs Electron Transfer during the Bimolecular Quenching of Aromatic Hydrocarbons in the Higher Triplet Excited States (Poster), *X. Cai, M. Sakamoto, M. Hara, S. Tojo, K. Kawai, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

One-electron Oxidation of Biphenyl Derivatives Strongly Coupled with TiO₂ Surface (Poster), *T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Hole Transport to Non-adsorbed Chemicals during TiO₂ Photocatalytic Reactions (Poster), *T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Competitive Quenching Processes of Naphthalene Derivatives in the Higher Triplet Excited States – Energy Transfer vs Electron Transfer (Poster), *M. Sakamoto, X. Cai, M. Hara, M. Fujitsuka, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Photochemical Control of Caspase-3 Activity for Induction of Apoptosis (Poster), *K. Nakayama, M. Endo, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

2-Aminopurine-cytidine-7-deazaguanine (5'-ApC^{dz}G-3') Trimer as a Fluorescent Unit for a Z-DNA Probe (Poster), *T. Kimura, K. Kawai, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Kinetics of Long-Distance Hole Transfer in DNA (Poster), *T. Takada, K. Kawai, M. Fujitsuka, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Long-Lived Charge-Separated State in DNA (Poster), *T. Takada, K. Kawai, M. Fujitsuka, and T. Majima, 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Charge Separation in DNA using the Consecutive Adenine Hopping (Poster), *K. Kawai, T. Takada,

and T. Majima, International workshop on Advances in Molecular Electronics: From molecular materials to single-molecule devices, Dresden, BRD, Feb. 23-27, 2004.

Photosensitized Oxidation of DNA, *T. Majima, International Workshop on Recent Progress in Organic Chemistry, Osaka, Japan, Mar. 1-3, 2004.

DNA Supramolecular Chemistry, *M. Endo and T. Majima, International Workshop on Recent Progress in Organic Chemistry, Osaka, Japan, Mar. 1-3, 2004.

Manipulation of the Dimer Interface for Photochemical Regulation of the Activity of an Endonuclease *Bam*HI (Poster), *K. Nakayama, M. Endo, and T. Majima, 227th ACS National Meeting, California, USA, Mar., 2004.

Development of Multifunctional Asymmetric Catalysts (MAC) for Morita-Baylis-Hillman (MBH) Reaction (Poster), *K. Matsui, S. Takizawa, and H. Sasai, 12th Symposium on Organo-metallic Chemistry Directed Toward Organic Synthesis (OMCOS 12), Toronto, Canada, Jul. 6-10, 2003.

Design and Synthesis of Novel Spiro-Type Ligands (Poster), *T. Kato, K. Wakita, T. Shinohara, C. Muthiah, M. A. Arai, S. Takizawa, and H. Sasai, 12th Symposium on Organo-metallic Chemistry Directed Toward Organic Synthesis (OMCOS 12), Toronto, Canada, Jul. 6-10, 2003.

Development of Novel Multifunctional Asymmetric Catalysts (Poster), *S. Takizawa, H. Somei, K. Murai, T. Arai, D. Jayaprakash, and H. Sasai, The International Symposium on Dynamic Complexes (ISDC 2003), Tokyo, Japan, Aug. 3-4, 2003..

Enantioselective Catalysis Using Novel Spiro-type Ligands (Poster), *K. Wakita, M. A. Arai, T. Shinohara, T. Kato, C. Muthiah, S. Takizawa, T. Arai, and H. Sasai, The 15th International Symposium on Chirality (Chirality 2003), Shizuoka, Japan, Oct. 20-23, 2003.

Enantioselective Catalysis Using Novel Spiro-type Ligands (Poster), *K. Wakita, T. Kato, T. Shinohara, C. Muthiah, M. A. Arai, S. Takizawa, T. Arai, and H. Sasai, The 9th International Kyoto Conference on New Aspects of Organic Chemistry (IKCOC-9), Kyoto, Japan, Nov. 10-14, 2003.

Effective Immobilization of Multifunctional Asymmetric Catalysts. (Poster), *D. Jayaprakash, T. Sekiguti, Y. Iizuka, S. Takizawa, T. Arai, and H. Sasai, The 9th International Kyoto Conference on New Aspects of Organic Chemistry (IKCOC-9), Kyoto, Japan, Nov. 10-14, 2003.

Dual Activation in a Homolytic Coupling Reaction Promoted by an Enantioselective Dinuclear Vanadium(IV) Catalyst (Poster), H. Somei, Y. Asano, T. Yoshida, *S. Takizawa, H. Yamataka, and H. Sasai, The 9th International Kyoto Conference on New Aspects of Organic Chemistry (IKCOC-9), Kyoto, Japan, Nov. 10-14, 2003.

Aerobic Oxidation Catalyzed by Vanadium Compounds (Poster), *M. Kirihara, Y. Torii, K. Sato, S. Takizawa, Y. Ochiai, K. Okubo, N. Matsumoto, T. Uchiyama, S. Matsushita, A. Hatano, The 9th International Kyoto Conference on New Aspects of Organic Chemistry (IKCOC-9), Kyoto, Japan, Nov. 10-14, 2003.

Metal-bridged Polymers as Insoluble Multicomponent Asymmetric Catalysts (MACs) with High

Enantiocontrol: An Approach for the Immobilization of Catalysts without Using any Support (Poster), *S. Takizawa, H. Somei, D. Jayaprakash, and H. Sasai, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Monolayer-protected Au Cluster (MPC)-supported Ti-BINOLate Complex (Poster), *T. Kawakusu, K. Marubayashi, S. Takizawa, T. Arai, and H. Sasai, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Metal-bridged Polymers as Insoluble Multicomponent Asymmetric Catalysts (MACs) with High Enantiocontrol: An Approach for the Immobilization of Catalysts without Using any Support (Poster), *S. Takizawa, H. Somei, D. Jayaprakash, and H. Sasai, International Symposium on Organic Reactions 2003 (ISOR-2003) Kaohsiung, Taiwan, Dec. 18-21, 2003.

Immobilization of Enantioselective Catalysts onto the Surface of Spherical Nanoparticles (Poster), *K. Marubayashi, S. Takizawa, F. Yonezawa, T. Kawakusu, D. Jayaprakash, M. L. Patil, T. Arai, T. Hanada, and H. Sasai, Second 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" 7th SANKEN International Symposium on "Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -", Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

The aza-Morita-Baylis-Hillman (aza-MBH) Reaction Promoted by Chiral Phosphine-BINOL as an Organocatalyst (Poster), *K. Matsui, S. Takizawa, and H. Sasai, Second 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" 7th SANKEN International Symposium on "Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -", Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Design and Synthesis of Novel Spiro Chiral Phase Transfer Catalysts (Poster), *M. L. Patil, C. V. L. Rao, S. Takizawa, and H. Sasai, Second 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" 7th SANKEN International Symposium on "Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -", Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Enantioselective Reactions Promoted by Pd(II)-SPRIX Catalysts (Poster), *C. Muthiah M. A. Arai, T. Shinohara, T. Arai, S. Takizawa, and H. Sasai, Second 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" 7th SANKEN International Symposium on "Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -", Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

New Approach for the Immobilization of Multicomponent Asymmetric Catalysts with High Enantiocontrol (Poster), *S. Takizawa, D. Jayaprakash, H. Somei, T. Sekiguti, K. Otsuki, T. Arai, and H. Sasai, Second 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" 7th SANKEN International Symposium on "Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -", Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Dual Activation in a Homolytic Coupling Reaction Promoted by an Enantioselective Dinuclear Vanadium(IV) Catalyst (Poster), H. Somei, Y. Asano, *T. Yoshida, S. Takizawa, and H. Sasai, Second 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" 7th SANKEN International Symposium on "Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -", Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Design and Synthesis of Novel Spiro-Type Ligands (Poster), *T. Tsujihara, K. Wakita, T. Kato, T. Shinohara, M. A. Arai, S. Takizawa, T. Arai, and H. Sasai, Second 21st Century COE “Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience” 7th SANKEN International Symposium on “Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science- Perspectives in Nanoscience -”, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Immobilization of Multicomponent Asymmetric Catalysts, *S. Takizawa and H. Sasai, International Workshop on Advances in Molecular Electronics: From molecular materials to single-molecule devices, Dresden, BRD, Feb. 23-27, 2004.

Immobilization of Multifunctional Asymmetric Catalysts (MACs), D. Jayaprakash, S. Takizawa, T. Arai, and *H. Sasai, 227th ACS National Meeting, California, USA, Mar. 28- Apr. 1, 2004.

[国際会議の組織委員]

真嶋 哲朗 21st International Conference on Photochemistry (ICP21) (組織委員)

[国内学会]

日本化学会第 83 春季年会	6 件
光化学討論会	8 件
第 45 回放射線化学討論会	2 件
第 51 回有機反応討論会	1 件
第 24 回日本光医学・光生物学会	3 件
日本化学会第 84 春季年会	31 件
有機金属討論会	1 件
GSC シンポジウム	1 件
有機合成シンポジウム	1 件
希土類討論会	1 件
第 1 回次世代を担う有機化学シンポジウム	2 件
有機反応懇談会	3 件
高分子討論会	1 件
複素環化学討論会	2 件

[科学研究費補助金]

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

基盤研究 (A) (2)

真嶋哲朗 修飾 DNA の機能化による分子デバイス 1,300

特定領域研究 (A) (2)

真嶋哲朗 光機能界面における有機物の反応機構の解明 24,600

若手研究 (B) (2)

遠藤政幸 光機能性生体分子によるアポトーシスの誘導と癌治療への応用 1,960

[その他の競争的研究資金]

滝澤 忍	(財)上原記念生命科学財団	光学活性ヘテロ環化合物の医薬資源への展開	2,000
滝澤 忍	(財)料科学研究助成基金	金属ナノクラスター担持型不斉触媒の開発	800
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	17,765

ナノバイオデバイス分野

教授 二井 將光
助教授 岡島 俊英

a) 概要

タンパク質を中心とする生体素子やその集合体をナノバイオデバイスと位置付け、それらのナノ構造と機能の解析を行う。さらに、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に関する研究などを行う。

b) 成果

・ナノバイオデバイスの構造と機能の解析

Arthrobacter globiformis 由来銅含有アミン酸化酵素において、銅を完全に除去した後、Co と Ni を導入した金属置換型酵素を調製した。その結果、金属置換型酵素では、触媒活性が銅型酵素より大きく低下していることが判明した。それらのナノ構造解析と反応中間体の速度論的解析を詳細に行い銅型酵素と比較した結果、銅イオンは、酸化的半反応において還元された酸素分子種 (O_2^- あるいは O_2^{2-}) に対する結合部位として機能し、酸素分子種への効率的なプロトン転移に関わっていることが明らかとなった。また、本酵素の還元的半反応においては、基質アミンとトパキノンの間で形成された基質シッフ塩基中間体から立体選択的に proS プロトンが触媒塩基 Asp298 によって引き抜かれていることを明らかにした。

・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り、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、逆に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に関しては類似しているが、生理的機能とサブユニット数が異なっているため、V-ATPaseにおいても反応に共役して回転しているかは大きな問題であった。

本年の成果として、V-ATPase が F-ATPase と同じように反応とともに回転していることを明らかにし、ナノモーターとして回転運動を行うことの普遍性を裏付けた。さらに、高等動物における V-ATPase の役割について、オルガネラ・細胞特異的に異なるサブユニットアイソフォームが存在し、多様な V-ATPase が目的に応じて使い分けが行われていることが遺伝子解析の結果より明らかとなった。

[原著論文]

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 (2003) 147-153.

Vacuolar H^+ Pumping ATPase in Luminal Acidic Organelles and Extracellular Compartments: Common Rotational Mechanism and Diverse Physiological Roles, G. -H. Sun-Wada, Y. Wada, and M. Futai: *J. Bioenerg. Biomemb.* 35 (2003) 347-358.

Specific Recognition of *Leishmania major* Poly- α -galactosyl Epitopes by Galectin-9: Possible Implication of Galectin-9 in Interaction between L. Major and Host Cells, I. Pelletier, T. Hashidate, T. Urashima, M. Futai, M. Hirashima, N. Nishi, T. Nakamura, K. Kasai, and J. Hirabayashi: *J. Biol. Chem.* 278 (2003) 22223-22230.

Involvement of Syntaxin 7 in Human Gastric Epithelial Cell Vacuolation Induced by the *Helicobacter pylori*-produced Cytotoxin VacA, J. Suzuki, H. Ohnishi, A. Wada, T. Hirayama, H. Ohno, N. Ueda, H. Yasuda, T. Iiri, Y. Wada, M. Futai, and H. Mashima: *J. Biol. Chem.* 278 (2003) 25585-25590.

From Lysosomes to Plasma Membrane: Localization of Vacuolar Type H⁺-ATPase with the $\alpha 3$ Isoform during Osteoclast Differentiation, T. Toyomura, Y. Murata, A. Yamamoto, T. Oka, G. -H. Sun-Wada, Y. Wada, and M. Futai: *J. Biol. Chem.* 278 (2003) 22023-22030.

Revised Nomenclature for Mammalian Vacuolar-type H⁺-ATPase Subunit Genes, A. N. Smith, R. C. Lovering, M. Futai, J. Takeda, D. Brown, and F. E. Karet: *Mol. Cell.* 12 (2003) 801-803.

Lysosome and Lysosome-related Organelles Responsible for Specialized Functions in Higher Organisms, with Special Emphasis on Vacuolar-type Proton ATPase, G. -H. Sun-Wada, Y. Wada, and M. Futai: *Cell Struct. Funct.* 28 (2003) 455-463.

Mouse Proton Pump ATPase C Subunit Isoforms (C2-a and C2-b) Specifically Expressed in Kidney and Lung, G. -H. Sun Wada, Y. Murata, M. Namba, A. Yamamoto, Y. Wada, and M. Futai: *J. Biol. Chem.* 278 (2003) 44843-44851.

Role of Copper Ion in Bacterial Copper Amine Oxidase: Spectroscopic and Crystallographic Studies of Metal-substituted Enzymes, S. Kishishita, T. Okajima, M. Kim, H. Yamaguchi, S. Hirota, S. Suzuki, S. Kuroda, K. Tanizawa, and M. Mure: *J. Am. Chem. Soc.* 125 (2003) 1041-1055.

Rotation of Vacuolar-type Proton Pumping ATPase: Relative Rotation of the G and c Subunit, T. Hirata, A. Iwamoto-Kihara, G. H. Sun-Wada, T. Okajima, Y. Wada, and M. Futai: *J. Biol. Chem.* 278 (2003) 23714-23719.

Detection of Protein-protein Interactions on SiO₂/Si Surfaces by Spectroscopic Ellipsometry, S. Kodera, T. Okajima, H. Iwabuki, D. Kitaguchi, S. Kuroda, T. Yoshinobu, K. Tanizawa, M. Futai, and H. Iwasaki: *Anal. Biochem.* 321 (2003) 65-70.

Chemical and Kinetic Reaction Mechanisms of Quinohemoprotein Amine Dehydrogenase from *Paracoccus denitrificans*, D. Sun, K. Ono, T. Okajima, K. Tanizawa, M. Uchida, Y. Yamamoto, F. S. Mathews, and V.L. Davidson: *Biochemistry* 42 (2003) 10896-10903.

Stereochemistry of 2-Phenylethylamine Oxidation Catalyzed by Bacterial Copper Amine Oxidase, M. Uchida, A. Ohtani, N. Kohyama, T. Okajima, K. Tanizawa, and Y. Yamamoto: *Biosci. Biotechnol. Biochem.* 67 (2003) 2664-2667.

[解説、総説]

ペプチド・ビルトイン型キノン補酵素研究の新展開、岡島俊英、谷澤克行: 蛋白質核酸酵素、48 (2003) 740-746.

[国際会議]

Subunit rotation of ATPase Synthase Embedded in Membranes: a or b Subunit Rotation Relative to the c Subunit Ring, *M. Futai, Experimental Biology 2003 Annual Meeting, San Francisco, CA,

U.S.A., Apr. 11-15, 2003.

Diversity of V-ATPase: From Lysosome to Resorption Lacuna of Osteoclast, *M. Futai, Gordon Research Conference: Molecular and Cellular Bioenergetics, Boston, U.S.A., Jun. 22-27, 2003.

Mutational and Crystallographic Investigation of the Role of Aspartate 298 in the Catalysis of Bacterial Copper Amine Oxidase (Poster), *T. Okajima, Y. -C. Chiu, M. Uchida, Y. Yamamoto, H. Hayashi, and K. Tanizawa, 17th Annual Symposium of the Protein Society, Boston, MA, U.S.A., Jul. 26-30, 2003.

Involvement of a Hypothetical [Fe-S]-binding Protein in the Biogenesis of Quinohemoprotein Amine Dehydrogenase (Poster), *K. Ono, T. Okajima, and K. Tanizawa, Gordon Research Conference: Protein Derived Cofactors, Radicals And Quinones, Ventura, CA, U.S.A., Jan. 11-16, 2004.

Mechanism of Reductive Half-reaction of Bacterial Copper/TPQ-dependent Amine Oxidase (Poster), *T. Murakawa, Y.-C. Chiu, T. Okajima, and K. Tanizawa, Gordon Research Conference: Protein Derived Cofactors, Radicals And Quinones, Ventura, CA, U.S.A., Jan. 11-16, 2004.

