

# ANNUAL RESEARCH REPORT

Vol.3

研究成果報告書  
第3巻(2004年)

Nanoscience and Nanotechnology center  
ISIR, Osaka University

大阪大学産業科学研究所  
産業科学ナノテクノロジーセンター

## 目次

センター長の挨拶	..... 1
産業科学ナノテクノロジーセンター組織図	..... 2
国際会議	..... 3
加速器量子ビーム実験室成果報告会	..... 4
ナノテクセンター研究会	..... 6
加速器量子ビーム実験装置完成披露式典	..... 8
nano tech 2005	..... 9
研究グループ紹介	
ナノマテリアル・デバイス研究部門	
人工生体情報ナノマテリアル分野	.....11
単分子素子集積デバイス分野	.....27
超分子プロセス分野	.....48
ナノバイオデバイス分野	.....65
ナノデバイス診断分野	.....78
ナノシステム設計分野	.....79
ナノ量子ビーム研究部門	
量子ビームナノファブリケーション分野	.....85
ナノ量子ビーム開発分野	.....97
ナノビームプロセス分野	.....107
極限ナノ加工分野	.....119
超高速ナノ構造分野	.....120

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	.....123
計算機ナノマテリアルデザイン分野	.....142
ナノバイオ知能システム分野	.....154
ナノテクノロジープロパテント分野	.....162
ナノテクノロジートランスファー分野	.....163
ナノ構造機能評価研究部門	
ナノ構造多次元評価分野	.....167
表面ナノ構造プロセス評価分野	.....178
量子マテリアルデバイス機能評価分野	.....188
ナノ構造機能理論・シミュレーション分野	.....203
加速器量子ビーム実験室	.....205
電子顕微鏡室	.....210
電子プロセス実験室	.....211
オープンラボラトリー	.....212
産業科学ナノテクノロジーセンター 事務補佐員	.....214

## センター長の挨拶： センター発足3年が過ぎて

岩崎 裕

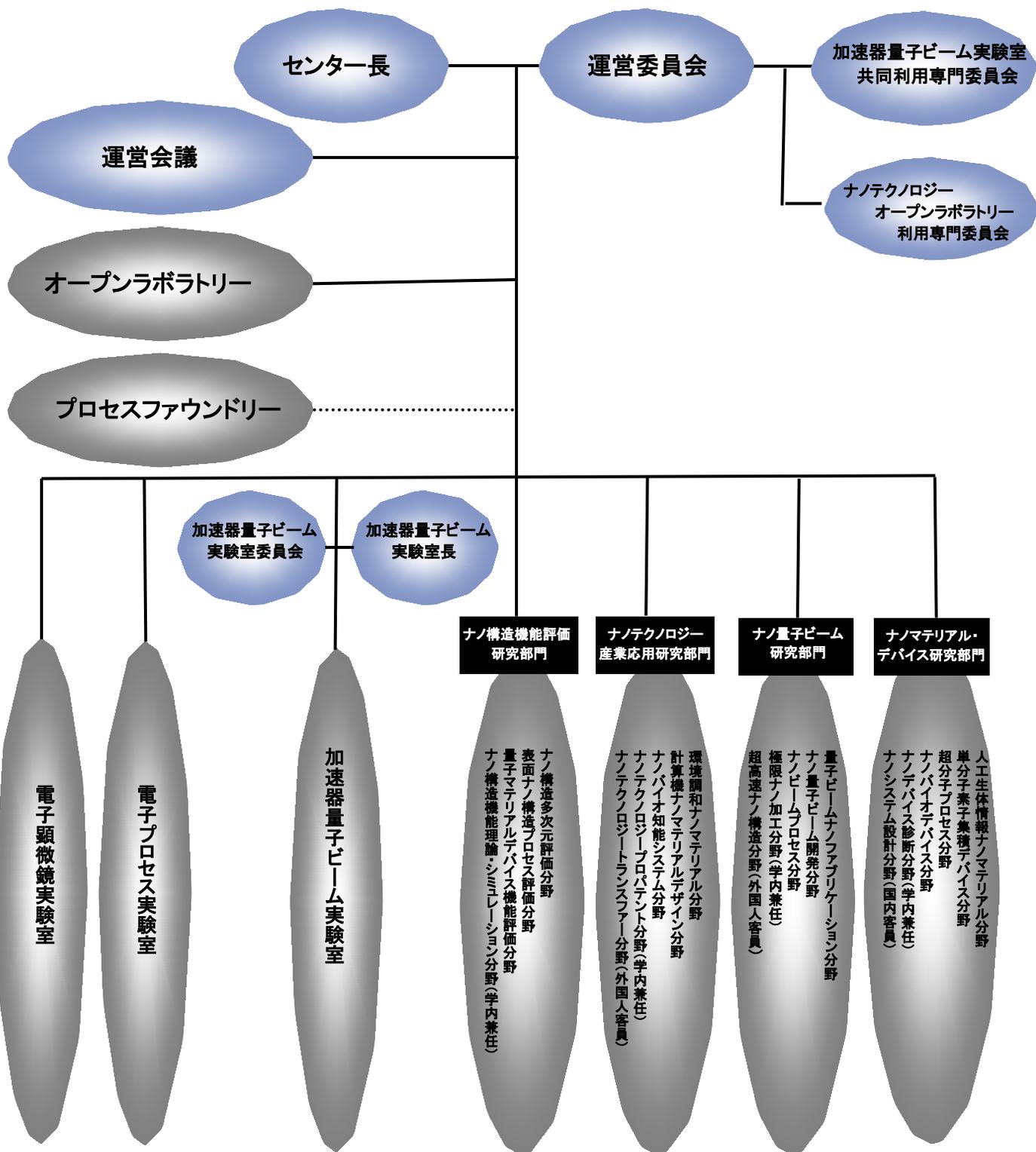
物理、化学、生物学の自然科学の領域、工学の技術の領域で、ナノスケールの現象を観察、制御、加工・操作が可能となり、領域の壁がなくなり、相互に縦横に行き来できるようになりました。例えば、原子、分子の学問である化学も、化学物質がナノスケールの配線や要素素子として実際に使うことが可能となることで、物質の科学から分子デバイスなどのサイエンス、テクノロジーへの展開が行われています。そして実際、ナノバイオ、IT ナノなど従来は考えられなかった領域が生まれています。これらを応用する工学の分野では、実際の素子・デバイス・センサなどの商品として結実しています。その意味では、基礎と応用のあらたな融合がもたらされています。

まさに、ナノサイエンス、ナノテクノロジーは、すべての自然科学と技術を巻き込む一大融合領域が開かれている状況のある一面を表したターミノロジーです。このような状況の中では、「私は、ナノサイエンス、ナノテクノロジーをやっています」ということは出来ても、「私のやっていることが、ナノサイエンス、ナノテクノロジーです」ということは出来ません。本研究センターもその役割を自ら問いながら、研究を推進していかなければなりません。

産業科学ナノテクノロジーセンターは、原子・分子の配列をナノスケールで制御しながら、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研究を行うナノテクノロジー産業応用部門、そして平成16年度から新たに加わったナノ創製プロセス・ナノ構造・ナノマテリアル・デバイス機能の高精度評価手法を開発・確立させ、それらを応用に繋げる研究を行うナノ構造機能評価研究部門の4部門、16研究分野から構成されています。本年度は、多くの部局から、4名の学内兼任教授をお願いし、新たに全国の若手を中心とするナノテクノロジー関連研究機関の研究者のナノテクセンター研究会を発足させ、3回目の国際シンポジウム (SISSIN-2004) (産業科学研究所国際シンポジウムと共同開催) を行いました。国際シンポジウムの本年度のテーマは、今年度ナノ構造機能評価研究部門が発足したことを踏まえて、Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing でした。

ここに3年目の各研究部門の成果の報告書をお届けします。これらは所内の多くの研究者の協力とセンター所属の研究者のたゆまない努力の結果です。皆様にはこの様な視点で本報告書をお読みいただき、御意見やコメントを頂けましたら幸いです。今後とも皆様のご支援、ご鞭撻をお願いいたします。

# 産業科学ナノテクノロジーセンター組織図



## ナノテクノロジーセンター国際シンポジウム報告

弘津禎彦

今年度のナノテクノロジーセンター国際シンポジウムは、産研国際シンポジウムとの共催のもとにSANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004(ISSIN-2004), “8<sup>th</sup> SANKEN International Symposium & 3<sup>rd</sup> International Symposium on Scientific and Industrial” として、昨年12月6, 7日に、大阪大学コンベンションセンターにて開催された。本シンポジウムのテーマは「Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing」であり、ナノ材料、ナノデバイスとそれらのナノ創製プロセスに関する先端的なキャラクタリゼーション手法についての優れた研究成果発表を企画した。これは、ナノテクノロジーセンターに16年度に学内措置で新しく設置された「ナノ構造機能評価研究部門」を意識した企画である。海外からの招待講演が10件、国内からの招待講演が18件、産研からの講演は6件であった。この他にポスター発表が130件(うち外部から26件)もあり、参加者は260名を越える盛況であった。講演では、走査型プローブ顕微鏡、透過型電子顕微鏡の先端的顕微法を用いた表面構造・ナノ構造および物性の評価、DNA、プロテイン関連構造の解析と機能、生体分子機能・ナノマシン、分子ナノデバイス、物性評価、ナノマテリアルデザイン、ナノプロセス・ナノ加工、などに関する新鮮な講演が相次いだ。それぞれの優れた講演を、1会場のもとでなるべく多くの方々に聞いていただければ良いのであるが、日程の関係もあり、2日間とも2会場に分かれての講演であった。また、ポスター発表時間、展示時間も制限せざるを得なかった。これらは中規模講演会の悩みでもあり、今後の課題である。産研主催の国際シンポジウムはこれまで银杏会館で開催してきたが、今回初めてコンベンションセンターで開催し、産研からは少し遠くなったが、参加者は多かった。インターネットライブ放送は今回も行い、学内外への情報公開を行った。

写真説明：ISSIN-2004でのオープニング挨拶(岩崎ナノテクセンター長)



## 加速器量子ビーム実験室成果報告会

平成 16 年度の成果報告会が、平成 17 年 3 月 14 日（月）に産業科学研究所管理棟の講堂で開催されました。報告会では、量子ビームの発生と利用を行なう各グループから代表者 1 名が口頭で発表すると共に、関係する分野の第一人者 4 名を招待して講演をお願いした。また、ナノテクノロジーセンターで平成 16 年度に学内兼任をお願いしました工学研究科の白井泰治教授に講演していただきました。今年度は従来と異なり、共同利用の研究成果報告は全てポスターでの発表に致しました。多数の参加を得て活発な討論が行なわれました。研究会終了後に懇親会が開かれて、量子ビーム関係の分野間交流や、議論の続き、歓談などで、楽しい一時を過ごしました。以下に報告会のプログラムを示します。

### 第 2 回 大阪大学産業科学研究所 産業科学ナノテクノロジーセンター 加速器量子ビーム実験室 研究成果報告会 ～ 加速器利用科学・技術の新展開～

日時： 平成 17 年 3 月 14 日（月） 9：30～17:15

場所： 大阪大学 産業科学研究所 講堂

茨木市美穂が丘 8-1（〒567-0047） TEL 06-6879-8511

平成 14 年度から 15 年度にかけて、大阪大学産業科学研究所・加速器量子ビーム実験室に新たに導入された「（新）強力極超短時間パルス放射線発生装置」が、今年度本格的に稼動を始めました。様々な面で性能・機能強化が図られたこの装置を中心とし、さまざまな「量子ビーム利用研究」が進められてきています。本成果報告会では、これらの最新の研究成果について御報告すると同時に、関連する分野の第一人者の先生方をお招きして、今後の加速器量子ビーム実験室の発展に資する報告会となるべく、企画させていただきました。

9:30 Opening Remarks

大阪大学産業科学研究所 加速器量子ビーム実験室長 磯山 悟朗

Session 1： 電子線加速器の最新技術

9:40～10:20

・招待講演 「ビーム物理と新技術」

広島大学大学院先端物質科学研究科 小方 厚

10:20～10:45

・「Lバンドライナックの改造とビーム安定化」

大阪大学産業科学研究所 加藤 龍好

10:45 ~ 10:55 休憩

10:55 ~ 11:20

・「フォトカソード RF 電子銃ライナックを用いた 100 フェムト秒電子パルスの発生とパルスラジオリシスの研究」

大阪大学産業科学研究所 楊 金峰

11:20 ~ 12:00

・招待講演 「材料化学におけるパルスレーザー応用：相変化と X 線発生」

東北大学大学院理学系研究科 福村 裕史

12:00 ~ 13:00 昼食休憩

13:00 ~ 14:00 ポスターセッション

Session 2： 加速器の利用研究の新展開

14:00 ~ 14:40

・招待講演 「KUFEL プロジェクト」

京都大学エネルギー理工学研究所 山崎 鉄夫

14:40 ~ 15:05

・「DNA の放射線損傷 直接効果と間接効果」

大阪大学産業科学研究所 小林 一雄

15:05 ~ 15:30

・「機能性分子のマルチビーム化学」

大阪大学産業科学研究所 藤塚 守

15:30 ~ 15:40 休憩

15:40 ~ 16:20

・「陽電子消滅による水素吸蔵合金の研究」

大阪大学産業科学研究所 極限微小構造研究部門 白井 泰治

16:20 ~ 17:00

・招待講演 「Generation of Ultra Slow Muon by Laser Resonant Ionization」

高エネルギー加速器研究機構 三宅 康博

17:10 Closing Remarks

大阪大学産業科学研究所

田川 精一

17:30 懇親会

## 第1回ナノテクノロジーセンター研究会

本研究会は、全国に存在するナノテクセンター間の相互情報交換、緊密な連携交流を目的とし、今年度初めての試みとして企画した。平成16年11月15日、16日に開催した研究会では、第1回目として全国のナノテク関連研究機関の中で、特に”ナノ材料&デバイスおよびナノ評価技術”に関する研究を積極的に遂行している若手研究者を中心に参加・討論して頂いた。

三ツ石氏(東北大)「高分子ナノシートと金属ナノ粒子によるハイブリッドナノ集積体の構築およびその応用について」、関氏(産総研)「有機固体および半導体における電荷輸送と反応」、吉田氏(産総研)「単一分子ロッドとしてのデンドロナイズド高分子の合成とその性質」、本間氏(早大)「電気化学プロセスによる機能ナノ構造体形成」、高橋氏(東大)「ナノプローブを用いた微小領域物性評価技術の開発」、時崎氏(産総研)「走査プローブ技術を用いた極微小デバイスの開発」、藪氏(北大)「自己組織化によるナノ構造の作製～微粒子から三次元構造まで～」、笠井氏「再沈法により作製された有機ナノ結晶の物性と材料化」の講演がなされた。また産研の兼任教授をして頂いている白井 泰治、伊藤 正教授および、ナノテクセンターからは、関 修平、奥 健夫、金崎 順一助教授、谷口 正輝助手が研究紹介を行った。

本研究会を契機として、全国のナノ関連研究を遂行している研究者が自由に情報交換でき、その中から各大学の枠組みを超えたナノテク研究の新しい潮流が創出されることを期待する。



## ナノテクセンター研究会報告 - ナノ超分子触媒の将来展望 -

報告者：笹井 宏明（超分子プロセス分野）

ナノテクセンター研究会「ナノ超分子触媒の将来展望」を、2005年2月7日午後から2月8日の昼過ぎまで第2研究棟の共同プロジェクト企画室において開催した。北大、東大、分子研、近畿大、九大からの招待講演7件のほか、基礎工学部の金田教授のグループから2件の講演と産研から4件の講演があり、共同プロジェクト企画室が満席になるほどの盛況であった。金クラスター、 dendrimer、マイクロカプセル化、酸化チタン触媒、金属架橋型ポリマーなどをキーワードとする最先端の触媒化学のトピックスについて熱のこもった討論が行われ、有意義な会となった。講演プログラムは以下のとおりである。

2月7日（月）

- 13:30-13:55 金属架橋型触媒の創製 滝澤 忍、笹井 宏明（阪大産研）
- 13:55-14:20 新しい固相触媒の創製と有機合成反応への展開 山田 陽一（分子研）
- 14:20-14:55 酸化チタン光触媒の新展開 真嶋 哲朗（阪大産研）
- 14:55-15:20 新規ハイドロキシアパタイト触媒を用いた環境調和型有機合成反応  
森 浩亮、金田 清臣（阪大院基礎工）
- 15:20-15:35 Coffee Break
- 15:35-16:10 シリコン表面へのビスオキサゾリン - パラジウム錯体の組織化とアルコール酸化反応への応用 澤村 正也（北大院理）
- 16:10-16:35 dendrimerを機能集積場とするナノ触媒の開発  
水垣 共雄、金田 清臣（阪大院基礎工）
- 16:35-17:10 有機分子機能化金属ナノクラスターの合成と界面反応制御  
藤原 尚（近大理工）
- 17:10-17:50 サブナノメートルサイズのパラジウムクラスターの生成と触媒作用  
小林 修（東大院薬）

2月8日（火）

- 9:35-10:00 Immobilization of Multifunctional Asymmetric Catalysts  
Doss Jayaprakash、笹井 宏明（阪大産研）
- 10:00-10:40 両親媒性反応場を利用する水中での触媒的有機変換  
魚住 泰広（分子研）
- 10:40-11:10 金ナノクラスターを擬均一系触媒として用いる水中での有機合成反応  
櫻井 英博、佃 達哉（分子研）
- 11:10-11:40 多点活性リビング重合触媒を利用したナノ分子の精密合成  
鬼塚 清孝（阪大産研）
- 11:40-12:20 クラスタ触媒からナノ分子触媒へ 永島 英夫（九大先導研）

## 加速器量子ビーム実験装置完成披露式典

### 新強力超極短時間パルス放射線発生装置

平成13年度補正予算で設置が認められた電子線露光装置と平成14年度の特別設備費で認められた新強力超極短時間パルス放射線発生装置を併せた加速器量子ビーム実験装置の完成披露式典が平成17年2月9日水曜日に行なわれました。

式典に先立ち午後3時30分から加速器量子ビーム実験装置の見学会が行なわれました。加速器量子ビーム実験室のライナック棟では、新生Lバンド電子ライナックと新たに設置したRF電子銃ライナックが、ナノテクノロジー総合研究棟4階のクリーンルームでは、電子線露光装置と集束イオンビーム装置が披露されました。1時間あまりの見学の後午後4時40分より、管理棟2階講義室において岩崎 裕センター長の司会で式典が行なわれました。最初に川合知二産業科学研究所長から式辞が述べられ、引き続き宮原秀雄大阪大学総長の代理で鈴木 直副学長から祝辞を頂きました。次に足立 訓文部科学省研究振興局学術機関課長の代理で圓入由美専門官から祝辞を頂きました。その後、実験装置の製作と設置にご尽力頂いた株式会社IDXから株式会社コーガクまでの計16社に川合所長から感謝状が送られ、式典は終了しました。

午後5時15分より管理棟1階の講堂で祝賀会が開かれました。真嶋哲朗副所長と田川精一副所長の司会で祝賀会が始まり、川合所長が挨拶を述べられました。加速器量子ビーム実験装置の概算要求に際し当時の所長としてご努力頂いた権田俊一名誉教授と坂田祥光名誉教授からお祝いの言葉を頂きました。昭和50年に設置が認められた強力超極短時間パルス放射線発生装置の実現にご尽力頂いた櫻井 洸名誉教授の発声で乾杯が行なわれ、来賓と研究所内外からの多数の参加者により歓談が始まりました。最後に田川副所長より閉会の挨拶が行なわれて、加速器量子ビーム実験装置完成披露式典の全ての行事が終了しました。



## nano tech 2005 国際ナノテクノロジー総合展・技術会議

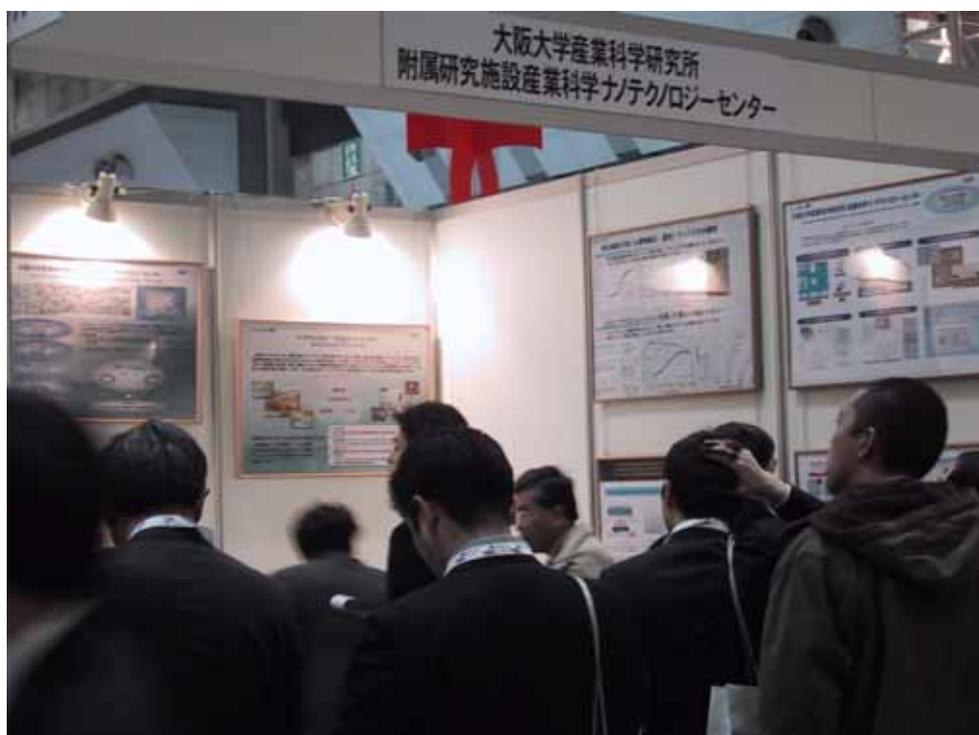
### 新強力超極短時間パルス放射線発生装置

nano tech 2005(主催:nano tech実行委員会)が平成17年2月23日(水)～25日(金)、東京ビッグサイト東4-6ホールにて開催され、産業科学研究所附属産業科学ナノテクノロジーセンターとして出展・参加した。

この展示会は、近い将来20兆円とも30兆円とも言われるナノテクノロジー分野について、研究開発から周辺領域を含む産業までを展示会や会議を通じて俯瞰するナノテクノロジーの総合展示会である。3日間トータルで39,069名の来場があり、盛大に開催された。

展示内容は、ナノマテリアル・デバイス研究部門、ナノ量子ビーム研究部門、ナノテクノロジー産業応用研究部門、ナノ構造機能評価研究部門、加速器量子ビーム実験室、プロセスファウンドリーからのポスター展示および研究の詳細を紹介するスライドショーやビデオの上映を行った。展示用に多数用意したパンフレット類は、3日間ですべてなくなるほど、当ブースにもたくさんの来場者を迎えることができた。

各大学、研究所、企業等のナノテクノロジーに関する最新の取り組み状況を知る事ができ、また、他の出展者や来場者との情報交換もでき、非常に有意義な3日間であった。



ナノマテリアル・デバイス研究部門

## 人工生体情報ナノマテリアル分野

田畑 仁 (たばた ひとし)



### 略歴

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

(専門分野) 機能材料科学、人工格子、ナノバイオデバイス

(所属学会) 日本物理学会、応用物理学会、日本金属学会、米国材料学会

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

佐伯 洋昌 (さえき ひろまさ)



### 略歴

昭和 53. 3 広島県生まれ  
平成 12. 3 大阪大学基礎工学部卒業  
平成 14. 3 大阪大学大学院基礎工学研究科  
          修士課程修了  
平成 14. 4 大阪大学大学院基礎工学研究科  
          博士課程入学  
平成 15. 3 同博士課程中退  
平成 15. 4 大阪大学産業科学研究所・助手

(専門分野) 薄膜、磁性

(所属学会) 日本物理学会、応用物理学会

Michael Herrmann (ミハエル ヘルマン)



【略歴】

1981.6 市立ギムナジウム Moltkestraße 中高等学校 卒業  
1987.10 アーヘン工科大学物理研究科修士課程 修了  
1991.4 アーヘン工科大学英語学専攻修士課程 修了  
1996.9 アーヘン工科大学物理研究科自然科学専攻博士課程 修了  
1984.5~1987.7 アーヘン工科大学 助手  
1987.11~1994.3 アーヘン工科大学 (物理研究科) 研究室助手  
1997.6~1997.8 アーヘン工科大学繊維研究所エレクトロニクス・ソフトウェア開発  
1998.1~2003.2 (独) 通信総合研究所関西先端研究センター 専攻研究員  
2003.3~2003.12 大阪大学 産業科学研究所 特任教員 (21世紀COE)  
2003.12~2004.2 大阪大学 産業科学研究所 研究員  
2004.3~現在 大阪大学 産業科学研究所 特任助教授 (21世紀COE)

研究内容：バイオ関連分子の時間分解テラヘルツ分析

所属学会：応用物理学会 (JSAP), Deutsche Physikalische Gesellschaft (DPG)

専門分野：時間分解テラヘルツ分析・イメージング

松井 裕章 (まつい ひろあき)

【略歴】

1996.3 佐賀大学工学部物理学科卒業  
2001.3 佐賀大学大学院工学系研究科 博士後期課程  
エネルギー物質科学専攻修了 博士 (工学) 取得  
1998.4~2001.3  
九州工業技術研究所 無機複合材料部  
(産業技術総合研究所九州センター基礎素材研究部門)  
1999.1~2001.3 日本学術振興会特別研究員  
2001.4~2002.11 大阪大学産業科学研究所 極微プロセス研究分野 博士研究員  
2002.12~現在  
大阪大学産業科学研究所 産業科学ナノテクノロジーセンター  
ナノマテリアル・デバイス研究部門 科学技術振興特任助手



研究分野：酸化物半導体材料、高温超伝導材料、薄膜結晶工学

蛍光 (応力発光) 材料、不純物ドーピング技術

研究内容：酸化物材料の結晶成長を高度なレベルで制御した量子ナノ構造の作製に従事

事務補佐員：池田 恵

学生：土井 敦裕、水野 江里子、北川 祐一、鶴田 浩二、爲國 和也

我々の研究室では、原子レベルで結晶構造制御可能なレーザーMBE法を用いて、強相関係物質薄膜や人工格子による未来物質創製を実施している。例えば酸化物磁性体、スピングラス、リラクサー強誘電体の次元性や揺らぎと物性に関する基礎研究や、強誘電生 - 強磁性が共存するマルチフェロトロンクス、さらに酸化物ワイドギャップ半導体を用いたスピントロニクス、光誘起スピン素子やシナプス接合型メモリ等の酸化物エレクトロニクス関連の研究を実施中である。

さらに、ナノバイオデバイスを目指して、DNAなどのバイオ分子の自己組織化、クローニングを利用したナノ構造制御によるバイオセンサ・メモリの創製や、走査プローブ顕微鏡を用いたナノ領域物性に関する研究を実施している。またDNA塩基間水素結合やタンパク質 - DNA結合の直接評価を目指して、新しい分光法としてのTHz分光 (Far-IR分光) によるDNA・蛋白質分子の結合状態計測も行っている。

## ワイドギャップ酸化物半導体(ZnO)によるスピエレクトロニクスの開拓

近年、伝導キャリアのみを用いて動作させている半導体に、スピン自由度を付加し、半導体材料のスピン依存伝導に関して、基礎的及び応用的観点から幅広く研究が進んでいる。本研究では、遷移金属(Co)を添加したZnOの基礎的性質の解明やそのヘテロ構造を作製し、その磁気伝導制御を行うことを目標にしている。今年度の主な成果を報告する。

強磁性の起源を特定する上で、磁気光学効果を評価することは重要である。図1(a)にSpring-8 BLSU23で評価した20Kでの高エネルギーCoL<sub>2,3</sub>端のXMCD (東大・藤森研共同) スペクトルを示す。添加したCo原子は、詳細な計算結果とのフィッティングに基づき4面体のZnサイト上に2価で置換している。XMCDの結果は、Co添加ZnO薄膜がCo金属等の他の強磁性不純物相ではなく、4面体に位置付けられたCo<sup>2+</sup>に起因していることを示唆している。図1(b)に可視・紫外領域におけるMCDスペクトルを示す。1.8eV付近にCo<sup>2+</sup>を起源とするd軌道の中心内遷移が見られ、また、ZnOのバンド端(3.4eV付近)に強いMCDピークを観測し、そのピークはヒステリシスの磁場応答性を示した。両者の結果から、Co添加ZnOの強磁性の起源は不純物相等ではなく本質的であることを明らかにした。

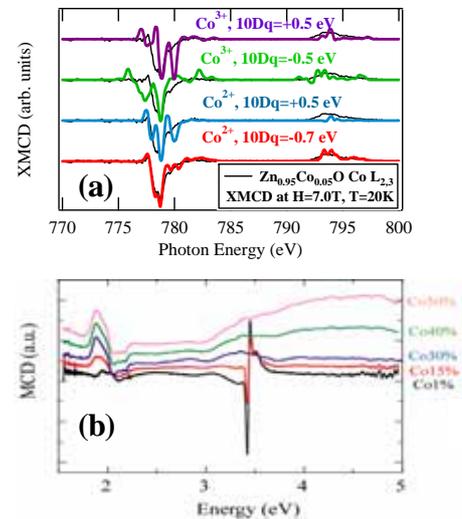


図1 (a) X線MCDスペクトル  
(b) 可視・紫外領域でのMCDスペクトル

次に多重量子井戸構造(MQWs)の作製について述べる。MQWs等の半導体ナノ構造は、ナノ界面構造内での磁気・電荷の相互作用等の興味ある現象を引き出す。図2(a)はMg-rich Mg<sub>0.37</sub>Zn<sub>0.67</sub>O/ZnO MQWsの高分解能X線回折の結果である。明瞭なPendellösung振動及び超格子ピークの存在、またAFM観察から、表面粗さ(rms)は1nm以下であることから高品質なMQWsが作製されている。また、紫外発光の量子化に伴う高エネルギーシフトや低温域でのホール移動度の結果は、キャリアがZnO井戸層内に2次的に閉じ込められていることを示唆している。格子整合基板及びZn極性成長により達成された高Mg組成の量子バリア層の適用は、今後目指す磁気と電荷の低次元特性の解明や結晶のコヒーレントを維持したTMR等のトンネルバリア層としても有効である。

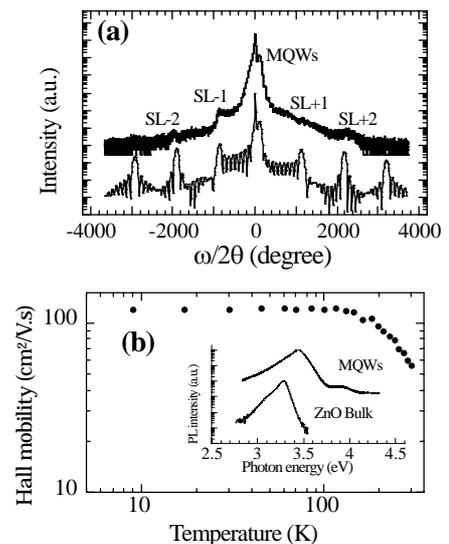


図2(a) ホール移動度の温度依存性  
(b) 室温でのPL発光スペクトル

## リラクサー誘電材料から強誘電・強磁性（マルチフェロイック）材料へ展開

緩慢な温度特性及び周波数分散という誘電特性はリラクサー現象と呼ばれ、近年、誘電体材料の分野において基礎的及び応用的観点から注目を集めている。これまでに、本研究グループではBaTiO<sub>3</sub>のTi<sup>4+</sup>サイトを同一価数のZr<sup>4+</sup>で置換したBa(Zr<sub>x</sub>Ti<sub>1-x</sub>)O<sub>3</sub>におけるリラクサーの誘電特性の研究を遂行してきた。今年度は、同一価数を有する元素置換に起因したリラクサー現象を詳細に探るべく、Ti<sup>4+</sup>サイトをHf<sup>4+</sup>に置換したBa(Hf<sub>x</sub>Ti<sub>1-x</sub>)O<sub>3</sub>を比較材料として取り上げた。