[国際会議の組織委員、雑誌の編集委員]

二井將光 Arch. Biochem. Biophys. (編集委員)
二井將光 J. Bioenerg. Biomemb. (編集委員)
二井將光 J. Biol. Chem. (編集委員)
二井將光 Biological Chemistry (編集委員)

[国内学会]

日本生化学会	11 件
日本農芸化学会	1 件
日本蛋白科学会	1 件
日本生体エネルギー研究会	1 件
日本化学会	1 件
日本結晶学会	1 件

[科学研究費補助金]

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

特定領域研究(2)	
二井 將光 生物ナノ・モータープロトンポンプ ATPase の作動機構 基盤研究(A)	17,900
二井 將光 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 基盤研究(C)(2)	11,100
岡島俊英 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	1,200

[その他の競争的研究資金]

二井 將光 科学技術振興機構：戦略的創造研究 推進事業「ソフトナノマシン等の 高次機能複合体の構築と利用」	高効率ナノモーターとしてのプ ロトンポンプの分子機構解明	27,700
---	---------------------------------	--------

ナノシステム設計分野

客員教授 彌田 智一（平成 15 年 1 月～3 月）
客員助教授 野崎 京子（平成 15 年 1 月～3 月）

a) 概要

機能分子科学研究部門所属の研究分野、特に有機金属化合物研究分野と分子合成化学研究分野との共同研究において、(1) 1次構造、2次構造が明確なナノサイズの高分子、中でも共役系が分子全体に広がる高分子や官能基が規則的に配列した高分子の精密合成を行い、それらの溶液中での分子形態と動的挙動や分子内および分子間相互作用の解析を行い、分子形態や超分子形成などに関する評価を行う。さらに、それらの知見を基に、単分子素子としての機能、集合体としての機能を物性・反応性の両面から探索する。(2) 遷移金属錯体の特徴を活かし、設計の容易な分子触媒を中心に、キラルな配位子を設計・合成し、有用有機物質の触媒的不斉合成法を開発する。さらに、低分子合成の手法を高分子合成にも適用し、アキラルなモノマーに不斉情報を付与しながら重合する不斉重合反応を開発する。

b) 成果

1. 「機能性有機金属高分子」

フェロセンを側鎖置換基としてもつ光学活性なイソシアニドを2核遷移金属アセチリド開始剤でリビング重合させて、分子量の揃ったナノサイズの有機金属高分子を合成した。この高分子が溶液中で片方巻のらせん構造を採ることをCDスペクトルで、また側鎖フェロセニル基が可逆的に酸化・還元を受けることをサイクリックボルタンメトリーで確認した。更に、電解UVと電解CDの測定実験から、このらせん構造ポリマーは酸化・還元に対して、可逆的ならせん構造の変化で応答することを見いだした。この研究成果を、日本化学会第83春季年会で発表する予定である。

2. 「光学活性機能性高分子」

1-置換オレフィンを一酸化炭素と交互共重合させると、主鎖に不斉炭素を有するポリケトンが得られる。Pd-BINAPHOS錯体を触媒としてもちい、不斉炭素の絶対配置がほぼ完全にSに制御されたイソタクチック光学活性ポリケトンを合成した。側鎖に機能性置換基を導入すると撥水性、液晶性などの性質を付与できる。また、キラル亜鉛錯体をもちいて、世界に先駆けてメソ体のエポキシドと二酸化炭素の不斉交互共重合に成功した。

3. 平成15年3月1日に講演会を開催した。

野崎京子 講演題目「アキラルなモノマーを重合させる高分子の不斉合成」

彌田智一 講演題目「機能集積をめざした高分子ナノ構造材料」

ナノシステム設計分野

客員助教授 金崎 順一（平成 14 年 4 月～6 月）

a) 概要

高次機能ナノ構造創製過程においては、基盤表面上における原子分子の組織的な配列制御や、表面のナノスケールのパターンニングなどが重要なプロセスとなる。これらの表面ナノプロセス過程を、励起手法を用いて制御し新規なプロセス法を確立する事をめざして、半導体表面上の励起によって誘起される原子のボンド切断や原子集合の基礎過程の解明を目的とした研究を行う。特に、実時間域の反応動力学と構造変化の原子レベルからの明確化を主眼とし、励起源としては、制御性にすぐれたレーザー光とともに、ナノ加工を目指した高分解能低エネルギー電子ビームを用い、現象のミクロな機構解明を目指す研究を中心に展開する。

b) 成果

4. III-V 族化合物半導体表面における光誘起表面構造変化機構の解明

固体表面からの極微量の脱離中性原子種を同時かつ超高感度に検出可能なフェムト秒火共鳴イオン化分光法と走査型トンネル顕微鏡による表面原子像測定を併用して、InP、GaAs 等の III-V 族化合物表面におけるレーザー励起による表面構造変化の研究を行った。その結果、

1) Si 表面と同様、2 種の異なる原子種で構成される化合物半導体表面においても、価電子系の励起に直接的に起因するボンド切断現象が発生する事、

2) 非金属原子のボンド切断効率は、金属原子の効率に比べて 3 倍以上大きく、構造変化効率が強い原子種依存性をしめす事

が明らかとなった。この結果は、今までの理論的考察によって提唱されていた金属原子の優先的な不安定性の発現という定説を、完全に覆すものであり、学術的に大きなインパクトを与えるとともに、励起手法による表面構造制御に、「原子選択エッチング」の可能性を強く示唆するものとなっている。

2. 高分解能低エネルギー電子ビーム励起による Si(111)-(7x7)表面におけるボンド切断

短針からのトンネル電流励起は、基本的に原子スケールまでの極限化が可能であり、励起領域をナノスケールで空間的に限定させて、励起による表面構造変化をナノ加工法へと発展させ得る可能性がある。そのためには、極微細電子ビーム励起による構造変化の基本的特徴と基礎過程を解明することが重要な課題である。そのための基礎として、光励起の場合の特徴が明らかとなっている半導体表面を対象にして、高分解能低エネルギー電子ビーム励起による表面構造変化の研究を行った。その結果、30eV 程度の電子ビーム励起によって、Si(111)-(7x7)表面におけるサイト選択的なボンド切断が、電子ビーム強度に比例して発生する事が明らかとなった。今後、電子ビームのエネルギーを変化させ、構造変化様式との相関を明確にすることが課題である。

[国際会議]

Electronic bond rupture of Si-dimers on Si(001)-(2x1) induced by pulsed laser excitation, J. Kanasaki, The 7th International Conference on Laser Ablation, Hersonissos, Greece, October 5-10, 2003.

ナノシステム設計分野

客員教授 玉村 敏昭（平成 15 年 7 月～9 月）

a) 概要

現在光化学反応によって主として行われている微細加工の要素技術は、近い将来電子線・軟X線などの量子ビームにとって代わられると予想される。量子ビームによる微細加工技術の要素技術の開発を行う。

b) 成果

- 1．電子線リソグラフィにより、ナノスケールのホール配列の形成を行った。プロセスの最適化を行い良好な結果を得た。
- 2．電子線リソグラフィを用いたリフトオフ法によりナノギャップ電極の作製を行った。

ナノシステム設計分野

客員教授

入江 正浩（平成 15 年 1 月～3 月）

a) 概要

究極の光メモリは、分子一つ一つに情報を蓄えることのできる単一分子光メモリである。この単一分子光メモリ素子に代表される、単一分子からなる種々の分子素子および分子回路の構築をめざして、そのための蛍光光スイッチ分子、導電光スイッチ分子の分子設計と合成、更にその評価を行う。また、単一分子蛍光、導電計測のための装置開発をすすめる。また、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および機能分子科学研究部門所属の励起分子化学研究分野において、単一分子化学や、フォトクロミック化学に関する研究についての討論を行う。

b) 成果

単一分子メモリに用いる分子には、異なる波長の光照射により、蛍光強度が光スイッチする機能とともに、光耐久性、高感度性、高速応答性、繰り返し耐久性などが要求される。これらの性能をそなえた分子として、フォトクロミックジアリアルエテンユニットと蛍光性ペリレンユニットとをアダマンタン基で結合した分子を設計・合成した。ジアリアルエテン、ペリレンは、ともに光耐久性にすぐれていることが知られている。この分子では、紫外光照射により蛍光が消光され、可視光照射により再び蛍光が現れる。高分子フィルムにこの分子の極希薄溶液を分散させ、単一分子蛍光測定を行った。その結果、単一分子レベルにおいて、紫外光/可視光照射により蛍光がデジタル的に OFF/ON スイッチすることが観測された。

ナノシステム設計分野

客員助教授 山田 啓文 (平成 15 年 7 月 ~ 9 月)

a) 概要

原子間力顕微鏡における探針・試料間の局所的相互作用を選択的に検出することにより、表面の局所領域におけるさまざまな物性を測定することが可能となる。本研究では、特に近年進展の著しいダイナミックモード AFM をベースとする多様なナノプローブ局所物性計測法を用いた材料物性評価への応用についての検討を行った。

b) 成果

現在のナノプローブ技術をベースに、先進電子計測手法、バイオセンシング技術、マイクロマシン技術を融合することで、ナノ機能センシングやナノ操作・制御・加工の能力をもつナノプローブの特徴を一層強化した新規「高機能ナノプローブ」の実現可能性について検討し、開発する上での具体的課題を明らかにした。さらに、SPM により有機分子のナノスケール電気特性評価、DNA 等の生体機能計測を行う際の具体的測定条件を明らかにした。また、光誘起磁化クラスタースピングラス系における光誘起によるスピングラスの融解や高スピン・低スピン転移による磁性の変化のダイナミックモード原子間力顕微鏡を用いた磁気力顕微鏡による直接計測の可能性を探索した。

[原著論文]

Remanent Polarization of Evaporated Films of Vinylidene Fluoride Oligomers, K. Noda, K. Ishida, A. Kubono, T. Horiuchi, H. Yamada, K. Matsushige : J. Appl. Phys., 93 [5] (2003) 2866-2870.

Two-Dimensional Dopant Profiling by Scanning Capacitance Force Microscopy, K. Kimura, K. Kobayashi, H. Yamada, K. Matsushige : Appl. Surf. Sci., 210 (2003) 93-98.

Phase-Separated Alkanethiol Self-Assembled Monolayers Investigated by Non-Contact AFM, T. Ichii, T. Fukuma, K. Kobayashi, H. Yamada, K. Matsushige : Appl. Surf. Sci., 210 (2003) 99-104.

Effect of Wafer Adsorption on Microscopic Friction Force on SrTiO₃ (001), K. Iwahori, S. Watanabe, M. Kawai, K. Kobayashi, H. Yamada, K. Matsushige : J. Appl. Phys., 93 [6] (2003) 3223-3227.

Fabrication of Nanogap Electrodes Using Ultrathin Film, T. Miyazaki, K. Kobayashi, K. Ishida, S. Hotta, T. Horiuchi, H. Yamada, K. Matsushige : Jpn. J. Appl. Phys., 42 (2003) 4173-4176.

Investigation of Ferroelectric Properties of Vinylidene Fluoride Oligomer Evaporated Films, K. Noda, K. Ishida, K. Mochizuki, A. Kubono, T. Horiuchi, H. Yamada, K. Matsushige : Mat. Res. Soc. Symp. Proc., 751 (2003) 217-222.

Nanoscale Investigation of Optical and Electrical Properties by Dynamic-Mode Atomic Force Microscopy Using a Piezoelectric Cantilever, N. Satoh, K. Kobayashi, S. Watanabe, T. Fuji, T. Horiuchi, H. Yamada, K. Matsushige : Jpn. J. Appl. Phys., 42 (2003) 4878-4881.

Nanoscale Electrical Properties of Molecular Films in the Vicinity of Platinum Ultrathin Film Electrode, T. Miyazaki, K. Kobayashi, K. Ishida, S. Hotta, T. Horiuchi, H. Yamada, K. Matsushige : Jpn. J. Appl. Phys., 42 (2003) 4852-4855.

Orientation Control of Poly (vinylidene fluoride-trifluoroethylene) Crystals and Molecules Using Atomic Force Microscopy, K. Kimura, K. Kobayashi, H. Yamada, T. Horiuchi, K. Ishida, K. Matsushige : Appl. Phys. Lett., 82 (2003) 4050-4052.

Pyroelectricity of Ferroelectric Vinylidene Fluoride-Oligomer-Evaporated Thin Films, K. Noda, K. Ishida, T. Horiuchi, H. Yamada, K. Matsushige : Jpn. J. Appl. Phys., 42 (2003) L1334-L1336.

[解説、総説、翻訳]

ダイナミックモード原子間力顕微鏡の有機分子材料評価への応用, 山田 啓文 : 高分子, 52 巻 (2003) 413-418.

[国際会議]

Structures and Piezoelectric Properties of P(VDF-TrFE) Copolymer Ultrathin Films, *K. Kobayashi, H. Masuda, K. Kimura, H. Yamada and K. Matsushige, 3rd International Conference on Scanning Probe Microscopy of Polymers, Rolduc Abbey Conference Center, Kerkrade, The Netherlands, July 15-18, 2003.

Submolecular-Resolution Non-Contact AFM Study on Metal-Phthalocyanines, *T. Fukuma, K. Kobayashi, H. Yamada, K. Matsushige, 12th International Conference on Scanning Tunneling Microscopy / Spectroscopy and Related Techniques, Eindhoven, The Netherlands, July 21-25, 2003.

A Novel 2D Dopant Profiling Technique: Scanning Capacitance Force Microscopy, * K. Kobayashi, K. Kimura, H. Yamada, K. Matsushige, 12th International Conference on Scanning Tunneling Microscopy / Spectroscopy and Related Techniques, Eindhoven, The Netherlands, July 21-25, 2003.

Investigations of Organic Molecules by Non-contact Atomic Force Microscopy (Invited), *H. Yamada, T. Fukuma, K. Kobayashi, T. Ichii, K. Matsushige, 6th International Conference on Non-Contact Atomic Force Microscopy (NC-AFM 2003) ,Dingle, Ireland, August 31-September 3, 2003.

Submolecular-Resolution on NC-FM on Metal Phthalocyanines, *T. Fukuma, T. Ichii, T. Yoda, K. Kobayashi, H. Yamada and K. Matsushige, 6th International Conference on Non-Contact Atomic Force Microscopy (NC-AFM 2003) , Dingle, Ireland, August 31-September 3, 2003.

Surface Potential Measurements by Dissipative Force Modulation Method (Poster), *T. Fukuma, K. Kobayashi, H. Yamada and K. Matsushige, 6th International Conference on Non-Contact Atomic Force Microscopy (NC-AFM 2003) , Dingle, Ireland, August 31-September 3, 2003.

Imaging Semiconductors by Scanning Capacitance Force Microscopy in Dynamic Mode (Poster), *K. Kobayashi, K. Kimura, H. Yamada, K. Matsushige, 6th International Conference on Non-Contact Atomic Force Microscopy (NC-AFM 2003) ,Dingle, Ireland, August 31-September 3, 2003.

Surface Potential Measurements of Phase-separated Self-assembled Monolayers by non-contact Atomic Force Microscopy (Poster), *T. Ichii, T. Fukuma, K. Kobayashi, H. Yamada and K. Matsushige, 6th International Conference on Non-Contact Atomic Force Microscopy (NC-AFM 2003) ,Dingle, Ireland, August 31-September 3, 2003.

Applications of Dynamic Force Microscopy to Molecular-scale Investigations of Organic Molecular

Films (Invited), *H. Yamada, T. Fukuma, K. Kobayashi, T. Ichii, K. Matsushige, Kyoto University SPM Workshop (Dr. Rohrer's Award Workshop), Kyoto, Japan, February 5, 2004.

Characterization of Nanoscale Electronic Devices Utilizing Force Microscopy (Invited), *K. Kobayashi, K. Kimura, H. Yamada, K. Matsushige, Kyoto University SPM Workshop (Dr. Rohrer's Award Workshop), Kyoto, Japan, February 5, 2004.

ナノシステム設計分野

客員教授 松井 真二（平成 15 年 10 月～12 月）

a) 概要

最近 DNA の様々な物性研究が盛んに行われ、バイオナノデバイスへの DNA の利用が考えられるようになった。この実現のためには DNA を用いてナノパターンニングを行う必要があるが、そのための技術がないのが現状である。本研究では、ナノインプリント技術を利用することによって自己組織化による DNA ナノパターンニングプロセスの開発を行った。

b) 成果

Poly-L-lysine コートガラス基板上に $1\mu\text{g}/\mu\text{l}$ 鮭白子 DNA を滴下・乾燥させて UV 照射を行い、その上にポリビニルアルコール(PVA)水溶液をスピコートした。このガラス基板を、EB リソグラフィーにてナノパターンニングされた SiO_2/Si モールドを用いて、6 MPa, 100 , 5 min にてインプリントを行った。その後 O_2 雰囲気下でドライエッチングを行い、水洗浄にて PVA 層を剥離して DNA ナノパターンを得た。蛍光色素 YO-PRO-1 にて DNA を染色した後、蛍光顕微鏡にて DNA 観察を行った。本プロセスにより、DNA のナノパターンニングを観察することができた。本新規開発プロセスを利用することで、モールドパターンに従った様々な DNA ナノパターンを自己組織化により得ることができる。

ナノ量子ビーム研究部門

概 要

本研究部門は、量子ビームナノファブリケーション、ナノ量子ビーム開発、ナノビームプロセス、極限ナノ加工（学内兼任）、超高速ナノ構造（客員）の分野から成り、量子ビーム科学研究部門、加速器量子ビーム実験室と協力しながら研究を行っている。量子ビームは、ナノサイエンス・ナノテクノロジーの進展に重要な役割を果たすことが期待されている。そこで、電子線加速器からの短パルス電子線や陽電子ビーム、イオンビームおよび電子線露光機等のファブリケーション関連機器を駆使して、量子ビームによるナノサイエンス・ナノテクノロジーの総合的な展開を図っている。その特徴は、量子ビーム時間空間反応解析をはじめとした極限ナノ空間反応解析、陽電子ビームを利用したナノ構造解析、量子ビームによるプロセス開発にあり、トップダウン方式による極限ナノファブリケーションの実現や、新しいナノ量子ビーム科学の創出を目標としている。これらの研究を支えるために、量子ビームの高度化、測定手法の開発、支援機器の整備を分野間および部門間で協力しながら行っている。また、より成果を挙げるために、他大学、研究機関、民間企業との共同研究や国際的な共同研究も積極的に行っている。

成 果

- ・ 量子ビームナノファブリケーション初期過程
- ・ レジストナノ空間内でのスパーク効果の研究
- ・ レーザーRFフォトカソードSバンドライナックの開発
- ・ 時間空間反応解析用フェムト秒パルスラジオリシス
- ・ 時間空間反応解析用アト秒パルスラジオリシス
- ・ 量子ビームによる光デバイスの開発
- ・ Sバンドライナックの改良
- ・ 高強度低速陽電子ビームの生成
- ・ AMOC法を用いたポジトロニウム消滅過程に関する研究
- ・ 陽電子ビームの短パルス化に関する研究
- ・ 陽電子回折実験
- ・ 陽電子による高分子薄膜構造解析
- ・ 分子ナノワイヤーの電子構造と物理的特性
- ・ 化学増幅型レジストの反応機構
- ・ 荷電粒子による一次元ナノワイヤーの形成
- ・ ナノエレクトロニクス材料からのアウトガス生成機構
- ・ レジストナノ空間内での放射線誘起反応の研究
- ・ 芳香族分子の放射線誘起反応の研究

量子ビームナノファブリケーション分野

教授	吉田 陽一
助手	楊 金峰
大学院生	竹谷 孝司、友定 寛、島田 巧、藤井 崇弘
学部学生	菅 晃一
事務補佐員	寺下 美絵

a) 概要

量子ビームナノファブリケーション分野は、極限ナノファブリケーション実現のためのナノファブリケーション初期過程の解明と、極限ナノファブリケーションにより作り出されるナノ構造体と量子ビームの相互作用に関する研究を行っている。時間空間反応解析は、量子ビームによって誘起された物理化学過程や反応機構に関する情報から、ナノ空間における短寿命中間活性種等の位置の情報を得る手法であり、極限ナノファブリケーションの実現に不可欠な手法である。この時間空間反応解析を行うことにより、現在問題となるナノファブリケーションにおけるスパア内での空間分解能の等さまざまな問題点の解決を図ることを目的としている。より詳細な時間空間反応解析を行うためには時間分解能の向上が不可欠であり、そのために、世界最高性能を有するフェムト秒・アト秒領域のパルスラジオリシスの計画を推進している。さらに、極限ナノファブリケーションの応用をテーマとした新しいナノ量子ビーム研究を展開している。

b) 成果

・時間空間反応解析用フェムト秒パルスラジオリシスの研究

フェムト秒パルスラジオリシスの研究では、加速器量子ビーム実験室に設置されたレーザーフォトカソードRF電子銃Sバンドライナックを利用している。パルスラジオリシスの励起源であるフェムト秒電子パルス発生には、1.6セルの加速空洞で構成された最先端SバンドフォトカソードRF電子銃と磁気パルス圧縮装置が用いられている。フェムト秒領域の反応や現象の測定のために、フェムト秒Ti:sapphireレーザーを利用している。従来のライナックを比べ、本システムでは電子線パルス長が数十フェムト秒までに圧縮でき、また低エミッタンスのため高輝度になる。従って、高S/N光吸収分光の実現が期待できる。また、レーザーフォトカソードRF電子銃を利用しているため、電子線パルスと分析光パルスが高精度で時間同期でき、時間ジッターによるパルスラジオリシス時間分解能の劣化を減らすことも期待できる。

フェムト秒時間分解能のパルスラジオリシスを実現するためには、電子線パルスとレーザーパルスとの間の時間ジッターによる時間分解能の劣化やサンプル中での光と電子が通過する速度の違いによる時間分解能の劣化の防止が必要である。電子線パルスとレーザーパルスとの間の時間ジッターによる時間分解能の劣化に対しては、従来開発したフェムト秒ストリークカメラを用いた時間ジッター補正法を取り込んだ。サンプル中での光と電子が通過する速度の違いによる時間分解能の劣化の防止に対しては、斜め入射法と呼ばれる方式を開発した。これは、電子線パルスと光パルスを屈折率に応じて角度をつけてサンプルに入射する方法である。その際に、磁気パルス圧縮器で電子線パルスの波面を光パルスと同じになるように調整を行う。そうすることにより、サンプル中での光路長による時間分解能劣化を原理的にはゼロにまですることができると。また、光路長も電子ビームの径に応じて大きくとることが可能であり、吸収強度も格段に大きくなる。