Ba(Hf<sub>x</sub>Ti<sub>1-x</sub>)O<sub>3</sub>のセラミックスのHfの添加濃度に対する誘電率の温度依存性は、過去に報告したBa(Zr<sub>x</sub>Ti<sub>1-x</sub>)O<sub>3</sub>と同様の結果を示した(図1(a))。図1(b)より、x=0.2で相転移点の集約(ピンチング現象)が見られ、x=0.3-0.8の領域において、周波数分散を有した緩慢な相転移が観測された。Currie-Wiess則による解析から、x=0.4において、相転移に必要な温度域(緩慢性)は90-100Kであった。一方、Ba(Hf<sub>x</sub>Ti<sub>1-x</sub>)O<sub>3</sub>薄膜についてもx=0.4から0.6でリラクサー的な振る舞い、つまり周波数分散が見られ、Ba(Zr<sub>x</sub>Ti<sub>1-x</sub>)O<sub>3</sub>薄膜の結果と一致した。従って、BaTiO<sub>3</sub>への同一価数の元素置換は、リラクサー現象の発現に対して重要な役割を果たす。

次に、リラクサー誘電性に強磁性特性を付加した材料(マルチフェロイック)は、新規な素子や記憶媒体への応用が期待できる。過去の報告からPbFe<sub>0.5</sub>(Ta<sub>x</sub>Nb<sub>1-x</sub>)<sub>0.5</sub>O<sub>3</sub>において、リラクサー現象が観測されている。本研究において、環境、人体への配慮から非Pb系として、Ba(Fe, Ta)<sub>0.5</sub>O<sub>3</sub>-Ba(Fe, Nb)<sub>0.5</sub>O<sub>3</sub>系を提案する。図2(b)にBa(Fe, Ta)<sub>0.5</sub>O<sub>3</sub>薄膜の磁気特性を示す。300Kで測定した飽和磁化は、薄膜の結晶性と密接に関連し、X線回折における回折パターンの半値幅の増大に伴い磁化が減少した。これはペロブスカイト構造のBサイトをFeイオンが不均一に占有していることに関連しており、スピンキャント機構が弱強磁性の起源にあると思われる。一方、誘電測定からリラクサー的な振る舞いも観測された(図2(a))。この結果は、材料探索への足掛かりとして位置付けられる。

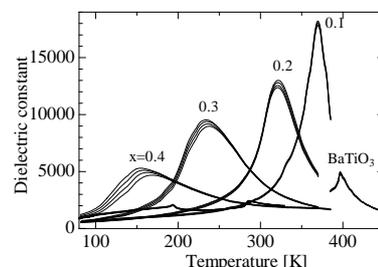


図1(a) Ba(Hf<sub>x</sub>Ti<sub>1-x</sub>)O<sub>3</sub> bulkの誘電物性

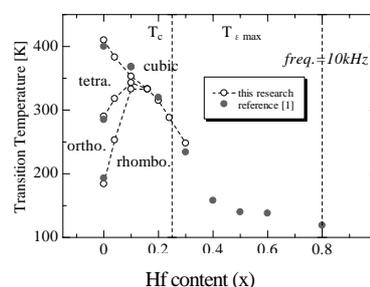


図1(b) Ba(Hf<sub>x</sub>Ti<sub>1-x</sub>)O<sub>3</sub> bulkの相図

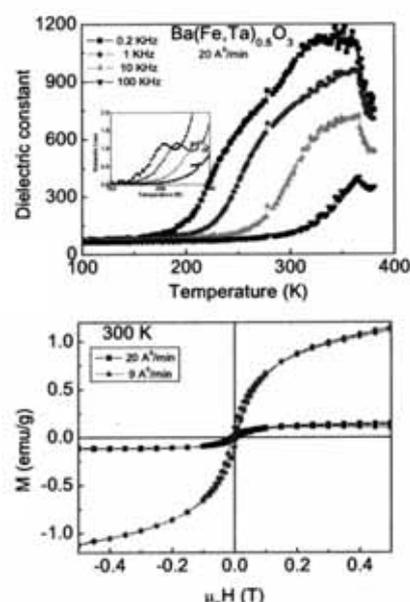


図2(a) BaFe<sub>0.5</sub>Ta<sub>0.5</sub>O<sub>3</sub>薄膜における誘電定数の温度依存性

(b) BaFe<sub>0.5</sub>Ta<sub>0.5</sub>O<sub>3</sub>薄膜の磁気特性

## スピネル型およびガーネット型フェライト薄膜における光誘起磁性

光で磁性を直接制御するフォトンモード型光磁気メモリは、情報処理の更なる高速化を実現できるため、精力的な研究が展開されているが、現時点において有望な材料は見出されていない。本研究では、スピネル型およびガーネット型フェライト材料において、高温域でのクラスターガラス現象を利用し、さらに光照射に伴うガラス相の融解に基づく磁化の増大を引き起こす材料の創製を行っている。今年度の主要研究成果を以下に示す。

図1に $\text{Al}_2\text{O}_3$  (0001) 基板上に作製されたスピネル型フェライト $\text{Ni}_{0.7}\text{Zn}_{0.3}\text{Fe}_{1.7}\text{Ti}_{0.3}\text{O}_4$  薄膜の磁化-温度曲線を示す。スピン凍結温度(230K)以下において光照射に伴うガラス相の融解が観測された。また、この光誘起による磁化の増大は、Ti濃度に依存している。更に、励起エネルギースペクトル(図2)から、 $\text{Ti}^{4+}$ と $\text{Fe}^{2+}$ 間の光誘起電荷移動にあることが示唆された。つまり、 $\text{Ni}_{0.7}\text{Zn}_{0.3}\text{Fe}_{1.7}\text{Ti}_{0.3}\text{O}_4$  薄膜の光誘起磁性は、光照射によるFeイオンの価数変化が、母体の局所的な磁気異方性に影響を与え、クラスターガラスの融解が発現したと考えられる。

次に、 $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  (111) 基板上に成長させたガーネット型フェライト $\text{Y}_3(\text{Fe}, \text{Al})_5\text{O}_{12}$  薄膜において、組成や酸素分圧および成膜速度の成長条件の最適化により、室温以上でのスピン凍結温度(400K)を実現した。また、 $\text{Y}_3(\text{Fe}, \text{Al})_5\text{O}_{12} \sim \text{Si}^{4+}$ を添加することによって、光誘起磁性の増大を観測した(図3)。これは、 $\text{Si}^{4+}$ 添加によって生成した $\text{Fe}^{2+}$ が光照射に伴い再配列し、磁場方向に平行な磁化容易軸を有する一軸異方性を引き起こした。これは、磁化-磁場曲線の測定結果から示唆されている。

本研究では、スピネル型およびガーネット型フェライト材料の光誘起磁性の特性評価から、新しい光磁性材料の創製へ向けて重要となる基礎的知見を得た。

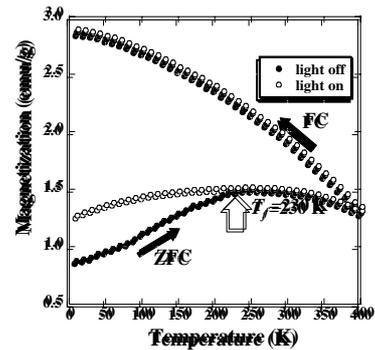


図1  $\text{Ni}_{0.7}\text{Zn}_{0.3}\text{Fe}_{1.7}\text{Ti}_{0.3}\text{O}_4$  薄膜の温度-磁化曲線

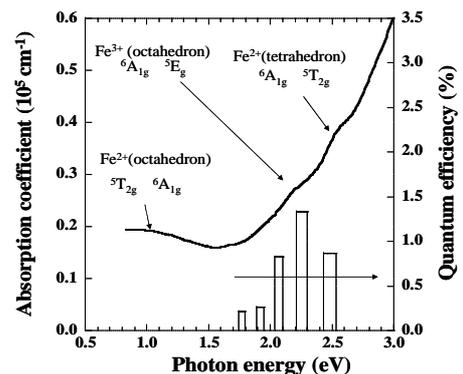


図2  $\text{Ni}_{0.7}\text{Zn}_{0.3}\text{Fe}_{1.7}\text{Ti}_{0.3}\text{O}_4$  薄膜における光吸収スペクトルと光誘起磁性の励起エネルギー依存性

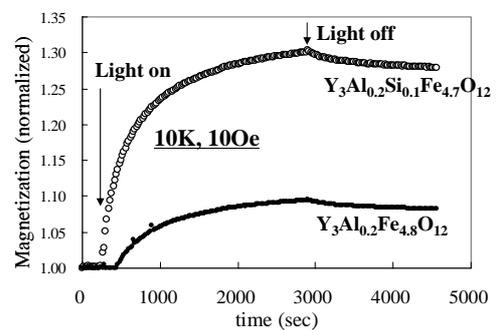
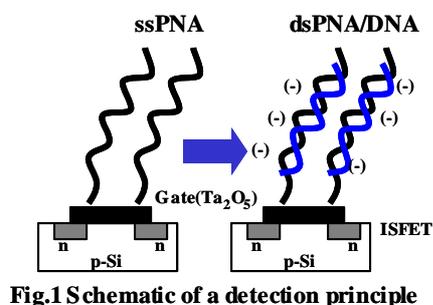


図3 ガーネット型フェライト薄膜の光誘起磁性

## IS-FETを利用したDNAセンサ

塩基の正確な対合によってDNAが2本鎖を形成するハイブリダイゼーションプロセスは、バイオテクノロジーの分野における重要な反応である。この反応を効率的に利用した生体情報デバイスは、ポストゲノムシーケンス時代のキーテクノロジーとして注目されている。我々は、ペプチド核酸分子（PNA）と電界効果トランジスタ（ISFET）を組み合わせた新規生体情報デバイスを作製し、遺伝子検出の可能性について評価した。PNAは2-アミノエチルグリシンを骨格とする無電荷の人工核酸分子で熱安定性、塩基配列選択性、塩濃度非依存性などハイブリダイゼーション反応に優れ、またISFETを用いる事によりDNAハイブリダイゼーションをダイレクトに検出する事が可能となる。

ゲート面にプロトン感受性膜 $Ta_2O_5$ を有するBAS社製ISFET電極を実験に用いた。ISFET電極ゲート面にアミノシラン誘導体を導入後、グルタルアルデヒドによる架橋を組み合わせPNAを固定化した。その後逆反応と平衡関係にあるシッフ塩基の安定化の為に $NaCNBH_3$ により還元処理を行った。処理後相補鎖DNAとのハイブリダイゼーション反応を行い、ハイブリ前後のI-V特性を測定した。結果ハイブリダイゼーション反応によって、静特性飽和電流値の減少また伝達特性閾値電圧の正シフトが観察された。これはポリアニオン性DNAのハイブリダイゼーションにより正のゲート電圧が相殺された事に起因する現象と考えられる。

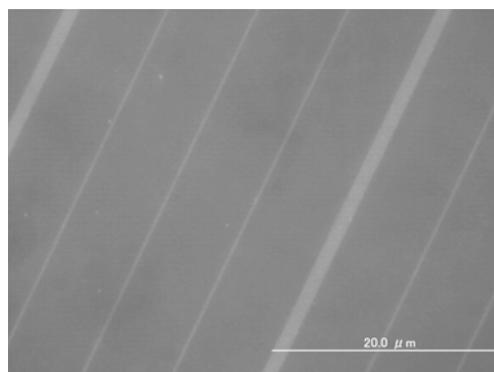


(本件は JST-CREST 研究の一環として川合教授 G との共同で実施された。)

## DNAナノパターニング

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ニングを行う必要があり、そのためのプロセス開発が望まれている。本研究では Poly-L-Lysine のナノパターニングを、ナノインプリント技術を用いて行うことで、自己組織化的 DNA ナノパターニングプロセスの開発を行った。

Poly-L-lysine コートガラス基板上に EB リソグラフィによってナノパターニングされた  $SiO_2/Si$  モールドを用いて、6 MPa, 120 °C, 5 min にてインプリントを行った。その後、1・g/・1 鮭白子 DNA を滴下・乾燥させて UV クロスリンクを行い、このガラス基板を水洗して得た。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



ナノパターニングされた DNA の  
蛍光顕微鏡写真

察を行った。

本プロセスにより約 700nm の DNA ナノパターンニングを得た。この DNA ナノパターンは、モールドの凸型パターンに沿って得られていることが分かる。これはナノインプリントの高温・高圧条件下において、Poly-L-Lysine が改質されることに起因すると思われる。本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。

(本件は JST-CREST 研究の一環として川合教授 G との共同で実施された。)

## ナノ電極作成と電気伝導測定

ナノスケールの材料における電気特性の測定を試みている。直流(DC)方法を利用して、ナノギャップ電極及び SPM を利用して調べる方法が行われている。我々は新しい測定技術によって測定を試みた。

Point-contact Current-Imaging Atomic Force Microscopy (PCI-AFM) がそれで (図 1)、構造的なイメージと電気伝導のイメージの両方を得ることができる。これにより、ローカルな構造と電気伝導率との関係を研究することが可能となる。

一方、電極の製作も行った。 ナノギャップ電極の使用により、材料の詳細な電気特性を得ることが可能となる。通常、ナノ-ギャップ電極は電子ビーム(EB)リソグラフィーまたは光リソグラフィーによって作られる。

今回我々は EB リソグラフィーなしでナノギャップ電極の製作方法を開発した(図 2)。基板は、酸化シリコンかサファイアにより角度で制御された蒸着装置を使用した。本手法により、我々は再現性よくギャップが 100nm 程度の電極を作成した。

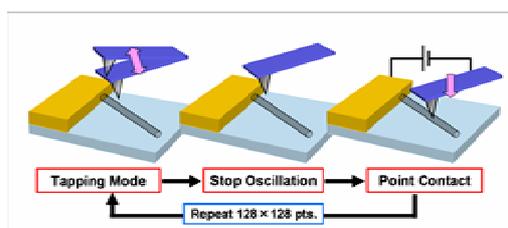


Figure.1  
Schematic illustration of PCI-AFM

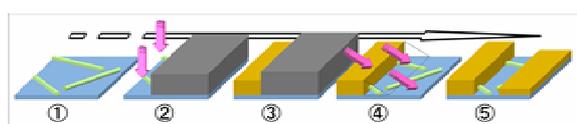


Figure.2  
Schematic fabrication methods of  
Nano-gap electrode.

## 論文

“Direct Deoxyribonucleic Acid Detection Using Ion-Sensitive Field-Effect Transistors Based on Peptide Nucleic Acid” T. Uno, T. Ohtake, H. Tabata and T. Kawai, *Jpn. J. Appl. Phys.* 43 (12B) (2004) L1584-L1587.

“Sputtering and annealing effect of sapphire substrate for an orientation of lead phthalocyanine films” S. Tabuchi, H. Tabata and T. Kawai, *Surface Science*, 571 (2004) 117-127.

“A simple fabrication method of nanogap electrodes for top-contacted geometry: application to porphyrin nanorods and a DNA network” Y. Otsuka, Y. Naitoh, T. Matsumoto, W. Mizutani, H. Tabata and T. Kawai, *Nanotechnology* 15 (2004) 1639-1644.

“Structural and multiferroic properties of BiFeO<sub>3</sub> thin films at room temperature” K. Y. Yun, M. Noda, M. Okuyama, H. Saeki, H. Tabata, K. Saito, *J. Appl. Phys.* 96 (6) (2004) 3399-3403.

“Immobilization of Probe DNA on Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> Thin Film and Detection of Hybridized Helix DNA by Using IS-FET” T. Ohtake, C. Hamai, T. Uno, H. Tabata and T. Kawai, *Jpn. J. Appl. Phys.* 43 (2004) L1137-L1139.

“Colossal magnetoresistance in spinel type Zn<sub>1-x</sub>Ni<sub>x</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>” A. K. M. Akther Hossain, M. Seki, T. Kawai and H. Tabata, *J. Appl. Phys.* 96 (2) (2004) 1273-1275.

“High-Energy Spectroscopy Study of the Ferromagnetic Diluted Magnetic Semiconductor Zn<sub>1-x</sub>V<sub>x</sub>O” Y. Ishida, J. I. Hwang, M. Kobayashi, A. Fujimori, H. Saeki, H. Tabata, T. Kawai, *Physica B* 351 (2004) 304-306.

“Orthorhombic Molybdenum Trioxide Whiskers by Vapor Transport Method” S. Choopun, P. Mangkorntong, P. Subjareon, N. Mangkorntong, H. Tabata and T. Kawai, *Jpn. J. Appl. Phys.* 43 (2004) L91-L93.

“N doping using N<sub>2</sub>O and NO sources: From the viewpoint of ZnO” H. Matsui, H. Saeki, T. Kawai, H. Tabata and B. Mizobuchi, *J. Appl. Phys.* 95 (2004) 5882-5888.

“Characteristics of polarity-controlled ZnO films fabricated using the homoepitaxy technique” H. Matsui, H. Saeki, T. Kawai, A. Sasaki, M. Yoshimoto, M. Tsubaki and H. Tabata, *J. Vac. Sci. Technol. B* 22 (2004) 2454-2461.

“Photoemission study of poly(dA)–poly(dT) DNA: Experimental and theoretical approach to the electronic density of states” H. Wadati, K. Okazaki, Y. Niimi, A. Fujimori, H. Tabata, J. Pikus and J. P. Lewis, Appl. Phys. Lett. 86 (2005) 023901(3pages)

“Self-assembly ZnO nanorods by pulsed laser deposition under argon atmosphere” S. Choopun, H. Tabata and T. Kawai, J. Cryst. Growth, 274 (2005) 167–172.

## 国際会議論文 ( プロシーディングス )

「Transparent magnetic semiconductors based on ZnO」

H.Saeki, H.Matsui, T.Kawai and H.Tabata  
: J.Phys.:Condens. Matter, 16 (2004) S5533-S5540

「Raman scattering studies on ZnO doped with Ga and N (codoping), and magnetic impurities」

N.Hasuike, H.Fukumura, H.Harima, K.Kisoda, H.Matsui, H.Saeki, T.Kawai and H.Tabata  
: J.Phys.:Condens. Matter, 16 (2004) S5807-S5810

「Growth and impurities in Zn-polar homoepitaxial ZnO films on (0001) ZnO」

H.Matsui, H.Saeki and H.Tabata  
: Proc.of 10th Physics and applications of Spin-related Phenomena in Semiconductors  
(2004) 39-42

「MCD and NMR study of transition-metal doped ZnO thin films」

H.Saeki, H.Matsui, H.Tabata, T.Kawai, Y.Shiotani, G.-q.-Zheng and Y.Kitaoka  
: Proc.of 10th Physics and applications of Spin-related Phenomena in Semiconductors  
(2004) 32-34

「THz Characterization of DNA」

M.Herrmann, H.Tabata, M.Tonouchi, T.Kawai  
: 2004 Joint 29<sup>th</sup> International Conference on Infrared and Millimeter Waves and 12<sup>th</sup>  
International Conference on Terahertz Electronics, (2004) 783-784

## 解説・総説

「DNA 自己組織化を利用したナノパターン制御形成 ～ボトムアップ半導体ナノテクノロジー～」 田畑 仁

: SEAJ Journal, 92 (2004) 24-27

「DNA と半導体 ナノテクノロジーと融合」 田畑 仁

: Bio Clinica, 20(1) (2005) 47-52

## 国際会議

- ★ 「Relaxor Superlattices. -Ordered-Disordered Control of B-site Ions-」  
H.Tabata, Y.Hotta and A.Doï  
The 16th International Symposium on Integrated Ferroelectrics(ISIF 2004) 2004.4.5-8 (Korea)
  
- ★ 「Electric and Magnetic Properties of Hetero and Homo Epitaxial ZnO Films on Sapphire and Polarity Controlled ZnO Single Crystals」  
H.Tabata  
AFOSR Zinc Oxide Workshop 2004.5.17-20 (USA)
  
- ★ 「Transparent Magnetic Semiconductors Based on ZnO」  
H.Tabata, H.Matsui and H.Saeki  
International Conference on Nanospintronics Design and Realization (ICNDR)  
2004.5.24-28 (Kyoto)
  
- 「Strain Effect and Ordered-Disordered Control in BaTiO<sub>3</sub>-BaZrO<sub>3</sub> Relaxor Superlattices」  
Y.Hotta and H.Tabata  
5th Korea-Japan Conference on Ferroelectricity 2004.8.18-21 (Korea)
  
- ★ 「Construction of ZnO devices : electric and magnetic properties」  
H.Tabata, S.Masuda, H.Matsui, H.Saeki and T.Kawai  
The 12th Gallium Arsenide and other Compound Semiconductors Application  
Symposium(GAAS 2004) 2004.10.11-12 (Netherland)
  
- ★ 「Non-labeling Detection of DNA Hybridization by IS-FET devices」  
H.Tabata, T.Uno, T.Ohtake and T.Kawai  
International Workshop on Surface-Biotronics 2004.10.19-20 (東京)
  
- ★ 「Spin and Dipole Glass Behaviors in Perovskite or Spinel Superlattices」  
H.Tabata, Y.Hotta, A.Doï, M.Seki and T.Kawai  
The 5th Korea-Japan-Taiwan Symposium on Strongly Correlated Electron Systems  
2004.12.10-11 (Korea)
  
- 「Growth and impurities doping of Zn-polar homoepitaxial ZnO films on (0001) ZnO」  
H.Matsui, H.Saeki and H.Tabata  
International Conference on Nanospintronics Design and Realization (ICNDR)  
2004.5.24-28 (Kyoto)
  
- 「DNA Nano-patterning with Self-organization by using Nanoimprint」  
T.Ohtake, K.Nakamatsu, S.Matsui, H.Tabata and T.Kawai

48th International Conference on Electron, Ion, Photon Beam Technology and Nanofabrication  
(EIPBN 2004) 2004.6.1-4 (USA)

「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 and T.Kawai  
NANO-8(8<sup>th</sup> International Conference on Nanometer-Scale Science and Technology)  
2004.6.28-7.2 (Italy)

「Direct DNA detection using ion-sensitive field effect transistors (IS-FETs) based on peptide nucleic acid」 T.Uno, T.Ohtake, H.Tabata and T.Kawai

The 2004 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM 2004)  
2004.9.15-17 (Japan)

「THz Characterization of DNA」 M.Herrmann, H.Tabata, M.Tonouchi, T.Kawai

The Joint 29th International Conference on Infrared and Millimeter Waves and 12th  
International Conference on Terahertz Electronics(IRMMW 2004/THz 2004) 2004.9.27-10.1  
(Germany)

「Single crystalline N-doped anatase TiO<sub>2</sub> films on lattice-matched LaAlO<sub>3</sub> (100) substrates:Co-supplement of nitrogen and oxygen atoms through NO source」

H.Matsui, B.Mizobuchi, N.Hasuike, H.Harima and H.Tabata  
11th International Workshop on Oxide Electronics 2004.10.3-5 (Kanagawa)

「Magnetism of Cobalt-doped ZnO thin films」

H.Saeki, H.Matsui, H.Tabata, T.Kawai, Y.Shiotani, G.-q.Zheng, Y.Kitaoka, M.Kobayashi,  
Y.Ishida, J.I.Hwang, T.Mizokawa, A.Fujimori, K.Mamiya  
11th International Workshop on Oxide Electronics 2004.10.3-5 (Kanagawa)

「Dielectric properties of Ba(Zrx Ti1-x)O<sub>3</sub> bulk」

A.Do, Y.Hotta, H.Tabata  
11th International Workshop on Oxide Electronics 2004.10.3-5 (Kanagawa)

「Room temperature ferromagnetism in ferroelectric Pb(Fe,Ta)<sub>0.5</sub>O<sub>3</sub> and Ba(Fe,Ta)<sub>0.5</sub>O<sub>3</sub> Thin films」

A.K.M.Akther Hossain, A.Do, M.Seki, T.Kawai, H.Tabata  
11th International Workshop on Oxide Electronics 2004.10.3-5 (Kanagawa)

「Photocontrol of cluster glass state at room temperature in spinel and garnet ferrite thin films」

M.Seki, A.K.M. Akther Hossain, K.Tanimura, T.Kawai and H.Tabata

11th International Workshop on Oxide Electronics 2004.10.3-5 (Kanagawa)

「Magnetism of cobalt-doped ZnO thin films」 H.Saeki, H.Matsui, H.Tabata  
The 3rd International Workshop on ZnO and Related Materials 2004.10.5-8 (Sendai)

「Polar and non-polar growth in ZnO homoepitaxy」 H.Matsui and H.Tabata  
The 3rd International Workshop on ZnO and Related Materials 2004.10.5-8 (Sendai)

「Structure and electrical property of DNA molecules immobilized on the patterned self-assembled monolayers」

Y.Otsuka, K.Ojima, T.Matsumoto, H.Tabata and T.Kawai  
2005 APS March Meeting 2005.3.21-25 (USA)

## 国内学会

「リラクサー人工格子とモンテカルロ法による $A(B^{2+}_{0.5}B^{3+}_{0.5})O_3$ の相転移シミュレーション」堀田 育志、土井 敦裕、川合 知二、田畑 仁  
第 21 回強誘電体応用会議 2004.5.26-29 (京都)

「極限界面・結晶成長制御による室温スピントロニクスデバイス」田畑 仁  
特定領域研究「半導体ナノスピントロニクス」平成 16 年度 夏の研究会  
2004.6.9-10 (横浜)

★「薄膜・表面評価技術」田畑 仁  
日本学術振興会 薄膜第 131 委員会 第 21 回薄膜スクール 2004.7.7-9 (仙台)

★「機能性酸化物薄膜の物質設計とデバイスへの応用技術」田畑 仁  
(株)日本テクノセンター主催セミナー 2004.7.20-21 (東京)

★「強相関界面素子」田畑 仁  
日本物理学会 2004 年秋季大会 2004.9.12-15 (青森)

★「遷移金属酸化物薄膜・人工格子における磁気・誘電特性制御」田畑 仁  
日本真空協会 第 45 回真空に関する連合講演会 2004.10.27-29 (大阪)

★「スピンエレクトロニクスに向けた ZnO 薄膜」田畑 仁  
平成 17 年電気学会全国大会 2005.3.19 (徳島)

「Growth and impurities doping of Zn-polar homoepitaxial ZnO films on (0001) ZnO」 H.Matsui, H.Saeki T.Kawai and H.Tabata  
第 10 回「半導体スピン工学の基礎と応用」研究会 2004.6.10-11 (横浜)

「MCD spectra for vanadium doped ZnO thin films」

H.Saeki, H.Matsu and H.Tabata

第 10 回「半導体スピン工学の基礎と応用」研究会 2004.6.10-11 (横浜)

「Ba(Zr<sub>x</sub>Ti<sub>1-x</sub>)O<sub>3</sub> (x=0-1) バルクおよび薄膜の誘電物性」

土井敦裕、田畑 仁

2004 年 (平成 16 年) 秋季 第 65 回応用物理学会学術講演会 2004.9.1-4 (仙台)

「CyEPL の誘電特性及び有機半導体/CyEPL 構造を用いたトランジスタの評価」

水野江里子, 谷口正輝, 川合知二, 田畑 仁

「有極性高分子をゲート絶縁膜に用いた有機薄膜トランジスタにおける移動度向上の再評価」

水野江里子, 谷口正輝, 田畑 仁, 川合知二

2004 年 (平成 16 年) 秋季 第 65 回応用物理学会学術講演会 2004.9.1-4 (仙台)

「一酸化窒素 (NO) による窒素ドーピング:TiO<sub>2</sub>への窒素ドープ源としての提案」

松井裕章, 田畑 仁, 溝淵文章

「ZnO における非極性面上への結晶成長:ストライプ構造の形成」

松井裕章, 田畑 仁

2004 年 (平成 16 年) 秋季 第 65 回応用物理学会学術講演会 2004.9.1-4 (仙台)

「Yaffet-Kittel 型スピネルフェライトにおける巨大磁気抵抗効果」

Hossain A.K.M. Akther, 関宗俊, 川合知二, 田畑 仁

2004 年 (平成 16 年) 秋季 第 65 回応用物理学会学術講演会 2004.9.1-4 (仙台)

「ガーネット型フェライト薄膜における高温クラスターガラスと光照射効果」

関 宗俊, Hossain A.K.M. Akther, 川合知二, 田畑 仁

2004 年 (平成 16 年) 秋季 第 65 回応用物理学会学術講演会 2004.9.1-4 (仙台)

「傾斜蒸着法によるウェットプロセスフリー・トップコンタクト型ナノギャップ電極の作製」大塚洋一, 内藤泰久, 松本卓也, 水谷 亘, 田畑 仁, 川合知二

2004 年 (平成 16 年) 秋季 第 65 回応用物理学会学術講演会 2004.9.1-4 (仙台)

「ZnO単結晶基板上でのZn<sub>1-x</sub>TM<sub>x</sub>O薄膜の作製条件および磁気特性の評価」

佐伯洋昌, 松井裕章, 田畑 仁

2004 年 (平成 16 年) 秋季 第 65 回応用物理学会学術講演会 2004.9.1-4 (仙台)

「自己形成 1 次元ストライプアレイを有する非極性 ZnO 薄膜の基礎物性」

松井裕章、田畑仁

2005 年春季 第 52 回応用物理学関係連合講演会 2005.3.29-4.1 (埼玉)

「 $Zn_{1-x}Co_xO$ 薄膜の磁気輸送特性」

佐伯洋昌、松井裕章、田畑仁

2005 年春季 第 52 回応用物理学関係連合講演会 2005.3.29-4.1 (埼玉)

「多種の DNA におけるテラヘルツ時間分解分光」

Michael Herrmann, 田畑仁, 川合知二

2005 年春季 第 52 回応用物理学関係連合講演会 2005.3.29-4.1 (埼玉)

「DNA 関連塩基分子のテラヘルツ時間分解分光」

法澤公寛, Michael Herrmann, 田畑仁, 川合知二

2005 年春季 第 52 回応用物理学関係連合講演会 2005.3.29-4.1 (埼玉)

「Poly-L-Lysine のナノインプリントによる自己組織化的 DNA ナノパターンニング」

大竹才人, 中松健一郎, 松井真二, 田畑仁, 川合知二

2005 年春季 第 52 回応用物理学関係連合講演会 2005.3.29-4.1 (埼玉)

「スピネル型フェライト薄膜における高温光磁性の発現機構」

関宗俊, A.K.M. Akther Hossain, 田畑仁, 川合知二

2005 年春季 第 52 回応用物理学関係連合講演会 2005.3.29-4.1 (埼玉)

「非Pb系リラクサー強誘電体:  $Ba(Zr_xTi_{1-x})O_3$ ,  $Ba(Hf_xTi_{1-x})O_3$  の誘電物性」

土井敦裕, 金秀幸, 黒岩芳弘, 田畑仁

2005 年春季 第 52 回応用物理学関係連合講演会 2005.3.29-4.1 (埼玉)

「マルチフェロイックリラクサーの物質探索:  $BaFe_{0.5}(Ta_xNb_{1-x})_{0.5}O_3$  薄膜の磁気・誘電特性」北川祐一, A.Hossain, 田畑仁

2005 年春季 第 52 回応用物理学関係連合講演会 2005.3.29-4.1 (埼玉)

「 $Fe_{2.7}Ti_{0.3}O_4$ スピネル型フェライト薄膜における高温クラスターガラス的挙動」

鶴田浩二, 関宗俊, 田畑仁

2005 年春季 第 52 回応用物理学関係連合講演会 2005.3.29-4.1 (埼玉)

## 特許

「光触媒作用を有する窒素ドーブ酸化チタンとその製造方法」

松井裕章、田畑仁、溝淵文章

「自己組織化材料または微粒子を基板上に固定化する方法、および当該方法を用いて作製した基板」2004.12.28, 特願2004-381549

川合知二、田畑仁、大塚洋一、山田郁彦、松本卓也

## 共同研究

東京大学大学院 理学研究科 藤森教授  
名古屋大学 工学研究科 田中教授、平野教授、坂本助教授  
大阪大学 産研 吉田教授、谷村教授、朝日教授、田川教授、川合教授  
大阪大学大学院 基礎工学研究科 奥山教授、伊藤教授  
岡山大学 黒岩助教授  
京都工芸繊維大学 工学部 播磨教授  
兵庫県立大学 高度産業科学技術研究所 松井教授  
近畿大学 生物理工学部 本津教授  
住友精化 (株)  
松下電器 (株)  
クラスターテクノロジー (株)  
三洋工業 (株)  
グンゼ (株)

## 学協会活動

日本学術振興会 薄膜第 131 委員会 企画委員

(社) 応用物理学会 有機分子・バイオエレクトロニクス分科会 幹事

テレコム先端技術研究支援センター テラヘルツテクノロジー動向調査委員会委員

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

2004 年 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2004) (2004 年国際固体素子・材料コンファレンス) (2004.9.14-17・東京) 論文委員

2005 年 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2005) (2005 年国際固体素子・材料コンファレンス) (2005.9.12-15・神戸) 論文委員

2005 年 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2005) (2005 年国際固体素子・材料コンファレンス) (2005.9.12-15・神戸) 実行委員

12th International Conference on Solid Films and Surfaces (ICSFS-12) (2004.6.21-25・浜松) プログラム委員

The 5th Korea-Japan Conference on Ferroelectricity (KJC-FE5) (2004.8.18-21・Seoul, Korea)  
論文出版委員

11th International Workshop on Oxide Electronics (2004.10.3-5・神奈川) International Committee

SPIE International Symposium“Smart Materials, Nano-, and Micro-Smart Systems  
(2004.12.12-15, Sydney, Australia) プログラム委員

## 科研費、助成金等

田畑 仁

「科研費」

特定領域研究(2) 「半導体ナノスピントロニクス」

「極限界面・結晶成長制御による室温スピントロニクスデバイスの研究」

田畑 仁

基盤研究(B)(2)

「対称性が破れた強誘電体リラクサー人工格子形成と脳型メモリ創成」

田畑 仁

文部科学省 科学技術振興調整費 先導的研究等の推進

「ナノスピントロニクスのデザインと創製」

田畑 仁

近畿経済産業局 地域新生コンソーシアム研究開発事業

「LIPS法の開発と次世代超小型タッチパネルへの適用」

田畑 仁

住友精化株式会社 委託研究費 「可視光応答型光触媒の研究」

田畑 仁

川崎重工業(株) 技術指導 「機能性材料研究」

## 単分子素子集積デバイス分野

川合 知二 (かわい ともじ)

1946年 神奈川県生まれ。

1969年 東京大学理学部化学科を卒業

1974年 東京大学理学系研究科博士課程修了  
(理学博士)。

東京工業大学助手、国立分子科学研究所助手、大阪大学産業科学研究所助教授を経て、現在、大阪大学産業科学研究所教授(所長)。

走査型プローブ顕微鏡を用いたDNAの研究や、磁性、誘電性、超伝導性、及び、光機能を調和させた今までにない特性を発現できる新材料を人工格子法を用いて開発しています。

“科学”をしているときは、いつでも幸せです。走査プローブ顕微鏡によるDNA機能の解明と分子レベルの加工、DNAデバイスの実現、超五感センサと脳型メモリ、神が創ったような“完全な機能調和材料”の創成などを目指しています。

著書に「ナノテクノロジー入門」(オーム社)などがあります。

趣味はお寺巡り、真夏のハイキング。



松本 卓也 (まつもと たくや)

1984年 大阪大学工学部応用精密化学科卒業

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

1990年 大阪大学産業科学研究所教務職員

1991年 大阪大学産業科学研究所助手

1998年 大阪大学産業科学研究所助教授

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

専門分野 反応物理化学、表面科学、走査プローブ、顕微鏡、分子スケールエレクトロニクス、ナノ磁性、遷移金属酸化物

所属学会 日本化学会、日本物理学会、応用物理学会、日本表面科学会、応用磁気学会、アメリカ材料学会、アメリカ化学会

趣味 声楽、民族学

自己組織化現象を利用して、個々の分子の特性が現れるネットワーク型分子デバイスの構築を目指しています。特に自己組織化と時間や情報との関係に興味があります。構造や物性を評価に走査プローブ顕微鏡を使いますが、普通のSPMとは一味違う、ナノデバイスに特化した走査プローブ顕微鏡の手法開発を目玉にしています。新しい方法で、無限系である固体と分子の間の界面電子状態を調べたいと考えています。



谷口 正輝 (たにくち まさてる)

1996年 京都大学工学部石油化学科卒業

1998年 京都大学大学院工学研究科分子工学専攻博士前期課程修了

2001年 京都大学大学院工学研究科分子工学専攻博士後期課程修了  
工学博士

2001年 日本学術振興会特別研究員  
(大阪大学産業科学研究所)

2002年 大阪大学産業科学研究所付属  
産業科学ナノテクノロジーセンター助手

2003年 九州大学先導物質化学研究所非常勤講師兼任

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



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

所属学会 日本物理学会、日本化学会、応用物理学会、高分子学会、ACS

専門分野 物性有機化学、有機伝導体、計算科学

趣味 旅行、水泳、車

高木 昭彦 (たかぎ あきひこ)

1992年 東京大学工学部合成化学科卒業

1994年 東京大学大学院工学系研究科超伝導工学専攻  
修士課程修了

2000年 Département de Physique de la Matière Condensée,  
Université de Genève (スイス) 博士課程修了  
理学博士

(Docteur ès Science, mention interdisciplinaire)

2001年 日本学術振興会特別研究員  
(大阪大学産業科学研究所)

2002年 科学技術振興機構委嘱研究員  
(大阪大学産業科学研究所)

研究テーマ 走査プローブ顕微鏡 (STM/AFM) を用いた分子イメージングとその電子状態を明らかにすること。

専門分野 固体物性、表面科学

所属学会 応用物理学会、日本化学会、表面科学会



小嶋 薫 (おじま かおる)

平成 10 年 9 月 神戸大学自然科学研究科物質科学  
専攻修了 博士(工学)取得

平成 10 年 10 月 ~ 平成 13 年 8 月 豊田工業大学  
ポスドクトラル研究員

平成 13 年 9 月 ~ 平成 15 年 1 月 物質材料研究機  
構 特別研究員

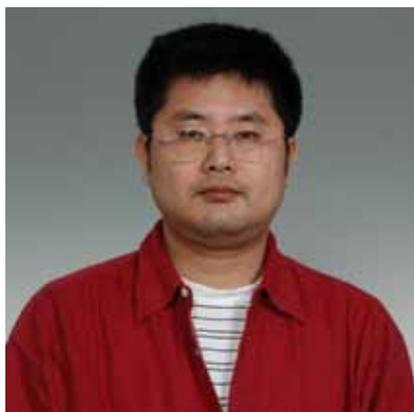
平成 15 年 2 月 ~ 現在 科学技術振興機構 CREST  
研究員

専門分野 表面科学

所属学会 日本応用物理学会、日本物理学会、表面科学会

趣味 読書、絵画鑑賞、料理、テニス

現在、科学技術振興事業団 C R E S T 研究員としてバイオ分子デバイスおよび新規  
プローブ技術の開発関係の仕事に従事しています。これまでのバックグラウンドが  
『超高真空を用いた表面科学』にあるため、特に生体系の研究には戸惑うことも多い  
ですが、自分にとって新しい経験と技術の習得があり、日々楽しみながら研究に従事  
しています。



松浦 俊彦 (まつうら としひこ)

1998年 北海道教育大学教育学部函館校中学校教員養成課程卒業

2000年 北海道教育大学大学院教育学研究科教科教育専攻修士課程修了

2003年 北海道大学大学院工学研究科量子物理工学専攻博士後期課程修了  
工学博士(北海道大学)

2003年 大阪大学産業科学研究所 研究員

2003年 (株)島津製作所基盤技術研究所 研究員

研究分野 生体分子を利用したDNAシーケンサー・  
バイオセンサーの開発、RNA工学、  
バイオナノテクノロジー

専門分野 ソフトマター物理学、バイオニクス、  
生物物理学、表面科学

所属学会 日本分子生物学会、日本表面科学会、  
応用物理学会、日本化学会

趣味 旅行、バドミントン、娘と遊ぶこと



野木 由美子(のぎ ゆみこ)



1985年 成安女子短期大学 卒業  
同年 龍村美術織物 入社  
品質管理の実験データ測定やまとめなど

1997年 退社

1998年～現在 産業科学研究所 川合研

趣味 手芸、お菓子作りなど

写真のぬいぐるみなど作ります。

作者に似ていつも  
もふっくらさん

になってしまいます。

出勤は週に3日ですが、皆様に  
助けていただき、事務職は初めてで不  
安でしたが、楽しく仕事しています。



学生

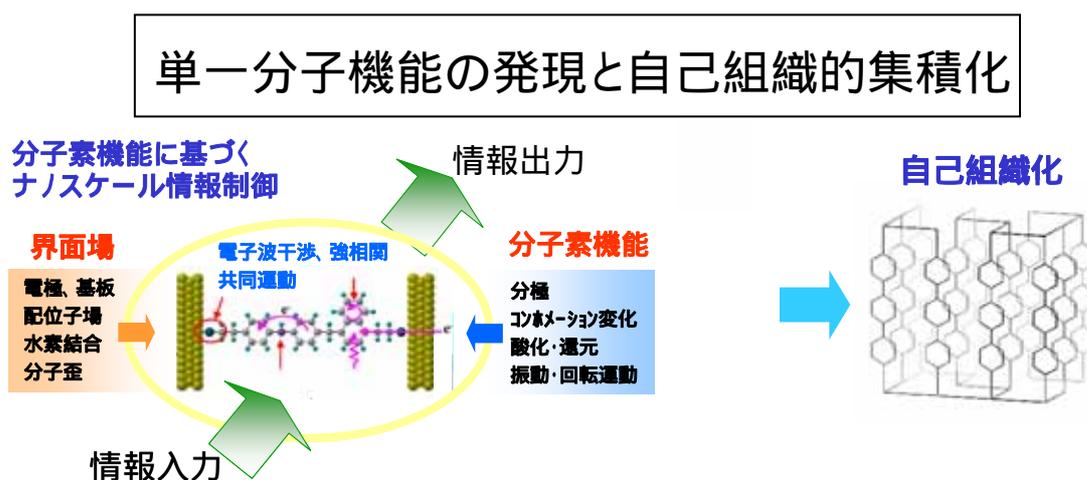
理学 D3 高東 智佳子(たかとう ちかこ)  
理学 D2 大塚 洋一(おおつか よういち)  
基礎工 D1 山田 郁彦(やまだ ふみひこ)  
基礎工 M2 片岡 誠(かたおか まこと)  
理学 M2 仲里 卓(なかざと すぐる)  
基礎工 M1 高橋 拓也(たかはし たくや)  
基礎工 M1 水野 江里子(みずの えりこ)  
理学 M1 野島 義弘(のじま よしひろ)  
理学 B4 横田 一道(よこた かずみち)

## 研究概要

### 分子スケールエレクトロニクス

半導体を用いた電子デバイスでは、トップダウン方式による微細化技術の研究が精力的に進められています。この微細化が極限まで達したあと、その先の進むべき道は、まだ明らかではありませんが、有力な方向として、ナノスケールの分子を用いた分子スケールエレクトロニクスに期待が集まっています。

電子素子の構成要素として有機分子を見ると、サイズと構造がナノスケールで厳密に定義された部品であるというだけではなく、これまでのバンド構造を基本とした電子素子の枠組みを超える、魅力的な機能を備えています。単一あるいは少数の分子で構成された系では、バリスティック伝導 (Ballistic conduction)、離散的な分子軌道が関与した共鳴トンネリング (Resonant tunneling)、電子強相関 (Electron correlation) などが重要となります。これらの過程に振動・電子励起、分子運動・コンホメーション変化、酸化・還元などが結合して、多彩な量子的伝導物性が期待できます。

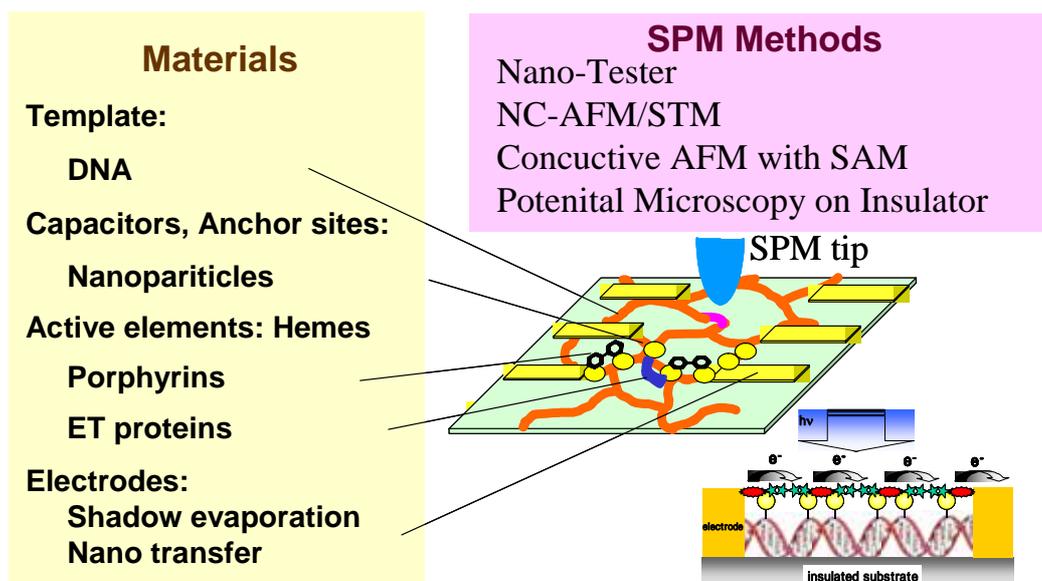


以上のように、分子スケールエレクトロニクスは、基礎から応用まで学問的に深く広がりがある魅力あるテーマですが、分子の機能を引き出すには、分子を組織化することが必要です。我々は、0.35nm 間隔のアドレスを持つ DNA 分子に着目し、その電子物性、構造をナノスケールで制御することで、ボトムアップ方式により分子エレクトロニクスへの展開を行っています。

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

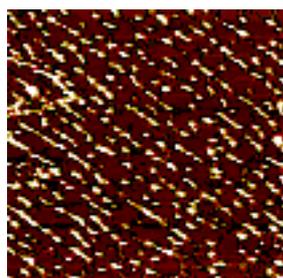
## バイオ分子を基礎としたネットワーク型分子デバイスの構築

個々の分子の特性が現れる自己組織化型デバイスとして、DNAをはじめとするバイオ分子の自己組織的構造形成機能に着目して、ネットワーク型分子デバイスの構築を行っています。現在、自己組織化、少数分子の電子物性、電極作製方法の開発、プローブ顕微鏡による計測手法の開発など、自己組織化型分子デバイスに必要となる各要素の研究を進めています。これらを統合してデバイスプロトタイプを作成し、電子機能を発現させるのが目標です。



バイオ分子を利用したネットワーク型分子デバイスの概念図

上記デバイスを構築するための要素研究として、本年度は以下の成果を得ました。

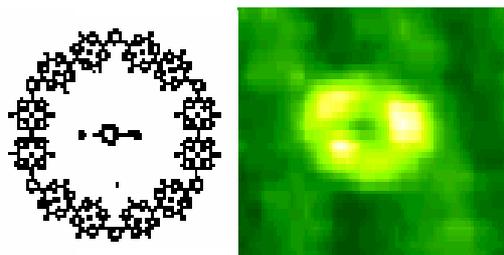


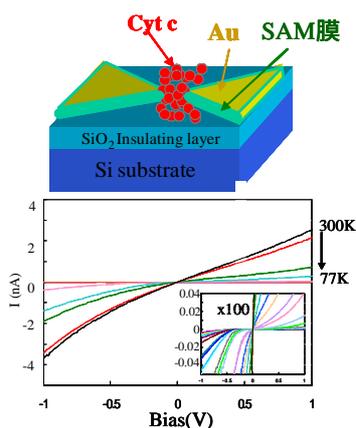
a) DNA を用いた金微粒子の配列

DNA は塩基配列を工夫することにより、特定の繰り返し間隔を持つ構造体をつくることが知られています。私たちのグループでは、これをもとに、金微粒子の規則的配列の形成を行いました。また、基板のステップとDNAを用いて、金微粒子の一次元的配列にも成功しました。

b) ポルフィリン単分子の SPM 観察

分子エレクトロニクスにおける能動素子として、ポルフィリン関連物質は大きな期待を集めています。私たちのグループでは、ポルフィリンが固体表面上に吸着したときに、どのようなコンホメーションをとるのか、超高真空走査トンネル顕微鏡を用いて研究しています。



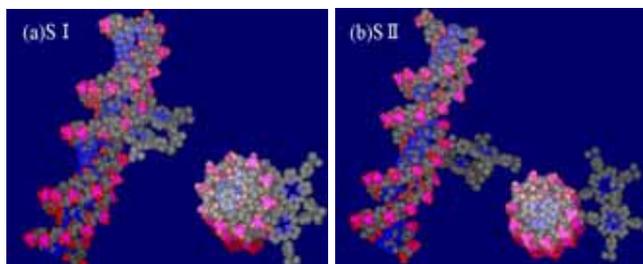


### c) 電子移動蛋白シトクロム c の電子物性

ポルフィリンは電子的に優れた機能を持ちますが、デバイスとして利用するには、外部との接続をうまく行う必要があります。生体内の電子移動を担うシトクロム c では、まわりの絶縁層の構造が決まっていますので、よく定義された単電子機能素子としての動作が期待されます。私たちのグループでは、微細加工電極、サンドイッチ型デバイス、原子間力顕微鏡の各方法で、少数あるいは単分子でシトクロム c の電子物性を計測することに成功しました。

### d) DNA / ポルフィリン会合体

DNA は様々なイオン性複合体を形成します。酸塩基反応を利用して DNA のまわりにポルフィリンを結合すると、電流を導く会合体が得られることがわかりました。光学活性を示しますので、偏光に敏感な電気特性が期待されます。

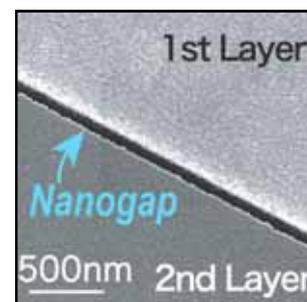


### e) ナノトランスファープリンティングによる電極作製

自己組織化構造を作っても、外部に配線を取り出さなければ、デバイスとしては機能しません。ナノトランスファープリンティングにより、紫外線や電子線を使わないで、室温で分子の上から電極を形成することに成功しました。この方法を使って、抵抗が十分低い金配線および電極 - 分子間の良好な接続を実現しました。

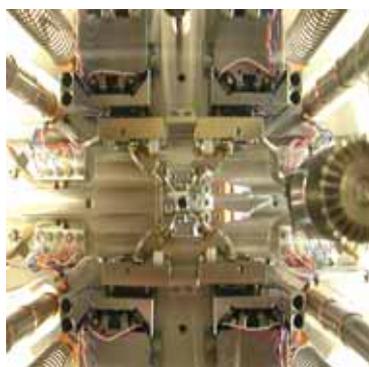
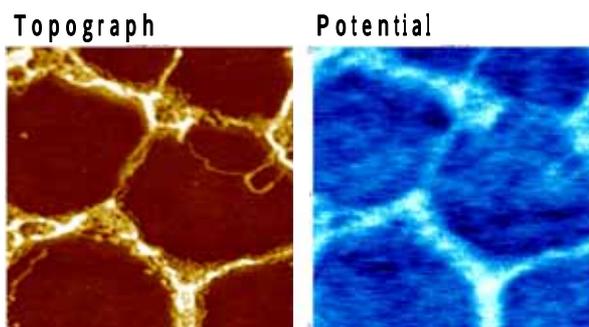
### f) 傾斜蒸着法による電極形成と電気伝導度計測

分子エレクトロニクスに適した分子を探索するには、分子の電気的特性を短い距離で手軽に計測する方法が必要です。これまで、ナノギャップ電極の上から分子溶液を滴下する実験が主流ですが、分子の凝集や変形のため、再現性に問題がありました。そこで、基板上に展開した分子の上から、紫外線、電子線、レジストなどを使わないで、ナノギャップを形成する方法として傾斜蒸着法を開発し、分子の電気特性評価を行っています。



### g) 絶縁体上ナノ構造の電荷状態計測

デバイスは言うまでもなく、絶縁体基板上に形成されます。ナノデバイスでは、絶縁体上に配置されたナノ構造の電氣的ポテンシャルが重要ですが、これまでのポテンシャル測定手法では、下地が導体である必要がありました。私どものグループでは、絶縁体上でも、意味あるポテンシャル測定が可能であることをはじめて明らかにしました。



### h) 多探針 SPM の開発

ナノサイズの局所構造に複数の針を接触して、電氣的特性を計ることのできる、超高真空多探針走査プローブ顕微鏡の開発を行っています。位置決めのために、多探針 SPM に電子顕微鏡を組み合わせるのが一般的ですが、電子線に耐えない有機分子系に適用できるように、超高倍率の光学顕微鏡を組み合わせ、対物レンズが試料ぎりぎりまで接近できる特殊な真空チャンバーを開発しています。

## 分子ワイヤの電気伝導

分子ワイヤは、電子共役系（シャフト分子）であり、電極とシャフト分子の電子系を接続する分子（ターミナル分子）を持ち、さらに、分子の直線性を保持し、分子間で電子が相互作用して多数の伝導パスが出来ないようにするためシャフト分子が絶縁体（カバー分子）で被覆される必要があります。今年度は、これらの条件をプログラムした分子を設計・合成し、分子ワイヤの電気伝導性を評価しました。

シャフト分子、ターミナル分子、カバー分子として、それぞれポリフルオレン、チオールベンゼン、シクロデキストリンを用いました。分子の合成は鈴木カップリング反応により行い、合成した分子の重合度は NMR の結果から 10 であることが明らかとなりました。また、合成した分子のフェルミレベ

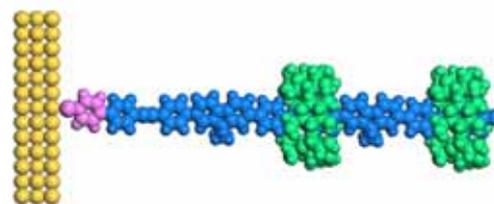


図. 分子ワイヤ. シャフト分子（青色）、ターミナル分子（ピンク色）、カバー分子（緑色）

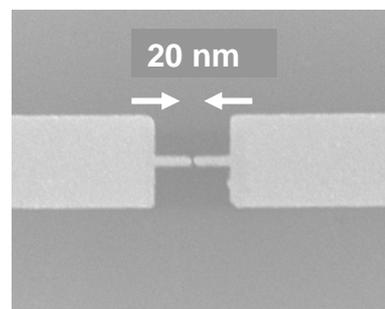


図. ナノ電極の SEM 像

ル近傍の分子軌道では、電子が分子全体に広がっていることが分子軌道計算から分かりました。合成した分子をマイカ基板上に展開し原子間力顕微鏡で観察したところ、分子軌道計算で予測される分子長 (20nm)程度でした。フォトリソグラフィと電子線リソグラフィを用いて作製した Au/Ti ナノ電極(20nm)上に分子の溶液を滴下し、交流電場を印加することで電極とターミナル分子を結合しました。電界固定した分子の  $I-V$ 特性の温度依存性を真空中で測定したところ、室温では1Vで2nAの電流値が得られましたが、温度の減少とともに電流値も減少するのが観測されました。今後、分子ワイヤの伝導機構を調べていくとともに、新しい分子ワイヤの創製と分子電界効果トランジスタの開発を行っていきます。

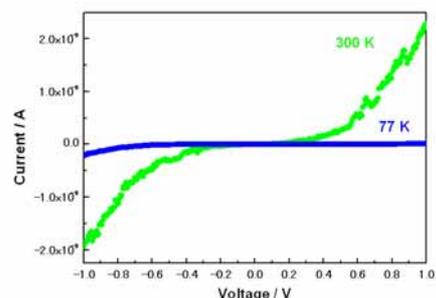


図. 分子ワイヤの電流 電圧特性

## 有機薄膜デバイスの開発

電界効果トランジスタと同じデバイス構造を持ちますが、デバイス動作原理は従来の電界効果トランジスタとは異なる電気化学トランジスタを開発しました。電気化学トランジスタでは、半導体と固体電界質界面における半導体分子の酸化・還元反応が動作原理になります。導電性高分子は、ドーピングにより1000倍以上の電流値が増加することから、高いオン・オフ比が得られると期待されます。今年度は、固体電解質、半導体ポリマーにシアノエチルプルラン、ポリチオフェン(P3HT)を用いて電気化学トランジスタを作製し、そのデバイス特性を調べました。

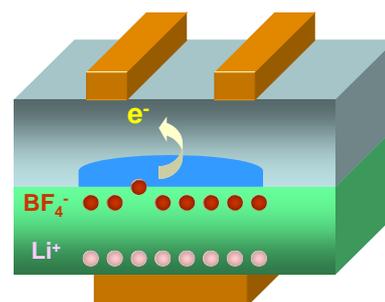


図. 電気化学トランジスタの構造. 有機半導体(水色) 固体電解質(緑色) ドープされた有機半導体(青色).

$\text{SiO}_2$ 基板上にAu/Ti電極(ゲート電極)をRFスパッタ法で作製し、ポリマー電解質(シアノエチルプルラン:  $\text{LiBF}_4$ )、ポリチオフェンをスピンコート法により成膜しました。電解質の伝導度は $10^{-4} \text{ S cm}^{-1}$ でした。ソース・ドレイン電極は、金電極を用い、ソース・ドレイン電極のチャンネル長・幅は、それぞれ $30 \mu\text{m}$ 、 $2 \text{ mm}$ でした。 $I_{\text{SG}}-V_{\text{SG}}$ を測定したところ、ポリチオフェンの酸化に対応して $-1 \text{ V}$ 付近から電流値が増加するのが観測されました。各ゲート電圧に対して $I_{\text{SD}}-V_{\text{SD}}$ を測定したところ、 $p$ 型FETと同じ $I_{\text{SD}}-V_{\text{SD}}$ 曲線が得られ、オン・オフ比は28でした。デバイスの交流応答を $V_{\text{SD}} = 10 \text{ V}$ で評価したところ、 $50 \text{ Hz}$ のスイッチング速度を持つことが分かりました。今後、デバイス動作原理を詳細に調べて、高速スイッチングデバイスの開発を行います。

## 論文

- 1 . Kinetic and thermodynamic control via chemical bond rearrangement on Si(001) surface.  
Chiho Hamai, Akihiko Takagi, Masateru Taniguchi, Takuya Matsumoto, Tomoji Kawai  
Angew. Chem. Int. Ed. 43, (2004), 1349-1352
  
- 2 . Relaxation of nanopatterns on Nb-doped SrTiO<sub>3</sub> surface.  
Run-Wei Li, Teruo Kanki, Motoyuki Hirooka, Akihiko Takagi, Takuya Matsumoto  
Hidekazu Tanaka, Tomoji Kawai  
Appl. Phys. Lett. 84, (2004), 2670-2672
  
- 3 . A dodecameric porphyrin wheel as a light-harvesting antenna  
Xiaobin Peng, Naoki Aratani, Akihiko Takagi, Takuya Matsumoto, Tomoji Kawai,  
In-wook Hwang, Tae kyu Ahn, Dongho Kim, Atsuhiko Osuka  
J. Am Chem. Soc. 126, (2004), 4468-4469
  
- 4 . Scanning Force Microscopic Studies of Escherichia Coli Ribosomes on Solid Substrate  
Surface  
Toshihiko Matsuura, Kappei Kobayashi, Hiroyuki Tanaka, Takuya Matsumoto, Tomoji  
Kawai  
Jpn. J. Appl. Phys. 43, (2004), 4599-4601
  
- 5 . AFM Lithography in Perovskite Manganite La<sub>0.8</sub>Ba<sub>0.2</sub>MnO<sub>3</sub> Films  
R.Li, T.Kanki, H.Tohyama, J.Zhang, Hide.Tanaka, A.Takagi, T.Matsumoto, T.Kawai  
J.Appl.Phys. 95, (2004), 7091-7093
  
- 6 . A Simple Fabrication Method of Nanogap Electrodes for Top-contacted Geometry:  
Application to Porphyrin  
Yoichi Otsuka, Yasuhisa Naitoh, Takuya Matsumoto, Wataru Mizutani, Hitoshi Tabata,  
Tomoji Kawai  
Nanotechnology, 15, (2004), 1639-1644
  
- 7 . DNA-templated assembly of Au nanoparticles via step-by-step binding reaction.  
Fumihiko Ymada, Yutaka Sacho, Takuya Matsumoto, Hidekazu Tanaka, Tomoji Kawai  
e-Journal of Surface Science and Nanotechnology 2, (2004), 222-225
  
- 8 . Electronic Structures of A- and B-DNA Crystals.  
M. Taniguchi and T. Kawai

Phys. Rev. E 70, (2004), 011913-011920.

9 . Electronic Structure of Bases in DNA Duplexes Characterized by Resonant Photoemission Spectroscopy Near Fermi Level.

H. S. Kato, M. Furukawa, M. Kawai, M. Taniguchi, T. Kawai, T. Hatsui, and N. Kosugi  
Phys. Rev. Lett. 93, (2004), 086403-086406

10 . Selective adsorption of DNA on SiO<sub>2</sub> surface in SiO<sub>2</sub>/SiH pattern

S. Tanaka, M. Taniguchi and T. Kawai  
Jpn. J. Appl. Phys. 43, (2004), 7346-7349

11 . Vertical Electrochemical Transistor Based on Poly(3-hexylthiophene) and Cyanoethylpullulan

M. Taniguchi and T. Kawai  
Appl. Phys. Lett. 85, (2004), 3298-3300

12 . Synthesis of Long Poly(dG)Poly(dC) DNA Using Enzymatic Reaction

S. Tanaka, M. Taniguchi, S. Uchiyama, K. Fukui, and T. Kawai  
Chem. Commun.21, (2004), 2388-2389.

13 . Adsorption of DNA Molecule and DNA Patterning on Si Substrate

S.-i. Tanaka, M. Taniguchi, and T. Kawai  
Proc. DNA-Based Molecular Construction. (2004) AIP Conference Proceedings 725, 3-8.