・時間空間反応解析用アト秒パルスラジオリシスの開発

極限ナノファブリケーションでは、レジストにおけるスパア内反応を制御する必要がある。アト秒

パルスラジオリシスを実現すれば、アト秒・フェムト秒領域の現象を測定することにより、放射線化学初期過程の本当の出発点から現象を追跡できるようになり、物理過程と化学過程を完全につなぐことになる。アト秒パルスラジオリシスの研究は、極限なナノファブリケーション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。

アト秒パルスラジオリシスを実現するには、アト秒電子パルスとアト秒分析光パルスが必要であり、電子パルスと分析光パルスをアト秒時間精度で同期する必要がある。そこで、我々はレーザー分析光パルスを使わない、1台のライナックでツインライナックを実現する方法を検討している。すなわち、現在開発しているレーザーフォトカソードRF電子銃ライナックを利用し、ダブル入射光学系を用いてカソードに照射するレーザー光パルスを2つに分ける。その2つレーザー光パルスを約1mmずれたカソード面に照射することによりダブル電子パルスが生成され、その後、ライナックで加速され、磁気パルス圧縮装置を用いて圧縮される。圧縮された一番目の電子パルスを光に変換し、分析光パルスとして利用する。励起パルスとしては、次の電子パルスを利用する。

ダブル電子パルスの時間差調整はダブル入射光学系に取り付けられた光学遅延回路を用いてダブルレーザー光パルスのタイミング調整により行われるため、時間ジッターは電子加速のRF位相変動だけで決められる。したがって、RF位相を安定化することにより、分析パルスと励起パルスの時間ジッターが最小限に抑えられる。

また、分析光パルスの生成には電子線のコヒーレント放射を利用しているため、アト秒又はフェム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。今年度には、ダブル入射光学系、ダブル電子パルス発生と電子ビーム測定系を構築し、動作確認を行った。来年度から、ダブル電子パルス発生の実験を行い、ツインライナックにおけるパルスラジオリシスの実験を行う予定である。

・量子ビームナノファブリケーション初期過程とナノ空間内でのスパー内反応の研究

電子線が液体溶媒中に入射すると、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り、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。

そこで、我々はサブピコ秒パルスラジオリシス法を用いて電子捕捉剤として使用されているクロロプロパン (C_3H_7Cl)、クロロブタン (C_4H_9Cl)、クロロペンタン ($C_5H_{11}Cl$) 等のハロカーボンのジェミネートイオン再結合の研究を行った。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。我々は、サブピコ秒パルスラジオリシスにより波長790nmでハロカーボンの過渡吸収時間プロファイルの測定を行った(図3に示す)。波長790nmの赤外領域においては図に示すように極めて減衰速度の速い吸収を観測した。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を行い、ハロカーボンにおいて Cl^- の拡散定数と電子の初期分布距離を見積った。ハロカーボン中の電子の初期分布距離は、ドデカンやほかの一般的なアルカン中の電子の初期分布距離(6nm)より短く、1~2nmであることが分かった。理由の一つとしては、電子が熱化前にハロカーボンと反応することが考えられる。このことより初期分布距離が短いことを利用すれば、ナノファブリケーションにおける空間分解能向上に貢献できる可能性が考えられる。

[原著論文]

Subpicosecond Pulse Radiolysis Study of Geminate Ion Recombination in Liquid Benzene, K. Okamoto, A. Saeki, T. Kozawa, Y. Yoshida and S. Tagawa: Chem. Lett., 32(2003), 834-835.

Spatial Beam Profiles of Femtosecond X-ray Pulses Generated by Laser Compton Scattering from a Low-emittance Electron Beam, M. Yorozu, J. Yang, Y. Okada, T. Yanagida, F. Sakai, S. Ito, and A. Endo: *Appl. Phys.*, B76 (2003), 293-297.

Quantum Efficiencies of Mg Photocathode under Illumination with 3rd and 4th Harmonics Nd:LiYF₄ Laser Light in RF Gun, T. Nakajyo, J. Yang, F. Sakai, and Y. Aoki: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 42 (2003), 1470-1474.

Adjacent Effect on Positive Charge Transfer from Radical Cation of n-Dodecane to Scavenger Studied by Picosecond Pulse Radiolysis, Statistical Model, and Monte Carlo Simulation, A. Saeki, T. Kozawa, Y. Yoshida, and S. Tagawa: *J. Phys. Chem.*, 108 (2003), 1475-1481.

[国際会議]

Femtosecond Pulse Radiolysis for Nanofabrication, *Y. Yoshida, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology, Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Control of Spur Size in Material for Nano-fabrication: Study of Primary Process of Radiation Chemistry of Halocarbon by using Subpicosecond Pulse Radiolysis (Poster), *K. Takeya, K. Kan, H. Tomosada, J. Yang, T. Kozawa, Y. Yoshida, and S. Tagawa, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology, Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

A new femtosecond pulse radiolysis for reaction analysis in nano-space (Poster), *H. Tomosada, K. Kan, K. Takeya, J. Yang, T. Kozawa, Y. Yoshida, and S. Tagawa, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology, Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Development of a Femtosecond Electron Photocathode Linac for Nanoscience and Nanotechnology (Poster), *J. Yang, K. Kan, H. Tomosada, K. Takeya, T. Yamamoto, T. Kozawa, Y. Honda, Y. Yoshida, and S. Tagawa, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology, Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Application of Positron for the Nano-structural analysis of Polymers (Poster), *T. Shimada, Y. Honda, M. Tashiro, Y. Terashima, T. Fujii, Y. Yoshida, S. Tagawa, and G. Isoyama, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology, Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

The Relation between Spatial Resolution and Reaction Mechanism of Chemically Amplified Resists for Electron Beam Lithography (Poster), *T. Kozawa, A. Saeki, A. Nakano, Y. Yoshida, and S. Tagawa, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology, Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Development of a Femtosecond Electron Photocathode Linac for Nanoscience and Nanotechnology (Poster), *J. Yang, K. Kan, H. Tomosada, K. Takeya, T. Yamamoto, T. Kozawa, Y. Honda, Y. Yoshida, and S. Tagawa, 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology and Material Science, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2003.

Study of Primary Process of Radiation Chemistry of Halocarbon by using Subpicosecond Pulse Radiolysis: Control of Spur Size in Material for Nano-fabrication (Poster), *K. Takeya, K. Kan, H.

Tomosada, J. Yang, T. Kozawa, Y. Yoshida, and S. Tagawa, 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology and Material Science, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2003.

[国内学会]

日本放射線化学会	7 件
リニアック技術研究会	5 件
日本化学会	1 件
日本原子力学会	8 件
加速器科学技術発表会	5 件
先端加速器研究会	1 件
高周波電子銃研究会	1 件
TIARA 研究発表会	2 件

[取得学位]

修士(工学)

竹谷 孝司 極限ナノ加工のためのスパーク内反応の研究

[科学研究費補助金]

(代表者として配分されたもの)

単位： 千円

基盤研究 (A)(2)

吉田陽一 サブフェムト秒・アト秒電子線励起時間分解吸収分光法の基礎研究 8,500

[共同研究]

吉田 陽一	日本原子力研究所高崎研究所	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	イオンビームによる超微細構造体の形成
	住友重機械工業株式会社	ピコ秒レーザーとダブル入射光学系の開発
	住友重機械工業株式会社	光カソードRF電子銃と高品質電子ビームの開発

ナノ量子ビーム開発分野

教授	磯山 悟朗（兼任）
助教授	誉田 義英
助手	木村 徳雄

a) 概要

本研究分野では極限ナノ加工を実現するために必要な電子線形加速器の高性能化と、量子ビームの開発研究、新しいナノ計測手法の開発と利用法の研究を行うことを目的としている。電子ビームを用いたナノスケールでの微細加工を行うためには、電子ビームと材料との反応過程を調べる必要がある。この目的のために電子ライナックによるパルスラジオリシス法が用いられてきており、更なる超高速現象解明のためには、電子ライナックをより高性能化する必要がある。一方、電子ライナックを利用した陽電子ビームの生成も行っている。陽電子は空孔、自由体積に対し検出効率が高く、ナノスケールでの空孔サイズや分布を調べるための有効な手法と考えられている。特に高分子などの薄膜に対してもこれらの情報を得ることが可能な低速陽電子ビームの利用価値は高い。陽電子あるいは陽電子と電子が束縛状態を形成しているポジトロニウムと物質との相互作用に対する理解を進め、高分子薄膜内の自由体積や表面・界面の評価を行い、これを新しい材料開発に役立てていこうとしている。このような研究を行うためには、高品質な陽電子ビームが必要であるため、これを可能とする電子ライナックを用いた大強度低速陽電子ビームの発生法の開発、及び陽電子ビームの利用法の開発研究も行っている。更に、これらの研究を進める実験装置を有する加速器量子ビーム実験室の管理・運営にも寄与している。

b) 成果

・Sバンドライナックの改良

従来のSバンドライナックは低速陽電子発生用に主として利用されてきたが、前年度、新たにフォトカソードRF電子銃を備えたSバンドライナックが併置され、マシンタイムを2つのライナックで分配することになった。ライナックのRF電源はこれまで3台を同時に使用してきたが、このうち1台が新規に製作され、両方のライナックで共有することになった。本年度はこれらのライナックを安全且つ円滑に運転するための制御系やインターロック系の整備を行い、遠隔操作でライナックの運転や実験が行えるようにした。また、2台のライナックの立ち上げ試験も行い、不具合箇所の改善に取り組んだ。

・高強度低速陽電子ビームの生成

物質中での陽電子、ポジトロニウムの消滅過程の研究や物質の表面構造解析のためには、データ蓄積時間の短縮、S/N比の向上などの理由で高強度陽電子ビームが望まれる。陽電子ビーム強度を決めている最も大きな要因は、モデレーターでの低速陽電子の生成効率である。新たに高効率モデレーターの製作は済みであり、ライナックが正常に運転できるようになり、実験を行う予定である。

・AMOC法を用いたオルソポジトロニウム消滅過程に関する研究

陽電子寿命測定とSパラメーター（消滅線エネルギースペクトルの拡がり具合から、消滅電子の運動量の大小を評価するために導入されたパラメーター）測定の同時計測はAMOC法と呼ばれ、陽電子・ポジトロニウムの消滅過程を調べるための有力な手法である。本年度はライナックを用いた陽電子ビームを利用することができなかったため、RI線源を用いてポリスチレン誘導体に対しAMOC法による実験を行った。この結果、単純に消滅ガンマ線による光電ピークから評価されたS

パラメーターと、オルソポジトロニウムからの寄与分だけから評価された S パラメーターとでは値が異なることがわかった。これはオルソポジトロニウムを形成している陽電子が消滅する相手電子と、陽電子がポジトロニウムを形成せずに消滅するときの相手電子の運動エネルギーに差があることを意味し、ポジトロニウムの消滅が特定の場所で起こりやすいことを示唆している。また、S パラメーターにパラポジトロニウムの消滅も大きな影響を及ぼしており、材料により寄与の度合いが大きく異なっていることがわかった。このような結果を受け、分子軌道法による電子エネルギーの分布を調べ、ポジトロニウムの消滅箇所を特定する試みを開始した。

・陽電子回折実験

昨年度納入された陽電子回折実験用チェンバーには、陽電子を用いた実験結果を解析するために、通常の反射高エネルギー電子回折 (RHEED) 装置およびオージェ電子分光 (AES) 装置も装備されている。本年度は陽電子ビームを用いた実験ができなかったため、これら RHEED, AES の調整を行うとともにゴニオメーター駆動系のテストも行った。

・陽電子寿命測定法による高分子材料中の構造解析

ポリスチレン (PS)、ポリアクリル酸 (PA)、ポリメタアクリル酸 (PMA)、およびこれらの誘導体中で陽電子消滅寿命測定を行ったところ、オルソポジトロニウム (*o*-Ps) の生成量 (I_3) と寿命 (τ_3) が官能基の種類に大きく依存することを見出した。PS 誘導体の場合、フェノール誘導体で I_3 と寿命の低下が認められた。さらに PA および PMA では、これらのエステル誘導体に比べて小さい I_3 と τ_3 が認められた。 τ_3 の低下は空隙のサイズおよびその数がエステルよりも低下していることを示す。これらの結果は、フェノール性水酸基およびカルボニル基を置換した高分子材料中では分子内および分子間での強い水素結合に起因する。これは、 I_3 の低下からも支持される。

[原著論文]

Behavior of Positronium in Polystyrene and Its Derivatives, Y. Honda, M. Watanabe, M. Tashiro, Y. Terashima, K. Miyamoto, N. Kimura and S. Tagawa : Radiat. Phys. Chem. 68 (2003) 463-465.

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 : Radiat. Phys. Chem. 68 (2003) 475-479.

The Study of Nano-Space in PHS/PS Bilayer by Slow Positron Beam, Y. Terashima, M. Tashiro, K. Miyamoto, Y. Honda, S. Tagawa : Radiat. Phys. Chem. 68 (2003) 589-592.

The Effects of Free Volumes on Charge Carrier Transport of Polysilanes Probed by Positron Annihilation, S. Seki, T. Terashima, Y. Kunimi, T. Kawamori, M. Tashiro, Y. Honda, S. Tagawa : Radiat. Phys. Chem. 68 (2003) 501-505.

[国際会議]

Temporal Evolution of Ortho-Positronium in Polystyrene Related Polymers Using AMOC (Poster), Y. Honda, T. Shimada, N. Kimura, Y. Terashima, M. Tashiro, Y. Yoshida, G. Isoyama, S. Tagawa, 13th International Conference on Positron Annihilation, Kyoto, Japan, Sep. 7-12, 2003.

Study of Interfaces in Polymer Bilayers by Slow Positron Beam, Y. Terashima, S. Seki, K. Miyamoto, M. Tashiro, Y. Honda, S. Tagawa, 13th International Conference on Positron Annihilation, Kyoto, Japan, Sep. 7-12, 2003.

Development of a Femtosecond Electron Photocathode Linac for Nanoscience and Nanotechnology
J. Yang, K. Kan, H. Tomosada, K. Takeya, T. Yamamoto, T. Kozawa, Y. Honda, Y. Yoshida, and S. Tagawa, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology, Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Application of Positron for the Nano-structural analysis of Polymers, T. Shimada, Y. Honda, M. Tashiro, Y. Terashima, T. Fujii, Y. Yoshida, S. Tagawa, and G. Isoyama, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology, Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

Development of a Femtosecond Electron Photocathode Linac for Nanoscience and Nanotechnology,
J. Yang, K. Kan, H. Tomosada, K. Takeya, T. Yamamoto, T. Kozawa, Y. Honda, Y. Yoshida, and S. Tagawa, 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology and Material Science, Osaka, Japan, Jan. 13-14, 2003.

The Interaction between Polymer Thin Films and Positron from Slow Positron Beam, K. Miyamoto, Y. Terashima, M. Tashiro, Y. Honda, S. Tagawa, The 20th Conference of Photopolymer Science and Technology /The International Symposium 2003 Materials & Processes for Advanced Microlithography and Nanotechnology, Chiba, Japan, Jun. 24-27, 2003.

Study of Nano-Space in Au-Polysilane Interfaces by Slow Positron Beam, Y. Terashima, S. Seki, M. Tashiro, Y. Honda, S. Tagawa, The 20th Conference of Photopolymer Science and Technology /The International Symposium 2003 Materials & Processes for Advanced Microlithography and Nanotechnology, Chiba, Japan, Jun. 24-27, 2003.

[国内学会]

リニアック技術研究会	5 件
加速器科学研究会	3 件
日本放射線化学会	2 件
日本原子力学会	4 件

ナノビームプロセス分野

教授 田川 精一（兼任）

助教授 関 修平

助教授 古澤 孝弘

a) 概要

ナノビームプロセス分野は電子、イオン、光子等の集束性に優れた量子ビームを用いたナノテクノロジープロセスの研究・開発を行っている。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は現在 100 nm 以下の加工が可能なレベルに到達しているが、本研究分野では、さらなる高解像化を目指すため、極限ナノビームプロセスの追求と、その展開を目的に研究を行っている。ナノビームが微小空間内で引き起こす現象は物理・化学的に興味深いだけでなく、今後のトップダウン型ナノテクノロジーの進展のため、解明されなければならない必須項目である。さらに、ナノテクノロジーの発展のためにはトップダウン型ナノテクノロジーとボトムアップ型ナノテクノロジーの融合が必要不可欠であり、本研究分野では両者の融合を念頭に極限ナノビームプロセスの展開を目指した研究を進めている。

b) 成果

・分子ナノワイヤーの電子構造と物理的特性

飽和高分子ながら分子内に広がった共役系を有すると考えられるポリシラン・ポリゲルマンは、その特有の電子光学特性から多くの注目を集めている。このような共役系高分子の物理的特性を改善するため共役系骨格の電子構造の研究を行っている。

・化学増幅型レジストの反応機構

次世代電子ビーム・X線用レジストとして開発が進められている化学増幅型レジストの放射線反応過程を、パルスラジオリシス法および電子ビーム露光後の分光分析により調べ、酸発生機構における酸発生効率および高分子マトリクス中でのプロトン移動の高分子構造依存性を明らかにした。

・荷電粒子による一次元ナノワイヤーの形成

荷電粒子ビームの全く新しい応用形態として、これらビームによる高密度エネルギー付与・励起を利用し、新しいナノスケール素子の形成手法を提案した。特に高分子中にイオンビームが入射した際、飛跡に沿ってトラック構造と呼ばれる非常に高密度の反応中間体集合が形成され、ここでの特殊な物理化学反応から、トラック外部には全く影響を与えずに元の形質を維持したまま、非常に微細な空間領域にのみ新しい微細構造体を形成すると同時に、極めて高度にサイズ・構造制御されたナノ構造集合体の形成に成功した。

・ナノエレクトロニクス材料からのアウトガス生成機構

ナノエレクトロニクス用材料であるレジストからのアウトガスはフォトリソグラフィシステムの光学素子に付着し、システムに重大なダメージを与える。これは、次世代フォトリソグラフィにおいてもっとも重大な問題となっている。この問題を解決し、汚染のないレジスト材料開発のための設計指針を得るためレジストの分子構造とアウトガスの関係を質量分析器と用いて調べた。

・微細加工材料のナノ空間内での量子ビーム誘起反応種の三次元ダイナミクスの研究

電子線リソグラフィはトップダウン型ナノテクノロジーにおいてもっとも解像度が高い加工システムである。微細加工材料においてパターン形成に利用される短寿命中間活性種のナノ空間内での三次元空間分布とその経時変化を解明することにより、微細加工材料の限界解像度と反応機構

が密接に関係していることを明らかにした。

[原著論文]

Subpicosecond Pulse Radiolysis Study of Geminate Ion Recombination in Liquid Benzene, K. Okamoto, A. Saeki, T. Kozawa, Y. Yoshida and S. Tagawa: Chem. Lett., 32 (2003) 834-835.

Pulse Radiolysis Study of Radical Cations of Polysilanes, T. Kawaguchi, S. Seki, K. Okamoto, A. Saeki, Y. Yoshida and S. Tagawa: Chem. Phys. Lett., 374 (2003) 353-357.

Transient Absorption Spectroscopy of Radical Ions of Rigid Anti- and Syn-tetrasilane, S. Seki, Y. Matsui, S. Tagawa, H. Tsuji, A. Toshimitsu and K. Tamao: Chem. Phys. Lett., 380 (2003) 141-145.

Nonisothermal Crystallization Kinetics of Biodegradable Random Poly(3-hydroxybutyrate-co-3-hydroxyvalerate) and Block One, S. Chanprateep, K. Kikuya, H. Shimizu, S. Seki, S. Tagawa and S. Shioya: J. Chem. Eng. Jpn., 36 (2003) 639-646.