## 解説

1 . 分子スケール電気伝導 - ナノエレクトロニクスの視点から -

松本卓也、谷口正輝、川合知二  
固体物理 39, (2004), 527-536

## 著作

1 . 走査プローブ顕微鏡で測る

松本卓也・川合知二  
先端化学シリーズ 「界面・コロイド、ナノテクノロジー、分子エレクトロニクス、ナノ分析」  
日本化学会編, (2004), 198-204

## 国際会議

- 1 . 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  
American Physical Society Spring Meeting  
March, 22-26, (2004), Montreal, Canada
  
- 2 .Adsorption of DNA Molecule and DNA Patterning on Si Substrate DNA-Based Molecular Electronics  
S. Tanaka, M. Taniguchi, T. Kawai  
Institute for Physical High Technology (IPHT)  
May, 13-15, (2004), Jena, Germany
  
- 3 . Time-Resolved Force Detection using Dynamic-Mode Scanning Force Microscopy  
T. Matsumoto , T. Kawai  
8<sup>th</sup> Int. Conference on Nanometer Scale Science and Technology  
June 28-July 2, (2004), Venice, Italy
  
- 4 . Alignment of Porphyrin Chain using Solvent Templates on HOPG  
A. Takagi, N. Aratani, T. Matsumoto, A.Osuka, T. Kawai  
8<sup>th</sup> Int. Conference on Nanometer Scale Science and Technology  
June 28-July 2, (2004), Venice, Italy
  
- 5 . Three Distinct Conformations of Porphyrin Wheels Adsorbed on Cu (100) Observed by Scanning Tunneling Microscopy  
A. Takagi, N. Aratani, T. Matsumoto, A. Osuka, T. Kawai  
8<sup>th</sup> Int. Conference on Nanometer Scale Science and Technology  
June 28-July 2, (2004), Venice, Italy
  
- 6 . Ordered Adlayer of PNA on Au(111) surface  
K. Ojima, T.Uno, T.Matsumoto, T.Kawai  
8<sup>th</sup> Int. Conference on Nanometer Scale Science and Technology  
June 28-July 2, (2004), Venice, Italy
  
- 7 . Scanning Force Microscopic Observations of Escherichia coli Ribosomes  
T. Matsuura, K. Kobayashi, H. Tanaka, T. Matsumoto, T. Kawai  
8<sup>th</sup> Int. Conference on Nanometer Scale Science and Technology

June 28-July 2, (2004), Venice, Italy

- 8 . One-dimensional Assembly and Local Surface Potential Mapping of Au Nanoparticles on a DNA network.

F.Yamada, Y.Otsuka , A.Takagi, T.Matsumoto, H.Tanaka , T.Kawai

8<sup>th</sup> Int. Conference on Nanometer Scale Science and Technology

June 28-July 2, (2004), Venice, Italy

- 9 . Tunneling conduction through cytochrome c molecule

M. Kataoka , T. Matsumoto, T. Kawai

8<sup>th</sup> Int. Conference on Nanometer Scale Science and Technology

June 28-July 2, (2004), Venice, Italy

- 10 . Fabrication method of Nano-gap Electrodes without Wet Process and Electrical Measurement of Nano Structured Molecules

Y.Otsuka, Y.Naitoh, T.Matsumoto, W.Mizutani, H.Tabata, T.Kawai

8<sup>th</sup> Int. Conference on Nanometer Scale Science and Technology

June 28-July 2, (2004), Venice, Italy

- 11 . Electronic properties of biomolecular system: toward the realization of bottom-up molecular scale electronics

T. Matsumoto, T. Kawai

International Seminar on Organic-molecular Materials

August 8-9, (2004), Shizuoka, Japan

- 12 . Measurements of Contactless Microwave Conductivity and Infrared Absorption in Poly(dG)-Poly(dC) and Poly(dA)-Poly(dT) DNA Molecules

H. Matsui, T. Yanagimachi, K. Abe, T. Suzuki, M. Taniguchi, S. Tanaka, T. Kawai, Hasanudin, N. Kuroda, N. Toyota

The 5th International Conference on Biological Physics

August, 23-27 (2004),Gothenburg, Sweden

- 13 . Surface Potential Images of Molecular Systems on Insulating Substrates by Frequency-Mode Scanning Force Microscopy

T.Matsumoto, F.Yamada, A.Takagi,T.Kawai

Seventh International Conference on non-contact Atomic Force Microscopy

September 12-15, (2004), Seattle, Washington U.S.A.

- 14 . Adsorption of DNA molecule and DNA Patterning on Si substrate  
S. Tanaka, M. Taniguchi, T. Kawai  
Scanning Probe Microscopy in Life Sciences, University Medicine Berlin  
October 13, (2004), Berlin, Germany,
- 15 . Characteristics of Electrochemical Transistor  
M. Taniguchi and T. Kawai  
Organic Materials for Electronics and Photonics  
November 3-6, (2004), Okinawa, Japan
- 16 . Scanning Probe Microscopy Methods for Biomolecular Electronics  
T.Matsumoto, T.Kawai  
Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology  
2004(SISSIN-2004):  
Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing  
December 6-7, (2004), Osaka, Japan
- 17 . Investigation of Enzymatic Activity for Lipid Biulayers Patterning by Surface Plasmon  
Resonance and atomic Force Microscopy  
S. E. Lee, H. S. Jung, F. Yamada, T. Matsumoto, H.Y. Lee, T. Kawai  
Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology  
2004(SISSIN-2004):  
Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing  
December 6-7, (2004), Osaka, Japan
- 18 . Fabrication of gold electrode by nanotransfer printing  
K.Ojima, K.Nakamatsu, T.Kanno, T.matsumoto, S.Matsui, T.kawai  
Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology  
2004(SISSIN-2004):  
Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing  
December 6-7, (2004), Osaka, Japan
- 19 . Surface potential measurement of the DNA and Au nanopartcils on insulating substrate  
F.Yamada, A.Takagi, T.Kusaka, T. Matsumoto, Hid.Tanaka, T.Kawai  
Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology  
2004(SISSIN-2004):  
Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing  
December 6-7, (2004), Osaka, Japan

- 20 . Adsorption of ribosomes onto solid surfaces from solution  
T.Matsuura, Hir.Tanaka, T.Matsumoto, T.Kawi  
Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology  
2004(SISSIN-2004):  
Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing  
December 6-7, (2004), Osaka, Japan
- 21 . Incorporation of Molecules into the DNA Duplexes  
K. Adachi, M. Taniguchi, T. Kawai  
Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing  
December 6-7, (2004), Osaka, Japan
- 22 . Reevaluation of the Mobility in a Field-effect Transistor Based on Polymeric Insulating  
Layer  
E. Mizuno, M. Taniguchi, T. Kawai  
Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing  
December 6-7, (2004), Osaka, Japan
- 23 . Fabrication and Properties of Electrochemical Transistors  
M. Taniguchi and T. Kawai  
Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing  
December 6-7, (2004), Osaka, Japan
- 24 . A Simple Fabrication Method of Nanogap Electrodes for Top-Contacted Geometry:  
Application to Porphyrin Nanorods and a DNA Network  
Y. Otsuka, Y. Naitoh, T. Matsumoto, W. Mizutani, H. Tabata, T. Kawai  
The12th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy  
December 9-11, (2004), Atagawa (Sizuoka),Japan
- 25 . Surface Potential Measurement of the DNA-Au Nanoparticle Complex on Insulating  
Substrate  
F. Yamada, A. Takagi, T. Kusaka, T. Matsumoto, H. Tanaka, T. Kawai  
The12th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy  
December 9-11, (2004), Atagawa (Sizuoka),Japan
- 26 . Conductivity Measurement through Cytochrome c Molecules  
M. Kataoka, T. Matsumoto, T. Kawai

The 12th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy  
December 9-11, (2004), Atagawa (Sizuoka), Japan

27 . Direct Printing of Gold Electrode for Molecular-Scale Devices

K. Ojima, K. Nakamatsu, T. Kanno, T. Matsumoto, S. Matsui, T. Kawai  
The 12th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy  
December 9-11, (2004), Atagawa (Sizuoka) Japan

## 国内会議

- 1 . 光励起電荷移動のナノ秒・ナノメートル時空間分解イメージング  
松本卓也  
特定領域研究「光機能界面の学理と技術」平成 15 年度第二回全体会議  
慶応義塾大学矢上キャンパス（日吉・神奈川）2004 年 1 月 23 ~ 24 日
- 2 . 環状ポルフィリン 12 量体の固体表面吸着構造の走査型トンネル顕微鏡による  
観察  
高木昭彦、荒谷直樹、松本卓也、大須賀篤弘、川合知二  
第 84 回春季年会 日本化学会（西宮）2004 年 3 月 27 日
- 3 . マクロ分子のトンネル伝導：DNA, シトクロム c, ポルフィリン  
松本卓也、片岡誠、前田泰、田上勝規、塚田捷、川合知二  
第 84 回春季年会 日本化学会（西宮）2004 年 3 月 28 日
- 4 . 分子系ナノスケール伝導測定に適したトップコンタクト型電極形成の試み  
松本卓也、大塚洋一、内藤泰久、小嶋薫、中松健一郎、松井真二、川合知二  
2004 年春季第 51 回応用物理学関係連合講演会（八王子）2004 年 3 月 29 日
- 5 . プローブ顕微鏡を用いて測定したシトクロム c の電気伝導測定  
片岡誠、森本潤、松本卓也、川合知二  
2004 年春季第 51 回応用物理学関係連合講演会（八王子）2004 年 3 月 29 日
- 6 . Au(111)表面でのペプチド核酸単分子膜の形成  
小嶋薫、宇野毅、松本卓也、川合知二  
2004 年春季第 51 回応用物理学関係連合講演会（八王子）2004 年 3 月 29 日
- 7 . DNA をテンプレートに用いた金属ナノ微粒子の配列  
山田郁彦、大塚洋一、松本卓也、田中秀和、川合知二

2004 年春季第 51 回応用物理学関係連合講演会 (八王子) 2004 年 3 月 29 日

8. DNA によるポルフィリン配向

高東智佳子、松本卓也、川合知二、武田収功

2004 年春季第 51 回応用物理学関係連合講演会 (八王子) 2004 年 3 月 29 日

9. 原子間力顕微鏡による大腸菌リボソームサブユニットの識別

松浦俊彦、小林括平、田中裕行、松本卓也、川合知二

2004 年春季第 51 回応用物理学関係連合講演会 (八王子) 2004 年 3 月 29 日

10. プログラムされた分子ワイヤの合成と物性

谷口正輝・藤本辰彦・小嶋薫・H. L. Anderson・川合知二

2004 年春季第 51 回応用物理学関係連合講演会 (八王子) 2004 年 3 月 28 日 ~ 31 日

11. 分子系ナノスケール構造の電気・電子特性計測

松本卓也

分子スケールエレクトロニクス研究会 (岡崎) 2004 年 4 月 8 ~ 10 日

12. 環状ポルフィリン 12 量体の固体表面吸着構造の走査型トンネル顕微鏡による観察

高木昭彦・荒谷直樹・松本卓也・大須賀篤弘・川合知二

分子スケールエレクトロニクス研究会(岡崎) 2004 年 4 月 8 ~ 10 日

13. デンドロン保護されたサブマイクロメートル長ポルフィリンワイヤの合成とその単分子物性

小澤寛晃、田中啓文、河尾真宏、大塚洋一、松本卓也、川合知二、小川琢治

分子スケールエレクトロニクス研究会 (岡崎) 2004 年 4 月 8 ~ 10 日

14. ナノギャップ電極を用いたシトクロム C の電気伝導測定

片岡 誠, 内藤泰久, 松本卓也, 川合知二

第 65 回応用物理学会学術講演会 (仙台) 2004 年 9 月 1 日

15. 分子系ナノスケール伝導測定に適したトップコンタクト型電極形成の試み (II)

小嶋 薫, 菅野誉士, 仲里 卓, 松本卓也, 川合知二, 中松健一郎, 松井真二

第 65 回応用物理学会学術講演会 (仙台) 2004 年 9 月 1 日

16. トップおよびボトムコンタクト型ナノギャップ電極を用いた有機 FET

内藤泰久, 永松修一, 大塚洋一, 松本卓也, 田畑 仁, 川合知二, 吉田郵司,

水谷 亘

第 65 回応用物理学会学術講演会 (仙台) 2004 年 9 月 1 日

17. 傾斜蒸着法によるウェットプロセスフリー・トップコンタクト型ナノギャップ電極の作製

大塚洋一, 内藤泰久, 松本卓也, 水谷 亘, 田畑 仁, 川合知二

第 65 回応用物理学会学術講演会 (仙台) 2004 年 9 月 1 日

18. DNA をテンプレートとした金ナノパーティクルの一次元配列

小嶋 薫, 安立京一, 松本卓也, 川合知二

第 65 回応用物理学会学術講演会 (仙台) 2004 年 9 月 2 日

19. 絶縁体表面上に形成した DNA・微粒子複合体の周波数モード局所ポテンシャル測定

山田郁彦, 高木昭彦, 日下貴生, 松本卓也, 田中秀和, 川合知二

第 65 回応用物理学会学術講演会 (仙台) 2004 年 9 月 3 日

20. 環状ポルフィリン 12 量体の表面吸着構造の走査型トンネル顕微鏡による観察

高木昭彦, 荒谷直樹, 松本卓也, 大須賀篤弘, 川合知二

第 65 回応用物理学会学術講演会 (仙台) 2004 年 9 月 3 日

21. 電気化学トランジスタの特性

谷口正輝・川合知二

第 65 回応用物理学会学術講演会、(仙台) 2004 年 9 月 1 日～4 日

22. 有極性高分子をゲート絶縁膜に用いた有機薄膜トランジスタにおける移動度向上の再評価

水野江里子・谷口正輝・川合知二

第 65 回応用物理学会学術講演会、(仙台) 2004 年 9 月 1 日～4 日

23. CyEPL の誘電特性及び有機半導体/CyEPL 構造を用いたトランジスタの評価

水野江里子・谷口正輝・川合知二・田畑仁

第 65 回応用物理学会学術講演会、(仙台) 2004 年 9 月 1 日～4 日

24. 周波数検出磁気力顕微鏡による超高分解能磁気微細構造観察

松本卓也, 内藤泰久, 神吉輝夫, 田中秀和, 川合知二

第 28 回応用磁気学会学術講演会 (沖縄) 2004 年 9 月 21～24 日

25. 分子ワイヤの電気伝導  
谷口正輝・藤本辰彦・小嶋薫・H. L. Anderson・川合知二  
分子構造総合討論会、(広島) 2004 年 9 月 27 ~ 30 日
26. バイオ分子を用いたボトムアップ手法による分子デバイス構築の試み  
小嶋 薫、松本卓也、川合知二  
2004 年度関西薄膜表面物理セミナー (生駒) 2004 年 11 月 5 ~ 6 日
27. Si(100)2x1 表面への有機分子吸着反応における局所電荷の役割  
松本卓也、川合知二  
2004 年度関西薄膜表面物理セミナー (生駒) 2004 年 11 月 5 ~ 6 日
28. 金基板への核酸分子の固定化  
小嶋 薫, 松浦 俊彦, 宇野 毅, 松本 卓也, 川合 知二  
第 24 回表面科学講演大会 (東京) 2004 年 11 月 8 ~ 10 日
29. 自己組織化修飾界面を利用したチトクロム c 分子のトンネル伝導  
片岡 誠, 松本 卓也, 川合 知二  
第 24 回表面科学講演大会 (東京) 2004 年 11 月 8 ~ 10 日
30. 絶縁体表面上に形成した DNA・微粒子複合体の周波数モード局所ポテンシャル測定  
山田 郁彦, 高木 昭彦, 日下 貴生, 松本 卓也, 田中 秀和, 川合 知二  
第 24 回表面科学講演大会 (東京) 2004 年 11 月 8 ~ 10 日
31. DNA との結合によるポルフィリン配向体の特性  
高東 智佳子, 松本 卓也, 川合 知二, 武田 収功  
第 24 回表面科学講演大会 (東京) 2004 年 11 月 8 ~ 10 日
32. 環状ポルフィリン 12 量体の表面吸着構造の STM 観察  
高木 昭彦, 荒谷 直樹, 松本 卓也, 大須賀 篤弘, 川合 知二  
第 24 回表面科学講演大会 (東京) 2004 年 11 月 8 ~ 10 日

## 科研費、助成金等

- 松本 卓也 科学研究費補助金、基盤研究(B)(2)  
「ストロボスコピック・プローブ顕微鏡の開発と光電子移動の単分子レベル時間分解画像化」
- 松本 卓也 科学研究費補助金、萌芽研究  
「時間分解フォース検出による過渡的電荷生成のイメージング」
- 松本 卓也 科学研究費補助金、特定領域研究「光機能界面の学理と技術」  
「光電子移動の分子スケールイメージング」
- 松本 卓也 科学技術振興機構、戦略的基礎研究  
「巨大ポルフィリンアレーのメゾスコピック構造デバイス」
- 谷口 正輝 科学研究費補助金、若手研究（B）  
「プログラムされた分子ワイヤの合成とナノ電極による電気伝導測定」
- 谷口 正輝 信越化学工業株式会社  
「ポリマーFETの開発」
- 谷口 正輝 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」

## 学会委員など

松本 卓也

1. 日本表面科学会編集委員
2. 分子エレクトロニクス研究会 主催
3. 表面科学とナノテクノロジーに関する国際会議(ISSS-4) プログラム委員
4. 走査トンネル顕微鏡と周辺技術に関する国際会議(STM05) プログラム委員

## 共同研究

松本 卓也

1. 「ナノスケールフラット電極の作製」 松井 真二 (兵庫県立大 高度研)
2. 「巨大ポルフィリンアレーの物性」 大須賀 篤弘 (京大理)

3. 「電流画像化原子間力顕微鏡」 田中啓文、小川 琢治 (分子研)

谷口 正輝

1. 「分子ワイヤの創製」寺尾 潤(大阪大学) 他
2. 「DNAの電子構造」川合真紀(理化学研究所) 他
3. 「DNAの非接触伝導測定」豊田直樹(東北大学) 他
4. 「DNAの電子スピン共鳴」萩原政幸 (横浜市立大) 他
5. 「有機ポリマーを用いた有機デバイスの開発」信越化学工業株式会社

## 超分子プロセス分野

笹井宏明（ささい ひろあき）

### 略歴

- 1980年 慶應義塾大学工学部応用化学科卒業
- 1982年 慶應義塾大学大学院工学研究科修士課程修了
- 1985年 慶應義塾大学大学院工学研究科博士課程修了
- 1985年 財団法人相模中央化学研究所 研究員
- 1988年 北海道大学薬学部助手
- 1992年 東京大学薬学部助手
- 1992年 東京大学薬学部講師(この間 California 州立大学 Los Angeles 校にて文部省長期海外研究員)
- 1995年 東京大学薬学部助教授
- 1997年 大阪大学産業科学研究所教授 現在に至る



現在の研究テーマ 複合金属触媒の開発と固定化、機能性球状粒子の効率的合成法の開発と機能評価、不斉スピロ型配位子の創製、光学活性な新規イオン性液体と有機分子触媒の開発

学生：D3 丸林千能（まるばやし かずよし）、D1 川瀬敬啓（かわせ たかひろ）、M2 吉田友和（よしだ ともかず）、M1 井上直人（いのうえ なおと）、原敬司（はら たかし）、B4 片山智美（かたやま ともみ）、研究生 Rashid Nabisaheb Nadaf（ラシッド ナビサヘブ ナダフ）

遠藤政幸（えんどう まさゆき）

### 略歴

- 1968年 千葉県生まれ
- 1992年 京都大学工学部合成化学科卒業
- 1997年 東京大学大学院工学系研究科博士課程修了
- 1997年 東京医科歯科大学 日本学術振興会特別研究員
- 1998年 ハーバード大学化学化学生物学科 博士研究員
- 2000年 理化学研究所ゲノム科学総合センター 基礎科学特別研究員
- 2001年 大阪大学産業科学研究所助手 現在に至る



現在の研究テーマ DNA 超分子構造の構築とナノテクノロジーへの応用、光機能性タンパク質、酵素及び核酸の合成と生体反応への応用

滝澤 忍 (たきざわ しのぶ)



## 略歴

- 1971年 神奈川県生まれ
- 1995年 富山医科薬科大学薬学部薬科学科卒業
- 1997年 富山医科薬科大学大学院薬学研究科修士課程修了
- 1999年 大阪大学 日本学術振興会特別研究員
- 2000年 大阪大学大学院薬学研究科博士課程修了 (薬学博士)
- 2000年 大阪大学産業科学研究所助手 現在に至る

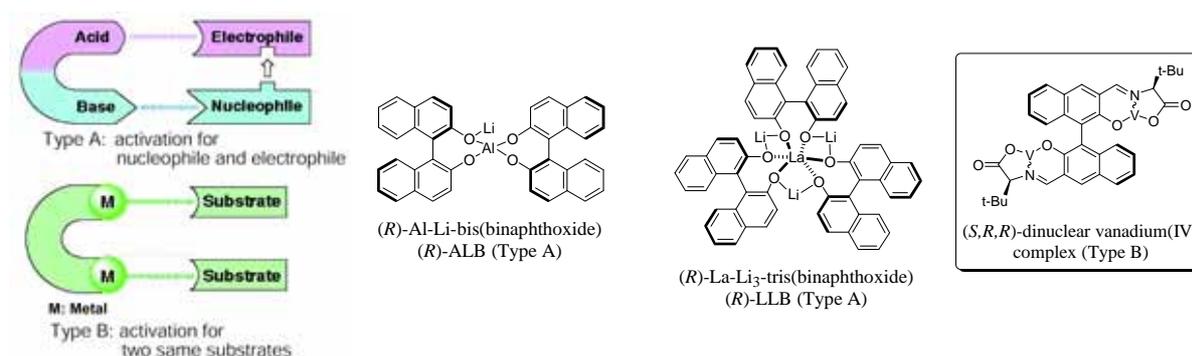
## 研究概要

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ナノ触媒の開発研究を行っている。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、生体分子の持つ超分子としての性質を利用し、DNAの自己組織化能を利用した新規な超分子構造及びナノ構造の構築や分子集合の制御及び新機能の創出といった新たな分野の開拓、並びに酵素活性を光反応によって操作できる生体内分子スイッチの構築も行っている。

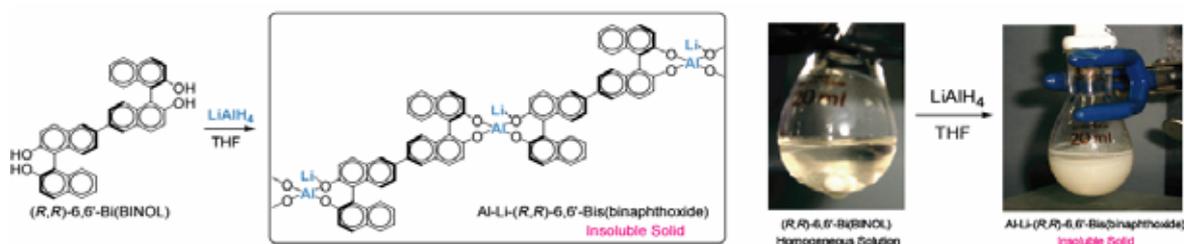
## 複合金属触媒の開発と固定化

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 (Type A)。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 (Type B)。

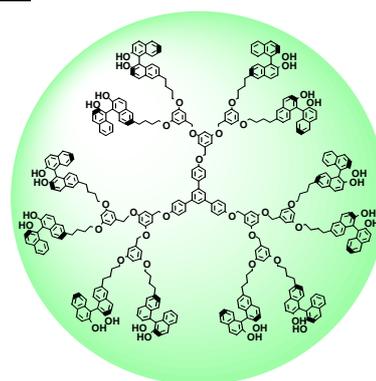
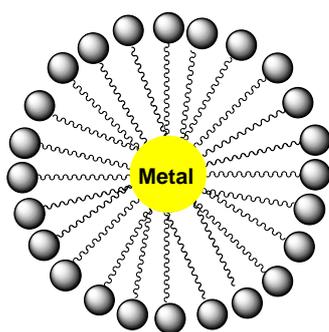
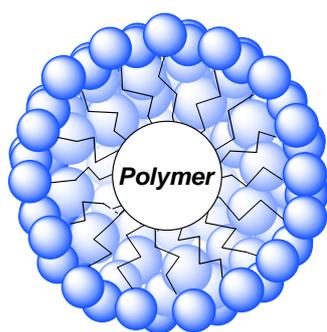


R体のジホルミルピナフトールとアミノ酸であるtert-(S)-ロイシンから導かれるジイミン体に対し四当量の酸化硫酸バナジウム ( $\text{VO}_2\text{SO}_4$ ) を添加することにより新規バナジウム二核錯体を合成した。本触媒は、空気雰囲気下、2-ナフトールのカップリング反応において、光学収率 93% でカップリング体を与えた。本反応の二重活化機構は、反応速度解析等から支持された。

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、金属架橋型高分子不斉触媒の開発研究を行っている。高分子の金属部位は、高分子構造の架橋部位と不斉触媒の活性中心の二つの機能を有する。有機溶媒に可溶性配位子からの金属錯体形成により触媒は固定化されるため、配位子間の距離及び相対配置は、均一系触媒と同一構造となり、高活性な固定化触媒が構築できる。実際、(R,R)-6,6'-bi(BINOL)と $\text{LiAlH}_4$ との反応によりAlとLiを含む金属架橋型高分子不斉触媒を調製した。得られた金属架橋型高分子は、各種溶媒に不溶性固定化不斉触媒として機能し、再利用も可能であった。現在、より汎用性の高い多機能不斉固定化触媒の開発を行っている。



## 機能性球状粒子の効率的合成法の開発と機能評価



- 球状ナノ粒子
- ・ミセル固定化による球状ナノ粒子の創製
  - ・金属クラスターの機能化

多機能 dendリマー

表層に不斉触媒能を有する dendリマー様ナノ粒子の効率的構築法の開発を検討している。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、得られた球状ポリマーに配位子を担持することで高活性ナノ粒子触媒が得られるこ

とを見出した。

また、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、金属ナノクラスターが高活性固定触媒の固相として十分機能することを明らかにした。現在、更なる高次機能を持つ球状機能ナノ粒子の合成と応用を検討している。

## 光反応性人工酵素の構築

多くのタンパクは機能がその構造によって制御されているため、その機能発現はタンパクの構造変化を操作することで、調節することが可能であると考えられる。本研究ではタンパク内に導入した光反応性分子を、光照射による構造変化やペプチド鎖の切断を制御するスイッチとして働かせ、光反応後にタンパクを活性型の構造に誘導し、タンパクの持つ酵素活性及び光反応による生体内反応の発現と制御を目指している。

光照射によって操作可能な酵素の分子設計には、DNA を特異的配列で加水分解する制限酵素 BamHI の 2 量体インターフェイスを用いた。この分子の水素結合の形成に与するアミノ酸側鎖に位置選択的に光脱離性分子 (2-nitroveratryl 基) を生化学的手法で導入し光機能化した。種々のアミノ酸置換と光機能化を試みた結果、BamHI の H133A 変異体の

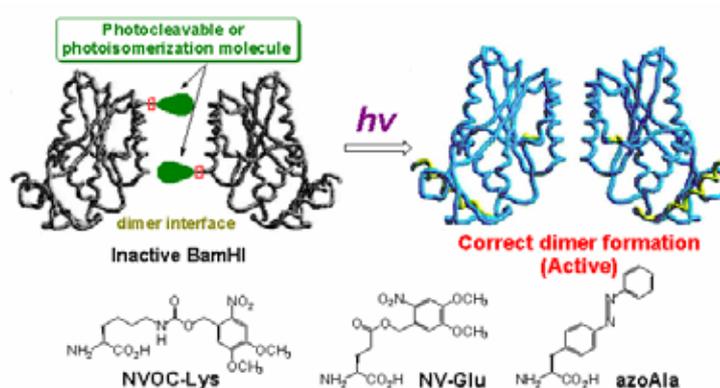


図1. 2量体インターフェイスを光機能化した BamHI とそのアミノ酸側鎖の相互作用。アミノ酸置換と光機能化により光照射によって活性化を制御した。

K132 に 2-nitroveratryl を導入すると、光照射を行わないと全く活性を示さなかったが、光照射を行うことで酵素活性を回復できることを見出した。また、光異性化分子である phenylazophenylalanine(azoAla)を 132 位に導入し光照射を行うと不活性な状態から活性化可能であることを見出した。このことは生体分子であるタンパクの 2 分子間の相互作用を詳細に検討し光機能化することで、光反応と 2 分子間の相互作用で酵素活性を操作できることが示唆された。

生体中の細胞内情報伝達及び機能発現を光反応によって操作するため、プロテアーゼ caspase-3 の酵素活性の光制御を行った。本研究ではこれを光機能化し、活性を光化学的に制御することで、細胞に対して人為的なアポトーシ

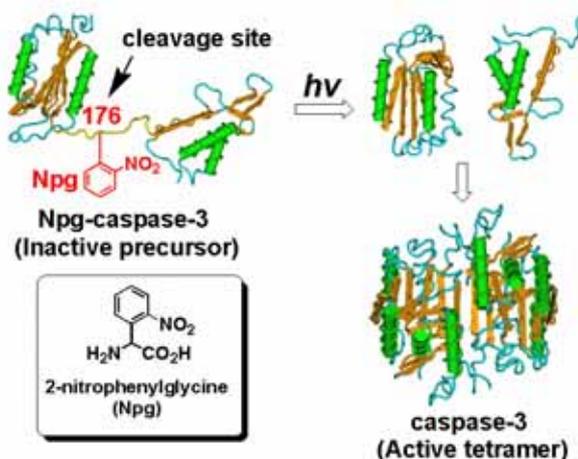


図2. 光分解性アミノ酸 Npg を導入した caspase-3 と光照射による活性の回復。

スの誘導を行うことを目的とした。caspase-3 はアポトーシスシグナル伝達の上流にあるプロテアーゼ caspase-8 による特異的な切断(セリン 176 残基)により活性化される。この特異的な切断位置に光分解性アミノ酸 2-nitrophenylglycine(Npg)を導入し、光照射による caspase-3 の活性化の制御を行った。この光機能性 caspase-3 は基質に対して、全く活性を示さないが、光照射により容易に活性を回復することが見出された。酵素活性の光反応による制御が可能となり、細胞内への光機能性タンパクの導入と光照射による生体機能の操作を行うことを目指している。

## 論文

“Dual activation in a homolytic coupling reaction promoted by an enantioselective dinuclear vanadium(IV) catalyst” H. Somei, Y. Asano, T. Yoshida, S. Takizawa, H. Yamataka, and H. Sasai, *Tetrahedron Lett.* 2004, 45, 1841.

“Development of novel chiral spiro ligand bearing oxazolines” T. Kato, K. Marubayashi, S. Takizawa, and H. Sasai, *Tetrahedron: Asymmetry* 2004, 15, 3693.

“Enantioselective aldol-type reaction using diketene” T. Kawase, S. Takizawa, D. Jayaprakash, and H. Sasai, *Synth. Commun.* 2004, 34, 4487.

“Spiro bis(isoxazole) as a new chiral ligand” K. Wakita, M. A. Arai, T. Kato, T. Shinohara, and H. Sasai, *Heterocycles* 2004, 62, 831.

“Micelle-derived polymer supports for enantioselective catalysts” S. Takizawa, M. L. Patil, F. Yonezawa, K. Marubayashi, H. Tanaka, T. Kawai, and H. Sasai, *Tetrahedron Lett.* 2005, 46, 1193.

“Enantioselective Morita-Baylis-Hillman (MBH) reaction promoted by a heterobimetallic complex with a Lewis base” K. Matsui, S. Takizawa, and H. Sasai, *Tetrahedron Lett.* 2005, 46, 1943.

“Bifunctional organocatalysts for enantioselective aza-Morita-Baylis-Hillman reaction” K. Matsui, S. Takizawa, and H. Sasai, *J. Am. Chem. Soc.* in press.

“Fragmentation of Tertiary Cyclopropanol Systems Catalyzed by Vanadyl Acetylacetonate” M. Kirihara, M. Ichinose, Y. Ochiai, S. Takizawa, K. Okubo, R. Takizawa, H. Kakuda, M. Shiro, *Tetrahedron* in press.

“Design and synthesis of photochemically controllable caspase-3” M. Endo, K. Nakayama, Y. Kaida, and T. Majima, *Angew. Chem Int. Ed.* 2004, 43, 5643.

“Photochemical regulation of the activity of an endonuclease BamHI using an azobenzene moiety incorporated site-selectively into the dimer interface” K. Nakayama, M. Endo, and T. Majima, *Chem. Commun.* 2004, 2386.

“Effects of benzyl-ether type dendrons as hole-harvesting and shielding for the neutralization of stilbene core radical cations with chloride ion during two-photon ionization of stilbene dendrimers having the stilbene core and benzyl-ether type dendrons” M. Hara, S. Samori, X. Cai, S. Tojo, T. Arai, A. Momotake, J. Hayakawa, M. Uda, K. Kawai, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima, *J. Am. Chem. Soc.* 2004, 126, 14217.

“Transient phenomena of polyphenyls in the higher triplet excited states” X. Cai, M. Sakamoto, M. Hara, S. Tojo, K. Kawai, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima, *J. Phys. Chem. A* 2004, 108, 9361.

“Photocatalytic oxidation reactivity of holes in the sulfur- and carbon-doped TiO<sub>2</sub> powders studied by time-resolved diffuse reflectance spectroscopy” T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, K. Kawai, M. Endo, T. Ohno, K. Nishijima, Z. Miyamoto, and T. Majima, *J. Phys. Chem. B* in press.

“Design and synthesis of photochemically controllable restriction endonuclease BamHI by manipulating the salt-bridge network in the dimer interface” M. Endo, K. Nakayama, and T. Majima, *J. Org. Chem.* 2004, 69, 4292.

“Structural arrangement of two DNA double helices using cross-linked oligonucleotide connectors” M. Endo and T. Majima, *Chem. Commun.* 2004, 1308.

“Rate constant of bimolecular triplet energy transfer from chrysene in the higher triplet excited states” X. Cai, M. Sakamoto, M. Hara, S. Tojo, K. Kawai, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima, *J. Phys. Chem. A* 2004, 108, 7147.

“Unnatural base pairs mediate the site-specific incorporation of an unnatural hydrophobic component into RNA transcripts” M. Endo, T. Mitsui, T. Okuni, M. Kimoto, I. Hirao, and S. Yokoyama, *Bioorg. Med. Chem. Lett.* 2004, 14, 2593.

“Site-specific incorporation of a photo-crosslinking component into RNA by T7 transcription

mediated by unnatural base pairs” M. Kimoto, M. Endo, T. Mitsui, T. Okuni, I. Hirao, and S. Yokoyama, *Chem. Biol.* 2004, 11, 47.

“Stepwise photocleavage of two C-O bonds of 1,8-bis[(4-benzoylphenoxy)-methyl]naphthalene with three-step excitation using three-color, three-laser flash photolysis” X. Cai, M. Sakamoto, M. Hara, S. Tojo, A. Ouchi, K. Kawai, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima, *J. Am. Chem. Soc.* 2004, 126, 7432.

“Quenching processes of aromatic hydrocarbons in the higher triplet excited states-energy transfer vs. electron transfer” X. Cai, M. Sakamoto, M. Hara, S. Tojo, K. Kawai, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima, *Phys. Chem. Chem. Phys.* 2004, 6, 1735.

“Inhibition of the formation and decay of core-stilbene radical cations by the dendron-phenoxy groups during the photoinduced electron transfer” M. Hara, S. Samori, X. Cai, S. Tojo, T. Arai, A. Momotake, J. Hayakawa, M. Uda, K. Kawai, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima, *J. Phys. Chem. B* 2005, 109, 973.

“Dihydrophenanthrene-type Intermediates during Photoreaction of trans-4'-Benzyl-5-styrylfuran” S. Samori, M. Hara, T.-I. Ho, S. Tojo, K. Kawai, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima, *J. Org. Chem.* in press.

## 総説・解説

“Asymmetric ligands bearing spiro skeleton and their applications to enantioselective catalysis” S. Takizawa, D. Jayaprakash, M. L. Patil, C. Muthiah, and H. Sasai, *Materials Integration* 2004, 17, 3.

“Development of novel immobilization methods for multifunctional asymmetric catalysts” S. Takizawa and H. Sasai, *生産と技術* 2004, 56, 43.

“Trend in the development of novel chiral ionic liquids” M. L. Patil, S. Takizawa, and H. Sasai, *Chemical Industry* 2004, 55, 877.

“スピロビスイソオキサゾリン配位子 (SPRIXs) の創製と触媒的不斉合成への応用” 荒井緑、篠原俊夫、荒井孝義、笹井宏明、*有機合成化学協会誌* 2004, 62, 59.

“DNA ナノテクノロジー” 遠藤政幸、真嶋哲朗、*化学* 2004, 59, 70.

## 国際会議

“Immobilization of Enantioselective Catalysts onto the Surface of Spherical Nanoparticles” Marubayashi, K.; Takizawa, S.; Yonezawa, F.; Kawakusu, T.; Jayaprakash, D.; Patil, M. L.; Arai, T.; Hanada, T.; Sasai, H. Second 21st Century COE “Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience” 7th SANKKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science –Perspectives in Nanoscience-, 2004, 1. (Osaka, Japan).

“The aza-Morita-Baylis-Hillman (aza-MBH) Reaction Promoted by Chiral Phosphine-BINOL as an Organocatalyst” Matsui, K.; Takizawa, S.; Sasai, H. Second 21st Century COE “Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience” 7th SANKKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science –Perspectives in Nanoscience-, 2004, 1. (Osaka, Japan).

“Design and Synthesis of Novel Spiro Chiral Phase Transfer Catalysts” Patil, M. L.; Rao, C. V. L.; Takizawa, S.; Sasai, H. Second 21st Century COE “Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience” 7th SANKKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science –Perspectives in Nanoscience-, 2004, 1. (Osaka, Japan).

“Enantioselective Reactions Promoted by Pd(II)-SPRIX Catalysts” Muthiah C.; Arai, M. A.; Shinohara, T.; Arai, T.; Takizawa, S.; Sasai, H. Second 21st Century COE “Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience” 7th SANKKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science –Perspectives in Nanoscience-, 2004, 1. (Osaka, Japan).

“New Approach for the Immobilization of Multicomponent Asymmetric Catalysts with High Enantiocontrol” Takizawa, S.; Jayaprakash, D.; Somei, H.; Sekiguti, T.; Otsuki, K.; Arai, T.; Sasai, H. Second 21st Century COE “Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience” 7th SANKKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science –Perspectives in Nanoscience-, 2004, 1. (Osaka, Japan).

“Dual Activation in a Homolytic Coupling Reaction Promoted by an Enantioselective Dinuclear Vanadium(IV) Catalyst” Somei, H.; Asano, Y.; Yoshida, T.; Takizawa, S.; Sasai, H. Second 21st Century COE “Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience” 7th SANKKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science –Perspectives in Nanoscience-, 2004, 1. (Osaka, Japan).

“Design and Synthesis of Novel Spiro-Type Ligands” Tsujihara, T.; Wakita, K.; Kato, T.; Shinohara, T.; Arai, M. A.; Takizawa, S.; Arai, T.; Sasai, H. Second 21st Century COE “Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience” 7th SANKKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science –Perspectives in Nanoscience-, 2004, 1. (Osaka, Japan).

“Immobilization of Multicomponent Asymmetric Catalysts” Takizawa, S.; Sasai, H. International Workshop on Recent Progress in Organic Chemistry, 2004, 3. (Osaka, Japan).

”Immobilization of Multifunctional Asymmetric Catalysts (MACs)” Jayaprakash, D.; Takizawa, S.; Arai, T.; Sasai, H. 227th ACS National Meeting, 2004, 3. (California, USA).

“Design and Synthesis of Novel Spiro-type Ligands” Tsujihara, T.; Wakita, K.; Kato, T.; Shimomoto, A.; Patil, M. L.; Rao, C. V. L.; Shinohara, T.; Arai, M. A.; Takizawa, S.; Sasai, H. 17th French-Japanese Symposium on Medicinal and Fine Chemistry (FJS-2004), 2004 , 5. (Miyagi, Japan).

“Dual Activation in a Homolytic Coupling Reaction Promoted by an Enantioselective Dinuclear Vanadium(IV) Catalyst” Somei, H.; Asano, Y.; Yoshida, T.; Takizawa, S.; Yamataka, H.; Sasai, H. 17th French-Japanese Symposium on Medicinal and Fine Chemistry (FJS-2004), 2004 , 5. (Miyagi, Japan).

”The Aza-Morita-Baylis-Hillman Reaction Catalyzed by Chiral Phosphine-Binol as an Organocatalyst” Matsui, K.; Takizawa, S.; Sasai, H. 16th International Symposium on Chirality (ISCD 16), 2004, 7. (New York, USA).

“Development of Novel Chiral Spiro-type Ligands” Sasai, H.; Wakita, K.; Kato, T.; Honda, Y.; Arai, M. A.; Shinohara, T.; Muthiah, C.; Tsujihara, T.; Takizawa, S. The XXXVIth International Conference on Coordination Chemistry, 2004, 7. (Mérida Yucatán, México).

“Dual Activation in a Homolytic Coupling Reaction Promoted by an Enantioselective Dinuclear Vanadium(IV) Catalyst” Somei, H.; Asano, Y.; Yoshida, T.; Takizawa, S.; Yamataka, H.; Sasai, H. 15th International Conference on Organic Synthesis (ICOS-15 ), 2004, 8. (Aichi, Japan)

”The aza-Morita-Baylis-Hillman (aza-MBH) Reaction Promoted by Chiral Phosphine-BINOL as an Organocatalyst” Matsui, K.; Takizawa, S.; Sasai, H. 15th International Conference on

Organic Synthesis (ICOS-15), 2004, 8. (Aichi, Japan)

“Novel Bifunctional Asymmetric Organocatalysts for aza-Morita-Baylis-Hillman (aza-MBH) Reaction” Matsui, K.; Takizawa, S.; Sasai, H. The 7th IUPAC International Conference on Heteroatom Chemistry, 2004, 8. (Shanghai, China)

”Catalytic Enantioselective Direct Henry Reaction” Takizawa, S.; Murai, K.; Wataguchi, K.; Hara, T.; Sasai, H. Rare Earths '04 in Nara, 2004, 11. (Nara, Japan)

“Novel Bifunctional Organocatalysts for Enantioselective aza-Morita-Baylis-Hillman (aza-MBH) Reaction” Matsui, K.; Takizawa, S.; Sasai, H. International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004)-Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing- 2004, 12. (Osaka, Japan).

“Development and Application of Novel Immobilization Method for Multicomponent Asymmetric Catalysts” Takizawa, S.; Marubayashi, K.; Inoue, N.; Sasai, H. International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004)-Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing- 2004, 12. (Osaka, Japan).

“Dual Activation in a Homolytic Coupling Reaction Promoted by an Enantioselective Dinuclear Vanadium Catalyst” Yoshida, T.; Katayama, T.; Somei, H.; Asano, Y.; Takizawa, S.; Sasai, H. THE INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON DYNAMIC COMPLEX (ISDC-2005), 2005, 1. (Nagoya, Japan)

“Development of Novel Spiro-type Ligands” Tsujihara, T.; Koranne, P.; Chinnasamy, M.; Wakita, K.; Yogo, J.; Takizawa, S.; Sasai, H. THE INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON DYNAMIC COMPLEX (ISDC-2005), 2005, 1. (Nagoya, Japan)

“Construction of DNA Nanostructures Using Crosslinked Oligonucleotides” Endo, M.; Majima, T. Second 21st Century COE “Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience” 7th SANKKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science –Perspectives in Nanoscience-, 2004, 1. (Osaka, Japan).

“Photochemical Regulation of a Restriction Endonuclease BamHI by Manipulation of the Dimer Interface” Endo, M.; Nakayama, K.; Majima, T. Second 21st Century COE “Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience” 7th SANKKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science –Perspectives in

Nanoscience-, 2004, 1. (Osaka, Japan).

“Rapid Cleavage of Naphthylmethyl-oxygen Bond in the Higher Triplet Excited States Studied by Two-color Two-laser Flash Photolysis” Cai, X.; Sakamoto M.; Hara, M.; Tojo, S.; Kawai, K.; Endo, M.; Fujitsuka, M.; Majima, T. Second 21st Century COE “Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience” 7th SANKKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science –Perspectives in Nanoscience-, 2004, 1. (Osaka, Japan).

“Energy Transfer vs Electron Transfer during the Bimolecular Quenching of Aromatic Hydrocarbons in the Higher Triplet Excited States” Cai, X.; Sakamoto, M.; Hara, M.; Tojo, S.; Kawai, K.; Endo, M.; Fujitsuka, M.; Majima, T. Second 21st Century COE “Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience” 7th SANKKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science –Perspectives in Nanoscience-, 2004, 1. (Osaka, Japan).

“Photochemical Control of Caspase-3 Activity for Induction of Apoptosis” Nakayama, K.; Endo, M.; Majima, T. Second 21st Century COE “Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience” 7th SANKKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science –Perspectives in Nanoscience-, 2004, 1. (Osaka, Japan).

“DNA supramolecular chemistry” Endo, M.; Majima, T. International Workshop on Recent Progress in Organic Chemistry, 2004, 3. (Osaka, Japan)

“Manipulation of the Dimer Interface for Photochemical Regulation of the Activity of an Endonuclease BamHI” Nakayama, K.; Endo, M.; Majima, T. 227th ACS National Meeting, 2004, 3. (California, USA).

“DNA Supramolecular Chemistry” Endo, M.; Majima, T. 11th Symposium of Intelligent Electrophotonic Materials and Molecular Electronics (SIEMME’11), XiQiao Hotel, Iangbin West Road No.1, Kunming City, unnan, 2004, 11. (Kunming, China).

“Photochemical control of the protein activity by manipulating the dimer interface” Endo, M.; Nakayama, K.; Majima, T. 2004 Korea-Japan Symposium on Frontier Photoscience “Photochemistry and Nanotechnology”, Samsung Fire & Marine Insurance HRD Center, 2004, 11. (Daejeon, Korea).

“Construction of supramolecular structures using DNA-porphyrin conjugates” Endo, M.;

Shiroyama, T.; Fujitsuka, M.; Majima, T. International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004)-Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing- 2004, 12. (Osaka, Japan).

“Photochemical regulation of caspase-3 activity” Endo, M.; Nakayama, K.; Kaida, Y.; Majima, T. International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004)-Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing- 2004, 12. (Osaka, Japan).

## 国内会議

滝澤忍、丸林千能、真砂和英、染井秀徳、荒井孝義、笹井宏明「物理的外部因子によるキラリティーの制御を目指して」, 東京, 強磁場下での物質と生体の挙動第 2 回公開シンポジウム, 2004, 2.

滝澤忍、丸林千能、Doss Jayaprakash、染井秀徳、川楠哲生、荒井孝義、笹井宏明「不斉触媒の新規固定化法の開発と応用」, 東京, 第 4 回 GSC シンポジウム, 2004, 3.

滝澤忍、米澤文子、Mahesh L. Patil、丸林千能、笹井宏明「ミセル重合を利用する球状固定化不斉触媒の開発」, 兵庫, 日本化学会第 84 回春季年会, 2004, 3.

浅野泰明、吉田友和、染井秀徳、滝澤忍、笹井宏明「二重活性化機構を有する新規不斉二核金属触の開発(1)」, 兵庫, 日本化学会第 84 回春季年会, 2004, 3.

浅野泰明、吉田友和、染井秀徳、滝澤忍、笹井宏明「二重活性化機構を有する新規不斉二核金属触の開発(2)」, 兵庫, 日本化学会第 84 回春季年会, 2004, 3.

丸林千能、滝澤忍、川楠哲生、笹井宏明「金属クラスター担持型複合金属触媒の開発」, 兵庫, 日本化学会第 84 回春季年会, 2004, 3.

Mahesh L. Patil、Cilamkoti Venkat Laxman Rao、滝澤忍、笹井宏明「スピロ骨格を有する不斉相間移動触媒の開発」, 兵庫, 日本化学会第 84 回春季年会, 2004, 3.

加藤考浩、滝澤忍、荒井孝義、笹井宏明「新規スピロビスオキサゾリン配位子の設計と合成」, 兵庫, 日本化学会第 84 回春季年会, 2004, 3.

Chinnasamy Muthiah、滝澤忍、笹井宏明「Pd(II)-SPRIX を用いる触媒的不斉分子内エン - イン環化反応」, 兵庫, 日本化学会第 84 回春季年会, 2004, 3.

辻原哲也、脇田和彦、加藤考浩、篠原俊夫、荒井緑、滝澤忍、笹井宏明「Pd-SPRIXsを用いる触媒的不斉アミノカルボニル化反応」, 兵庫, 日本化学会第 84 回春季年会, 2004, 3.

脇田和彦、加藤考浩、荒井緑、篠原俊夫、滝澤忍、笹井宏明「新規不斉スピロビスイソオキサゾール配位子の設計と合成」, 兵庫, 日本化学会第 84 回春季年会, 2004, 3.

米澤浩司、下元愛、滝澤忍、笹井宏明「スピロ骨格を持つキラルな相間移動触媒の合成」, 兵庫, 日本化学会第 84 回春季年会, 2004, 3.

下元愛、米澤浩司、滝澤忍、笹井宏明「スピロキラリティーを有する第四級アンモニウム塩の開発」, 兵庫, 日本化学会第 84 回春季年会, 2004, 3.

松井嘉津也、滝澤忍、笹井宏明「新規多機能触媒による不斉 aza-Morita-Baylis-Hillman 反応の開発」, 兵庫, 日本化学会第 84 回春季年会, 2004, 3.

渡口桂吾、原敬司、村井和憲、滝澤忍、笹井宏明「連結 BINOL を配位子とした複合金属触媒の開発」, 兵庫, 日本化学会第 84 回春季年会, 2004, 3.

川楠哲生、丸林千能、滝澤忍、荒井孝義、笹井宏明「金属クラスターを用いる新規不斉固定化触媒の開発」, 兵庫, 日本化学会第 84 回春季年会, 2004, 3.

松井嘉津也、田中浩一、滝澤忍、笹井宏明「新規多機能触媒による不斉 aza-Morita-Baylis-Hillman 反応の開発」, 京都, 第 31 回有機反応懇談会, 2004, 7.

井上直人、丸林千能、滝澤忍、笹井宏明「不斉触媒の新規固定化法の開発」, 京都, 第 31 回有機反応懇談会, 2004, 7.

余語純一、辻原哲也、滝澤忍、笹井宏明「新規スピロ型不斉配位子の創製と応用」, 京都, 第 31 回有機反応懇談会, 2004, 7.

廣田朝子、米澤浩司、滝澤忍、笹井宏明「新規光学活性スピロ型第四級アンモニウム塩の開発」, 京都, 第 31 回有機反応懇談会, 2004, 7.

渡口桂吾、原敬司、滝澤忍、笹井宏明「BINOL 誘導体を配位子とする複合金属不斉触媒の開発」, 京都, 第 31 回有機反応懇談会, 2004, 7.

染井秀徳、浅野泰明、吉田友和、滝澤忍、山高博、笹井宏明「二重活性化能を有する

二核バナジウム触媒の開発とエナンチオ選択的反応への応用」, 北海道, 第 30 回反応と合成の進歩シンポジウム, 2004, 10.

辻原哲也、脇田和彦、Koranne Priti、Muthiah Chinnasamy、余語純一、滝澤忍、笹井宏明「Development of Novel Chiral Spiro-Type Ligands」, 東京, 第 51 回有機金属化学討論会, 2004, 10.

下元愛、廣田朝子、米澤浩司、滝澤忍、笹井宏明「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」, 石川, 第 34 回複素環化学討論会, 2004, 11.

松井嘉津也、滝澤忍、笹井宏明「新規多機能触媒による不斉 aza-Morita-Baylis-Hillman 反応の開発」, 東京, 第 86 回有機合成シンポジウム, 2004, 11.

松井嘉津也、滝澤忍、笹井宏明「新規多機能触媒による不斉 aza-Morita-Baylis-Hillman 反応の開発」, 京都, 第 24 回有機合成若手セミナー, 2004, 12.

滝澤忍、丸林千能、井上直人、笹井宏明「不斉触媒の新規固定化法の開発」, 京都, 第 24 回有機合成若手セミナー, 2004, 12.

滝澤 忍、笹井宏明「金属架橋型触媒の創製」, 大阪, ナノ超分子触媒の将来展望, 2005, 2.

Doss Jayaprakash、笹井 宏明「Immobilization of Multifunctional Asymmetric Catalysts」, 大阪, ナノ超分子触媒の将来展望, 2005, 2.

遠藤政幸、真嶋哲朗「DNA 超分子によるナノ構造の構築」, 大阪, DNA の機能化学, 2004, 1.

中山公志、遠藤政幸、真嶋哲朗「caspase-3 の活性の光化学的制御」, 大阪, ビーム機能化学の最先端, 2004, 1.

遠藤政幸、真嶋哲朗「DNA 超分子の合成と性質」, 大阪, 光機能界面の反応機構, 2004, 2.

遠藤政幸、真嶋哲朗 「構造に基づく光機能性酵素の構築」, 大阪, 光機能化学の新展開, 2004, 2.

遠藤政幸、真嶋哲朗「タンパク機能の光化学制御」, 大阪, 複合分子の光制御, 2004, 2.

遠藤政幸、真嶋哲朗「光機能性酵素の構築」, 大阪, 化学・生物科学・物質科学研究の最先端, 2004, 2.

王杭祥、遠藤政幸、真嶋哲朗「タバコモザイクウィルスの超分子集合の制御」, 大阪, 化学の最先端研究, 2004, 2.

上垣真介、遠藤政幸、真嶋哲朗「プログラム可能な DNA 超分子集合」, 大阪, 化学の最先端研究, 2004, 2.

城山高志、遠藤政幸、藤塚守、真嶋哲朗「DNA-ポルフィリン超分子の構築」, 大阪, 化学の最先端研究, 2004, 2.

王杭祥、遠藤政幸、真嶋哲朗「タンパクの光機能化」, 大阪, 化学の最先端研究, 2004, 2.

上垣真介、遠藤政幸、真嶋哲朗「新規 DNA 超分子の合成と性質」, 大阪, 化学の最先端研究, 2004, 2.

城山高志、遠藤政幸、藤塚守、真嶋哲朗「DNA-ポルフィリン超分子の構築」, 大阪, 化学の最先端研究, 2004, 2.

遠藤政幸、真嶋哲朗「DNA 超分子の合成と性質」, 大阪, 化学の最先端研究, 2004, 2.

遠藤政幸、真嶋哲朗「DNA 超分子からのナノ構造の構築」, 大阪, ケミストリー・バイオの最先端研究, 2004, 3.

遠藤政幸、中山公志、貝田有佳、真嶋哲朗「カスパーゼ - 3 活性の光化学的制御」, 兵庫, 日本化学会第 84 回春季年会, 2004, 3.

遠藤政幸、真嶋哲朗「架橋型 DNA を用いた DNA 組織体の構築」, 兵庫, 日本化学会第 84 回春季年会, 2004, 3.

城山高志、遠藤政幸、真嶋哲朗「ポルフィリン-DNA 超分子高次構造体の構築」, 兵庫, 日本化学会第 84 回春季年会, 2004, 3.

遠藤政幸・真嶋哲朗「DNA 超分子」, 大阪, 界面光化学シンポジウム, 2004, 5.

中山公志・遠藤政幸・真嶋哲朗「光機能性タンパク」, 大阪, 界面光化学シンポジウム, 2004, 5.

遠藤政幸、中山公志、真嶋哲朗「タンパク機能の光化学制御」, 宮城, 第 17 回基礎有機化学連合討論会, 2004, 9.

遠藤政幸、真嶋哲朗「架橋型 DNA を用いた DNA 組織体」, 宮城, 第 17 回基礎有機化学連合討論会, 2004, 9.

遠藤政幸、中山公志、真嶋哲朗「2 量子インターフェースを用いた酵素活性の光制御」, 茨城, 2004 年光化学討論会, 2004, 11.

遠藤政幸、城山高志、藤塚守、真嶋哲朗「DNA - ポルフィリン誘導体による超分子構造の構築」, 茨城, 2004 年光化学討論会, 2004, 11.

遠藤政幸、中山公志、貝田有佳、真嶋哲朗「Caspase-3 の光化学的制御」, 茨城, 2004 年光化学討論会, 2004, 11.

王 杭祥・遠藤政幸・真嶋哲朗 「TMV 超分子形成の光化学的制御」, 大阪, 超分子・界面光化学の最先端, 2004, 12 .

上垣真介・遠藤政幸・真嶋哲朗 「DNA プログラミング」, 大阪, 超分子・界面光化学の最先端, 2004, 12 .

中山 公志・遠藤政幸・真嶋哲朗「アゾベンゼン誘導体を導入した BamHI の機能発現の光化学的制御」, 大阪, 超分子・界面光化学の最先端, 2004, 12 .

## 科研費、助成金

笹井宏明

文部科学省科学研究費 特定領域研究 (A)(平成 15 年-17 年)

「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」

滝澤忍

科学技術振興調整費 若手任期付研究員支援 (平成 14 年-18 年)

「自己組織化による機能性ナノマテリアルの創製」

滝澤忍

財団法人 関西エネルギー・リサイクル科学研究振興財団 若手奨励研究（平成 17 年度）

「球状ナノ粒子の効率的合成とその固体電解質への展開」

遠藤政幸

文部科学省科学研究費 若手研究（B）（平成 15 年-17 年）

「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」

## ナノバイオデバイス分野

谷澤 克行 (たにざわ かつゆき)



### 略歴

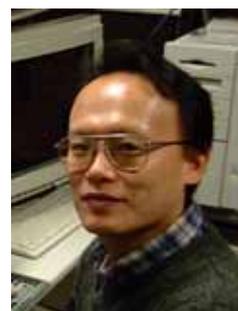
- 1948年 大阪市生まれ
- 1972年 京都大学農学部 卒業
- 1974年 京都大学大学院農学研究科  
農芸化学専攻修士課程修了
- 1977年 京都大学大学院農学研究科  
農芸化学専攻博士課程修了
- 1979年 京都大学化学研究所 助手(微生物化学研究部門)
- 1981年 米国国立保健衛生研究所(NIH) Visiting Fellow
- 1989年 大阪大学産業科学研究所 助教授(食品化学研究分野)
- 1995年 大阪大学産業科学研究所 教授(生体触媒科学研究分野)

専門分野 生化学、構造生物学、分子生物学

所属学会 日本生化学会、日本農芸化学会、日本ビタミン学会、日本生物工学会、日本タンパク質科学会、米国生化学・分子生物学会、米国化学会 他

趣味 現在はディスカスの飼育、5年ぐらい前はカトレア栽培、20年以上前は昆虫採集(甲虫、蝶など)と、ずっと生き物に親しんでいます。

岡島 俊英 (おかじま としひで)



### 略歴

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

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

中島 良介 (なかしま りょうすけ)

略歴

- 1971年 兵庫県生まれ
- 1994年 姫路工業大学理学部生命科学科卒業
- 1996年 姫路工業大学大学院理学研究科修士課程  
生命科学専攻修了
- 1999年 姫路工業大学大学院理学研究科博士課程  
生命科学専攻修了  
博士(理学)(姫路工業大学)
- 1999年 大阪大学産業科学研究所非常勤研究員
- 2001年 独立行政法人日本学術振興会特別研究員(PD)
- 2004年 大阪大学産業科学研究所特任助手
- 2004年 大阪大学産業科学研究所助手  
~現在に至る



専門分野：生化学、趣味：15年ほど熱帯魚を飼育していましたが、その水槽も今では娘の金魚が泳いでいます。

## 研究概要

生体に由来するタンパク質、核酸、及びその複合体の大きさはすべてナノスケールの構造体であり、これら生体素子やその集合体はナノバイオデバイスと位置付けられる(図1)。例えば、タンパク質は、生体内で遺伝情報にもとづいて、20種類のアミノ酸が一定の配列で重合されて生成される。基本的にその配列にしたがって、一定の立体構造を自発的に形成し、必要があればタンパク質同士やDNA・RNAと複合体を形成する。酵素などの化学反応を触媒するタンパク質の多くは、金属イオンや補酵素と呼ばれる低分子有機化合物を自発的に結合する。すなわち、どのように立体構造と複合体が形成されるのかは、基本的にアミノ酸配列という“設計書”に書きこまれているといえる。それによって、化学反応の触媒ばかりでなく、分子の回転などの機械的な運動、化学物質の輸送などの多様な機能性を実現している。また、抗体やレセプタータンパク質は、ときに極めて高い分子認識能を有する。しかし、このような自己形成能と機能性を兼ね備えたナノデバイスを設計し人工的に作り出すことは、未だに困難である。当分野において、自然が作り出したナノバイオデバイスのナノ構造と機能の解析を詳細に行い、その精緻な作用メカニズムと設計指針を解明している。さらに、その成果にもとづいて、ナノバイオデバイスを用いる超高感度バイオセンサーの開発やナノマシンの創製などを目指している。

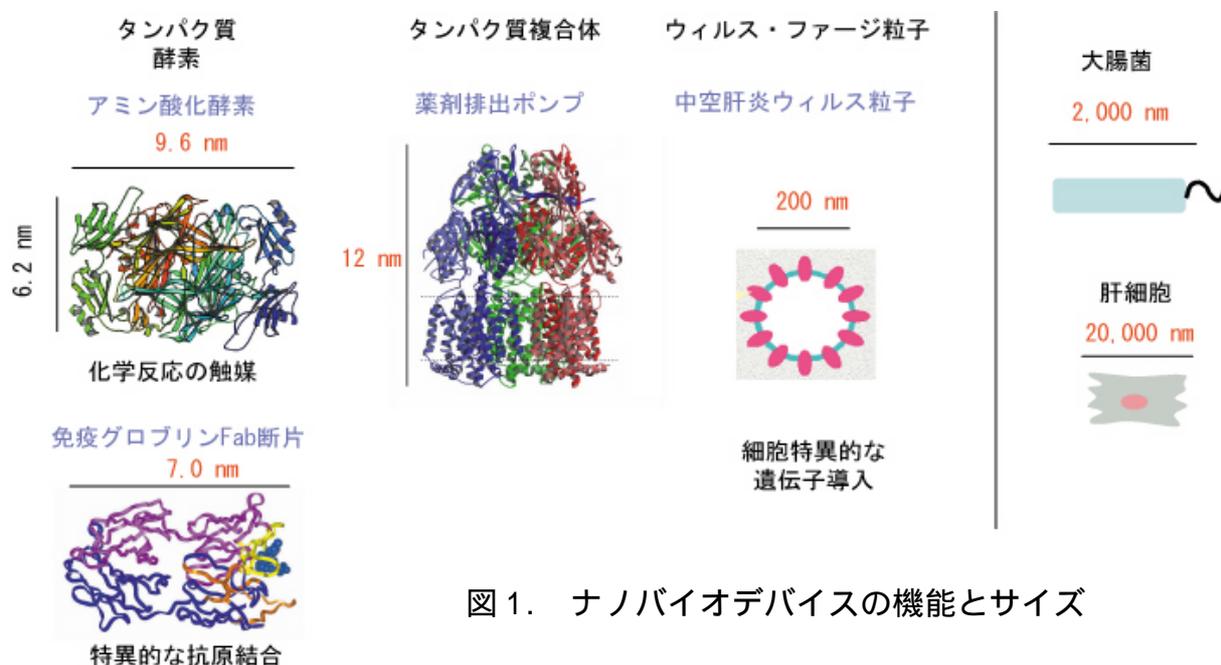


図1. ナノバイオデバイスの機能とサイズ

## 触媒ナノマシンとしての酵素タンパク質

銅含有アミン酸化酵素とキノヘムプロテイン・アミン脱水素酵素という2種類のビルトイン型キノン補酵素を含んだ複合型酵素を主な対象として、触媒ナノマシンである酵素がどのようなメカニズムで、化学反応を触媒するのか解明している。X線結晶解析によって決定されたナノ構造を基盤として、ストップフロー法などを用いた詳細な酵素反応速度解析によって研究を進めている(蛋白質核酸酵素、2003、48巻、740-746)。多くの酵素は補欠分子族として、低分子有機化合物からなる補酵素を含有しており、補酵素によって、触媒しうる化学反応のレパートリーを広げるとともに、その効率を飛躍的に向上させている。本研究の目的は、このような補酵素を含有する複合型酵素の設計原理を解明するとともに、新規なナノバイオデバイスのデザインに応用することにある。