Study of Nano-Space in Au-Polysilane Interfaces by Slow Positron Beam: Y. Terashima, S. Seki, M. Tashiro, Y. Honda and S. Tagawa, J. Photopolym. Sci. Technol., 16 (2003) 445-446.

Cross-linked Polymer Nanowires with Controlled Shape and Orientation by High Energy Single Ion Hitting, S. Tsukuda, S. Seki, S. Tagawa, M. Sugimoto, A. Idesaki and S. Tanaka: J. Photopolym. Sci. Technol., 16 (2003) 433-434.

Relation between Spatial Resolution and Reaction Mechanism of Chemically Amplified Resists for Electron Beam Lithography, T. Kozawa, A. Saeki, A. Nakano, Y. Yoshida and S. Tagawa: J. Vac. Sci. Technol. B21 (2003) 3149-3152.

Nano-wire Formation and Selective Adhesion on Substrates by Single Ion Track Reaction in Polysilanes, S. Seki, S. Tsukuda, Y. Yoshida, T. Kozawa, S. Tagawa, M. Sugimoto and S. Tanaka: Jpn. J. Appl. Phys., 43 (2003) 4159-4161.

Dependence of Outgassing Characters at a 157nm Exposure on Resist Structures, Y. Matsui, S. Umeda, S. Seki, S. Tagawa, S. Ishikawa and T. Itani: Jpn. J. Appl. Phys., 43 (2003) 3894-3899.

Influence of Radiation-induced Species on Positronium Formation in Poly(methylmethacrylate) at Low Temperature, M. Tashiro, C.Y. Tseng, S. Seki, Y. Honda and S. Tagawa: Radiat. Phys. Chem., 68 (2003) 475-479.

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., 68 (2003) 501-505.

[総説、解説]

"日本における研究用加速器施設の現状アンケートに関する中間報告", (社)日本アイソトープ協会理工学部量子ビーム専門委員会(委員長:田川精一、委員:関修平), Radioisotopes 340 (2003) 52.

[国際会議]

Pulse Radiolysis Study on Proton and Charge Transfer Reactions in Poly (methyl methacrylate) (Poster), *A. Nakano, K. Okamoto, T. Kozawa and S. Tagawa, 12th International Congress of Radiation Research, Brisbane, Australia, Aug. 17-22, 2003.

Adjacent Effect on Positive Charge Transfer from Radical Cation of n-Dodecane to Scavenger Studied by Subpicosecond Pulse Radiolysis, Statistical and Monte Carlo Approach (Poster), *A. Saeki, T. Kozawa, Y. Yoshida and S. Tagawa, 12th International Congress of Radiation Research, Brisbane, Australia, Aug. 17-22, 2003.

Oriented Nano-wire Formation by Single Ion Track Reaction in Polysilanes, *S. Seki, S. Tsukuda, S. Tagawa, M. Sugimoto, A. Idesaki, S. Tanaka and A. Oshima, 12th International Congress of Radiation Research, Brisbane, Australia, Aug. 17-22, 2003.

Subpicosecond Pulse Radiolysis Study of Solvated Electron in Alcohols (Poster), *T. Kozawa, Y. Numata, A. Saeki, K. Okamoto, Y. Yoshida, S. Tagawa, 12th International Congress of Radiation Research, Brisbane, Australia, Aug. 17-22, 2003.

Modeling of Nano-wires by Single Ion Hitting for Si-based Polymers (Poster), *S. Tsukuda, S. Seki, S. Tagawa, 12th International Congress of Radiation Research, Brisbane, Australia, Aug. 17-22, 2003.

Outgassed Species from Various Triphenylsulfonium Salts during 157 nm Exposure, *Y. Matsui, S. Seki, S. Tagawa, S. Irie and T. Itani, 4th International Symposium on 157 nm Lithography, Yokohama, Japan, Aug. 25-28, 2003.

Effects of Ester Groups on Proton Generation and Diffusion in Polymethacrylate Matrices (Poster), *A. Nakano, K. Okamoto, T. Kozawa and S. Tagawa, Microprocess and Nanotechnology Conference, Tokyo, Japan, Oct. 28-31, 2003.

Polymer Screening Method for Chemically Amplified Electron Beam and X-ray Resists, *H. Yamamoto, A. Nakano, K. Okamoto, T. Kozawa and S. Tagawa, Microprocess and Nanotechnology Conference, Tokyo, Japan, Oct. 28-31, 2003.

Outgassed Species from 157-nm-Irradiated Triphenylsulfonium Salts, Y. Matsui, S. Seki, S. Tagawa, S. Irie and T. Itani, Microprocess and Nanotechnology Conference, Tokyo, Japan, Oct. 28-31, 2003.

Applications of Polysilanes for a Negative-Tone Resist in Ion Beam Lithography, Y. Matsui, S. Seki, S. Tsukuda, T. Kozawa and S. Tagawa, Microprocess and Nanotechnology Conference, Tokyo, Japan, Oct. 28-31, 2003.

Fabrication of Molecular Photoelectronic Device using Polysilane Nanowires, S. Tsukuda, S. Seki, A. Saeki, T. Kozawa, S. Tagawa, M. Sugimoto, A. Idesaki, S. Tanaka, Microprocess and Nanotechnology Conference, Tokyo, Japan, Oct. 28-31, 2003.

The Relation between Spatial Resolution and Reaction Mechanism of Chemically Amplified Resists for Electron Beam Lithography, T. Kozawa, A. Saeki, A. Nakano, Y. Yoshida and S. Tagawa, The 47th International Conference on Electron, Ion and Photon Beam Technology and Nanofabrication, Florida, USA, May 27-30, 2003.

[国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員]

田川 精一 14th Microprocess and Nanotechnology Conference (組織委員)

[国内学会]

日本放射線化学会	7 件
応用物理学会	6 件
日本化学会	6 件
日本原子力学会	5 件
日本高分子学会	4 件

[科学研究費補助金]

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

基盤研究(A)(2)

田川 精一 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 13,800

基盤研究(B)(2)

関 修平 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 2,800

萌芽研究

関 修平 孤立したナノ構造体・分子素子の電極レス伝導度評価技術の開発 1,500

若手研究(B)(2)

古澤 孝弘 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 900

[受託研究]

田川 精一 技術研究組合、超先端 電子技術開発機構 (ASET) 化学増幅レジストの反応機構の研究 1,575

田川 精一 半導体先端テクノロジー (Selete) F₂ リソグラフィ用レジストのアウトガス発生機構の解明 4,000

田川 精一 技術研究組合、超先端 電子技術開発機構 (ASET) 有機層間絶縁膜のプラズマ反応基礎過程の解明及び高密着性薄膜開発のための基礎研究 5,250

超高速ナノ構造分野

客員教授

Jai Pal Mittal (平成 15 年 11 月 ~ 平成 16 年 2 月)

a) 概要

ピコ秒・ナノ秒パルスラジオリシス法を用いた量子ビーム誘起超高速反応の基礎過程の解明を行った。さらに、これに時間・空間反応解析法を適応することにより、微細スケールにおける反応機構について調べ、量子ビームのナノテクノロジーへの応用を試みた。

b) 成果

水溶液系における水和電子やラジカルの挙動を調べることによりナノ粒子の生成機構を解明し、ナノテクノロジーへの応用を図った。特に、放射線化学初期過程における短寿命中間活性種の振る舞いに注目し、それらを制御することにより、目的となる最終生成物を得る手法の開発を試みた。また、将来のフェムト秒・アト秒の時間領域における中間活性種に関する今後の研究の方向性を示した。

また、以下の講演会を開催した。

平成 15 年 12 月 9 日「Radiation Chemical Synthesis of Metallic Nano-Particles: Their Characterization and Catalytic Properties」(Int. Symp. Sci. Industrial Nanotech.)

平成 16 年 1 月 15 日「Site Selectivity in the Reactions of e_{aq}^- and oh radicals with Solvent- Pulse Radiolysis Investigation」(Int. Workshop "Beam Sci. Nanotech.)

平成 16 年 1 月 30 日「What is the next problem in primary process of Radiation Chemistry?」

超高速ナノ構造分野

客員助教授 官 文傑 (平成15年5月1日~平成15年7月31日)

a) 概要

Vドープ ZnO の強磁性化には薄膜中のキャリア濃度が関係していることが過去の研究よりわかっている。これまでは酸素欠損をドナーとして利用することで強磁性体化を目指したが、再現性に問題があった。そこで今回はケミカルドーピングを用いたキャリア量制御によって、Vドープ ZnO の強磁性体化を試みる。

b) 成果

パルスレーザー堆積法によって作製された (Zn, V)O:Al 薄膜の磁性を研究した。本研究は田畑研究室の佐伯らによって行われた研究に基づいている。それによると酸素分圧 1mTorr 中で作製された薄膜は絶縁体的な電気伝導を示し、その際の磁性は常磁性的であることがわかっている。一方でキャリアの多い薄膜は強磁性的な特徴を示すことがわかった。しかしキャリア量の制御にドナーとして酸素欠損を用いる場合、再現性に問題があった。そこで本研究では Al をドナーとして利用し、ケミカルドーピングによって Vドープ ZnO の強磁性体化を目指した。酸素分圧 5mTorr にて作製された (Zn, V)O:Al 薄膜は十分に低抵抗であり、Al がドナーとして働いていることがわかった。このサンプルは 300K においても M-H 曲線から強磁性的な特徴が見られることがわかった。また M-T 曲線からキュリー温度は 360K 以上であることがわかった。本研究によって Vドープ ZnO のキャリア量制御に Al ドープは有効であり、このようなケミカルドーピングは、再現性の問題の解決に有効であると思われる。

ナノテクノロジー産業応用研究部門

概要

本研究部門は、環境調和ナノマテリアル分野（菅沼研）、計算機ナノマテリアルデザイン分野（兼吉田（博）研）、ナノバイオ知能システム分野（兼溝口研）、ナノテクノロジープロパテント分野（学内兼任）、ナノテクノロジートランスファー分野（外国人客員）の4分野から構成され、産業界にとって有用であり、また将来の新産業の創成に利すると考えら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おこなっている。それぞれの名称の通りに、ナノテクノロジーを用いた環境調和ナノマテリアル、高効率エネルギー変換ナノマテリアル、ナノマテリアルデザインソフト技術、超高密度記録演算素子技術の産業応用研究と技術移転および知的所有権の戦略的研究と実施を行っている。具体的な個々の成果は、以下に要約される。ただし、ナノテクノロジープロパテント分野及びナノテクノロジートランスファー分野は、それぞれの記述をご覧いただきたい。

成果

- ・ Sn-Ag-Cu 系はんだの初晶粗大金属間化合物形成条件と信頼性付与のための最適組成を解明
- ・ Sn-Zn 系はんだの信頼性確保のためのガイドラインを提示
- ・ めっき膜、Cu や Ni との界面のナノ構造を TEM 観察により解明
- ・ Ni、Fe、Ti 系アルミナイドをベースとする金属間化合物構造用材料の反応合成プロセスと、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
- ・ Ti-PVA 系人工軟骨材料およびバイオ軟骨-ポラスアパタイト系材料を開発
- ・ 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、異元素を内包した C・BN フラーレン等、様々な物質の研究
- ・ ナノテクオントロジーの拡大
- ・ ナノ薄膜合成プロセス・ナノ粒子合成プロセスを対象とした機能分解木の作成と両者の比較検討
- ・ ナノテク材料機能を対象とした機能設計発想支援システムのプロトタイプの開発
- ・ 細胞内におけるシグナルパスウェーオントロジーの開発
- ・ 第一原理擬ポテンシャル法による電子状態及び分子動力学計算手法の開発と公開(OSAKA-2003-Nano)
- ・ 電子励起ナノ構造創製プロセスのデザイン（グラファイトからナノ構造ダイヤモンドの創製法）
- ・ 同時ドーピング法およびナノ構造デルタドーピング法による強磁性転移温度の上昇法デザイン
- ・ 高効率熱電材料のマテリアルデザイン
- ・ シリコン中の Cu ゲッターリング・センターのマテリアルデザイン
- ・ 水素化アモルファスシリコンの C N 処理欠陥低減機構の第一原理分動力学による機構解明と太陽電池材料の高効率化
- ・ 有限温度・圧力下での分子動力学シミュレーション手法の開発
- ・ 磁性不純物（遷移金属や希土類金属）を含まないハーフメタル室温強磁性半導体のマテリアルデザイン

環境調和ナノマテリアル分野

教授	菅沼 克昭
助教授	奥 健夫
助手	山口 俊郎、井上 雅博
技官	谷畑 公昭
博士研究員	金 槿銖
研究推進員	畑村 真理子
事務補佐員	浦山 奈緒美
大学院学生	金 迎奄、中田 昌幸、青木 慎介、黄 致元、山下 宗哲、成田 一人 松浦 利典、宮本 篤司、今西 貴之、西脇 篤史、山崎 雄介

a) 概要

無機・有機・金属などの異相界面ナノ構造制御技術を駆使し、電子機器分野を主とした鉛フリーはんだ技術・導電性接着剤技術など環境調和したファインな構造接続技術開発と新たな学際領域開拓、複合化技術を用いた金属基・金属間化合物基複合材料開発、BCN フラーレン物質の合成と構造研究、或いは生体親和性の高い人工骨形成などを通し、産業界へ積極的な寄与を行っている。

b) 成果

・環境調和型エレクトロニクス実装技術の基礎技術確立と推進

環境調和型超高密度化が強く望まれている。このための要素技術としてエレクトロニクス実装における鉛フリー化を目差し研究を行っている。鉛フリーはんだ特有の凝固欠陥形成メカニズムを解明し、凝固シミュレーションとその場観察手法を確立し、更にこれらを CSP などの微細接続における凝固欠陥の抑制方法を提案した。高付加価値インターコネクタのために Ni-P めっき界面反応設計とナノ構造評価により界面化合物生成の抑制条件を明示し、望ましい鉛フリーはんだ組成の提案を行った。更に、ナノペーストや導電性接着剤接続技術の界面現象のナノレベル解明と新規分野開拓を行っている。

・ナノ構造創成及び超高分解能電子顕微鏡による原子直視構造解析

BN フラーレン物質の新規合成・評価及び HREM による極微小領域原子配列評価法の確立を目的としている。新規 BN メタロフルーレン創成、遷移元素による BN ナノチューブ合成、B₁₂系高次ボライド構造解析、超伝導酸化物構造解析等により、新規ナノ構造の創成・構造解析・分子軌道法による構造最適化・電子状態計算・STM による電気特性評価等を行い、BN ナノ構造の将来可能性を提案した。

・バイオミメティックなアプローチによる人工関節の開発

培養軟骨の移植治療では、軟骨欠損部に培養軟骨を移植し、骨膜で固定している。この方法では十分に固定できないので、培養軟骨に骨接合部（多孔質アパタイト）を組み込んだ人工関節のモデル（軟骨細胞・コラーゲングル/多孔質アパタイト）を作製し、固定化を試みた。骨接合部に細胞増殖因子を包埋することで、石灰化が促進され、軟骨下骨類似構造に変化し、培養軟骨と骨接合部の強固な固定を達成した。

・バイオアクティブな骨セメントの開発

骨セメントに要求されている主な特性は、次の 4 点である。1) 生体適合性、2) 骨セメントの強度、3) 骨セメントの硬化時間の短縮、4) 骨吸収性である。リン酸カルシウム系セメントの複合化により、骨吸収性をもつリン酸カルシウムナノコンポジット系骨セメントの開発を行った。また、自己修復機能をもつナノコンポジット・PMMA 系骨セメントの開発を行っている。

・金属および金属間化合物材料表面の高機能化に関する研究

種々のプロセスにより金属および金属間化合物系材料の表面改質を行うことにより触媒機能，生体適合性，耐環境性などの機能を付与し，高機能性表面の創成を目指している。

1) ゴル・ゲル電着法による機能性セラミックス薄膜の作製

2) 活性プラズマプロセスによる傾斜機能性セラミックス層の直接形成

3) 導電フィラー表面の自己組織化単分子膜による改質

[原著論文]

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. Sugauma : Adv. In Tech. of Mat. And Mat. Proc. J., 5[1] (2003) 1-6.

Effect of intermetallic compounds on properties of Sn-Ag-Cu lead-free soldered joints, K.-S. Kim, S. -H. Hwuh and K. Sugauma: J. Alloys Compounds, 352[1-2] (2003) 226-236.

Effect of composition cooling rate on the microstructure and tensile properties of Sn-Zn-Bi solder alloy , Y.-S. Kim, K.-S. Kim, C.-W. Hwang, K. Sugauma: J. Alloys Compounds, 352[1-2] (2003) 237-245.

Effects of fourth alloying additive on microstructures and tensile properties of Sn-Ag-Cu alloy and joints with Cu, K.-S. Kim, S. -H. Hwuh and K. Sugauma: Microelectronics Reliability, 43 (2003) 259-267.

In situ observation and simulation of solidification process in soldering SOP with Sn-Ag-Cu lead-free alloy, K. S. Kim, M. Haga and K. Sugauma: J. Electron. Mater., 32[12] (2003) 1483-1489.

Interfacial microstructure between Sn-3Ag-xBi alloy and Cu substrate with or without electrolytic Ni plating, C. Hwang, J.-G. Lee, K.Sugauma and H. Mori: J. Electron. Mater., 32[2] (2003) 52-62.

Sn-Bi 共晶合金の組織及び機械的性質へ及ぼす Ag 添加の影響，菅沼克昭，酒井泰治，金槿銖: エレクトロニクス実装学会誌, 6 (2003) 414-419.

Effects of fourth alloying additives on interfacial microstructure of Sn-Ag-Cu lead-free soldered joints, K.-S. Kim, K. Sugauma, T. Shimozuki and C. G. Lee: Mater. Sci. Forum, 439 (2003) 7-11.

Interfaces in lead-free soldering, C.-W. Hwang, K.-S. Kim and K. Sugauma: J. Electron. Mater., 32[11] (2003) 1249-56.

C.W. Hwang, K. Sugauma, J.-G. Lee and H. Mori, Interface Microstructure between Fe-42Ni Alloy and Pure Sn: J. Mater. Res., 18 (2003) 1202-1210.

Interface microstructure between Fe-42Ni alloy and pure Sn, C.-W. Hwang, K. Sugauma, J.-G. Lee and H. Mori: J. Mater. Res., 18 (2003) 2540-2543.

A new approach to an artificial joint based on bio-cartilage / porous -tricalcium phosphate system, S. Aoki, S. Yamaguchi, A. Nakahira and K. Sugauma: J. Euro. Ceram. Soc., 23 (2003) 2939-2946.

Spreading of Sn-Ag solders on Fe-Ni alloys, E. Saiz, C.-W. Hwang, K. Sugauma and A. P. Tomsia: Acta Mater., 51[11] (2003) 3185-3197.

Wetting and Strength Issues at Al/ γ -Alumina Interfaces, E. Saiz, A. P. Tomsia, and K. Sukanuma: *J. Euro. Ceram. Soc.*, 23 (2003) 2787–2796.

Effect of the joining pressure on Ag-epoxy conductive adhesive/Sn interfaces exposed to heat M. Yamashita and K. Sukanuma: *J. Mater. Sci. Lett.*, 22[19] (2003) 1311-1313.

Bioactive glass coatings for orthopedic metallic implants, S. Lopez-Esteban, E. Saiz, S. Fujino, T. Oku, K. Sukanuma and A. P. Tomsia: *J. Euro. Ceram. Soc.*, 23 (2003) 2921-2930.

The Catalytic activities of nanoclusters dispersed on apatite, J. Ichihara, K. Iteya, H. Kawaguchi, Y. Sasaki, H. Nakayama, S. Yamaguchi: *J. Ceram. Proc. Res.*, 4 (2003) 42-44.

Cetylpyridinium dodecatungstate on fluorapatite: efficient and reusable solid catalyst for solvent-free epoxidation, J. Ichihara, A. Kambara, K. Iteya, E. Sugimoto, T. Shinkawa, A. Takaoka, S. Yamaguchi, Y. Sasaki: *Green Chemistry*, 5 (2003) 491-493.

Twin structures of rhombohedral and cubic boron nitride prepared by chemical vapor deposition method, T. Oku, K. Hiraga, T. Matsuda, T. Hirai and M. Hirabayashi: *Diamond Relat. Mater.*, 12 (2003) 1138-1145.

Effects of catalytic metals for synthesis of BN fullerene nanomaterials, I. Narita and T. Oku: *Diamond Relat. Mater.*, 12 (2003) 1146-1150.

Synthesis, argon/hydrogen storage and magnetic properties of boron nitride nanotubes and nanocapsules, T. Oku and M. Kuno: *Diamond Relat. Mater.*, 12 (2003) 840-845.

Direct observation of B_{84} and B_{156} clusters by high-resolution electron microscopy and crystallographic image processing, T. Oku: *Sol. State Comm.*, 127 (2003) 689-693.

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: *Diamond Relat. Mater.*, 12 (2003) 1918-1926.

Direct high-resolution electron microscopy of BN nanotubes with hexagonal zigzag network, I. Narita and T. Oku, *Chem. Phys. Lett.*, 377 (2003) 354-358.

Synthesis of boron nitride nanotubes by using NbB_2 , YB_6 and YB_6/Ni powder, I. Narita and T. Oku: *Diamond Relat. Mater.*, 12 (2003) 1912-1917.

Formation and structure of $B_{24}N_{24}$ clusters, T. Oku, A. Nishiwaki, I. Narita and M. Gonda: *Chem. Phys. Lett.*, 380 (2003) 620-623.

Iron nanoparticles coated with boron nitride nanolayers by a solid phase reaction, H. Tokoro, S. Fujii and T. Oku: *IEEE Trans. Mag.*, 39 (2003) 2761-2763.

First-principles study of La- $B_{36}N_{36}$ cage, Q. Wang, Q. Sun, T. Oku, Y. Kawazoe: *Physica B*, 339 (2003) 105-109.

[解説、総説]

鉛フリーはんだ付け技術を中心とした環境対応実装技術の動向、菅沼克昭：表面実装マガジン（電子技術）、1 (2003) 2-9.

鉛フリー実装技術の現状と展望、菅沼克昭：RCJ 会報，29[4] (2003) 2-11.

欧州の環境規制と世界の実用化に向けた鉛フリーはんだの技術動向、菅沼克昭：電子材料「実装技術ガイドブック 2003 年」，5月号別冊 (2003) 2-10.

鉛フリー化とハロゲンフリー化の基礎知識と最新研究開発動向、菅沼克昭：電子技術「2003 年版プリント配線板のすべて」6月号別冊 (2003) 16-21.

鉛フリーはんだ実用をめぐる欧州規制と技術の現状、菅沼克昭：金属，73 (2003) 40-51.

鉛フリー化から先進実装へ進化する接着剤技術、菅沼克昭：日立化成テクニカルレポート，41 (2003) 5-6.

低温鉛フリーはんだの位置づけと市場意識、菅沼克昭：エレクトロニクス実装学会誌，6[5] (2003) 369-374.

インクジェット・プリンターが先端工場に、菅沼克昭：じっきょう理科資料，54 (2003) 8-13.

Current status of lead-free soldering、K.Suganuma：SMT China, Nov/Dec (2003) 42-49.

酸化物の世界・原子の微妙なゆらぎ・ Ag_2SnO_3 の高分解能電子顕微鏡像、奥 健夫：現代化学、382 (2003) 52-53.

BN とダイヤモンドの世界・五角星の輝き・多重双晶粒子の電子顕微鏡像、奥 健夫、平賀 賢二：現代化学、383 (2003) 52-53.

カーボンの世界・玉ねぎができた・カーボンオニオンの電子顕微鏡像、奥 健夫、成田 一人：現代化学、384 (2003) 52-53.

自己組織配列の世界・美しい調和とは？・ Au ナノ粒子とゼオライトの電子顕微鏡像、奥 健夫：現代化学、385 (2003) 32-33.

Modulated structure of the composite crystal $[\text{Ca}_2\text{CoO}_3]_{0.62}\text{CoO}_2$ 、Y. Miyazaki, M. Onoda, T. Oku, Y. Ishii, Y. Morii, T. Kajitani：JAERI-Review (2003) 66-67.

[著書]

「鉛フリーはんだのぬれ性と界面組織」（高詳細スクリーン印刷における印刷条件最適化とトラブル対策）菅沼克昭、技術情報協会，(2003) 39-52.

「鉛フリーはんだ実装技術・基礎からリフトオフ対策まで」菅沼克昭、コロナ社，(2003) 1-19，22-41，193-205.

「Research and Development in Japan」K. Suganuma、Handbook of Lead (Pb)-Free Technology for Microelectronic Assemblies (2003)

「図解エコマテリアルのすべて」（環境材料研究会編），菅沼克昭、工業調査会，(2003) 54-57.

「ここまできた導電性接着剤技術」菅沼克昭、工業調査会 (2003).

「 Science, Technology and Education of Microscopy: an Overview 」 Atomic Structure Analysis of Advanced Materials by High-Resolution Electron Microscopy (Edited by A. Mendez-Vilas) T. Oku, FORMATEX,. (2003) 224-234.

「 Art and Science of Healing 」 奥健夫 監修、三恵社、(2003).

[国際会議]

In situ observation and simulation of solidification process in soldering SOP with Sn-Ag-Cu Lead-Free Alloy, M. Haga, *K.-S. Kim and K. Suganuma, 132nd TMS Annual Meeting & Exhibition, San Diego, California, Mar. 2-6, 2003.

Interface microstructure between 42 alloy and Sn-based lead-free solder, *C.-W. Hwang, J. G. Lee, H. Mori and K. Suganuma, 132nd TMS Annual Meeting & Exhibition, San Diego, California, Mar. 2-6, 2003.

Interfaces in lead-free soldering(Invited), *C.-W. Hwang, K.-S. Kim and K. Suganuma, 132nd TMS Annual Meeting & Exhibition, San Diego, California, Mar. 2-6, 2003.

Analysis of surface reaction behavior for generating atomic hydrogen on Ni₃Al surfaces, *M. Inoue and K. Suganuma, 132nd TMS Annual Meeting & Exhibition, San Diego, California, Mar. 2-6, 2003.

Squeeze casting for low cost fabrication of advanced materials and joints, *K. Suganuma, M. Inoue and K. Tanihata, Proc. US-Japan workshop on Low Cost Production of Ceramics and Related Materials, Osaka, Mar. 17, 2003.

Solderability and Interface Property of Sn-Zn-Bi on Metal Substrates,*Y-S.Kim, C-W.Whang, K.Suganuma, International Conference on Electronics Packaging(ICEP2003), JIEP, Tokyo, Apr. 16-18, 2003.

Interfacial Reaction of Sn-based Lead-free Solder with Fe-42Ni Substrate,*C-W. Hwang, K.Suganuma, International Conference on Electronics Packaging(ICEP2003), JIEP, Tokyo, Apr. 16-18, 2003.

Joining Silicon Carbide/Aluminum Composite, *M. Nakata, K.Tanihata and K.Suganuma, International Conference on Electronics Packaging(ICEP2003), JIEP, Tokyo, Apr. 16-18, 2003.

Solderability and interface Property of Sn-Zn-Bi on Metal substrates, Y. S. Kim, K. S. Kim , C. W. Hwang, and *K. Suganuma, International Conference on Electronic Packaging、 ICEP 2003 , Tokyo, Apr.16-18 , 2003

Current Technology of Low Temperature Lead-Free Soldering and JIEP Project, *K. Suganuma, T. Kiga, M. Takeuchi, Q. Yu, K. Tanabe, K. Toi, H. Tanaka, Y. Kato, K. Sasaki, K. Takahashi, M. Tadauchi, T. Tsukui, T. Suga and T. Makimoto, Internatiuonal Conference on Lead Free Electronics “Towards Imprementation of the RHS Directive”, IPC/Soldertech, Brussels, Jun. 10-11, 2003.

Interfacial stability of Sn-Ag-Cu lead-free solder with Ni-P alloy plating, *K. Suganuma, C.-W. Hwang, M. Kiso and S. Hashimoto, Interl Technology Symposium, “Sesigning for next generation Computing Platforms”, San Jose, Sep.16-17, 2003.

Curing characteristics of nano paste for fine printed circuits, *K.-S. Kim, M. Hatamura, S. Yamaguchi and K. Suganuma, Proc.3rd International IEEE Conference on Polymers and Adhesives in Microelectronics and Photonics (Polytronics 2003), Montreux, Switzerland, Oct. 22, 2003.

Development of New Sn-Ag-Cu Lead-free Solders Containing Fourth Elements, K.-S. Kim, *K. Suganuma, Third International Symposium on Environmentally Conscious Design and Inverse Manufacturing Tokyo, Japan, Dec. 8-11, 2003.

The cultured cartilage / porous β -tricalcium phosphate (TCP) system as an artificial joint model, *S. Aoki, S. Yamaguchi and K. Suganuma, 3rd Asian BioCeramics Symposium (ABC2003), Fukuoka, Japan, Nov. 18-20, 2003.

Synthesis and aldehyde absorption properties of Asp-OCP inclusion compound, *S. Aoki, A. Nakahira, H. Nakayama, K. Sakamoto, S. Yamaguchi and K. Suganuma, 12th International Symposium on Intercalation Compounds, Poznan, Jun. 1-5, 2003.

Formation and atomic structures of B_nN_n ($n = 24-60$) clusters studied by mass spectrometry, high-resolution electron microscopy and molecular orbital calculation, *T. Oku, A. Nishiwaki and I. Narita, 14th European Conference on Diamond, Diamond-Like Materials, Carbon Nanotubes, Nitrides and Silicon Carbide, Salzburg, Austria, Sep. 7-12, 2003.

Atomic structures and stabilities of zigzag and armchair-type boron nitride nanotubes studied by high-resolution electron microscopy and molecular mechanics calculation, *T. Oku and I. Narita, 14th European Conference on Diamond, Diamond-Like Materials, Carbon Nanotubes, Nitrides and Silicon Carbide, Salzburg, Austria, Sep. 7-12, 2003.

Formation, atomic structural optimization and electronic structures of tetrahedral carbon onion, *T. Oku, I. Narita and A. Nishiwaki, 14th European Conference on Diamond, Diamond-Like Materials, Carbon Nanotubes, Nitrides and Silicon Carbide, Salzburg, Austria, Sep. 7-12, 2003.

$B_{12}@B_{12}@B_{60}$ and $B_{12}@(B_{12})_{12}$ giant clusters with doping atoms observed by high-resolution electron microscopy, *T. Oku, International Symposium on Novel Carbon-Rich Organic Materials, Osaka, Sep. 29-30, 2003.

Synthesis and atomic structures of boron nitride cage clusters and nanotubes, *T. Oku, I. Narita and A. Nishiwaki, International Symposium on Novel Carbon-Rich Organic Materials, Osaka, Sep. 29-30, 2003.

Molecular orbital calculations of endohedral $B_{36}N_{36}$ clusters with doping elements, *A. Nishiwaki and T. Oku, International Symposium on Novel Carbon-Rich Organic Materials, Osaka, Sep. 29-30, 2003.

Three-dimensional nanostructural characterization of B₁₂-based cluster solids by HREM and crystallographic image processing, *T. Oku, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003, Osaka, Dec. 8-9, 2003.

Atomic structures and electronic states of boron nitride nanocage clusters and nanotubes, *T. Oku, I. Narita and A. Nishiwaki, Nanoscience and Nanotechnology on Quantum Particles 2003, Tokyo, Dec. 15-17, 2003.

Formation and atomic structures of boron nitride nanohorns, *A. Nishiwaki, T. Oku, Nanoscience and Nanotechnology on Quantum Particles 2003, Tokyo, Japan, Dec. 15-17, 2003.

Nanostructural characterization of B₁₂-based cluster solids by HREM and crystallographic image processing, *T. Oku, Nanoscience and Nanotechnology on Quantum Particles 2003, Tokyo, Dec. 15-17, 2003.

[国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員]

菅沼 克昭 EcoDesign2003 Symposium committee

[国内学会]

エレクトロニクス実装学会	5 件
日本金属学会	2 件
その他	2 件

[科学研究費補助金]

(代表者として配分されたもの)

基盤研究 (A)(2) 単位：千円

菅沼 克昭 鉛フリーはんだ実装における凝固欠陥の抑制技術開発 2,200

特別研究員奨励費

成田 一人 新規 BCN ナノクラスターの構造と物性解明 1,500

21 世紀 COE プログラム事業推進担当者

菅沼克昭 異相界面ナノ構造制御技術による環境調和型ファイン構造材料開発 8,110

[受託研究]

単位：千円

菅沼 克昭 日本学術振興会 金属材料工学及びプロセス工学に関する学術調査 3,500

[その他の競争的研究資金]

単位：千円

菅沼 克昭 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 800

計算機ナノ材料デザイン分野

教授（兼任）	吉田 博
助教授	白井 光雲
助手	佐藤 和則
内地研究員	柳谷 俊一
博士研究員	真砂 啓、Dinh Van An、中山 博幸、浜田 幾太郎
特任教員	天谷 喜一、興地 斐男、本河 光博
研究生	張 允信
大学院学生	松村 隆嘉、光田 直樹、山内 邦彦、舩島 洋紀、松岡 秀行、大石 雄紀、 鈴木 通人、清家 聖嘉、道北 俊行、木崎 栄年、劔持 一英、豊田 雅之、 福島 鉄也
学部学生	本島 英明
事務補佐員	浅田 美香

a) 概要

ナノ構造材料の電子構造と材料デザイン

計算機ナノ材料デザイン分野では、従来のバルクでは見られないような様々な物性が出現するナノ構造物質の性質を、理論的手法を用いて解明する。用いる手法は密度汎関数理論に基づく第一原理計算であり、あらゆる経験的パラメータを排除し原子番号のみの入力で行う。さらに、実験的に得られたナノ構造の解明だけでなく、新規な機能を持つ新たなナノ構造物質を理論的に設計し、ナノ物質探索をリードしていく。

また、このようなナノ領域現象の解明のためには従来の第一原理計算の発展・拡張が必須である。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、その重要性に鑑み、その方法論の発展をも行う。

b) 成果

・アモルファス半導体の高効率太陽エネルギー変換材料の材料デザイン

第一原理分子動力学法により、アモルファス半導体の光励起劣化反応機構の研究を行い、ダングリグボンドが正と負の電子相関をもつためであることを解明した。これらを防止するためのCN処理法が提案されているが、ダングリグボンドの不活性機構がCNによる一重結合、二重結合、三重結合の環境に合わせた変身によって生じる連続ネットワークの修復と再生によるものであることを明らかにした。光劣化を防止するための材料デザインをおこなった。

・擬ポテンシャル法による電子状態計算の開発改良

擬ポテンシャル法による電子状態の計算プログラム「OSAKA2000」を公開しているが、その拡充、発展を行いOSAKA-2003-Nanoを開発公開した。

・電子励起原子移動を利用した新物質創製法の材料デザイン

電子励起下での原子移動の機構解明とそれに立脚した制御を可能にするシミュレーション技術を開発し、電子励起原子移動による準安定状態を利用した新物質の創製と設計に応用できるようにした。ダイヤモンド、カーボン、アモルファスシリコンの電子励起原子移動に適用し、原子移動の微視的機構を明らかにした。また、内殻励起により価電子帯に正孔をドープすると基底状態とは逆に、グラファイトよりもダイヤモンドの方が安定化し、常温・定圧でダイヤモンドを創製するためのプロセスのデザインを行った。これらは、最近になって、電子線励起に伴う内殻励起やレーザー励起により実験

的に実証された。

- ・半導体ナノスピントロニクのためのマテリアルデザインとスピン制御

第一原理計算に基づいて、磁性不純物を含む II-VI 族半導体、III-V 族半導体の価電子制御法とスピン間相互作用に関する電子状態の第一原理計算を行い、二重交換相互作用や p・d 交換相互作用による長距離のキャリア誘起強磁性機構と、短距離の強磁性及び反強磁性超交換相互作用との競合による強磁性発現機構を解明した。これらの計算結果に基づいて透明強磁性体のマテリアルデザインを行った。さらに高い強磁性転移温度を持つ物質のデザインを行った。II-VI 族半導体では V, Cr が強磁性を示し、III-V 族半導体では、V, Cr, Mn が強磁性を示すことを明らかにした。ZnO は特別で、V, Cr, Fe, Co, Ni が強磁性をしめす。また、これらの系について強磁性転移温度(T_c)を第一原理からデザインし、遷移金属濃度依存性、p 型および n 型濃度依存性、また母体半導体依存性を予言した。

さらに、遷移金属不純物の低い溶解度に起因する補償効果を防止し、遷移金属不純物濃度を上昇させて、高い強磁性転移温度(T_c)を実現するための同時ドーピング法を(Ga,Mn)(As,C), (Ga,Mn)(As,N)や原子層エピタキシャル結晶成長時に於けるデルタ・ドーピング法として 2 倍近い T_c が得られることを提案した。これらの提案は最近になって実証された。

- ・大きな磁気光学効果を持つ 4d 遷移金属不純物をドーブした逆 (アンチ) CaF_2 構造を持つ K_2S ベース透明強磁性半導体のデザイン

大きな磁気光学効果を持つ 4d 遷移金属不純物をドーブした逆 (アンチ) CaF_2 構造を持つ K_2S ベース透明強磁性半導体のデザインも行った。これにより、光誘起や FET 電場誘起、また円偏光レーザー発光によるスピングラス状態からハーフメタル透明半導体強磁性体への転移を起こすマテリアルデザインが可能になり、これを用いた脳型メモリや脳型演算装置などの機能調和材料デバイスのデザインを行った。

- ・磁性不純物 (遷移金属や希土類金属) を含まないハーフメタル室温強磁性半導体のマテリアルデザイン

第一原理計算に基づいて、磁性不純物 (遷移金属や希土類金属) を含まないハーフメタル強磁性半導体のマテリアルデザインをおこなった。 K_2S などの逆蛍石構造を持つ半導体や、 CaO などのイオン結晶中にドーブした B, C, N などの深い不純物バンドのバンド幅は狭く、電子相関エネルギーとの競合により、磁性状態が実現し、さらに、不純物状態による二重交換相互作用や強磁性的超交換相互作用を不純物濃度によってバンド幅を制御することにより強磁性状態を安定化させるためのマテリアルデザインを行った。

- ・ワイドギャップ半導体の価電子制御と新機能性のマテリアルデザイン

ワイドバンドギャップ半導体、 CuAlO_2 やダイヤモンドにおいて、第一原理計算からアクセプター不純物、原子空孔、侵入型原子の形成エネルギーや不純物準位を予測し、価電子制御のためのアクセプターやドナーの補償機構を解明し、低抵抗化のためのアクセプターとドナーの同時ドーピング法による不純物バンドを利用した新しい価電子制御法のマテリアルデザインを行った。これらの系についての同時ドーピング法による価電子制御法の予言はその後の実験的に検証された。また、これらの価電子制御に基づいた p 型透明酸化物伝導体や透明超伝導体、また高効率熱電材料のマテリアルデザインをおこなった。

- ・擬ポテンシャル法による電子状態計算コード「Osaka2002_nano」の開発改良

擬ポテンシャル法による電子状態の計算プログラム「Osaka2002_nano」を公開しているが、その拡充、発展を行っている。特に今年度の成果は遷移金属やアルカリ金属で問題となる内殻補正を取り入れたことにある。またさまざまな実験結果との比較を可能とするため、有限温度・圧力下での分子動力学シミュレーションをより進めた。特に「能勢」の方法を取り入れたことが大きな進展である。具体的応用として、

・固体ホウ素の安定構造の決定

高圧下での超伝導転移で注目されている固体ホウ素の安定構造を、有限温度でのフォノンの効果まで取り入れ決定した。固体ホウ素は異なる構造構造を持ついくつかの多形が存在するがそれらの間の転移温度の予測を行って、実験との一致を見た。

・Si中のCu不純物のゲッターリング

Si中のCuは非常に高速の拡散を行うことが知られており、その不純物拡散を抑制することがデバイスプロセスに求められている。その高速拡散現象を分子動力学シミュレーションで再現し、機構を明らかにした。そしてその抑制にはBなどのドーピング種によりゲッターリングが実験的に行われているが、その機構を明らかにした。

・アモルファスSiの光劣化の逡減のための理論提言

アモルファスSiの太陽電池応用上最大の問題、光劣化の問題を解決するため、ナノスケールでの原子再配置を利用し、欠陥を低減する方法を模索した。

・電子励起原子移動の第一原理分子動力学

電子励起下での原子移動の機構解明とそれに立脚した制御を可能にするシミュレーション技術を開発し、電子励起原子移動による準安定状態を利用した新物質の創製と設計に応用できるようにした。ダイヤモンド、カーボン、アモルファスシリコンの電子励起原子移動に適用し、原子移動の微視的機構を明らかにした。また、内殻励起により常温・定圧でグラファイトからダイヤモンドへ移行させるプロセスのデザインを行った。

[原著論文]

MBE growth and properties of GaCrN, H. Hashimoto, Y.K. Xhou, M. Kanamura, H. Katayama-Yoshida and H. Asahi: J. Crystal Growth. 251 (2003) 327-330.