### (a) 銅含有アミン酸化酵素のトパキノン補酵素の生成過程

ビルトイン補酵素生成機構を解明するため、銅含有アミン酸化酵素のトパキノン補酵素の生成過程を解析した。補酵素生成に必須な銅イオンの結合に関与する保存された3つのHis残基(His431、His433、およびHis592)をAla残基に変換して、TPQ生合成に与える影響を調べた。H433AとH592A変異型酵素についてはX線結晶構造解析も行った(図2)。その結果、いずれの置換も大きくTPQ含量とその生成速度を減少させるとともに、銅含量を低下させた。興味深いことに、イミダゾールを加えることによって、H592A変異型酵素ではTPQの生成がレスキューされた。さらに、H433A変異型酵素では銅イオンを加えることによって、電荷移動中間体と考えられる可視長波長領域における吸収帯が現れた。以上の結果から、銅イオンの位置が極めて厳密に決められることが、TPQ生合成において重要であることが判明した(*Biochemistry*, **43** (2004), 2178-2187)。

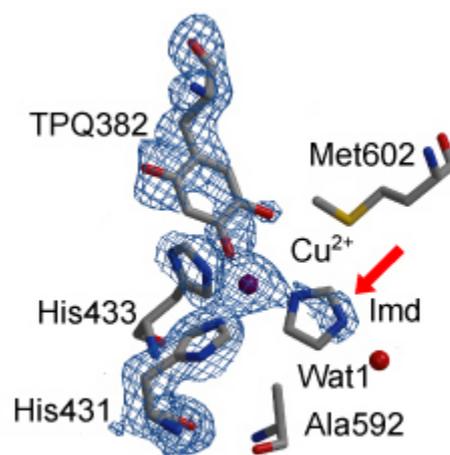


図2. H592A変異型酵素で形成されたTPQ補酵素

### (b) 銅含有アミン酸化酵素のトパキノン補酵素の改変

TPQとは異なるリジルチロシルキノン様のキノン補酵素が生成することを期待して作成したD298K変異型酵素のX線結晶構造解析を行った(図3)。アポ酵素として精製し、その後銅イオンを添加することによって活性化すると、TPQと

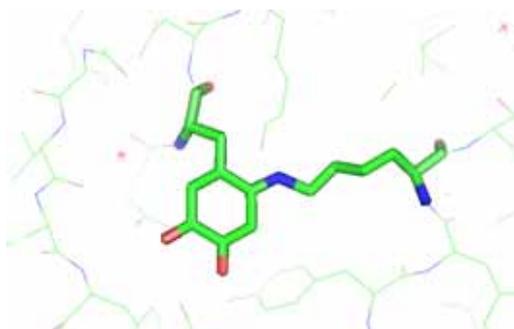


図3. D298K変異型酵素の活性中心

は異なる 450nm 付近に吸収極大をもつクロモフォアが形成させることが明らかとなった。X線結晶解析の結果、382位のチロシンのベンゼン環2位にLys298が共有結合していることが判明した。さらに構造精密化を進め、TPQ382 C2とLys298 Nεの間でイミノ結合が形成された新規な補酵素構造を有していることが判明した。

(c)銅含有アミン酸化酵素の触媒過程：還元的半反応の反応中間体の構造解析

銅含有アミン酸化酵素の触媒反応過程は還元的半反応と酸化的半反応に分けられる。前半の還元的半反応では、基質アミンはTPQのC5カルボニル基と反応し、初期反応中間体である基質シッフ塩基が形成される。触媒塩基Asp298は、基質シッフ塩基からプロトンを引き抜いて、生成物シッフ塩基に変換する。還元的半反応のキーステップであるプロトン引き抜き反応の構造的要因を解明するため、触媒塩基Asp298をAla残基に変換したD298A変異型酵素を作成した。触媒塩基の欠失に対応して、D298A変異型酵素の活性は野生型酵素の $10^{-6}$ 程度にまで減少した。そこで、基質フェニルエチルアミンでD298A結晶を1時間程度浸透させ、初期反応中間体である基質シッフ塩基の構造をX線結晶解析によって初めて決定することができた(図4)。

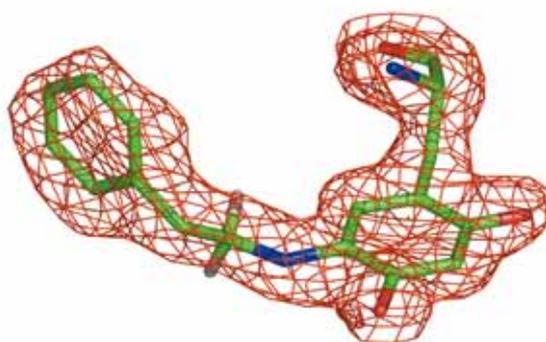


図4. フェニルエチルアミンに対するアミン酸化酵素シッフ塩基中間体の立体構造

(d)銅含有アミン酸化酵素の触媒過程：還元的半反応の機構解析

基質シッフ塩基中間体から触媒プロトン引き抜き過程の温度依存性を調べ、定常状態の速度定数の大きな同位体効果から予想されたプロトントンネリング効果を適正に評価した。すなわち、ストップドフローを用いて、野生型酵素と基質フェニルエチルアミンを嫌気条件下混合し、還元的半反応におけるTPQ補酵素のスペクトル変化を追跡した(図5)。このとき、最終的にセミキノンラジカル型のTPQが形成されて反応が終結する。このスペクトル変化をグローバル解析することによって、様々な温度で各ステップの反応速度定数を求めた。さらに、立体特異的に重水素ラベルされた[1- $R$ - $^2$ H-]、[1- $S$ - $^2$ H-]チラミン、[1- $R$ - $^2$ H-]、[1- $S$ - $^2$ H-]-2-フェニルエチルアミン(図5)についても同様の測定を行った結果、[1- $S$ - $^2$ H-]チラミンと[1- $S$ - $^2$ H-]-2-フェ

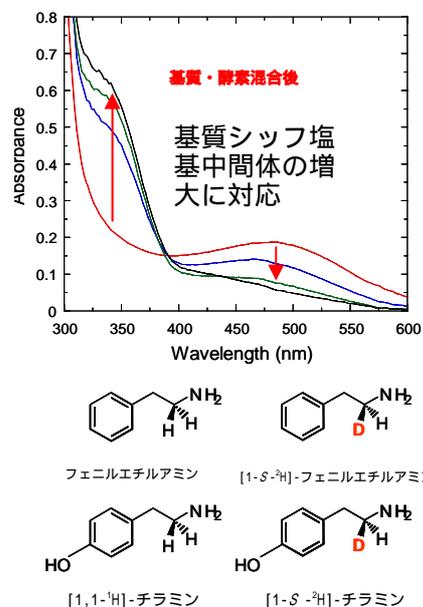


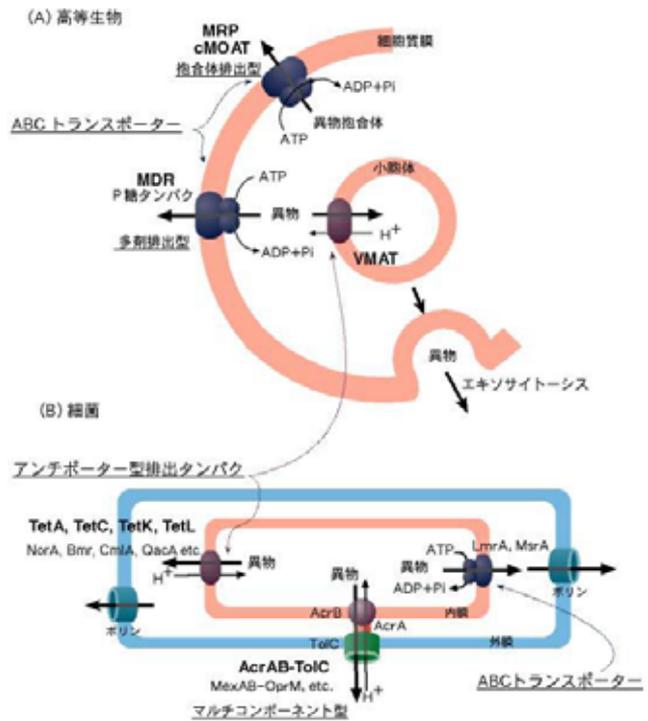
図5.AGAO触媒反応のスペクトル変化と基質・阻害剤の化学構造

ニルエチルアミンについてのみ、それぞれ10と2.6の一次同位体効果が観測された。この結果はプロトン引き抜き反応の立体特異性（S位特異的）にも対応しているとともに、チラミンでのみトンネリング効果によってプロトンが引き抜かれることを示唆している。

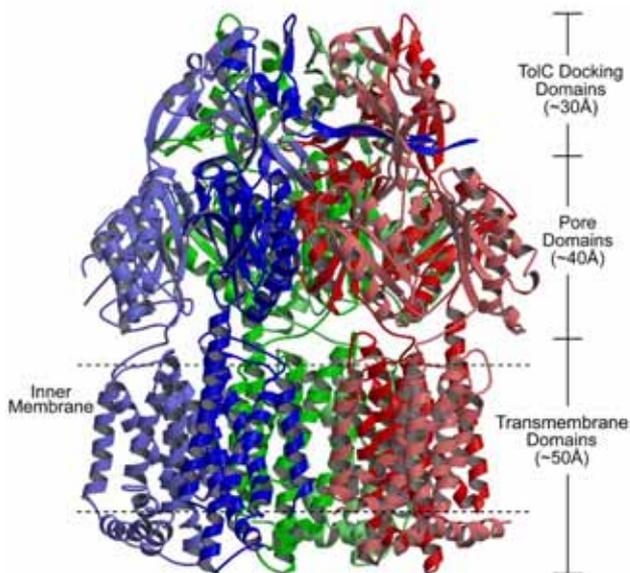
## ナノマシンとしての薬剤排出蛋白質

生物界には、生体異物排出ポンプと呼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最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。これらの排出ポンプは、ガン細胞や病原細菌の多剤耐性の原因となるばかりでなく、血液脳関門やその他の組織にも分布していて、さまざまな細胞機能を担っている。私たちは、生体異物排出ポンプの立体構造と分子機構を解明することを目標に研究を進めている。

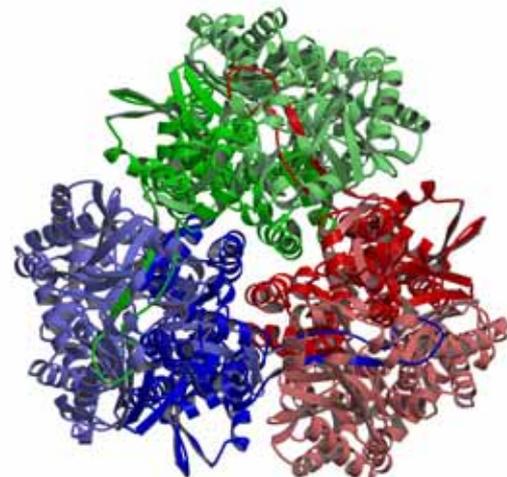
異物排出タンパクは化学構造の大きく異なる幅広い化合物を認識し排出する。そのようなことを可能にする異物認識の分子機構が、基質認識部位のどのような分子構造に支えられているの



異物排出タンパクの種類と分布。  
高等生物にはATPに依存したABCトランスポーター  
細菌には水素イオンとのアンチポーターが多い。



AcrB 結晶構造上面図



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。私たちは大腸菌の持つ 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 (Nature, **419**, 587-593 (2002))。これは、異物排出蛋白質として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蛋白質では初めての構造決定であった。AcrB は 3 個のプロトマーがクラゲの様な形に並んだ三量体構造をしており、ペリプラズムに突き出した頭部と、膜に挿入された足のように見える膜貫通部からなっている。頭頂部には漏斗状の開口部があり、この部分で TolC と直接結合していると考えられる。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となってきた。

## 論文

"Enhanced Long-term Potentiation In Vivo in Dentate Gyrus of NELL2-Deficient Mice" S. Matsuyama, K. Aihara, N. Nishino, S. Takeda, K. Tanizawa, S. Kuroda, and M. Horie, NeuroReport 15 (2004), 417–420.

"Enhanced Long-term Potentiation In Vivo in the Dentate Gyrus of Mice Lacking a Neuron-specific EGF Family Protein, NELL2" S. Matsuyama, K. Aiharam, N. Nishino, S. Takeda, K. Tanizawa, S. Kuroda, and M. Horie, Neuroreport 15 (2004), 417–420.

"Identification of a Tissue-non-specific Homologue of Axonal Fascination 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 (2004), 748-754.

"Chemical Rescue of a Site-specific Mutant of Bacterial Copper Amine Oxidase for Generation of the Topa Quinone Cofactor" H. Matsunami, T. Okajima, S. Hirota, H. Yamaguchi, H. Hori, S. Kuroda, and K. Tanizawa Biochemistry 43 (2004), 2178-2187.

## 解説・総説

"Role of Copper Ion in Bacterial Copper Amine Oxidase: Spectroscopic and Crystallographic Studies of Metal-substituted Enzymes" T. Okajima, Annual Report of Osaka University, 2002-2003, Vol. 4, p54.

"中空バイオナノ粒子が拓く新しい医療技術" 黒田俊一，山田忠範，妹尾昌治，近藤昭彦，上田政和，谷澤克行．化学工業 55 (2004), 936–942.

## 国際学会

Mechanism of Reductive Half-reaction of Bacterial Copper/TPQ-dependent Amine Oxidase.

K. Tanizawa, Y.-C. Chiu, T. Murakawa, and T. Okajima.

Gordon Research Conferences on Protein Derived Cofactors, Radicals and Quinones, Jan. 11-16, 2004, Ventura, CA, U.S.A.

Involvement of a Hypothetical [Fe-S]-binding Protein in the Biogenesis of Quinohemoprotein Amine Dehydrogenase

K. Ono, T. Okajima, and K. Tanizawa,

Gordon Research Conference: Protein Derived Cofactors, Radicals And Quinones, Jan. 11-16, 2004, Ventura, CA, U.S.A.

Mechanism of Reductive Half-reaction of Bacterial Copper/TPQ-dependent Amine Oxidase.

T. Murakawa, Y.-C. Chiu, T. Okajima, and K. Tanizawa,

Gordon Research Conference: Protein Derived Cofactors, Radicals And Quinones, Jan. 11-16, 2004, Ventura, CA, U.S.A.

Development of Novel Bio□Nanoparticles for Human Tissue-Specific Delivery of Genes and Drugs.

K. Tanizawa, T. Yamada, A. Kondo, H. Tada, M. Seno, M. Ueda, and S. Kuroda. 17<sup>th</sup> FAOBMB Symposium, 2004, Bangkok, Thailand.

Mechanism of  $\alpha$ -proton Abstraction in the catalytic intermediate of bacterial copper amine oxidase

T. Okajima and K. Tanizawa

International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN 2004), Dec. 6-7, 2004, Suita, Osaka, Japan.

Crystal Structure of Bacterial Multidrug Efflux Transporter AcrB

S. Murakami, R. Nakashima, T. Matumoto, E. Yamashita and A. Yamaguchi

The Sixth Conference of the Asian Crystallographic Association (AsCA'04), Symposium, "Macromolecular assemblies", June 27-30, 2004, Hong Kong, China.

Interaction of a RING-IBR Protein RBCK1 with Its Splicing Variant RBCK2

N. Yoshimoto, K. Tatematsu, T. Koyanagi, K. Tanizawa, and S. Kuroda

FASEB Conference: Transcriptional Regulation During Cell Growth, Differentiation and Development, Aug. 14-19, 2004, Saxtons River, Vermont, U.S.A.

## 国内学会

*Arthrobacter globiformis* 由来銅アミンオキシダーゼの触媒反応における立体選択性

内田真由美、藤原將起、岡島俊英、谷澤克行、山本行男

日本農芸化学会 2004 年度大会 東広島、2004 年 3 月 28—31 日

巨大リポソームの固体表面上脂質二分子膜への吸着・変形挙動

鈴木健二、岩崎裕、岡島俊英、谷澤克行

日本化学会第 84 春季年会 西宮、2004 年 3 月 26—29 日

銅含有アミン酸化酵素の還元的半反応におけるプロトン引き抜き機構の解析

村川武志、岡島俊英、林秀行、谷澤克行

平成16年酵素・補酵素を楽しむ会、松島 2004年6月14—15日

微細凹凸構造上への巨大リポソームの吸着特性

鈴木健二、岩崎 裕、岡島俊英、谷澤克行

57 回コロイドおよび界面化学討論会 小野田、2004 年 9 月 9—11 日

Mechanism of  $\alpha$ -proton abstraction in the catalytic intermediate of bacterial copper amine oxidase

Takeshi Murakawa, Toshihide Okajima, Mayumi Uchida, Yukio Yamamoto, Hideyuki Hayashi, Kenji Tatematsu, Shun'ichi Kuroda, Katsuyuki Tanizawa

第 77 回日本生化学会大会 横浜、2004 年 10 月 13—16 日

生体内ピンポイント遺伝子・薬剤デリバリーを可能にする中空バイオナノ粒子の可能性について

黒田俊一、山田忠範、多田宏子、近藤昭彦、上田政和、妹尾昌治、谷澤克行

第27回日本分子生物学会年会 神戸、2004年12月8—11日

神経軸索誘導関連タンパク質FEZ1と同ホモログFEZ2の比較

生田潤子、藤田敏次、Andres D. Maturana、鈴木忠樹、澤洋文、岡島俊英、立松健司、谷澤克行、黒田俊一

第 27 回日本分子生物学会年会 神戸、2004 年 12 月 8—11 日

DDS 用バイオナノカプセル(BNC)を構成する蛋白質への Cys 残基欠損の効果

吉田慎之介、多田宏子、福田隆之、名木田真奈、黒田俊一、谷澤克行、近藤昭彦、上田政和、山田秀徳、妹尾昌治

第 27 回日本分子生物学会年会 神戸、2004 年 12 月 8—11 日

Imaging of human liver cells by specific delivery of Bio-nanocapsule fused to EGFP

Dongwei Yu, Chie Amano, Takayuki Fukuda, Tadanori Yamada, Shun'ichi Kuroda, Katsuyuki Tanizawa, Akihiko Kondo, Masakazu Ueda, Hidenori Yamada, Hiroko Tada, Masaharu Seno

第 27 回日本分子生物学会年会 神戸、2004 年 12 月 8—11 日

ナノバイオデバイス・アミン酸化酵素の構造と機能

岡島俊英

第17回産研技術室報告会 茨木、2004年12月13日

銅アミン酸化酵素の触媒機構：還元的半反応におけるプロトントンネリング

谷澤克行

生物物理学会年会シンポジウム 京都、2004年12月13—15日

多剤排出蛋白質のX線結晶構造解析

村上聡、中島良介、山下栄樹、山口明人

Spring8シンポジウム 兵庫県、2004年10月18日—19日

X-ray crystallographic analysis of multi-drug efflux transporter

Satoshi Murakami, Ryosuke Nakashima, Takashi Matumoto, Eiki Yamashita and Akihito Yamaguchi

The 8th International Conference on Biology and Synchrotron Radiation(BSR2004) Symposium, "Membrane Proteins" 兵庫県、2004年9月7—11日

Crystal structure of bacterial multidrug efflux transporter AcrB

S. Murakami, R. Nakashima, E. Yamashita, A. Yamaguchi

International Workshop on Structural Chemical Biology of Membrane Protein Complex Functions. April 19-20, 2004, University of Hyogo, Kamigohri, Japan

## 共同研究

谷澤克行、岡島俊英

「銅含有アミン酸化酵素の構造機能解析」

山口宏（関西学院大学）、山本育男（京都大学大学院）、林秀行（大阪医科大学）、廣田俊（京都薬科大学）

谷澤克行、岡島俊英

「キノヘムプロテイン・アミン酸化酵素の補酵素生成機構の解明」

V. Davidson（Univ. of Mississippi, USA）、S. Mathews（Washington Univ.）

谷澤克行、岡島俊英

「分光エリプソメトリーによるバイオセンサーの開発」

吉信達夫、谷澤克行、岩崎裕（大阪大学産業科学研究所）

岡島 俊英

「機能性抗体分子の開発」

古川功治（産業技術総合研究所）

中島良介

「異物排出膜輸送体の結晶構造解析」

村上聡（大阪大学産業科学研究所） 山口明人（大阪大学産業科学研究所）

## 学会活動

谷澤 克行

所属学会：日本生化学会、日本農芸化学会、日本ビタミン学会、日本生物工学会、日本タンパク質科学会、米国生化学・分子生物学会、米国化学会 他

岡島 俊英

所属学会：日本生化学会、日本蛋白科学会、日本農芸化学会、  
米国蛋白質学会

## 科研費、助成金等

谷澤 克行

受託研究 「生物学分野に関する学術動向の調査・研究 - ポストゲノム時代のバイオサイエンスの新しい潮流を探る - 」 日本学術振興会

谷澤 克行

受託研究（バイオテクノロジー先端技術シーズ培養研究・酵素分野）

「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」  
農林水産省

谷澤 克行

受託研究（NEDO基盤技術研究促進事業〔民間基盤技術研究支援制度〕）「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」 三菱電機

谷澤 克行

受託研究（戦略的創造研究推進事業CREST）「細胞対話型分子システムを用いる革新的遺伝子送達概念の創製」 科学技術振興機構

谷澤 克行

谷澤教授研究助成金 ビタミンB研究協議会

岡島 俊英

科学研究費・基盤研究(C)(2)

「ビルトイン型キノン補酵素生成機構の解明と複合型触媒抗体への応用」

## ナノデバイス診断分野

学内兼任教授

氏名：伊藤 正

所属：基礎工学研究科・物質創成専攻・未来物質領域



### 略歴

1969.3 大阪大学 基礎工学部 材料工学科 卒業

1971.3 大阪大学 基礎工学研究科 物理系専攻 修士 修了

1974.3 大阪大学 基礎工学研究科 物理系専攻 博士 修了

1974.4～1974.6 日本学術振興会奨励研究員

1974.6～1983.3 東北大学 助手

1979.10～1981.3 フランスパリ第7大学 固体物理研究部門 客員講師

1983.4～1993.3 東北大学 助教授

1983.10～1983.12 フランスパリ第7大学 固体物理研究部門 客員助教授

1993.4～1998.3 東北大学 教授

1998.4～現在 大阪大学 教授

学位：工学博士

専門分野：レーザー分光学、量子構造物質の光物性

所属学会：ナノ学会 英国物理学会 応用物理学会 日本物理学会

## ナノシステム設計分野

平成16年4月1日～平成16年6月30日

客員教授 西谷 龍介 (にしたに りゅうすけ)

所属:琉球大学工学部電気電子工学科



略歴:

昭和50年3月 大阪大学工学部電子工学科 卒業

昭和52年3月 大阪大学大学院工学研究科電子工学専攻修士課程 修了

昭和55年3月 大阪大学大学院工学研究科電子工学専攻博士課程 修了

昭和58年10月 東北大学金属材料研究所 助手

平成4年4月 九州工業大学情報工学部 助教授

平成14年12月 琉球大学工学部電気電子工学科 教授 現在に至る

学位:昭和55年3月 博士(工学)(大阪大学)

専門分野:薄膜・表面物理、ナノスケール分光法

ナノテクセンターでの研究内容: 自己組織化有機薄膜およびナノ構造の走査トンネル顕微鏡(STM)誘起発光分光法による研究

客員助教授 砂川 武義 (すながわ たけよし)

[研究内容] マイクロ波空洞吸収法による単分子物性評価

[専門分野] マイクロ波、放射線化学、気相イオン化過程

[略歴]

1992年 福井工業大学工学部応用理化学科卒業

1994年 福井工業大学応用理化学科修士課程修了

1997年 福井工業大学応用理化学科博士課程修了

1997～1998年 福井工業大学応用理化学科客員実習助手

1998～2000年 日本学術振興会特別研究員(福井工大)

2000年～ 福井工業大学応用理化学科(環境・生命未来工学)常勤講師



平成16年7月1日～9月30日

客員教授 清水 良 (しみず りょう)

所属:田辺製薬株式会社 研究本部研究企画部

学歴:

昭和59年3月 京都大学農学部農芸化学科卒業

昭和61年3月 京都大学大学院農学研究科農芸化学専攻  
博士前期課程修了

平成元年3月 同 博士後期課程修了

職歴:

平成元年4月 田辺製薬株式会社 応用生化学研究所 研究員

平成7年4月 田辺製薬株式会社 医薬拓新研究所 研究員

平成9年7月 田辺製薬株式会社 研究開発企画センター 企画員

平成10年4月 田辺製薬株式会社 研究開発本部企画推進部 企画員

平成10年7月 田辺製薬株式会社 創薬研究所 グループリーダー

平成12年11月 伊藤忠商事株式会社 バイオビジネス開発室 非常勤コンサルタント

学会・研究会活動: CTC分子モデリングユーザー会 役員(1995.1～1997.12)、MOPAC研究会 役員(1998.12～2001.12)、コンビナトリアルケミストリー研究会 幹事(1996.4～1998.9)、構造活性相関研究会 常任幹事(1999.1～現在)、日本薬学会構造活性相関部会 常任幹事(2002.4～現在)

業界活動: 生物工学研究所運営委員(1995.4～1998.3)、バイオ産業情報化コンソーシアム(JBIC)生体高分子立体構造情報解析プロジェクト/構造情報解析チーム(2000.11～2003.3)、伊藤忠バイオインフォマティクスセンター運営協議会(2002.4～2003.3)



客員助教授 一木 隆範 (いちき たかのり)

所属:東京大学大学院 工学系研究科 総合研究機構

略歴:

平成2年3月 東京大学 工学部金属工学科 卒業

平成4年3月 東京大学大学院 工学系研究科修士課程 修了

平成7年3月 東京大学大学院 工学系研究科博士課程 修了

平成7年4月 日本学術振興会特別研究員

東洋大学 工学部電気電子工学科 助手

平成7年8月～15年12月

東洋大学 バイオナノエレクトロニクス研究センター 研究員 併任

平成10年4月 東洋大学 工学部電気電子工学科 講師

平成12年4月 東洋大学 工学部電気電子工学科 助教授



平成 14 年 11 月 科学技術振興事業団 戦略的創造研究事業

さきがけ研究 21 研究員 兼任

平成 16 年 1 月 東京大学大学院 工学系研究科 総合研究機構 助教授

現在に至る

学位:平成 7 年 3 月 東京大学 博士(工学)

専門分野:マイクロバイオシステム、微細加工技術、プラズマプロセス

所属学会:応用物理学会、日本金属学会、米国真空学会

平成 16 年 10 月 1 日 ~ 12 月 31 日

客員教授 山下 一郎 (やました いちろう)

所属:松下電器産業(株) 先端技術研究所

略歴:

昭和 51 年 3 月 京都大学 工学部電気工学科 卒業

昭和 53 年 3 月 京都大学 大学院電子工学科修士課程 修了

昭和 53 年 4 月 松下電器産業(株) 材料研究所 研究員、主任研究員

昭和 62 年 4 月 新技術事業団 ERATO 研究員

平成 3 年 10 月 松下電器産業(株) 中央研究所 国際研設立担当  
シニアリサーチアソシエート

平成 6 年 4 月 松下電器産業(株) 国際研究所 所長補佐  
シニアリサーチアソシエート

平成 11 年 7 月 松下電器産業(株) 中央研究所 主席研究員  
松下電器産業(株) 先端技術研究所 主席研究員

平成 12 年 4 月 松下電器産業(株) 先端技術研究所 主席研究員  
先端研究制度テーマリーダー

平成 15 年 4 月 松下電器産業(株) 先端技術研究所 主幹研究員  
現在に至る

学位:平成 10 年 1 月 名古屋大学 理学博士

主な研究課題:タンパク分子のバイオミネラリゼーションと自己組織化を利用した  
バイオナノプロセスの研究



客員助教授 古川 功治 (ふるかわ こうじ)

所属:産業技術総合研究所年齢軸生命工学研究センター  
主任研究員



学歴:

昭和62年3月 九州大学理学部生物学科卒業

昭和63年3月 九州大学理学部研究生修了

平成2年3月 大阪大学大学院理学研究科博士前期課程修了

平成5年9月 大阪大学大学院理学研究科博士後期課程修了

職歴:

平成4年4月 日本学術振興会特別研究員

平成5年10月 蛋白工学研究所 Post Doctoral Fellow

平成7年3月 生物分子工学研究所 Post Doctoral Fellow

平成9年4月 東京理科大学生命科学研究所 助手

平成14年4月 産業技術総合研究所年齢軸生命工学研究センター 主任研究員

本センターで研究題目

抗体レパートリー形成の動力学解明とナノツール開発への利用

平成17年1月1日～3月31日

客員教授 高木 克彦 (たかぎ かつひこ)

現職 名古屋大学大学院工学研究科教授



1942年生まれ

1965年 名古屋大学工学部合成化学科卒業

1967年 名古屋大学大学院工学研究科応用化学専攻  
修士課程修了

1971年 名古屋大学大学院工学研究科応用化学専攻  
博士課程修了

1971年 チッソ株式会社中央研究所所員

1971年 名古屋大学工学部助手

1978年 ミシガン州立大学博士研究員

- 1984年 ロチェスター大学学振派遣研究員  
1986年 名古屋大学工学部助教授  
1997年 名古屋大学大学院工学研究科教授

## 受賞

- 1985年 東海化学工業会賞  
1992年 光化学協会賞  
2002年 日本粘土学会賞

## 代表的論文

The Self-Assembling Properties of Stearate Ions in Hydrotalcite Clay Composites, *Langmuir*, **19**, 9120-9126 (2003). The visible-Light Induced Charge-Separation between Porphyrin and Methyl Viologen Separately Intercalated in Different Layeres of the Titanoniobates, *J. Phys. Chem. B*, **106**, 13306-13310 (2002). Photochromism of Clay-Diaryliene Hybrid Materials in Optically Transparent Gelatin Films, *Chem. Materials*, **13**, 2012-2016 (2000). Controlled Photocycloaddition of Unsaturated Carboxylates Intercalated in Hydrotalcite Clay Interlayers, *J. Am. Chem. Soc.*, **115**, 4339-4344 (1993). Does a Stilbazolium cation Adsorbing Poly(styrenesulfonate) Anion Form Micelle Clusters? *J. Am. Chem. Soc.*, **110**, 7469-7472 (1988).