Materials Design for Semiconductor Spintronics by *Ab initio* Electronic-structure Calculation (Invited), H. Katayama-Yoshida and K. Sato: Physica B327 (2003) 337-343.

Engineering of Nested Fermi Surface and Transparent Conducting p-type Delafossite CuAlO_2 : Possible Lattice Instability or Transparent Superconductivity?, H. Katayama-Yoshida, T. Koyanagi, H. Funashima, H. Harima and A. Yanase: Solid State Commun. 126 (2003) 135- 139.

Curie Temperatures of III-V Diluted Magnetic Semiconductors Calculated from First-Principles in Mean Field Approximation (Invited), K. Sato, H. Katayama-Yoshida and P. H. Dederichs: J. Supercond. Inc. Novel Magnetism, 16 (2003) 31-35.

Spin and Charge Control Method of Ternary II-VI and III-V Magnetic Semiconductors for Spintronics: Theory vs. Experiment (Invited), H. Katayama-Yoshida and K. Sato: J. Phys. Chem. Solid. 64 (2003) 1447-1452.

A Structural Study of CN Treated Amorphous Silicon, Y. Yamazaki, K. Shirai and H. Katayama-Yoshida: Solid State Commun. 126 (2003) 597-600.

Direct Conversion of Graphite into Diamond Through Electronic Excited States (Invited), H. Nakayama and H. Katayama-Yoshida: J. Phys.:Condens. Matter 15 (2003) R1077-R1091.

Charge and Spin States of Transition-Metal Atoms in a Hemoprotein Based on the Extended Haldane-Anderson Model, K. Yamauchi, H. Maehashi and H. Katayama-Yoshida: J. Phys. Soc. Japan, 72 (2003) pp.2029-2032.

Materials Design of 4d-Transition-Metal-Doped Transparent and Half-Metallic Ferromagnets with K_2S -Based Diluted Magnetic Semiconductors, M. Seike, A. Yanasse, K. Sato and H. Katayama-Yoshida: Jpn. J. Appl. Phys. 42 (2003) L1061 -L1063.

Tc-Enhanced Codoping Method for GaAs-Based Dilute Magnetic Semiconductors, Van An Dinh, K. Sato and H. Katayama-Yoshida: Jpn. J. Appl. Phys. 42 (2003) L888-L891.

Theoretical Aspect of Doping of Photovoltaic Materials (Invited), H. Katayama-Yoshida: Mat. Res. Soc. Symp. Proc. 763 (2003) B1.1, 3-12.

Magnetic Impurities and Materials Design for Semiconductor Spintronics. (Invited), K. Sato, P. H. Dederichs, H. Katayama-Yoshida and J. Kudrnovsky: Physica B340-342 (2003) 863-869.

Ab initio materials Design and Curie Temperature of GaN-based Ferromagnetic Semiconductors, K. Sato, P. H. Dederichs, K. Araki and H. Katayama-Yoshida: Phys. Stat. Sol. c, 7 (2003) 2855-2859.

Materials Design of p-type Transparent Conducting Oxides of Delafossite $CuAlO_2$ by Super-cell FLAPW Method, T. Koyanagi, H. Harima, A. Yanase and H. Katayama-Yoshida: J. Phys. Chem. Solids 64 (2003) 1443-1446.

Mechanism of Suppression of Light-induced Degradation in Amorphous Silicon by CN Treatment, Y. Yamazaki, K. Shirai and H. Katayama-Yoshida: Proc. 26th Int. Conf. Phys. Semicond., Edinburgh 2002, eds. A. R. Long and J. H. Davies, IOP Conf. 171 (2003) L.3.6.

Pressure-induced Phase Transitions of BNs, K. Shirai, H. Fujita, and H. Katayama-Yoshida: Physica Status Solidi (b) 235 (2003) 526-530.

Association Simulation by a Metallic Car-Parrinello Dynamics, S. Kawamoto, T. Oda and I. Hamada: International Journal of Quantum Chemistry 91, (2003) 165

Structure and Magnetism on Iron Oxide Clusters $FenOm(n=1-5)$: Calculation from First Principles, H. Shiroishi, T. Oda, I. Hamada and N. Fujima: Euro. Phys. J. D., 24, (2003) 85.

Possibility of Pressure-induced Superconductivity by Phonon Mechanism in Pd, K. Yanai, T. Takezawa, I. Hamada, N. Suzuki: Physica C 388-389 (2003) 596.

The Electronic Structure of Beta-boron and the Pressure Dependence, K. Shirai, A. Masago and H. Katayama-Yoshida: Physics of Semiconductors 2002, 171(2003) D210.

[特許]

「磁気抵抗ランダムアクセスメモリー装置」吉田博、佐藤和則、台湾出願 92116467

「磁気抵抗ランダムアクセスメモリー装置」吉田博、佐藤和則、PCT/JP03/07447

「遷移金属または希土類金属を固溶する透明強磁性アルカリ・カルコゲナイド化合物及びその強磁性

特性の調整方法」吉田博、清家聖嘉、佐藤和則、柳瀬章、特願 2003-127602
「強磁性 VI 族系半導体、強磁性 III-V 族系化合物半導体、または強磁性 II-VI 族系化合物半導体とその強磁性特性の調整方法」吉田博、荒木和也、佐藤和則、PCT/JP03/07161
「強磁性 VI 族系半導体、強磁性 III-V 族系化合物半導体、または強磁性 II-VI 族系化合物半導体とその強磁性特性の調整方法」吉田博、荒木和也、佐藤和則、台湾出願 92115303
「内殻励起によりグラファイトからダイヤモンドを製造する方法」吉田博、中山博幸、国際出願:PCT/JP03/06426
「内殻励起によりグラファイトからダイヤモンドを製造する方法」吉田博、中山博幸、台湾出願 92114330
「磁性半導体を用いた円偏光スピン半導体レーザーおよびレーザー光の発生方法」吉田博、佐藤和則、国際公開番号 WO 03/065525A1
「シリコン結晶中の遷移金属不純物のゲッタリング方法」吉田博、国際公開番号：WO03/060981A1
「 - 族または - 族系単結晶強磁性化合物及びその強磁性の調整方法」吉田博、佐藤和則、韓国出願 2003-7011104 号
「高輝度発光半導体材料の作製方法」吉田博、中島理志、特許第 3464618 号
「遷移金属または希土類金属などの磁性不純物を含まず不完全な殻を持つ元素を固溶した透明強磁性化合物及びその強磁性特性の調整方法」吉田博、劔持一英、清家聖嘉、佐藤和則、特願 2004-055017
「遷移金属または希土類金属を固溶する透明強磁性アルカリ・カルコゲナイド化合物及びその強磁性特性の調整方法」吉田博、清家聖嘉、佐藤和則、柳瀬章、PCT/JP04/003373
「二次元酸化物自然超格子を用いた高電材料とその熱電特性の調整方法」吉田博、船島洋紀、浜田幾太郎、播磨尚朝、柳瀬章、特願 2004-085615

[国際会議]

Theoretical Aspects of Doping of Photovoltaic Materials (Invited), *H. Katayama-Yoshida, 2003 MRS Spring Meeting, San Francisco, California, Apr. 21-25, 2003

Ab initio Materials Design and Curie Temperature of GaN Compound-based Ferromagnetic Semiconductors, K. Sato, P. H. Dederichs, *H. Katayama-Yoshida, ICNS-5: 5th International Conference on Nitride Semiconductors, Nara, Japan, May 25-30, 2003

Codoping Methods of Mn and N for GaAs-based Diluted Magnetic Semiconductors, *Dinh Van An, K. Sato, H. Katayama-Yoshida, PASPS-9: The 9th Symposium on the Physics and Application of Spin-Related Phenomena in Semiconductors, Tokyo, Japan, Jun. 11-12, 2003

Materials Design of 4d-Transition-Metal Doped Transparent and Half-metallic Ferromagnetism with Diluted Magnetic Semiconductors in Anti-CaF₂ structures of K₂S, *M. Seike, A. Yanase, K. Sato and H. Katayama-Yoshida, PASPS-9: The 9th Symposium on the Physics and Application of Spin-Related Phenomena in Semiconductors, Tokyo, Japan, Jun. 11-12, 2003

Effects of Anti-site Defects on Half-metallicity in Zinc-blends CrAs, *M. Shirai, M. Seike, K. Sato, H. Katayama-Yoshida, PASPS-9: The 9th Symposium on the Physics and Application of Spin-Related Phenomena in Semiconductors, Tokyo, Japan, Jun. 11-12, 2003

Material Design of the Powerful Faraday Rotator, *A. Yanase, H. Katayama-Yoshida, PASPS-9: The 9th Symposium on the Physics and Application of Spin-Related Phenomena in Semiconductors, Tokyo, Japan, Jun. 11-12, 2003

Magnetic Mechanism and Materials Design of Diluted Magnetic Semiconductors from First Principles ~Guideline for High-T_c and Application to II-VI, III-V, IV, and I₂-VI Semiconductors (invited), *H. Katayama-Yoshida, K. Sato and P. H. Dederichs, International Workshop on Diluted Magnetic Semiconductors, CECAM, Lyon, Jun. 12-14, 2003

Exchange Interactions and Curie Temperatures in Diluted Magnetic Semiconductors (invited), *K. Sato, P. H. Dederichs, H. Katayama-Yoshida and J. Kudrnovsky, International Workshop on Diluted Magnetic Semiconductors, CECAM, Lyon, Jun. 12-14, 2003

Group Theoretical Classification of the Electronic Structure of LiNiO₂, *A. Masago, ICM2003: International Conference on Magnetism, Roma, Italy, Jul. 27-Aug. 1, 2003

Mechanism of Enhanced Ferromagnetism in Delta-doped(Ga, Mn)As Studied by *ab initio* Electronic Structure Calculation, *Y. Ohishi, K. Sato, H. Katayama-Yoshida, ICM2003: International Conference on Magnetism, Roma, Italy, Jul. 27-Aug. 1, 2003

Theoretical Study on Anti-site Defects in Half-metallic Zinc-blende Ferromagnets, *M. Shirai, M. Seike, K. Sato and H. Katayama-Yoshida, ICM2003: International Conference on Magnetism, Roma, Italy, Jul. 27-Aug. 1, 2003

Electronic Structures and CDW of Transition Metal Dichalcogenides, *M. Suzuki and H. Harima, ICM2003: International Conference on Magnetism, Roma, Italy, Jul. 27-Aug. 1, 2003

Magnetic Impurities and Materials Design for Semiconductor Spintronics, *K. Sato, P. H. Dederichs, H. Katayama-Yoshida and J. Kudrnovsky, ICDS-22: International Conference on Defects in Semiconductors, Aarhus, Denmark, Jul. 28-Aug. 1, 2003

Materials Design of 4d-transition-metal Doped K₂S Diluted Magnetic Semiconductors with Transparent and Half-metallic, *M. Seike, A. Yanase, K. Sato and H. Katayama-Yoshida, SPINTECH2: International Conference and School Semiconductor Spintronics and Quantum Information Technology, Brugge, Belgium, Aug. 4-8, 2003

Mechanism of Enhanced Ferromagnetism in Delta-doped (Ga,Mn)As Studied by *ab initio* Electronic Structure Calculation, *Y. Ohishi, K. Sato, H. Katayama-Yoshida, SPINTECH2: International Conference and School Semiconductor Spintronics and Quantum Information Technology, Brugge, Belgium, Aug. 4-8, 2003

Electronic Structure, Ferromagnetic Mechanism, and Curie Temperature of 3d- and 4d-Transition Atom Doped Diluted Magnetic Semiconductors (invited), *H. Katayama-Yoshida, The 4th Korea-Japan Workshop on Strongly Correlated Systems and The First Japan-Korea-Taiwan Workshop on Condensed Matter Physics “Spectroscopy of Correlated Materials and their Nano-Structures”, Nagano, Japan, Sep. 24-26, 2003

Band Structure Calculations and Fermi Surfaces of YNi₂B₂C, *Y. Yamauchi, H. Katayama-Yoshida, A. Yanase, H. Harima, 16th International Symposium on Superconductivity, Tsukuba, Japan, Oct. 27-29, 2003

Diamond Transition from Graphite Induced by Electronic Excitations, *H. Nakayama and H.

Katayama-Yoshida, The 6th Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations, Tsukuba, Nov. 10-12, 2003

Pressure-induced Phase Transitions of BN, *K. Shirai, H. Fujita, and H. Katayama-Yoshida, The 6th Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations, Tsukuba, Nov. 10-12, 2003

Design of High-Tc Curie Temperature with Transparent and Half Metallic Ferromagnetism in Zr- and Nb-doped K₂S Diluted Magnetic Semiconductors, *M. Seike, A. Yanase, K. Sato and H. Katayama-Yoshida, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003, Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003

Design of a Method to Raise Curie Temperature by Delta-doping and Co-doping, *Y. Ohishi, Dinh Van An, K. Sato, H. Katayama-Yoshida, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003, Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003

An Application of Molecular Dynamics Simulation to Diffusion of Impurity in Solids, *K. Shirai and H. Katayama-Yoshida, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003, Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003

Ab-initio Molecular Dynamics Simulation of CN in Amorphous Silicon, *N. Mitsuda, K. Shirai and H. Katayama-Yoshida, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003, Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003

Materials Design for Spin-electronics by *Ab-initio* Electronic Structure Calculation (invited), *H. Katayama-Yoshida, 31st Conference on The Physics and Chemistry of Semiconductor Interface (PCSI-31), Kailua-Kona, Hawaii, USA, Jan. 18-22, 2004

Exchange Interactions and Curie Temperatures in Diluted Magnetic Semiconductors, *K. Sato, International Symposium on the Creation on Novel nanomaterials, Osaka, Japan, Jan. 20-22, 2004

Hyperfine Interactions and Magnetism of 3d impurities in magnetic semiconductors (invited), *K. Sato, International Workshop on Nanomaterials, Magnetic Ions and Magnetic Semiconductors studied mostly by Hyperfine Interactions (IWNMS – 2004), Vadodara (Baroda), Gujarat, India, Feb. 10-14, 2004

Exchange Interactions and Curie Temperatures in Diluted Magnetic Semiconductors, *K. Sato, P. H. Dederichs, H. Katayama-Yoshida, APS(American Physical Society) March Meeting, Montreal, Quebec, Canada, Mar. 22-26, 2004

[国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員]

吉田博 第3回半導体中のスピンに関連する物理と応用国際会議 (PASPS-3) 国際諮問委員及びプログラム委員
吉田博 第24回半導体中の欠陥国際会議(ICDS-24)委員長

[国内学会]

物理学会 13 件
応用物理学会 6 件

[取得学位]

修士 (理学)

鈴木 通人 遷移金属ダイカルコゲナイド化合物の CDW と電子状態

修士 (工学)

大石 雄紀 GaAs ベース希薄磁性半導体の第一原理マテリアルデザイン
 清家 聖嘉 室温ハーフメタリック室温希薄強磁性体マテリアルデザイン
 道北 俊之 第一原理計算による単結晶 Si 中の Cu ゲッターリング

[科学研究費補助金]

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

基盤研究 (C) (2)

白井 光雲 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 600

(上記の他に分担者として配分されたもの)

基盤研究 (A)(1) (代表者:平山秀樹、理化学研究所)

吉田 博 交互供給ドーピ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 500

特定領域研究 (代表者:白井正文、東北大学)

吉田 博 光—スピントロニクスデバイス及びナノスピンプローブのデザイン

[受託研究]

吉田 博 科学技術振興調整費 ナノスピントロニクスのデザインと創製に関する研究「計算機ナノマテリアル・デバイスデザイン」 19,964

吉田 博 産学官連携イノベーション創出事業費補助金 (独創的革新技術開発研究提案) 赤外レーザー照射による半導体中不純物の選択的低温拡散技術の研究 4,500

(分担者として配分されたもの)

吉田 博 科学技術振興事業団 新規化学結合を用いるシリコン薄膜太陽電池 戦略的基礎研究

吉田 博 新エネルギー・産業技術総合開発機構 ナノ構造物性シミュレーション技術の開発

吉田 博 科学技術振興事業団 計算機ナノマテリアルデザイン手法の開発
 計算科学活用型特定研究開発推進事業

[共同研究]

吉田 博 東北大学金属材料研究所 機能性ワイドギャップ半導体のマテリアルデバイスデザイン

吉田 博	(財)高輝度光科学研究センター Spring-8	電子励起による新物質創製の機構解明
吉田 博	(財)国際高等研究所	物質科学とシステムデザイン
吉田 博	ドイツ・ユーリッヒ固体物理研究所	計算機ナノスピントロニクスのマテリアル・デバイスデザイン

ナノバイオ知能システム分野

教授（兼任） 溝口 理一郎
助手 古崎 晃司

a) 概要

ナノ・バイオ知的支援システムの開発、ナノ・バイオテクノロジーに関わる膨大なデータからのデータマイニング・知識発見、ナノ・バイオテクノロジー知識の構造化、オントロジー工学などの知能システム科学とナノ・バイオテクノロジーとを融合した研究の中で、特にナノテクノロジー知識の構造化に重点を置いて研究を行っている。

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。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、構造化することに貢献するものが「オントロジー」である。本研究では、オントロジー工学の手法を用いて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、ナノテク基盤概念との関係を確立する。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・開発を行う。

b) 成果

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。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。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、予備的なオントロジーを構築した。その中の上位オントロジーと基本的な考え方を以下に示す。

(a) 4つのトップレベル概念

- ・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

- ・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)。
- ・構造: 要素間の位相的關係を表す抽象概念。

(c) 機能と特性

- ・物性・特性: あくまでもある対象物の属性であり客観的。
- ・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。
- ・現象・効果: ある物性を発現する根拠を与える。

方式知識に基づくナノテク材料設計発想支援システム

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。

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表現したものを「機能分解木」と呼ぶ。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る。

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。従って、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、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革新的な発想がなされることが期待される。

分野間協力の一環として、新原研究室と川合研究室とで行われている研究課題の内、薄膜形成およびナノ粒子生成に関する機能を対象にして機能分解木を作成し、機能分解木記述方式の検証と同時に方法論の浸透を図った。さらに、このような発想支援システムのプロトタイプを実装し、動作確認を行った。

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。

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。

[原著論文]

Cell Signaling Networks Ontology, T. Takai-Igarashi and R. Mizoguchi: In Silico Biol. 4[8] (2003)

[国際会議]

An Environment for Distributed Ontology Development Based on Dependency Management, *E. Sunagawa, K. Kozaki, Y. Kitamura and R. Mizoguchi, The Second International Semantic Web Conference (ISWC2003), Sanibel Island, FL, USA, Oct. 20-23, 2003.