客員助教授 山路 稔 (やまじみのる)  
現職 群馬大学工学部応用化学科助教授

- 1964年生まれ  
1985年 早稲田大学理工学部物理学科卒業  
1987年 早稲田大学大学院理工学研究科物理学  
及び応用物理学専攻前期課程修了  
1990年 早稲田大学大学院理工学研究科物理学  
及び応用物理学専攻前期課程修了  
  
1989年 早稲田大学理工学研究所助手  
1991年 群馬大学工学部応用化学科助手  
2001年 群馬大学工学部応用化学科助教授



## 代表的論文

Triplet Energy Transfer and Triplet Exciplex Formation of Benzophenone, *Bull. Chem. Soc. Jpn.(account)*, **73**, 267 (2000). Laser Photolysis Studies of Endoergic Triplet Energy Transfer in Solution by Observing the Carbon-Sulfur Bond Cleavage of Triplet-Sensitized Naphthylmethyl Phenyl Sulfide, *Chem. Phys. Lett.*, **368**, 41-48 (2003). Photophysical and Photochemical properties of 1,4-Tetracenequinone in Solution, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **3**, 5470-5474 (2001). Laser Photolysis Studies of the Carbon-Sulfur Bond Cleavage Induced in the Triplet Exciplex of Benzyl naphthyl Sulfide and Aromatic Ketones, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **3**, 3106 (2001). Photochemistry of 1,4-Anthraquinone Studied by Steady-State and Laser Flash Photolyses, *J. Photochem. Photobiol. A: Chem.*, **140**, 7 (2001). A New-Type Photoreaction of A Carbonyl Compound; Part 1. Photoinduced  $\omega$ -bond Dissociation in *p*-Mercaptomethylbenzophenone Studied by Time-Resolved EPR Technique, Steady-State and Laser Flash Photolyses in Solution, *J. Photochem. Photobiol. A: Chem.*, **162**, 513-520 (2004).

ナノ量子ビーム研究部門

## 量子ビームナノファブリケーション研究分野



吉田 陽一 (よしだよういち)

### 所属

産業科学研究所産業科学ナノテクノロジーセンター  
ナノ量子ビーム研究部門量子ビームナノファブリケーション分野  
専門分野： 量子ビーム化学、加速器科学

### (略歴)

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

### (研究内容)

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



楊 金峰 (やんじんふえん)

### 所属

産業科学研究所産業科学ナノテクノロジーセンター  
ナノ量子ビーム研究部門量子ビームナノファブリケーション分野  
専門分野： 加速器科学、量子ビーム科学、素粒子物理

### (略歴)

- 1987.7 中国・天津大学工学部化学工学科卒業
- 1991.9 中国科学院上海原子核研究所・研究員
- 1993.9 東京大学大学院工学研究科原子力工学専攻修士課程修了
- 1997.3 東京都立大学大学院理学研究科物理学専攻博士課程修了
- 2003.3 住友重機械工業株式会社技術開発センター・研究員
- 2003.4 大阪大学産業科学研究所・助手 ~ 現在に至る

### 現在の研究テーマ：

- ✓ レーザーフォトカソード RF 電子銃ライナックの開発
- ✓ フェムト秒・アト秒電子ビームの発生と応用研究
- ✓ 極限ナノファブリケーションの研究



近藤 孝文 (こんどうたかふみ)

所属

産業科学研究所産業科学ナノテクノロジーセンター  
ナノ量子ビーム研究部門量子ビームナノファブリケーション分野  
専門分野：光物性学、固体物理学

(略歴)

- 1996.3 名古屋大学理学部物理学科卒業
- 1998.3 名古屋大学大学院理学研究科物質理学専攻博士課程前期課程修了
- 2000.9 名古屋大学大学院理学研究科物質理学専攻博士課程後期課程中退
- 2000.10 大阪市立大学工学部知的材料工学科・助手
- 2004.10 大阪大学産業科学研究所量子ビームナノファブリケーション分野・  
特任助手  
～現在に至る

現在の研究テーマ：

- フェムト秒・アト秒時間分解分光測定系の開発
- 光・電子線誘起化学反応の初期過程の研究
- 電子線ナノファブリケーションの為の高分子材料における電子線誘起反応の研究

## 研究概要

### 時間空間反応解析と極限ナノファブリケーション

量子ビームナノファブリケーション分野は、次世代極限ナノファブリケーションを実現するため、フェムト秒・アト秒という高時間分解能を持つパルスラジオリシスを開発し、時間空間反応解析を通して、量子ビーム誘起初期過程の本質を明らかにし、微細加工の精度を決めるナノ空間における反応機構の解明を行っている。

平成 16 年度には、フェムト秒やアト秒の時間領域内の反応機構を解明するために、最先端レーザーフォトカソード RF 電子銃ライナックを用いて世界最短 98 フェムト秒電子パルスの発生に成功し、フェムト秒時間分解能のパルスラジオリシスの開発を行った。

フェムト秒・アト秒時間分解能を実現するためには、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。我々のグループは、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等価速度分光法を開発し、パルスラジオリシス時間分解能の向上に成功した。さらに、パルスラジオリシスの時間分解能をアト秒に向上するために、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ダブルデッカー加速器を開発し、世界初めて 1 台の加速器で上下 2 つのフェムト秒パルス電子線の発生に成功した。

また、モンテカルロシミュレーション法を用いて、炭化水素及びハロカーボン溶媒中での電子の熱化過程に関する研究を行い、ハロカーボン溶媒中では、電子と溶媒分子との電子付着解離反応を考慮して電子の熱化距離分布を求めた。得られた結果をパルスラジオリシスの実験と比較し、熱化過程及びジェミネートイオン再結合過程の検証を行った。

以下に、平成 16 年度の研究や成果について述べる。

#### 1. フォトカソード RF 電子銃ライナックによるフェムト秒電子パルスの発生

パルスラジオリシスによるフェムト秒やアト秒の時間領域内の反応機構を解明するために、超短パルス電子線の発生が必要である。我々のグループは、最先端レーザーフォトカソード RF 電子銃ライナックを用いてフェムト秒電子パルスの発生を行った。

図 1 にレーザーフォトカソード RF 電子銃を利用したフェムト秒電子パルス発生システムを示す。本システムは、レーザーフォトカソード RF 電子銃、S-バンドライナックと磁気パルス圧縮装置から構成されている。低エミッタンス電子ビームの発生には、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 電子銃を採用され、電子発生用の光カソードの材質は無酸素銅を用いられている。光カソードの光源としては、全固体ピコ秒レーザーを用いた。本レーザーは、モードロック Nd:YLF 発振器、再生増幅器と波長変換器により構成される。発振器の周波数は、電子線発生と加速用の 2856MHzRF を 1/36 に分周した 79.3MHzRF と位相ロックされている。再生増幅器から出力エネルギー 3mJ まで増幅された光パルスは、非線形結晶によって 4 倍波 (262nm) を発生し、カソードに照射される。RF 電子銃から発生した電子ビームのエネルギー (4MeV) が低いため、ビーム輸送中空間電荷効果によるエミッタンスの増大を生じる。これ

に対しては、電子銃出口にソレノイド磁石を取り付けられ、ソレノイド磁場強度を最適化し、空間電荷効果によるエミッタンスの増大を補正している。

電子ビーム加速用のライナックは、長さ2mのS-バンド進行波型ライナックを採用している。

ライナックとRF電子銃には、同一クライストロンから2分配されたRFがそれぞれ供給される。ライナックとRF電子銃に供給されるRFピークパワーはそれぞれ25MWと10MWであり、運転繰り返しは10Hzである。ライナックのRF位相調整は、ハイパワーRF伝送ラインに取り付けたフェーズシフターによって行う。ライナックでは、電子ビームを加速するとともに、RF位相調整により電子パルスがエネルギー変調される。フェムト秒電子パルスの圧縮には、2台の45°偏向磁石と4台の四極電磁石から構成された磁気パルス圧縮システムを用いている（図1に示す）。すなわち、ライナックでエネルギー変調された電子パルスが磁気

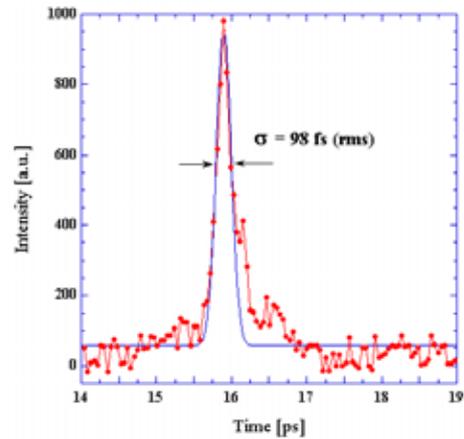


図2: フェムト秒電子パルスの時間波形

パルス圧縮システムを通過させることによってエネルギー違い電子の軌道長の差を利用してパルスを圧縮する。磁気パルス圧縮法によって圧縮されたパルスの幅は、入力ビームのエミッタンスとエネルギー分散に依存し、空間電荷効果や磁場による非線形効果から決められる。本研究では、RF電子銃に照射するレーザーの光ビーム径を最適化し、ソレノイド磁場によるエミッタンス増大の補正を行い、3mm-mradの低エミッタンス電子ビームが得られた。このビームをライナックに加速する際、RF位相の最適化により電子パルスの非線形エネルギー変調を利用して、パルス圧縮の非線形効果を補正し、世界最短98フェムト秒電子パルスの発生に成功した。

図2に、フェムト秒ストリークカメラを用いて測定した98フェムト秒電子パルスの時間プロフィールを示す。この電子パルスはフェムト秒パルスラジオリシスの励起パルスとして利用されている。

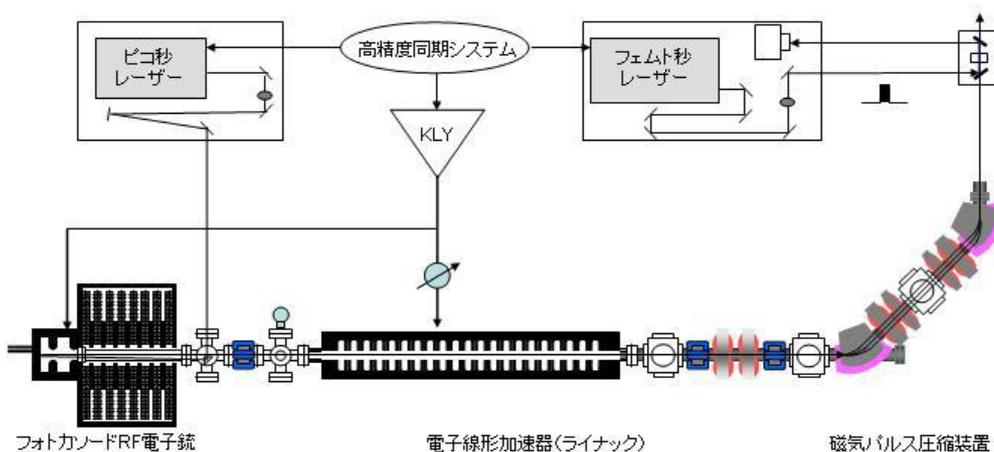


図1: フェムト秒電子パルス発生とフェムト秒パルスラジオリシス装置

## 2 . 等価速度分光法によるフェムト秒パルスラジオリシスの研究

パルスラジオリシスは、量子ビーム誘起による初期反応や超高速現象の解明にとって最も重要な手段の一つである。フェムト秒時間分解能を達成するためには、フェムト秒電子パルスとフェムト秒分析光パルスが必要であるほかに、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。たとえば、1mmの水サンプルを利用すると、水の屈折率はおおよそ2程度であるからサンプル中での光の速度は電子線の速度の半分程度になり、両者の速度差に起因する時間分解能の劣化は、3psとなる。逆に100フェムト秒の時間分解能を得るためには、30ミクロン程度の厚さのサンプルセルを使用する必要がある。一方、測定したい時間分解光吸収の強度は、電子ビームによって生成された活性種の濃度とサンプルセル中での分析光の光路長に比例する。活性種の濃度は、電子ビームの電荷密度に依存するが、30ミクロンの光路長では、いかにレーザーフォトカソード電子銃ライナックの電荷密度が大きいとはいえ、吸収測定は不可能である。

この問題を解決するために、本システムでは、図3に示すような等価速度分光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いえる。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。

現在開発中の等価速度分光パルスラジオリシスでは、励起源としてフォトカソードRF電子銃ライナックから発生したフェムト秒電子パルスを利用し、分析光としてチタンサファイアレーザーから発生したフェムト秒光パルスを用いている。本レーザーは、RF電子銃用レーザーと同様に電子線加速用の2856MHzのRFを1/36に分周した79.3MHzRFと高精度で同期されている。光パルス強度の変動による測定のS/Nの劣化を防止するために、AOMパルスセクターを用いてフェムト秒レーザーのオシレーターから数パルスを切り出し、ダブルパルス測定法を採用した。

図4に、等価速度分光法パルスラジオリシスから得られた水和電子の時間挙動を示す。実験では、厚さ2mmの石英セル内で常温照射し、分析光にはフェムト秒レーザーの基本波(800nm)を用いた。図に示すように、等価速度分光法を用いて電子パルス波面を曲げた時( $\phi=65^\circ$ )の水和

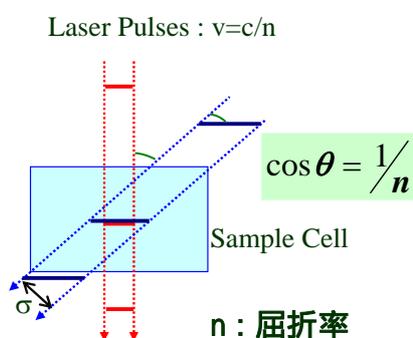


図3: 等価速度分光法

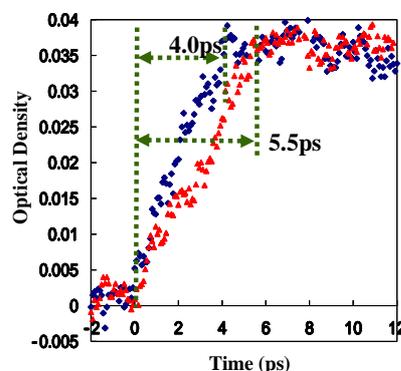


図4: 等価速度分光法による水和電子の時間挙動

電子吸収時間スペクトルの測定時間分解能（4.0ps）は、電子パルス波面を曲げない時（ $\phi=90^\circ$ ）の時間分解能（5.5ps）より 1.5psを向上したことがわかった。また、等価速度分光法を用いたパルスラジオリシスでは、時間分解能への効果だけではなく、吸収強度が明らかに大きく取れることも実験的に確認した。

### 3 . ダブルデッカー電子加速器の開発とアト秒パルスラジオリシスの研究

極限ナノファブリケーションでは、アト秒・フェムト秒領域の現象を解明し、レジストにおけるスパー内反応を制御する必要がある。我々のグループは、ダブルデッカー加速器を開発し、レーザー分析光パルスを使わないアト秒パルスラジオリシスの研究を行っている。

ダブルデッカー型電子加速器は、1台のライナックで上下2つ電子パルスの発生と加速を実現する加速器である。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光学遅延回路により時間差つけ、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。ダブル電子パルスは同じのレーザーパルスから生成されるため、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、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圧縮システム、電子ビーム測定系を構築し、初めてレーザーフォトカソード RF 電子銃を用いたダブルデッカー電子パルスの発生に成功した。図 5 に、発生したダブルデッカー電子パルスのプロファイルとダブル電子パルスのタイミングを示す。本実験では、ダブル電子パルスの時間差を 1.4ns ( 加速器の周波数 2856MHz の 4 周期分 ) 設定した。最後に、そのダブル電子パルスを、磁気パルス圧縮器を用いて圧縮し、パルス長が 380fs と得られた。来年度から、電子パルスから分析光パルスの発生実験を行い、ダブルデッカー電子ビームを用いたパルスラジオリシスの実験を行う予定である。

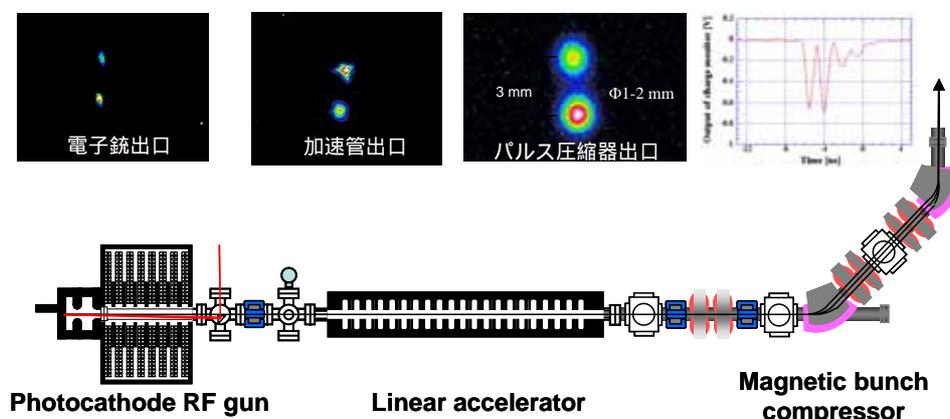


図 5 : ブルデッカー電子パルスのプロファイルとダブル電子パルスのタイミング

#### 4. モンテカルロ法を用いたナノ空間内の反応機構の解析に関する研究

熱化電子の分布は、その後のスパー内不均一反応を決定する要因となる為、電子の熱化過程の解明は放射線化学初期過程の研究にとって重要である。イオン化によって生成された電子は、非弾性散乱による電子の運動エネルギー損失を経て、数百 fs 程度で熱化に至る。氷や n-ヘキサンなどの炭化水素溶媒中での、モンテカルロ法を用いた電子の熱化過程の研究が以前から行われているが、熱化距離分布に関する直接的な実験結果が得られていない為、オンサガー理論に基づいた G-値などによる間接的な検証のみが行われてきた。本研究では、炭化水素及びハロカーボン溶媒中での電子の熱化距離分布を、モンテカルロ法を用いて求め、サブピコ秒パルスラジオリシスでの実験結果と比較することで、ハロカーボン溶媒中で熱化距離が短くなる事の検証を行った。

モンテカルロ法を用いた熱化距離分布の計算は、Rassolovらのn-ヘキサンでの手法を参考し、電子の熱化過程では電子の運動エネルギーによって、溶媒分子の電子励起ポテンシャルエネルギー以下の亜励起電子、溶媒分子の分子内振動エネルギー以下の亜振動励起電子、熱電子に区別した。モンテカルロ法による熱化過程の計算手法として、始め、カチオンラジカルと電子の位置、および電子の初期運動エネルギーを与える。その後、電子は平均自由行程に従って拡散する。この時、電場の影響も考慮する。電子の次の位置が決まれば、ある確率 $k$ で、散乱の弾性ないし非弾性を決定する。非弾性散乱により電子のエネルギーが失われる過程は、亜励起電子ではC-H結合などの分子内振動励起( $3000\text{cm}^{-1}$ )であり、亜振動励起電子では、フォノンなど分子外振動励起( $80\text{cm}^{-1}$ )である。ハロカーボン溶媒では、電子付着解離反応がその断面積に従って起こる。電子付着解離反応の断面積は、凝縮相でのデータは得られていない為、気相のデータを参考にした。以上の過程を繰り返す事で、最終的に電子は熱化するか電子付着解離反応を起こし、計算を終了させる。その時のカチオンラジカルとアニオンの距離を、熱化距離として記録する。

図6に、モンテカルロ法による得られたn-ヘキサンの熱化距離分布と電子付着解離反応を考慮した時の四塩化炭素溶媒での電子の熱化距離分布を示す。用いたパラメータは、平均自由行程 $\lambda=5$ 、C-H結合エネルギー $E_{\text{CH}}=0.4\text{eV}$ 、フォノン $E_{\text{ph}}=0.01\text{eV}$ である。n-ヘキサンにおいて、得られた平均の熱化距離は6.6nmであり、これは過去のパルスラジオリシスの実験から求められた値と一致している。四塩化炭素溶媒においては、n-ヘキサンで得られた全散乱中の非弾性散乱の割合 $k$ を用いて同様の計算を行った。電子付着解離反応を考慮した時の四塩化炭素溶媒での電子の平均熱化距離は、n-ヘキサンの場合より1/3短く、2.5nmであることが分かった。理由の1つとしては、電子の熱化前の付着反応によるスパーサイズの減少と考えられる。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。

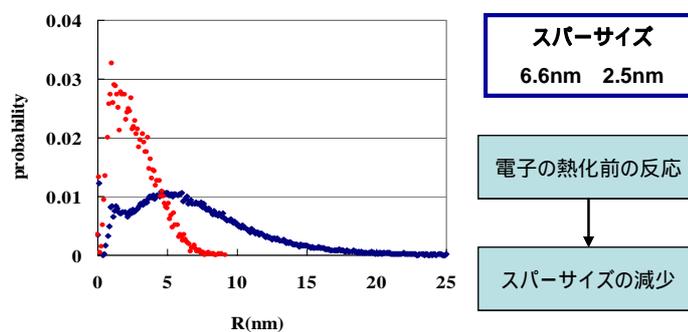


図6: パルスラジオリシスのデータを基にシミュレーションから求めたスパーサイズの分布 (赤: 四塩化炭素、青: n-ヘキサン)

## 論文

- 1) 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., 2004, in press.
- 2) Experimental Observation of 100-femtosecond Electron Bunching by a Technique of Longitudinal Phase-space Rotation in Photoinjector  
J. Yang, K. Kan, T. Kondoh, T. Kozawa, Y. Yoshida and S. Tagawa  
To be submitted in Phys. Rev. Lett.
- 3) Observation of Double-decker Electron Beams in Photoinjector  
J. Yang, Y. Kuroda, T. Kondoh, T. Kozawa, Y. Yoshida and S. Tagawa  
To be submitted in Phys. Rev. Lett.
- 4) Experimental Studies of Transverse and Longitudinal Beam Dynamics in Photocathode RF Gun  
J. Yang, K. Kan, T. Kondoh, T. Kozawa, Y. Yoshida and S. Tagawa  
To be submitted in Jpn. J. Appl. Phys.
- 5) Equivalent Velocity Spectroscopy for Improvement of Time Resolution on Electron Beam Pulse Radiolysis System  
T. kondoh, J. Yang, T. Kozawa, Y. Yoshida, and S. Tagawa  
To be submitted in Radiat. Phys. Chem.

## 国際会議

- 1) Development of a Femtosecond Pulse Radiolysis for Reaction Analysis in nano-space  
Y. Yoshida, J. Yang, T. Kozawa and S. Tagawa  
9<sup>th</sup> European Particle Accelerator Conference, July 5-9, 2004, Lucerne, Switzerland
- 2) Generation of a Femtosecond Electron Photocathode Linac for Nanoscience and Nanotechnology  
J. Yang, T. Kozawa, Y. Yoshida, and S. Tagawa  
9<sup>th</sup> European Particle Accelerator Conference, July 5-9, 2004, Lucerne, Switzerland

- 3) Subpicosecond Pulse Radiolysis Study on Geminate Ion Recombination Process in n-Dodecane  
Y. Yoshida, A. Saeki, T. Kozawa, J. Yang, and S. Tagawa  
14<sup>th</sup> International Conference on Ultrafast Phenomena, July 25-30, 2004, Niigata, Japan
  
- 4) Generation of Low-emittance Femtosecond Electron Pulse with Laser Photocathode RF Linac  
J. Yang, K. Kan, H. Tomosada, K. Takeya, T. Kondo, T. Yamamoto, T. Kozawa, Y. Honda, Y. Yoshida, and S. Tagawa  
8th SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Dec. 6-7, 2004, Osaka, Japan
  
- 5) Equivalent Velocity Spectroscopy for Improvement of Time Resolution on Electron Beam Pulse Radiolysis System  
T. Kondoh, H. Tomosada, K. Kan, J. Yang, T. Yamamoto, T. Kozawa, Y. Honda, Y. Yoshida, and S. Tagawa  
Third 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" International Symposium. March 9-10, 2004, Makino, Japan
  
- 6) Development of Femtosecond Electron Pulse for Ultrafast Reaction Analysis in Nanospace  
J. Yang, K. Kan, T. Kondoh, T. Yamamoto, T. Kozawa, Y. Yoshida, and S. Tagawa  
Third 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" International Symposium. March 9-10, 2004, Makino, Japan
  
- 7) Generation of Double-decker Electron Pulses in Photocathode RF Gun Linac  
K. Kan, Y. Kuroda, T. Kondoh, J. Yang, and Y. Yoshida  
Third 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" International Symposium. March 9-10, 2004, Makino, Japan
  
- 8) Study of Annihilation Processes of Positrons in Polymers  
Y. Honda, T. Shimada, N. Kimura, Y. Yoshida, and G. Isoyama  
Third 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" International Symposium. March 9-10, 2004, Makino, Japan

## 国内会議

- 1) フォトカソードRF電子銃ライナックの開発

- 楊金峰、菅晃一、友定寛、竹谷考司、山本保、古澤孝弘、誉田義英、吉田陽一、田川精一  
第29回リニアック技術研究会、2004、東京
- 2) 阪大・産研・電子ライナックの現状  
磯山悟朗、加藤龍好、柏木 茂、楊金峰、山本保、誉田義英、古澤孝弘、関修平、佐伯昭紀、  
吉田陽一、田川精一、末峰昌二  
第29回リニアック技術研究会、2004、東京
- 3) レーザーフォトカソードRF電子銃ライナックにおける超短パルス電子線発生のシミュレーション  
菅晃一、楊金峰、誉田義英、吉田陽一  
第29回リニアック技術研究会、2004、東京
- 4) S-バンドフォトカソードRF電子銃ライナックの性能  
菅晃一、友定寛、島田巧、竹谷考司、楊金峰、古澤孝弘、誉田義英、吉田陽一、田川精一  
日本原子力学会2004年秋の大会、2004、京都
- 5) フォトカソードRF電子銃ライナックを用いた新規パルスラジオリシスシステムの構築  
友定寛、菅晃一、竹谷考司、楊金峰、山本保、古澤孝弘、誉田義英、吉田陽一、田川精一  
日本原子力学会2004年秋の大会、2004、京都
- 6) 低速陽電子発生用モデレーターの検討  
藤井崇弘、島田巧、木村雄、誉田義英、吉田陽一  
日本原子力学会2004年秋の大会、2004、京都
- 7) 高時間分解能パルスラジオリシスの開発と放射線化学初期過程の研究  
吉田陽一、楊金峰、古澤孝弘、誉田義英、田川精一  
第47回放射線科学討論会、2004、札幌
- 8) モンテカルロ法を用いたハロカーボン溶媒中での電子の熱化過程及びジェミネートイオン再結合に関する研究  
竹谷考司、楊金峰、古澤孝弘、吉田陽一、田川精一  
第47回放射線科学討論会、2004、札幌
- 9) フェムト秒パルスラジオリシスシステムの開発 (I) フォトカソードRF電子銃ライナックによる短パルス電子線の発生  
楊金峰、菅晃一、友定寛、竹谷考司、山本保、古澤孝弘、吉田陽一、田川精一  
第47回放射線科学討論会、2004、札幌

- 10) フェムト秒パルスラジオリシスシステムの開発(II)新規時間光吸収測定システムの構築  
友定 寛、楊 金峰、吉田陽一  
第47回放射線科学討論会、2004、札幌
- 11) フェムト秒パルスラジオリシスの開発(I)高輝度フェムト秒電子パルスの発生  
楊金峰、近藤孝文、古澤孝弘、吉田陽一、田川精一  
日本原子力学会、2005年春、東京
- 12) フェムト秒パルスラジオリシスの開発(II)等価速度分光法による時間分解能の向上  
近藤孝文、友定寛、菅晃一、楊 金峰、吉田陽一  
日本原子力学会、2005年春、東京
- 13) フェムト秒パルスラジオリシスの開発(III)ダブルデッカー電子ビームの発生とビーム特性の測定  
菅晃一、楊金峰、近藤孝文、吉田陽一  
日本原子力学会、2005年春、東京
- 14) イオンビームパルスラジオリシス法による中間活性種の挙動の解明  
吉田陽一、楊金峰、関 修平、田川精一、柴田裕実、南波秀樹、小嶋拓治、田口光正  
第13回TIARA研究発表会、2004、高崎
- 15) フォトカソードRF電子銃を用いた超短パルスシングルバンチ電子ビームの発生  
楊金峰  
日本物理学会第60回年次大会、2004、東京
- 16) フォトカソードRF電子銃ライナックの開発  
楊金峰  
第2回高周波電子銃研究会、2004、播磨(Spring8)

## 共同研究

- 1) ナノストラクチャー内放射線誘起反応高時間分解測定  
日本原子力研究所 東海研究所
- 2) パルスラジオリシス法を用いたイオン性溶液化学的研究  
日本原子力研究所 東海研究所
- 3) 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
- 4) イオンビームによる超微細構造体の形成  
日本原子力研究所 高崎研究所

5) ナノフォトニック結晶放射光  
広島大学

6) フォトカソードRF電子銃と高品質電子ビームの開発  
住友重機械工業株式会社技術開発センター

## 科研費、助成金等

吉田陽一

科学研究費補助金(基盤研究(A)(2))

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

8,900千円

## ナノ量子ビーム開発研究分野

磯山悟朗（いそやま ごろう）

### 略歴

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



専門分野 : 加速器物理学

所属学会 : 日本物理学会、放射光学会、レーザー学会、放射線安全管理学会、日本加速器学会

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

趣味 : 身体を動かすこと

誉田義英（ほんだ よしひで）

### 略歴

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



専門分野 : 放射線科学  
所属学会 : 日本物理学会、応用物理学会、日本原子力学会

木村徳雄 (きむら のりお)

略歴

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

専門分野 : 物理有機化学、有機薄膜  
所属学会 : 日本化学会  
趣味 : 山歩き



## 研究概要

### 1. 電子線形加速器の高性能化とナノ量子ビームの研究

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

L バンド電子ライナックは、加速器量子ビーム実験室の主要な装置の一つであり、パルスラジオリシスによるサブピコ秒・ナノメートル領域の時空間反応解析や遠赤外自由電子レーザー (FEL) の研究に利用されている。3 台の RF 空洞から構成されるサブハーモニックバンチャー (SHB) システムを装備して最大電荷量 91 nC の単バンチ電子ビームを発生することが出来る世界有数の性能を持つ加速器である。昭和 53 年の完成以来共同利用に供されてきたが、電源類を中心とする機器の老朽化と、建設以来の時間経過による装置性能の陳腐化が問題になっていた。平成 14 年に産業科学ナノテクノロジーセンターが設置されたのを機会にして予算が認められ、L バンド電子ライナックの性能向上を目指して大規模な改造を行なった。改造の主題は、高い安定性と再現性の実現である。加速用 RF パワーを供給するクライストロンと、その高圧電源であるパルスモジュレーター電源、RF パワー伝送路、SHB 電源、電磁石用電源などほとんど全ての電源類を更新した。更に、クライストロン室用インバーター方式空調機と、高安定冷却水システム、放射線安全用インターロックシステムなどを更新し、クライストロンモジュレーター電源用 AVR を新たに導入した。これに加えて、運転状態の再現性の向上と、誰もが利用しやすい加速器とするために、計算機制御システムを新たに導入した。また、加速器の高安定化とサブピコ秒パルスラジオリシスの時間分解能を向上するために新しいタイミングシステムを導入した。

S バンドライナックには現在 2 種類あるが、本研究室における陽電子に関連する実験では、従来からの 3 本の加速管を使用する、代表的電子エネルギーが 100 MeV の電子ライナックを主として利用している。陽電子発生で用いる RF 電源は 3 台あり、この内 1 台が新たに更新されたもので、RF 電子銃付き S バンドライナックに供給されている。他の 2 台については直流電源部のみが更新された。前年度では新たに RF 電子銃付き電子ライナックの設置に伴い、主な S バンドライナックの電源をライナック棟 B2 から B1 へ移設した。これに伴い RF 伝送系の延長や信号ケーブルの敷設等も付随して行われた。本年度は装置の立ち上げを行い、これらの変更に伴う問題点の改良を行った。特に問題となったのは新規に設置した RF 導波管の放電であり、この対処に多くの時間が割かれ、ライナックを用いて陽電子の利用実験を行うまでには至らなかった。一方、クライストロンも 1 本真空劣化のため RF パワーが取れなくなり交換した。