Systematization of Nanotechnology Knowledge Through Ontology Engineering - A Trial

Development of Idea Creation Support System for Materials Design based on Functional Ontology – (Poster), *K. Kozaki, Y. Kitamura and R. Mizoguchi, The Second International Semantic Web Conference (ISWC2003), Sanibel Island, FL, USA, Oct. 20-23, 2003.

Hozo: Treatment of “Role”, “Relationship” and Dependency Management (Poster), *K. Kozaki, Y. Kitamura and R. Mizoguchi, The Second International Semantic Web Conference (ISWC2003), Sanibel Island, FL, USA, Oct. 20-23, 2003.

A Trial Development of Idea Creation Support System for Materials Design based on Functional Ontology (Poster) , *K. Kozaki, Y. Kitamura and R. Mizoguchi, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003 (ISSIN-2003), Osaka, Japan, Dec. 8-9, 2003.

[国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員]

- 溝口理一郎 International Conference on Computers in Education 2003(ICCE2003) (会議議長)
- 溝口理一郎 International Conference on Artificial Intelligence in Education 2003(AIED2003) (会議議長)
- 溝口理一郎 International Conference on Computers and Advanced Technology in Education 2003 (CATE-2003) (プログラム委員会委員)
- 溝口理一郎 The 8th Ibero-American Conference on Artificial Intelligence IBERAMIA'03 (プログラム委員会委員)
- 溝口理一郎 The Second International Semantic Web Conference 2003 (ISWC2003) (プログラム委員会委員)
- 溝口理一郎 The 9th International Conference on User Modeling (UM03) (プログラム委員会委員)
- 溝口理一郎 IEEE International Conference on Advanced Learning Technologies (ICALT 2003) (プログラム委員)
- 溝口理一郎 La Conferencia de la Asociación Española para la Inteligencia Artificial (CAEPIA2003) (プログラム委員)
- 溝口理一郎 International Conference on the Convergence of Knowledge, Culture, Language and Information Technologies (Convergences03) (プログラム委員)
- 溝口理一郎 The 1st European Semantic Web Symposium (ESWS2004) (プログラム委員)
- 溝口理一郎 IEEE International Workshop on Wireless and Mobile Technologies in Education (WMTE2003) (プログラム委員)
- 溝口理一郎 President of Asia-Pacific Chapter of AACE (国際学会会長)
- 溝口理一郎 President of International Artificial Intelligence in Education Society (国際学会会長)
- 溝口理一郎 International Journal of Advanced Engineering Informatics (編集委員)
- 溝口理一郎 International Journal of Artificial Intelligence in Education (編集委員)
- 溝口理一郎 International Journal of Web Semantics (編集委員)
- 溝口理一郎 International Journal of Computer and Engineering Management (編集委員)
- 溝口理一郎 International Journal of Web Engineering and Technology (編集委員)

[国内学会]

人工知能学会 4 件

[共同研究]

溝口理一郎 (社)化学工学会 材料技術の知識の構造化プロジェクト, 研究 5,250

項目 「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

ナノテクノロジートランスファー分野

客員助教授 ウォルフガング・シュプレングル（平成 15 年 9 月～12 月）

客員研究員 顧 鴻壽（平成 14 年 11 月～平成 15 年 7 月）

a) 概要

ナノテクノロジーに関する開発研究成果を産業界に技術移転し、新産業を創製する事を目的とする。

b) 成果

・高性能永久磁石 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ のナノ結晶では、界面の性質が磁性に大きく影響する。また、Nd 過剰組成ではバルクの融点よりかなり低温で界面が融解する。これらはこの物質の磁性を理解するのに重要である。本研究では、この物質中の Fe の体積及び界面拡散を測定し、界面構造と界面現象の微視的過程を明らかにした。

・新規ナノ材料創成に関して、レーザ MBE 法を用いた強誘電体ナノ薄膜形成、分子を用いた選択的ナノ構造形成および走査型プローブ顕微鏡による観察に関する打ち合わせを行った。また種々の研究会等に参加しナノテクノロジーに関する動向調査を行った。

加速器量子ビーム実験室

実験室長・教授	田川 精一
教授	磯山 悟朗、真嶋 哲朗、吉田 陽一
助教授	山本 幸男、加藤 龍好、誉田 義英、関 修平、藤塚 守、古澤 孝弘
助手	池田 稔治、木村 徳雄、小林 一雄、藤乗 幸子、川井 清彦、遠藤 政幸、 柏木 茂、楊 金峰、佐伯 昭紀
技官	山本 保、馬場 久美子
事務補佐員	松島 愛

a) 概要

加速器量子ビーム実験室は、旧放射線実験所に所属の加速器・量子ビーム設備から構成される組織として、平成14年度産業科学ナノテクノロジーセンターの一部として設立された。本実験室の保守管理・運転と安全管理は、量子ビーム科学研究大部門とナノ量子ビーム研究部門を中心に、及び加速器・量子ビームを利用する産研の他部門の研究者、及び技官も加わり行っている。また、ナノテクノロジーに関連する研究以外の研究に対する共同利用も行っており、この実質的な実験補助等は加速器量子ビーム実験室員が行っている。加速器量子ビーム実験室には現在3台の電子ライナックとコバルト60ガンマ線照射装置があり、この内のLバンドライナックとコバルト60ガンマ線照射装置が共同利用に供されてきている。

b) 成果

前年度、Lバンドライナックの改良、およびフォトカソード付きRF電子銃を備えたSバンドライナックが新たに設置された。本年度はこれらの更新機器の立ち上げやインターロック等のシステム整備が進められた。

Lバンドライナック

昨年度、Lバンドライナックで生成される電子ビームの高安定化・高品質化を目指し、RF源、冷却水システム、電磁石電源、タイミングシステムなどの機器更新やライナックの計算機制御システムの導入が行われた。昨年度末までには機器の納入、及び個別の動作試験が行われ、本年度は新しい制御系の構築と試験運転が行われた。現時点で当初目標としたクライストロン・モジュレータのパルス毎の出力変動0.1%はほぼ達成されたが、試験運転中に放電が観測された。この原因究明、及び各ビームモードでのビーム調整を進めながら、残された不具合の解決と、操作性の向上を目的とした制御プログラムの修正と、性能評価を行った。

Sバンドライナック

前年度フォトカソード・RF電子銃付きSバンド電子ライナック（以下RFガンライナックと呼ぶ）が第一照射室内に設置され、本年度はこの立ち上げを行い、新設の電源の安定度が0.2%以内と仕様と合っていることを確認した。RF電源の移設に伴う制御信号系の整備や、ライナックが1台増えたことに伴うインターロック系の整備を行った。また導波管での放電の問題など初期不良箇所の改善を行った。

コバルト60ガンマ線照射装置

本研究所をはじめ、理学・工学研究科ならびに微生物病研究所などの研究者に広く利用された。利用件数、利用時間については昨年とほぼ同じような状況であった。点検整備・補修に関しても例年通り照射利用閑散期間中におこなった。

プロセスファウンドリー

主任者、教授	川合 知二
室長、客員助教授	村杉 政一
支援研究員	松井 良憲
支援研究員	笹島 裕一（～平成 15 年 10 月 31 日）
支援研究員	岡本 一将
支援研究員	大野 隆裕（平成 15 年 12 月 16 日～）
事務補佐員	竹林 葉子（～平成 16 年 2 月 29 日）

a) 概要

ナノテクノロジー総合支援プロジェクトの一環として設立した当プロセスファウンドリーは、ナノテクノロジー分野の振興への協力が早期に叶うようにするため、個別の研究機関や研究開発プロジェクトでは整備の難しい大型・特殊な施設・設備とその利用に関する高度な技術を活用できる環境を整えることを初年度に引き続き平成 15 年度の目標とした。

この目標達成のため、大型・特殊な施設・設備とその利用に関する高度な技術を有し、また外部研究者に対する高度な技術サービスの提供に意欲ある機関とするための体制作りを推進してきた。

具体的な推進目標は、最先端のナノテクノロジー研究に携わる産学官の外部研究者に対して施設・設備の利用の機会を提供できるよう、またこれらの施設・設備を活用した極微細加工や観測・評価等の高度な技術支援を行えるなど、総合的な支援業務を実施できるようにすることである。

これまで本学では、産業科学研究所のナノテクノロジー研究で先端的に用いられてきたナノ薄膜形成技術を核として、酸化物・有機物をはじめとする多様な物質のナノ薄膜形成技術を全国のナノテク研究者に提供してきた。そこで、ナノ薄膜の形成およびそれらの極微加工まで視野に入れたナノテクノロジープロセスを一ヶ所で可能にする当プロセスファウンドリーを設置し、国内、学内外のナノテク研究をより一層支援できるよう、以下の項目に取り組んでいる。

(1) 有機・無機薄膜形成支援

有機物、無機物、融点の高い材料や電極形成のための金属材料等を対象として、各種材料また各用途に最適な汎用性の高いシステムを用意し、全国のナノテクノロジー研究者に提供する。

(2) 有機・無機薄膜をデバイス化するための極微加工支援

酸化物薄膜や有機薄膜の機能を引き出すために必要な、基板上に極細パターン形成を行う装置の充実化を既存装置の有効利用化を進めながら整備する。基礎物性から応用デバイスまで、広い範囲の研究者の要求に対応できるシステムを構築する。

(3) 有機・無機薄膜評価支援

薄膜作製と機能測定を容易にするための装置群を整備する。利用者が希望する多種多様な実験を行うときに、共通して必要となる機器を整備拡充する。先ず光学顕微鏡、ワイヤボンダー装置の導入からはじめ、順次評価システムへと拡充していく。

b) 成果

今年度の主な成果としては、ナノテク研究者に開放した支援組織としての基礎作りが出来上がってきた。全国のナノテク研究者の利用が徐々に増えており、当プロセスファウンドリーの支援による成果の芽が、日々育まれてきていると実感している。

当プロセスファウンドリーの初年度での成果として、下記 3 点を取り上げた。

*プロセスファウンドリーの設置

これまで本学産業科学研究所のナノテクノロジー研究で先端的に用いられてきた ナノ薄膜形成、微細加工プロセスを共同利用および技術支援として提供し、薄膜形成から微細加工までのナノテクノロジープロセスを 1 箇所で行う事が出来るプロセスファウンドリーを設置した。

*機能性ナノテク技術開発へのブレークスルー - 広範囲な研究分野への門戸開放 -

基礎研究の枠を超えたナノテク技術開発を推進するための支援を可能とした。

当プロセスファウンドリーにおいて作成した薄膜および基板（流路、回路）を学内外の研究者が活用できる。これまで研究規模による制約上、多くの研究機関がナノテックマテリアルの機能集積化・システム構築には着手できなかったが、当プロセスファウンドリーを活用して機能性先端ナノテック材料の研究開発が推進できるようになった。

*トップダウン型/ボトムアップ型ナノテクノロジーの融合

トップダウンとボトムアップの融合したプロセス開発は、今後最も重要なナノテク研究分野の一つになってくる。トップダウン型のナノテクノロジー研究においては最先端の加工技術を提供するだけに留まらず、トップダウン型とボトムアップ型との融合を志向するナノテクノロジー研究に、非常に大きな可能性を与えられるものと考ええる。

[原著論文]

Subpicosecond Pulse Radiolysis Study of Geminate Ion Recombination in Liquid Benzene, K. Okamoto, A. Saeki, T. Kozawa, Y. Yoshida, and S. Tagawa: Chem. Lett. 32 (2003) 834-835.

Dependence of Outgassing Characters at a 157 nm Exposure on Resist Structures, Y. Matsui, S. Umeda, S. Seki, S. Tagawa, S. Ishikawa T. Itani: Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2003) 3894-3899.

Pulse Radiolysis Study of Radical Cations of Polysilanes, T. Kawaguchi, S. Seki, K. Okamoto, A. Saeki, Y. Yoshida, S. Tagawa: Chem. Phys. Lett. 374 (2003) 353-357.

Transient Absorption Spectroscopy of Radical Ions of Rigid Anti- and Syn-tetrasilane, S. Seki, Y. Matsui, S. Tagawa, H. Tsuji, A. Toshimitsu, K. Tamao: Chem. Phys. Lett. 380 (2003) 141-145.

Dependence of Outgassing Characters and Total Amount of Outgassed Species at 157 nm Exposure on the Structures of Resist Base Polymer, Y. Matsui, S. Umeda, S. Matsui, S. Seki, S. Tagawa, S. Ishikawa, T. Itani: Proc. SPIE 5039 (2003) 121-128.

[国際会議]

Outgassed Species from Various Triphenylsulfonium Salts during 157 nm (poster), *Y. Matsui, S. Seki, S. Tagawa, S. Irie, T. Itani, 4th International Symposium on 157 nm Lithography, Tokyo, Japan, Aug. 25-28, 2003.

Effects of Ester Groups on Proton Generation and Diffusion in Polymethacrylate Matrices (poster), *A. Nakano, K. Okamoto, T. Kozawa and S. Tagawa, Microprocess and Nanotechnology Conference, Tokyo, Japan, Oct. 28- 31, 2003.

Polymer Screening Method for Chemically Amplified Electron Beam and X-Ray Resists, *H. Yamamoto, A. Nakano, K. Okamoto, T. Kozawa and S. Tagawa, Microprocess and Nanotechnology Conference, Tokyo, Japan, Oct. 28- 31, 2003.

Outgassed Species from 157-nm-Irradiated Triphenylsulfonium Salts (poster), *Y. Matsui, S. Seki, S. Tagawa, S. Irie, T. Itani, Microprocess and Nanotechnology Conference, Tokyo, Japan, Oct. 28- 31, 2003.

Applications of Polysilanes for a Negative-Tone Resist in Ion Beam Lithography (poster), *Y. Matsui, S. Seki, S. Tsukuda, T. Kozawa, and S. Tagawa, Microprocess and Nanotechnology Conference, Tokyo, Japan, Oct. 28- 31, 2003.

Pulse Radiolysis Study on Proton and Charge Transfer Reactions in Poly (Methyl Methacrylate) (poster), *A. Nakano, K. Okamoto, T. Kozawa and S. Tagawa, 12th International Congress of Radiation Research, Brisbane, Australia, Aug. 17-22, 2003.

Outgassing Characteristics of Acetal Resists for 157 nm Lithography Investigated by Time-Resolved Measurement, *Y. Matsui, S. Seki, S. Matsui, S. Tagawa, S. Irie and T. Itani, SPIE's 29th Annual International Symposium, Microlithography, Santa Clara, USA, February 23-27, 2004.

Nanotechnology Foundry Activities in Osaka University(Invited), *K. Okamoto, M. Murasugi and T. Kawai, Asian Nano-Foundry Workshop, Tokyo, Japan, March 17, 2004.

[国内学会]

放射線化学会	1 件
応用物理学会	1 件

[受託研究]

川合 知二	文部科学省	高度な極微細加工や観測・評価等の総合的な支援	82,000
	(新世紀重点研究創生 プラン;RR2002)		

材料解析センター

センター長、併任、教授	真嶋 哲朗
助教授	澤田 正實
助手	高井 嘉雄

a) 概要

材料解析センターは、材料解析のための各種の分析および測定を行い、かつ、その周辺技術に関する研究を行うことを目的としている。

産業科学研究所内研究部門のプロジェクト研究、基盤研究、および一般基礎研究などの遂行にあたり、当センター所属の分光分析機器、組成分析機器、状態分析機器類を用いる各種材料のスペクトル測定、解析、評価などを通じて強力な研究支援活動を行っている。

一方、これら分析装置類を駆使して(1)新しい材料解析法の開発と応用に関する研究、(2)新規機能性物質の構造解析、および(3)構造・機能相関に関する研究などの研究活動を行っている。

b) 成果

微量試料量、高感度検出を最大の特徴とするマスマススペクトロメトリー(MS)は、本来アキラルな方法論であって、キラル/キラリティーの問題には無力であると古くから考えられてきた。われわれは、この当初は不可能と考えられていた MS を主たる方法論として用い、ホスト・ゲストキラル認識現象の検出とその定量的応用に取り組んでいる。これまで困難とされてきたマスマススペクトロメトリーによるキラル認識能の決定や ee 値の決定が、同位体標識(EL)法とホスト・ゲストコンプレクセーションをうまく組み合わせるわれわれの方法(FABMS)を駆使することにより、初めて可能になり、MS の適用範囲は(1)キラル化合物の機能評価や(2)エナンチオマー混合物のキラル分析の分野に大きく広がってきた。

・新しい材料解析法の開発と応用に関する研究

エレクトロスプレーイオン化法(ESI)は質量分析法において現在最もひろく用いられているソフトイオン化法の一つであり、非共有結合型会合体を容易に生成することができる。したがって、分子間相互作用を介して起こる分子認識の検出に力を発揮することが期待される。われわれは ESIMS を用いてキラルクラウンホスト(H)とアミノ酸エステルゲスト(G)とのホスト-ゲストコンプレクセーション系の広範囲なキラル認識能を EL-ゲスト法で詳細に調べた。

最新の ESI 質量分析装置を駆使し、さまざまな置換基、立体構造を有する環状クラウンエーテル類や非環状ホスト化合物とアミノ酸エステルゲスト (PheOMe, PheOEt, PheOiPr, PglyOEt など) を用いて EL-ゲスト法により IRIS 値 (キラル認識能の指標) (アセトニトリル中) を求めた。

その結果 ESIMS による IRIS 値は FABMS の場合と比べて見かけ上圧縮されていることがわかった。しかし、詳しくみると、この IRIS 値のプロットにおいて、ホストの置換基および構造に依存した3つの圧縮度(勾配)に大別できることが判った。それぞれの勾配は a, 0.97 ($R^2=0.869$, $n=6$); b, 0.72 ($R^2=0.982$, $n=13$); c, 0.32 ($R^2=0.977$, $n=12$)であった。グループ a, b のホストは疎水性基の数が少なく、グループ c となるに従い疎水性の置換基の数が増え、クラウンエーテル環骨格内に疎水性基を数多く含んでいる。ESIMS の IRIS 値が圧縮される理由としてはエレクトロスプレー法によるイオン化過程が大きな要因であると推察された。市販の他の ESIMS 装置によって IRIS 値の圧縮度に違いがみられたことから、装置、特に ESI インターフェースの種類、窒素ガスによるドライ条件によって液滴サイズあるいは分裂・濃縮速度の違いに原因が有ると考えられた。

したがって、EL-ゲスト法を用いて新しいホストの定量的キラル認識能をスクリーニングで調べるときなどは、ESIMS 法よりも FABMS 法の方が、その IRIS 値が溶液中のキラル識別能(K_R/K_S)との対応関係が良いので、優れていると言え、この目的の場合には FABMS 法を薦める。一方、ESIMS 法を用いる

アミンゲストの ee 決定法の立場からみると、ここでのキラルホスト・ゲストの圧縮度の少ないグループに属するホスト・ゲストの組合せを用いることが、精度よい ee 決定には有利であると結論づけられた。

以上の結論に基づいて、代表的なアミン塩である PglyOMe⁺の ee 値決定が、非環状ポダンドホスト対を用いる ESIMS 法により、可能かどうか検討した。観測された Ie 値と ee 値との直線プロットは R² = 0.9976 (n = 7)の高精度の直線関係が得られ、平均誤差 4 % ee 以内で容易に ee 決定できることが明らかになった。

[原著論文]

Depression of the Apparent Chiral Recognition Ability Obtained in the Host-Guest Complexation Systems by Electrospray and Nano-Electrospray Ionization Mass Spectrometry, M. Sawada, Y. Takai, H. Yamada, M. Yoshikawa, R. Arakawa, H. Tabuchi, M. Takada, J. Tanaka, M. Shizuma, H. Yamaoka, K. Hirose, K. Fukuda, and Y. Tobe: *Eur. J. Mass Spectrom.*, 10 (2004) 27-37.

[解説、総説]

The Unexpected Fruit of Persistent Work (for the Nobel Prize Winner, Koichi Tanaka), M. Sawada and Hiroshi Yamaoka, "The Chemical Society of Japan: A 125-Year Quest for Excellence. 1878-2003", ed. by the Chemical Society of Japan, (2003) pp.53-54.

定量的キラル認識マスペクトロメトリー、澤田正實、生産と技術、55 [2] (2003) 13-16.

タンパク質クローズアップ、スウェーデン王立科学アカデミー発行、日本学術振興会国内配布、"The Nobel Prize in Chemistry 2002" ノーベル化学賞ポスター、日本語和訳、澤田正實、山岡寛史 (2003).

[国際会議]

Development of Novel Linear-type Chiral Recognizable Host Compounds for Binding Amine Guests through the Mass Spectrometric Screening of Combinatorial Host-Guest Mixtures: Application of the Enantiomer-Labeled Guest Method (Poster), *M. Sawada, Y. Takai, and M. Shizuma, 16th International Mass Spectrometry Conference, Edinburgh, United Kingdom, Sep. 2, 2003.

Quantitative Chiral Recognition in Host-Guest Complexations by Mass Spectrometry, *M. Sawada, Y. Takai, M. Shizuma, H. Yamaoka (Invited), 10th Kyushu International Symposium on Physical Organic Chemistry (KISPOC-X), Fukuoka, Japan, Sep. 30, 2003.

Quantitative Chiral Recognition in Host-Guest Complexations by Mass Spectrometry, *M. Sawada, Y. Takai (Poster), 2nd 21st Century COE Program: 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science, Osaka, Japan, Jan. 13, 2004.

Inclusion of Permethylated Inulin with Alkali Metal Ions, *Y. Takai, M. Sawada (Poster), 2nd 21st Century COE Program: 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science, Osaka, Japan, Jan. 14, 2004.

[国内学会]

日本化学会	4 件
質量分析総合討論会	6 件
構造有機化学連合討論会	1 件

[国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員]

澤田正實 European Journal of Mass Spectrometry (編集委員)

[科学研究費補助金]

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

基盤研究 (C) (2)

澤田 正實 定量的ホスト・ゲストキラル認識マスペクトロメトリー

1,900

〔附3〕 共通施設、技術室、事務部の組織と活動

試作室

室長（兼）教授 高橋 成年
技官（技術室所属） 金属工作室 角一 道明、大西 政義
ガラス工作室 松川 博昭、小川 紀之

a) 概要

本研究所が設置されると同時に、その研究機能を十分に発揮させる目的で、金木工場とガラス工場が付設された。その後、昭和57年（1982）に産研技術室の発足に伴い、金属工作室とガラス工作室の2つの工作室をもつ試作室となった。本研究所の研究分野は広範囲であり、実験装置類は多種多様で、かつ斬新なものが多い。これらの研究遂行にあたり当試作室は重要な役割を果たしている。

金属工作室は、主に各種金属を用いる理工学実験装置の設計・試作および実験器具の製作を行っている。現在は超高真空・極低温等の雰囲気中での実験装置の依頼が多く、これらの要請に応じるために、設計の段階から研究者と綿密な連携を保ちながら、実験目的に適応した装置類を製作している。平成14年度には高精度門型マシニングセンタが導入され、研究者からの高度な依頼にも対応できるようになった。さらに共同利用工作室（オープンショップ）も併設しており、適時研究者への技術指導も行われている。

ガラス工作室は、主に各種理化学ガラス等を材料とする実験器具ならびに装置類の設計と試作を行なっている。研究者が必要とする実験目的に適応した装置類、さらに、従来の器具類も機能性を高め、使いやすさと安全性を追求した装置類を提供できるよう研鑽し技術の確立を図っている。また、現在では各種セラミックス材料等の加工も要求され、そのための設備の充実も図っている。

b) 活動報告

試作室は昨年新たな取り組みとして、いちょう祭の施設公開および試作室利用者講習を行った。

いちょう祭では、金属工作室はマシニングセンタの自動運転や工作機械類を、また展示コーナーでは実験装置類を公開した。ガラス工作室はガラス旋盤および実験器具類の他、科学にちなんだガラスのオブジェを展示し、ハンドワーク加工の実演および体験を実施した。

また、試作室利用者講習を5月28日に開催し、安全講習と実技指導のガイダンスを行った。試作室利用者講習参加者は引き続き後日数回、実技の個人指導に参加した。この試作室利用者講習は今後年二回、春と秋に実施予定している。

[年間依頼処理件数]

金属工作室 158件（前年度160件） ガラス工作室 159件（前年度179件）

[オープンショップ利用件数]

金属工作室 91件 ガラス工作室 110件

[いちょう祭見学者数]

金属工作室 約50名 ガラス工作室 約120名（ガラス細工体験100名）

[平成15年度春期試作室利用者講習受講者数]

金属工作室 18名 ガラス工作室 7名

[実技指導受講者数]

金属工作室 延べ40名 ガラス工作室 延べ20名

電子プロセス実験室

室長（兼任）	教授	朝日 一
（兼任）	助教授	松本 卓也
（兼任）	助教授	吉信 達夫
（兼任）	助教授	長谷川 繁彦
（兼任）	助手	吉田 哲也
（兼任）	助手	周 逸凱

電子プロセス実験室は、平成3年（1991）に設置されたものである。当実験室は、光・電子材料、量子分子素子材料、有機素子材料などに関連した研究で必要とされる共通のプロセス関係の装置を設置し、いろいろな素子材料のプロセス技術の向上をはかって研究の展開に役立てることを目的としている。

設備としては、小規模クリーンルーム、フォトリソグラフィ装置、電子線描画装置、電極形成用高真空蒸着装置、電子ビーム蒸着装置、スパッタ薄膜形成装置、反応性イオンエッチング装置、劈開機、配線用ワイヤーボンダー装置、二結晶X線回析装置、原子間力顕微鏡、解析用パーソナルコンピュータが設置してある。

当実験室は、量子分子デバイス、光・電子材料、半導体量子科学、極微プロセス、セラミック構造材料、有機物性化学等の研究分野および学内関連研究室での各種材料に対する構造解析、表面解析、電極形成の実験研究や、これらをもとに各種材料の電気的性質等の測定、光素子、電子素子、分子素子などの試作等に寄与している。

電子顕微鏡室

室長（兼任） 教授 弘津 禎彦
助手 花田 剛

a) 概要

昭和 26 年に共通利用施設としてつくられ、現在に至っている。利用されている装置は、300kV 電界放射型高分解能分析電子顕微鏡と走査型電子顕微鏡である。高分解能分析電子顕微鏡の最高分解能は、0.17 ナノメ・タ・で EDS の分析範囲は B 以上の元素である。

これらの装置は、各種試料の原子的構造像の観察、ナノメ・タ・の極微小部の電子線回折による結晶構造解析、ナノメ・タ・部位の元素分析およびバルク試料表面組織観察などに有効に利用されており、所内各部門の固体の構造・組織に関する高精度の研究に大きく貢献している。

b) 成果

・ ナノ軟磁性材料の TEM 観察

Fe-Cu-Nb-Si-B (ファインメット)はアモルファス急冷薄体の結晶化を利用した高飽和磁束密度と高透磁率を両立したナノ軟磁性材料である。ファインメットは 1at.%の Cu を添加することで結晶組織が 10nm 程度に微細化し、軟磁気特性が大幅に向上することが知られており、Cu の添加量により組織形態や結晶化挙動が変化する。そこで、この結晶化挙動と急冷アモルファス構造との対応を明らかにするため、高分解能電子顕微鏡法、電子回折法ナノビーム電子回折法により結晶化温度以下の熱処理におけるアモルファス構造の変化と Cu 添加効果について評価を行った。ナノビーム電子回折および高分解能観察から、本合金で Cu 添加の有無に関わらず急冷状態でアモルファス構造中に bcc-Fe(Si)クラスタ、B 化合物クラスタの生成が確認されナノスケールでの構造変調が存在した。bcc-Fe(Si)クラスタの生成頻度は熱処理に伴い増加し、1at.%の Cu 添加によってクラスタ生成頻度は促進された。一方で電子回折法による動径分布解析ならびにリバースモンテカルロシミュレーションを行った結果、アモルファス中に bcc-Fe(Si)的配位構造と B 原子を中心とする Fe-B 化合物的な三角プリズム配位構造が存在することが判明し、ナノビーム回折で認められた bcc-Fe(Si)クラスタ、B 化合物的クラスタの存在を裏付けた。さらに、熱処理に伴い bcc-Fe(Si)クラスタの増加に対応して三角プリズム構造の Fe(Si)位置を Nb 原子が置換した構造が増加することが示された。以上によりナノ構造変調がナノ bcc 結晶の析出と成長抑制を同時に実現していると考えられる。

・ 有機 / 金属複合体の透過電子顕微鏡観察

直径数 nm のサイズを有する Au, Pt, Pd などの金属微粒子をアルキル鎖長を系統的に変化させたポルフィリンアルカンチオールで包み込んだ金属 / 有機複合体粒度分布の計測を TEM により行った。金ナノクラスター上のポルフィリンアルカンチオール自己組織化単分子膜の構造と光物性に対するアルキル鎖長効果を系統的に検討した。その構造と光物性は種々の分光法および電気化学測定により評価した。蛍光寿命および過渡吸収測定の結果から、金ナノクラスター上のポルフィリンの消光は 2 次元金表面上の自己組織化膜と比較して大幅に抑制されることがわかった。

[原著論文]

Local Atomic Structures of Amorphous $\text{Nd}_{4.5}\text{Fe}_{77}\text{B}_{18.5}$ Alloys Formed under Different Cooling Rates and their Relations to the Structures in the Early Stage of Crystallization, T. Hanada, T. Sakamoto, T. Ohkubo, Y. Hirotsu, H. Kanekiyo and S. Hirosawa: Mater. Trans. 44 (2003) 2042-2047.

[国際会議]

Variation of Short Range Order with the Composition in an Amorphous-Al-Pt Alloy Existing in a Wide Compositional Range, *J.L. Lábár, A Kovács, B.P. Barna, T. Hanada, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, I.-T. Bae, 6th Multinational Congress on Microscopy – A Regional Meeting with European Extension, Pula, Croatia, June 1-5, 2003.

Effect of Cu addition on the annealing process of FeNbSiB glass (Poster), *T. Hanada, T. Matsumoto, Y Hirotsu, T. Ohkubo, S. Fijii, Y. Yoshizawa, Bulk Metallic Glass III, Beijing, October 12 to 16, 2003.

[国内学会]

日本金属学会	2 件
日本化学会	2 件
日本顕微鏡学会	1 件

情報ネットワーク室

室長（兼任） 教授 山口 明人

a) 概要

情報ネットワーク室は、近年の研究環境における情報ネットワークの急速な普及と重要性を鑑み、これまでのボランティアベースの所内情報ネットワークの運営を組織化する為に、1999年3月に発足した。所内情報ネットワークは、1980年代後半に知能システム科学大部門の研究室が共同で構築し、1994年のODINS(Osaka University Information Network System)の運用開始に伴い研究所全体規模で整備された。現在では、産業科学研究所に携わる人々に情報の発信・受信の場を提供している。情報ネットワーク室では室長のもと、技術室より派遣された技官により産業科学研究所ネットワークの安定運用はもとよりネットワークポリシーの策定、整備における技術的作業をはじめ、利用者・研究者のサポート・教育、ホームページの更新・作成による広報支援等を行っている。また、産業科学研究所の於ける各種シンポジウム、講演会等において全世界へ向けてインターネットライブを提供しているかたわら、研究所入館管理システムの運用・管理も行っている。

b) 成果

[インターネットライブ]

- ・ 第59回産業科学研究所学術講演会「新産業創成へのメッセージ」 (03年11月)
- ・ 7th SANKEN International Symposium「Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science」(04年1月)
- ・ Second 21st Century COE「Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience」(04年1月)

[ネットワーク整備関係]

- ・ ナノテクノロジー総合実験研究棟 LAN 整備

放射性同位元素実験室

室長（兼任）教授 山口 明人

a) 概要

本実験室は、放射性同位元素のうち、非密封の ^3H , ^{14}C , ^{32}P , ^{35}S を含む物質を取り扱う実験のために設置されたものである。本実験室では、上記の元素で標識された化合物の合成や、標識化合物を用いた化学的または生化学的・分子生物学的実験が行われ、蛋白質や遺伝子の構造と機能など生化学や分子生物学の研究のために大きな役割を果たしている。主として生体応答科学研究部門の教職員や学生（放射性同位元素取扱教育訓練受講者）が年間を通して利用しており、放射線障害防護規定に則した維持管理が行われている。

b) 成果

放射性同位元素実験室を使用して得られた研究の成果は各研究室の頁にまとめられている。

図書室

室長（兼任）教授 小林 光
事務官 古田 泰子

本図書室は、研究用図書室として専門図書のみを所蔵している。現在、管理棟二階に開架図書室、第二閲覧室、図書作業室が設けられ、研究棟一階に第二書庫が設けられている。図書、雑誌の発注、受入及び文献の所在調査や照会、複写の申し込みや受付業務、図書館間相互貸借を行っている。又、利用案内、受入れ図書などをホームページ(<http://www.sanken.osaka-u.ac.jp/labs/lib-web/>)に掲示している。

【蔵書数】	和文図書	12,466冊	和雑誌	301種	新聞	5種
	欧文図書	46,508冊	洋雑誌	979種		

（平成16年3月1日現在）

技術室

	室 長（文部科学技官）	奥田 良行
工作班	班 長（文部科学技官）	角一 道明
	技術専門職員（文部科学技官）	小川 紀之
	技術専門職員（文部科学技官）	大西 政義
機械回路工作掛	掛 長（文部科学技官）	山本 保
ガラス工作掛	掛 長（文部科学技官）	松川 博昭
計測班	班 長（文部科学技官）	山田 等
	技術専門職員（文部科学技官）	谷畑 公昭
	技術専門職員（文部科学技官）	馬場 久美子
計測・情報システム掛	掛 長（文部科学技官）	田中 高紀
	掛 員（文部科学技官）	相原 千尋
分析・データ処理掛	掛 長（文部科学技官）	石橋 武
	掛 員（文部科学技官）	野村 幸代

a) 概要

技術室は室長以下、工作班と計測班から成り、それぞれ2つの掛を有する組織である。技術室長は技術室を統括すると共に、電子プロセス実験室において業務を行ってきた。工作班班長は工作班を統括すると共に、試作室金属工作室において業務を行ってきた。機械回路工作掛所属技官は、産業科学ナノテクノロジーセンター及び試作室金属工作室において業務を行ってきた。工作班所属技術専門職員（技官）及びガラス工作掛所属技官は、ガラス工作室において業務を行ってきた。計測班班長は計測班を統括すると共に、材料解析センターにおいて業務を行ってきた。計測班所属技術専門職員（技官）及び分析・データ処理掛所属技官は、産業科学ナノテクノロジーセンター及び材料解析センターにおいて業務を行ってきた。計測・情報システム掛所属技官は、材料解析センター及び情報ネットワーク室においてまた、分析・データ処理掛所属技官は、電子顕微鏡室において業務を行ってきた。各技官は、上記のような派遣先において研究用装置や機器類の試作、運転、計測、ネットワークの保守及び研究用材料の各種分析、そのデータ処理などを効率よく遂行し、本研究所に於ける研究を力強く支援している。

技術・知識の向上のため、技官各人は相互に技術研修を行うと共に、技術研究会、研修会、各種学会等にも積極的に参加、発表している。また技術室独自で開催している技術室報告会も16回目を数え、「技術室報告」No.16(2003)を発刊した。これらにより得られた技術・知識は、教官、研究生等に対してそれぞれの専門的技術指導等で成果を挙げている。

b) 成果

（技術室刊行物）

技術室報告 No.16(2003)

・報告題目、報告者・

マシニングセンタによる加工実例～3・D加工～

工作班 大西 政義

作業効率アップへの挑戦

工作班 小川 紀之, 角一 道明

全国技術研究会の動向・技術職員の将来・

計測班 山田 等

(技術研究会、学会等の参加、発表)

- ・第51回質量分析総合討論会・産業技術総合研(つくば市)(03, 5月)
- ・粉体・粉末冶金協会平成15年度春季大会・早稲田大学(東京)(03, 5月)
- ・平成15年度近畿地区国立学校等技術専門職員研修・神戸大学(神戸市)(03, 8月)
- ・平成15年度総務省情報統一研修・九段合同庁舎(東京)(03, 9月)
- ・日本分析化学会第52年会及び岩手大学機器・分析技術交流・宮城教育大学(仙台市)(03, 9月)
- ・第3回ガラス工作技術シンポジウム及び富山ガラス造形研究所視察・(富山市)(03, 10月)
- ・関西機械要素技術展・設計製造ソリューション・インテックス大阪・(大阪市)(03, 10月)
- ・Solaris9システム管理講習会・(大阪市)(03, 10月)
- ・電子顕微鏡用試料作製セミナー・ワークショップ・日本電子大阪支店(大阪市)(03, 11月)
- ・2003年度機器・分析技術研究会・(三重大学)(03, 11月)
- ・日本放射線安全管理学会第2回学術大会・文部科学省研究交流センター(つくば市)(03, 12月)
- ・第105回質量分析関西談話会・(京都市)(04, 1月)
- ・加速器運転及び放射線管理に関する情報収集・東京大学(04, 2月)
- ・セミナー「マイクロソフトが提案する理想のコラボレーション環境」・(大阪市)(04, 2月)
- ・エックス線作業主任者講習会・非破壊検査ビル・(大阪市)(04, 2月)
- ・平成15年度高エネルギー加速器研究機構技術研究会・高エネルギー研(つくば市)(04, 2月)
- ・加速器運転に関する情報収集・日本原子力研(茨城県大洗町)(04, 3月)
- ・琉球大学機器分析センターに於ける組成分析技術研修・琉球大学機器分析センター(04, 3月)
- ・第10回国立大学附置研究所技術室長会議・東北大学金属材料研究所(仙台市)(04, 3月)
- ・放射線管理に関する情報収集・東北大学(仙台市)(04, 3月)
- ・機器・分析技術職員討論会・分子研(岡崎市)(04, 3月)
- ・第2回ナノテクノロジー総合シンポジウム・東京ビッグサイト(04, 3月)

(視察、研修等による技術室への来訪者)

- ・東北大学流体科学研究所技術室長・試作室施設の視察(04, 3月)

事務部 (平成16年3月30日現在)

	(部長)	田部 信重
総務課	(課長)	井上 清光
	(専門職員)	佐藤 正子
庶務掛(掛長)		長井 純
	(事務官)	和崎 英里
	(事務官)	林 史晃
	(事務補佐員)	磯川 玲奈
	(事務補佐員)	笹田 由美
	(事務補佐員)	島村 和子
	(事務補佐員)	長谷川 尚子
	(事務補佐員)	林 和美
	(事務補佐員)	光森 幸子
経理課	(課長)	松浦 光雄
	(専門職員)	今村 康雄
経理掛(掛長)		周防 孝
	(事務官)	花木 信夫
	(事務官)	奥田 慎一
	(事務補佐員)	嘉藤田 裕美
	(事務補佐員)	宮宇地 加奈
	(事務補佐員)	藤土 啓子
研究助成掛(掛長)		川口 勝
	(主任)	中原 洋一
	(主任)	吉田 寛仁
	(事務補佐員)	久保 美里
	(事務補佐員)	寺田 久美子
	(事務補佐員)	甲斐 香

平成16年10月発行

編集・発行

大阪大学産業科学研究所
自己評価委員会・広報委員会

〒567-0047 大阪府茨木市美穂ヶ丘8-1