## 2. 陽電子を用いた高分子内自由体積の研究

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

従来から行われてきている陽電子を用いた自由体積評価のための測定法として *o*-Ps の寿命測定や S パラメーター測定がある。これらの内、*o*-Ps の寿命は自由体積を構成する空隙の大きさの評価に用いられているため、特に重要なパラメーターとなっている。一般に *o*-Ps の寿命はその周辺の電子密度に依存しているため、欠陥等では寿命が長くなる。これまで井戸型ポテンシャル中での *o*-Ps の消滅時間の計算結果(一部のパラメーターはゼオライトでの実験結果を用いている)を用いて、*o*-Ps の寿命から自由体積の大きさ(ここでは自由体積は粒状の空間で構成されていると仮定)の評価がなされてきているが、特に反応性の高い高分子材料内でのポジトロニウムの消滅過程は、様々な官能基の存在や分子構造の複雑さのためこのような単純なモデルでは考え難い。更に最近では入射陽電子が生成する 2 次電子が生成されることによる、捕捉電子やラジカル電子の存在が陽電子や *o*-Ps の消滅過程に大きな影響を及ぼすこともわかってきており、この消滅過程を詳しく調べるのが重要な課題となっている。このような実験では線の検出効率が著しく低下するため、高強度陽電子源が必要である。

本年度は S バンドライナックにトラブルが多く発生したため、これを用いた陽電子利用実験を行うまでには至らなかったが、前年度までに行ってきた、新型モデレーターによる陽電子ビーム生成実験は行った。また、陽電子寿命-S パラメーター同時測定法 (AMOC) を用いた実験を放射性同位元素を用いて行った。

### 2.1 本研究分野における研究課題(装置開発を中心として)

#### モデレーターの改良による高強度陽電子ビームの生成

AMOC や同期したドップラー拡がり計測など、同期回路を多く持つ計測法が重要となってきているが、このような測定系では線の検出効率が著しく低下するため、高強度短パルス陽電子ビームが不可欠である。ライナックを用いた陽電子発生では、低速陽電子を生成するための、モデレーターと呼んでいる部分の効率を、如何に上げるかが重要な研究課題である。また、後述する陽電子回折実験を効率よく行うためには、陽電子ビーム径もできるだけ小さいほうがよい。そこで、小型で低速陽電子生成効率の高い新型モデレーターを、数値計算を基に設計・製作し陽電子ビームの生成を試みた。数値計算からは従来型に比べ数倍高い生成効率が期待された。図 1 に新型モデレーターを、図 2 に陽電子ビームラインの途中で観測された陽電子ビーム像を示す。また、陽電子ビームが確認できた段階で、今後輸送パラメータの最適化を行うと共に、

陽電子量の計測も行う予定である。



図 1 . 新型モデレーター

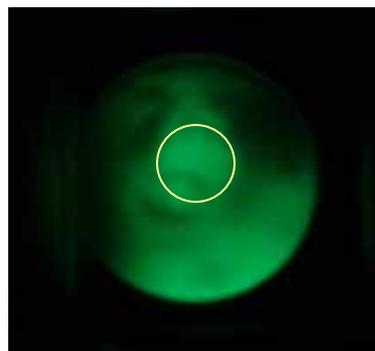


図 2 . 新型モデレーターを用いた陽電子ビーム像 (円内; 直径約 10 mm)

### 陽電子ビームを用いたAMOC測定

AMOCとはすでに記したように、消滅ガンマ線のエネルギースペクトルと陽電子の寿命を同時に測定し、各寿命成分に対応するエネルギースペクトルを計測する計測法である。パルス化された陽電子ビームを用いて寿命測定を行う場合、高計数効率(毎秒 1000 カウント程度)を得るために検出器 (BaF<sub>2</sub>シンチレーター) をできるだけ試料に近づけて計測しているが、本計測法では対向してBaF<sub>2</sub>シンチレーターと高純度ゲルマニウム検出器を配置する必要があり、このためチェンバーを含めた改造が必要となる。また、高純度ゲルマニウムに代わり位置検出型のBGOシンチレーターを用いて角相関も寿命と同時測定する方法を準備している。このシステムを用いて官能基の異なる高分子材料における陽電子や $o$ -Psの消滅過程を調べることで、高分子内のナノ空間構造との関係を見出すことを目的としている。

### 陽電子回折実験系の整備

陽電子回折実験を行うためには高輝度陽電子ビームが必要となる。高輝度化とは陽電子が物質(リモデレーター)から再放出される際、放出角度の拡がり小さいことを利用してビームのエミッタンスを低減させ、結果的に輝度(ビーム強度/エミッタンス)を向上させる方法である。以前行った陽電子ビームの高輝度化実験では、リモデレーター上でのビーム径が大きかったために、輸送効率が悪化し、回折実験を行なうまでには至らなかった。本年度は輸送効率の向上を目指し、図 1 に示すモデレーターを設置し陽電子ビームの生成を行った(図 2)。今後、このビームを用いた高輝度化実験を行い、反射高エネルギー陽電子回折実験を行う予定である。

## 2.2 AMOCを用いた陽電子の消滅過程に関する研究

オルソポジトロニウム( $o$ -Ps)の寿命はこれを取り巻く電子の運動量と電荷密度に依存しており、電子の運動量が同程度である場合には、 $o$ -Psの寿命は電荷密度で決まると考えられる。 $o$ -Psの寿命と空隙サイズとの関係式は、Tao-Eldrupの式として知られ

ているが、この式の導出には、ポテンシャルの空間的一様性が仮定されており、局所的な電場の存在や親和性等は考慮されていない。多くの高分子では官能基の存在により、空間的な一様線が成り立っていない。本研究ではモデルを更に現実に近づけるため、陽電子と対消滅する相手電子の運動量や *o*-Ps のピックアップ消滅する時の、相手電子の運動量を評価することで、*o*-Ps の消滅過程を明らかにすることを目的として AMOC 法を用いた測定を行っている。

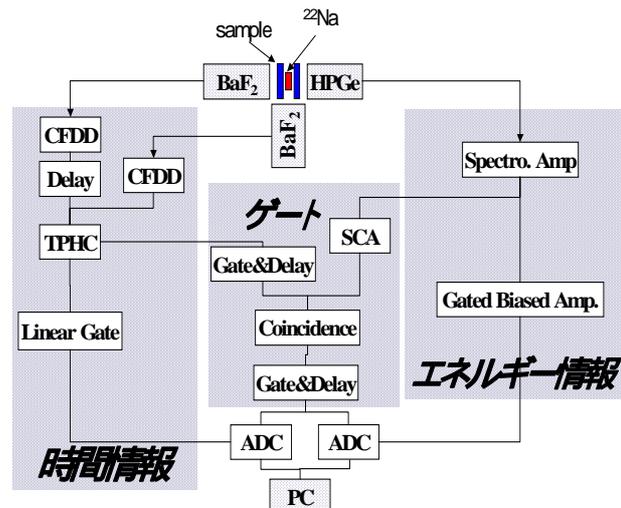


図3 AMOC測定系

AMOC測定法とは、二本の消滅ガンマ線から陽電子の寿命と消滅相手電子の運動量の情報を同時に計測する方法である。この測定系を図3に示す。この測定方法を用いることで、陽電子寿命スペクトルを構成している3つの陽電子の消滅過程 (*p*-Ps となって消滅、 $e^+$ のまま消滅、*o*-Ps 形成後ピックアップ消滅) に対応して、相手電子の運動量 (ここではSパラメーターとして表現) を分けて考えることが可能となる。

陽電子線源としてSバンドライナックを利用した陽電子ビームが未だ利用できなかったため、前年度同様 $^{22}\text{Na}$ を用いた。試料には前年度用いたポリスチレン (PS)、ポリプロモスチレン (PBS)、ポリヒドロキシスチレン (PHS) に加え、ポリメチルスチレン (PMS)、ポリクロロスチレン (PCS) に対し、極性基の違いによる陽電子、*o*-Ps の消滅相手電子の運動量の比較を行った。ただし今回は試料作成の仕方等で問題点が生じないようにするため、各高分子をペレット状に加工せず、精製後パウダーのまま測定を行った。

結果は、全ての試料に対し *o*-Ps に対応する S パラメーターの方が自由消滅に対応する S パラメーターより大きかった。PS や PMS 等の捕捉電子を多く含むと考えられる物質では、Ps の生成量が多く、ハロゲンのようにラジカル電子のスキャベンジャーとして働く官能基が存在する場合には Ps の生成量は少なかった。このことは AMOC 法を用いなくてもわかるが、PS や PMS のように低エネルギーの捕捉電子が存在している場合でも、自由消滅する電子の運動量は大きく、多くは捕捉電子と自由消滅していない、という結果が AMOC 測定から示唆された。また、*o*-Ps に限れば、寿命と S パラメーターの関係は、ハロゲンを含む場合と含まない場合で2つのグループに分かれ、夫々のグループでは寿命が増えるに従い対消滅電子の運動量も下がる傾向があった。*o*-Ps の消滅に関連するエネルギースペクトルだけを抽出し、PS をリファレンスとして直接光電ピークの差をとることで、対消滅電子運動量分布に関する情報を得ることも AMOC 法を用いることで可能となる。この分布と S パラメーターを比較すると、必ずしも高エネルギーを含むものについては、傾向が一致していない。このデー

タは分子軌道計算の結果と比較し、対消滅相手電子をある程度特定する上で重要となる。分子軌道計算については Win MOPAC3.9 を用いて、上記試料中のエネルギー準位計算を行い、実験データとの比較・検討を現在行っている。

今回の実験で AMOC 法は陽電子や *o*-Ps の消滅過程を明らかにする有力な方法であることがわかった。今後測定点数を増やし、データの誤差を小さくすること、試料をペレットにした場合との比較、*o*-Ps の生成確率や消滅断面積に関する理論的考察などを行う必要がある。

### 2.3 陽電子寿命測定法によるレジスト材料の放射線化学初期過程に関する研究

電子線レジスト材料の性能に関する研究は主に放射線化学の手法を用いて研究されている。レジスト材料として用いられているポリマーに電子線を照射するとイオン化が起こり、ポリマーカチオンと電子が生成する。この電子はポリマー中を移動し、親イオンおよび中性分子に捕捉される。一方、10nm オーダーの電子線リソグラフィでは線の凹凸が問題になり、照射線量に依存することから、高い電流効率が要求される。したがって、生成した二次電子が重要な働きをすることが示唆される。しかし、固体中では電子の親イオンとの反応および中性分子による捕捉が非常に速いので、反応動力学を観測するのは非常に難しい。

近年、陽電子寿命測定法が高分子材料中のナノ空孔の測定に利用されている。ポジトロンを物質中に照射すると、電子線照射の場合と同様イオン化が起こる。ポジトロニウム (Ps) は熱化したポジトロンが電子を捕捉することによって生成し、長寿命成分であるオルトポジトロニウム (*o*-Ps) の寿命から空孔のサイズが推測される。スーパーモデルによると、Ps の生成は、媒質および添加物による電子の捕捉ならびに電子と親イオンの再結合と競争的に起こる。したがって、Ps の生成量を測定することによって電子の捕捉反応を推測できる、

上記の観点から、本研究では、ポリメチルメタアクリル酸およびポリスチレンにハロゲンや  $C_6H_5CH_2O$  等の官能基を導入し、*o*-Ps の生成量に対する影響を検討した。測定結果は大きな生成量の低下を示し、官能基による電子の捕捉を示唆する。この結果は、電子の親イオンによる捕捉が  $\sim 1\text{ns}$  で起こることを考えると、電子は官能基によって捕捉され、その過程が Ps の生成過程 (数 ps) よりも速いことを示す。これらの結果は、陽電子寿命測定法が固相中での放射線化学初期過程を研究するのに有効である。さらに、レジスト材料に対する電流効率を見積もるのにも有用であることを示している。

## 論文

1. Formation of defect structures in Au-polysilane interfaces probed by low energy positron beams  
Y. Terashima, S. Seki, M. Tashiro, Y. Honda, S. Tagawa  
Solid State Commun. **132** (2004) 641-645.
2. Study of Interfaces in Polymer Bilayers by Slow Positron Beam  
Y. Terashima, S. Seki, K. Miyamoto, M. Tashiro, Y. Honda, S. Tagawa  
Material Science Forum **445-446**(2004)349-351.
3. Stability Analysis of the RF Linac Based on an AR Model  
R. Kato, S. Isaka, H. Sakaki, S. Kashiwagi and G. Isoyama  
Nucl. Instrum and Methods **A528** (2004) 244-248

## 国際学会

1. Positron Annihilation Lifetime Spectroscopy as a Novel Method to Investigate the Radiation Chemistry of Resists  
N. Kimura, K. Miyamoto, Y. Honda, G. Isoyama, S. Tagawa  
8th SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Dec. 6-7, 2004, Osaka, Japan
2. Study on Positron Annihilation Process in Nano Vacancy  
T. Shimada, N. Kimura, Y. Honda, Y. Yoshida  
8th SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Dec. 6-7, 2004, Osaka, Japan
3. Design of a New Moderator for Intense Slow Positron Beam  
T. Fujii, T. Shimada, N. Kimura, Y. Honda, Y. Yoshida, G. Isoyama, S. Tagawa  
8th SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Dec. 6-7, 2004, Osaka, Japan
4. Femtosecond Electron Pulse with Laser Photocathode RF Linac  
J. Yang, K. Kan, H. Tomosada, K. Takeya, T. Kondo, T. Yamamoto, T. Kozawa, Y. Honda, Y. Yoshida, and S. Tagawa  
8th SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004,

Dec. 6-7, 2004, Osaka, Japan

5. Equivalent Velocity Spectroscopy for Improvement of Time Resolution on Electron Beam Pulse Radiolysis System  
T. Kondoh, H. Tomosada, K. Kan, J. Yang, T. Yamamoto, T. Kozawa, Y. Honda, Y. Yoshida, and S. Tagawa  
Third 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" International Symposium. March 9-10, 2004, Makino, Japan
6. Study of Annihilation Processes of Positrons in Polymers  
Y. Honda, T. Shimada, N. Kimura, Y. Yoshida, and G. Isoyama  
Third 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" International Symposium. March 9-10, 2004, Makino, Japan
7. Upgrade of the L-band Linac at ISIR, Osaka University for Highly Stable Operation  
R. Kato, G. Isoyama, S. Kashiwagi, T. Yamamoto, S. Suemine, Y. Yoshida, Y. Honda, T. Kozawa, S. Seki and S. Tagawa  
FREE ELECTRON LASERS 2003, Proc. of the 25th International Free Electron Laser Conference and the 10th FEL Users Workshop, Tsukuba, Ibaraki, Japan, September 8-12, 2003, Elsevier 2004, pp.II-43 - II-44.

## 国内学会

1. フォトカソードRF電子銃ライナックの開発  
楊金峰、菅晃一、友定寛、竹谷考司、山本保、古澤孝弘、誉田義英、吉田陽一、田川精一  
第29回リニアック技術研究会、2004、東京
2. 阪大・産研・電子ライナックの現状  
磯山悟朗、加藤龍好、柏木 茂、楊金峰、山本保、誉田義英、古澤孝弘、関修平、佐伯昭紀、吉田陽一、田川精一、末峰昌二  
第29回リニアック技術研究会、2004、東京
3. レーザーフォトカソードRF電子銃ライナックにおける超短パルス電子線発生シミュレーション

菅晃一、楊金峰、譽田義英、吉田陽一  
第29回リニアック技術研究会、2004、東京

4. S-バンドフォトカソードRF電子銃ライナックの性能

菅晃一、友定寛、島田巧、竹谷考司、楊金峰、古澤孝弘、譽田義英、吉田陽一、  
田川精一  
日本原子力学会2004年秋の大会、2004、京都

5. フォトカソードRF電子銃ライナックを用いた新規パルスラジオリシスシステムの  
構築

友定寛、菅晃一、竹谷考司、楊金峰、山本保、古澤孝弘、譽田義英、吉田陽一、  
田川精一  
日本原子力学会2004年秋の大会、2004、京都

6. 低速陽電子発生用モデレーターの検討

藤井崇弘、島田巧、木村雄、譽田義英、吉田陽一  
日本原子力学会2004年秋の大会、2004、京都

7. 高時間分解能パルスラジオリシスの開発と放射線化学初期過程の研究

吉田陽一、楊金峰、古澤孝弘、譽田義英、田川精一  
第47回放射線科学討論会、2004、札幌

8. 高分子内の陽電子挙動解析

島田巧、譽田義英、木村徳雄、藤井崇弘、田川精一、磯山悟朗  
第47回放射線科学討論会、2004、札幌

## ナノビームプロセス分野

田川 精一 Seiichi TAGAWA

### 略歴

1969年 東京大学工学部原子力工学科卒業  
1973年 東京大学工学系研究科博士課程中退  
1973年 東京大学工学部助手  
1981年 東京大学原子力総合センター助教授  
1993年 大阪大学産業科学研究所教授  
1995年 放射線実験所所長  
2001年 日本放射線化学会会長  
2002年 加速器量子ビーム実験室室長  
2004年 産業科学研究所副所長

現在 産業科学研究所副所長、日本アイソトープ協会理事・量子ビーム専門委員会委員長、日本学術会議原子力基礎専門委員会委員長、日本原子力学会理事・企画委員会委員長、日本加速器学会評議員、ケイ素化学協会理事、原子力2法人統合に関する懇談会構成員等

専門分野 放射線化学、放射線利用、ビーム工学、分子工学

受賞 日本放射線化学会賞

趣味 スキーと読書



関 修平 Shu SEKI

### 略歴

1991年 東京大学 原子力工学科卒  
1993年 東京大学大学院 システム量子工学専攻 修士課程 修了  
1994年 米国アルゴンヌ国立研究所  
1995年 東京大学大学院 システム量子工学専攻 博士課程 中退  
1995年 大阪大学産業科学研究所 助手  
2000年 大阪大学工学博士  
2001年 オランダデルフト工科大学 研究員  
2002年 大阪大学産業科学研究所 産業科学ナノテクノロジーセンター 助手  
2003年 大阪大学産業科学研究所 産業科学ナノテクノロジーセンター 助教授

専門分野 放射線化学、高分子化学、材料物性・化学

所属学会 日本化学会、米国化学会、応用物理学会、放射線化学会



趣味 スキー、釣り、登山（登山家としても、まだまだ全然です。）

古澤 孝弘 Takahiro KOZAWA

略歴

1990年 東京大学 原子力工学科卒

1992年 東京大学大学院 工学系研究科原子力工学専攻  
修士課程 修了

1993年 東京大学大学院 工学系研究科原子力工学専攻  
博士課程 中退

1993年 東京大学工学部 助手

1996年 大阪大学産業科学研究所 助手

2002年 大阪大学産業科学研究所  
産業科学ナノテクノロジーセンター 助手

2003年 大阪大学工学博士

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



専門分野 ナノリソグラフィ、レジスト反応機構、応用ビーム工学

所属学会 応用物理学会、原子力学会、放射線化学会

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

## 研究概要

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

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

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

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

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

イオントラック内部における理論的取扱[6]から導出される付与エネルギー密度との関連において、実測された化学コア半径は、それぞれ用いたポリシランのゲル化線量になると見積もられる軌道中心からの距離に一致しており、ナノワイヤー表面付近ではPMPSの単純ゲル化が進行していると予測される[7]。一方で溶媒現像過程後も、基板の上に観測されるナノワイヤー数密度が入射する粒子数を反映する事は、形成されたナノワイヤーの一端が基板の上に化学結合し

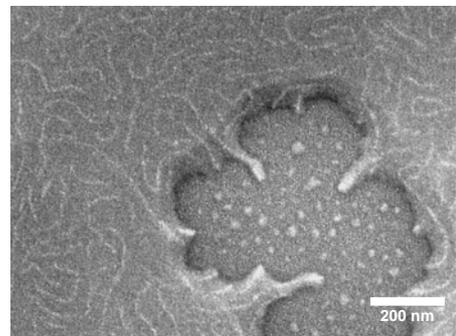


Figure. 1 A SEM image of nano-wires adhered on a Si substrate observed on the way of development procedure. The nano-wires were formed by the 450 MeV  $^{128}\text{Xe}^{25+}$  irradiation to a PS3 thin film (1  $\mu\text{m}$  thick) at  $5.0 \times 10^8$  ions/ $\text{cm}^2$ . The development was performed b-109 - using hexane, and stopped at the proper time.

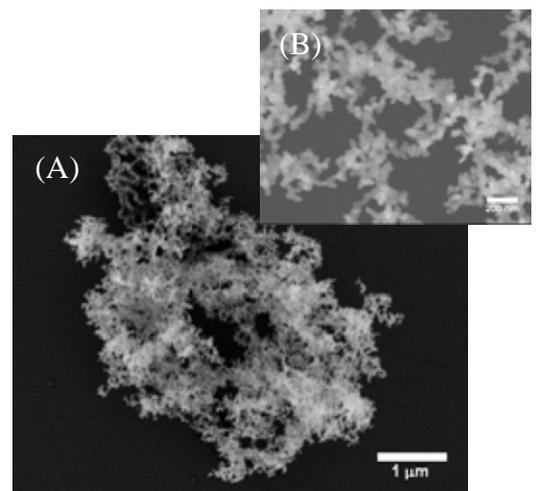


Figure. 2 A SEM image of condensed nano-wires on a Si substrate after a development procedure. The nano-wires were formed by the 450 MeV  $^{128}\text{Xe}^{25+}$  irradiation to a PS1 thin film (0.45  $\mu\text{m}$  thick) at  $1.0 \times 10^{11}$  ions/ $\text{cm}^2$ . A superimposed figure indicates the enlarged view of the nanowire entanglements.

ていることを示唆している。図1に表面処理を行った基板を用い、照射後の現像途中で基板表面を一部露出させた試料のSEM像を示す。露出した基板表面に対しナノワイヤー端は半島状構造を示すように観測されることから、基板へのワイヤー接着が起こっている事が明らかである。また、形成されたナノワイヤーと未反応ポリシラン部位との間に明確なコントラストが観測され、既に報告したコア部分のSiC転化を直接的に示唆している。

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

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

## 2. 量子ビーム誘起反応を利用した単一分子物性の評価 (関修平・田川精一)

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

poly(*n*-alkylphenylsilane) (PSn: nは側鎖アルキル基炭素数)を主として濃度0.2~2.0 mmol dm<sup>-3</sup>(base mol unit)のベンゼン(Bz)溶液とし、電子線パルス照射及び添加物の有無によってPSn骨格上に電子・正孔を選択的に付与する。33~35 GHz Q-band Microwaveの導入下、幅の電子線パルスを照射し、生成された活性種によるMicrowave吸収の時間分解測定(PR-TRMC)[11]を行った。全活性種生成量の定量は、同じ溶液系にて過渡吸収測定法(TAS)[12]により定量した。装置全体のコンセプトを図3に示す。

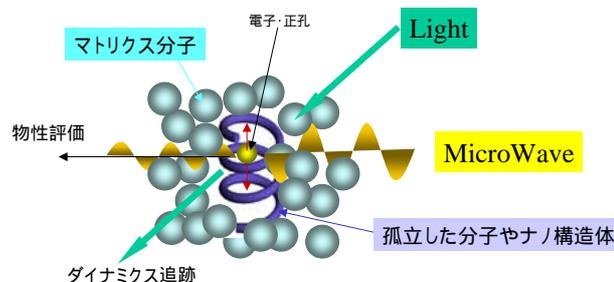


Figure3. Schematic image of the PR-TRMC and TAS measurement technique.

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

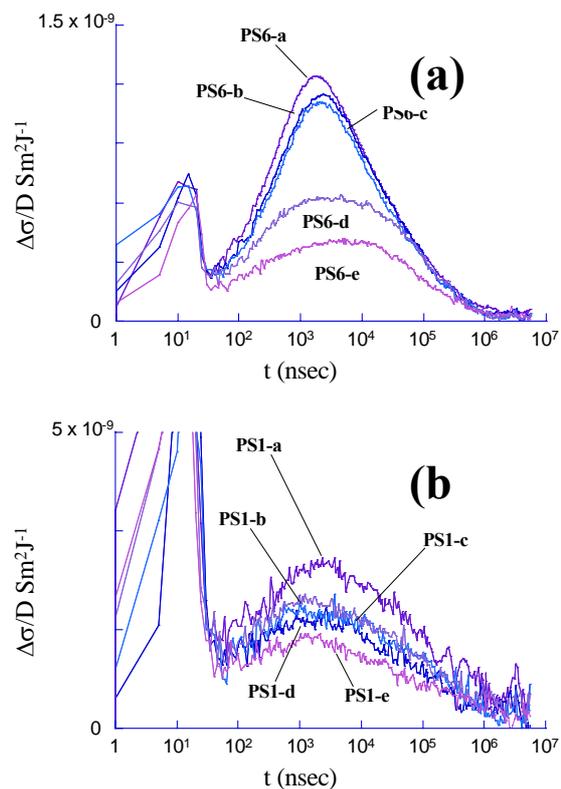
$$\Delta\sigma = F [\text{PSn}^{\bullet+}] \frac{\mu_{1D}^+}{3} \quad (3)$$

ここで、Fはファラデー定数である。(2)式に示した反応により、系全体に電子線照射によって形成されたポリシランカチオンラジカルの濃度 $[\text{PSn}^{\bullet+}]$ は、TAS法を用いた反応解析により決定される[13]。様々に分子量の異なるPS1及びPS6についてTRMC法により観測された伝導度の時間依存性を図4に示した。用いられた分子量範囲はPS1がPS6をはるかに凌駕するにもかかわらず、PS1では殆ど分子量による影響が見られない。一方で、PS6においては明確な分子量依存性を示し、数平均分子量においておよそ $1.0 \times 10^4$ で飽和に至る。ポリシランの基底状態における近紫外吸収と固有粘度指数との相関、並びに高分子鎖持続長 - 粘度に関するKuhnの式について、分子量基準となるpolystyreneとPS6との骨格構造の違いを考慮すると、上記飽和分子量はPS6の重合度にして約60 unitsとなり、PS6上の正孔はおよそ60 Si原子ユニット程度に非局在化していると思積られる。

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

### Reference

- 1) S. Seki, et al., *Radiat. Phys. Chem.* **50** (1997) 423, 2) S. Seki, et al., *J. Phys. Chem.* **B103** (1999) 3043, 3) S. Seki, et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **36** (1997) 5361, 4) Seki et al., *Radiat. Phys. Chem.* **49** (1997) 410, 5) K. Maeda, et al., *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.* In press, 6) J. L. Magee and A. Chattarjee. *Kinetics of Nonhomogeneous Processes*; G. R. Freeman Ed.; Chapter 4; (1987) 171, 7) S. Seki, et al., *Adv. Mater.* **13** (2001) 1663. 8) for a review, Conwell, E. M. in *Handbook of Organic Conductive Molecules and Polymers* (ed. Nalwa, H. S.) 1-45 (Wiley, New York, 1997). 9) S. Seki, et al., *Phil. Mag. B* 1999, **79**, 1631. 10) Y. Kunimi, et al., *Solid State Commun.* 2000, **114**, 469. 11) R.J.O.M. Hoffman, et al., *Nature*, 198, **392**, 54. 12) S. Seki, et al., *Macromolecules*, 1999, **32**, 1080. 13) S. Seki, et al., *Adv. Mater.* **14** (2002) 228.



**Figure 4.** Conductivity transients of PS6 (a) and PS1 (b) cation radicals in Bz at 2.0 mM conc.(base mol unit) observed by ~56 Gy electron irradiation. The molecular weights of PS6-a ~ e are  $M_n = 58, 32, 8.3, 6.1, \text{ and } 4.2 (x 10^3)$ ,  $M_w = 98, 57, 18, 12, \text{ and } 9.4 (x 10^3)$ , respectively. Those of PS1-a ~ e are  $M_n = 220, 75, 32, 11, \text{ and } 8.0 (x 10^3)$ ,  $M_w = 490, 170, 49, 17, \text{ and } 9.6$

### 3 . 極限ナノビームプロセスの追求と展開 - レジストプロセスのモデリング

(古澤孝弘・田川精一)

#### 1. 序

現在の半導体産業はリソグラフィと呼ばれる超微細加工技術に支えられている。リソグラフィ技術は年々進歩を遂げ2005年にはDRAM量産ラインにおいてでさえ90 nmをきる加工が行われようとしている。今から10年以内に32 nmの加工を1.2 nmの精度で行うことが求められており、まさに、“ナノリソグラフィ”と呼ばれる領域に入ろうとしている。我々が普段使っているコンピューターに入っているCPUが“ナノチップ”と呼ばれる時代がやってこようとしている。過去半世紀にわたって培われたリソグラフィ技術は、当然、今話題のナノテクノロジーを支える加工技術の一つとしても大きく期待されている。現在の100 nm近傍の大量生産はKrFあるいはArFエキシマレーザーといった光を露光源として加工が行われている。しかし、光による加工は波長の制限を受けるため、位相シフトマスクのような超解像技術を駆使しても波長の4分の1までの加工が物理的限界であると考えられている(もっとも、近年、多光子吸収やエバネッセント光を利用することにより、光でもさらに微細な加工が可能であることが示されているが)。このような光に変わって、電子ビームやEUV(13.4 nm)といった量子ビームが次期露光源として期待されている。実際、これらの量子ビームは波長が短い分、光よりも容易に微細パターンをきることが可能で、特に電子ビームでは10 nmをきる加工が実際に行われている。しかし、解像力だけで、工業的に使い物になるかということとそうは行かず、感度やコントラスト、表面の滑らかさ、基盤密着性、そして、もちろんコストといった問題がすべて解決されなければ使用されることはない。半導体製造用のリソグラフィに関しては、産業界でロードマップが作製され、必要とされる性能がこと細かに記載されている。将来のナノテク産業では、用途に応じて、それぞれ個別の性能が要求されることと考えられる。そのときに何がメインの加工手段になるかは、現在のところ不明瞭で、すべて今後のハードウェア、材料の開発にかかっている。

このような背景の下、市場の要求に見合ったナノ加工材料の開発が急務となっているわけであるが、要求の厳しさから反応機構を理解せずに材料を開発することが不可能になりつつある。従来の光リソグラフィでは主に光励起を利用して像の形成を行っていたわけであるが、露光源のエネルギーが高くなりイオン化エネルギーを超えると、様相が一変する。光の場合は選択的に分子にエネルギーを吸収させることができるが、イオン化エネルギーより高いエネルギーを持つ電子線のような量子ビームではビームのエネルギーはランダムに落とされるため、反応は非常に複雑になる。現在の大量生産の現場では化学増幅型と呼ばれる連鎖反応を利用することによって高感度化さ

れたレジスト材料が使用されているが、これは露光によりレジスト中に酸を発生させて、酸による触媒反応により像形成に必要な化学反応を起こさせる手法である。このような手法を用いても、現在要求されている感度は、与えられたエネルギーを余すところなく像形成に結び付けなければ、到底達成できないレベルに達している。従って、ランダムに材料に落とされるエネルギーを、最終的に目的とする唯ひとつの化学反応に結び付けることが要求される。さらに、感度、解像度、精度といったすべての要求を満たすためには、生成される中間活性種（現行の化学増幅型レジストの場合は酸）のナノメータースケールでの空間分布と反応を解明することが必要不可欠となる。

本研究では、ナノリソグラフィの実現に向け、電子ビームによる反応解析装置を用い、ナノリソグラフィ材料のナノ空間内での電子移動、ホール移動、エネルギー移動、プロトン移動反応等、ナノスケールパターンの形成につながる反応の三次元解析をし、反応のモデリングを行った。図1に本研究によって明らかになった、材料中での中間体の空間分布と時間変化を示す。

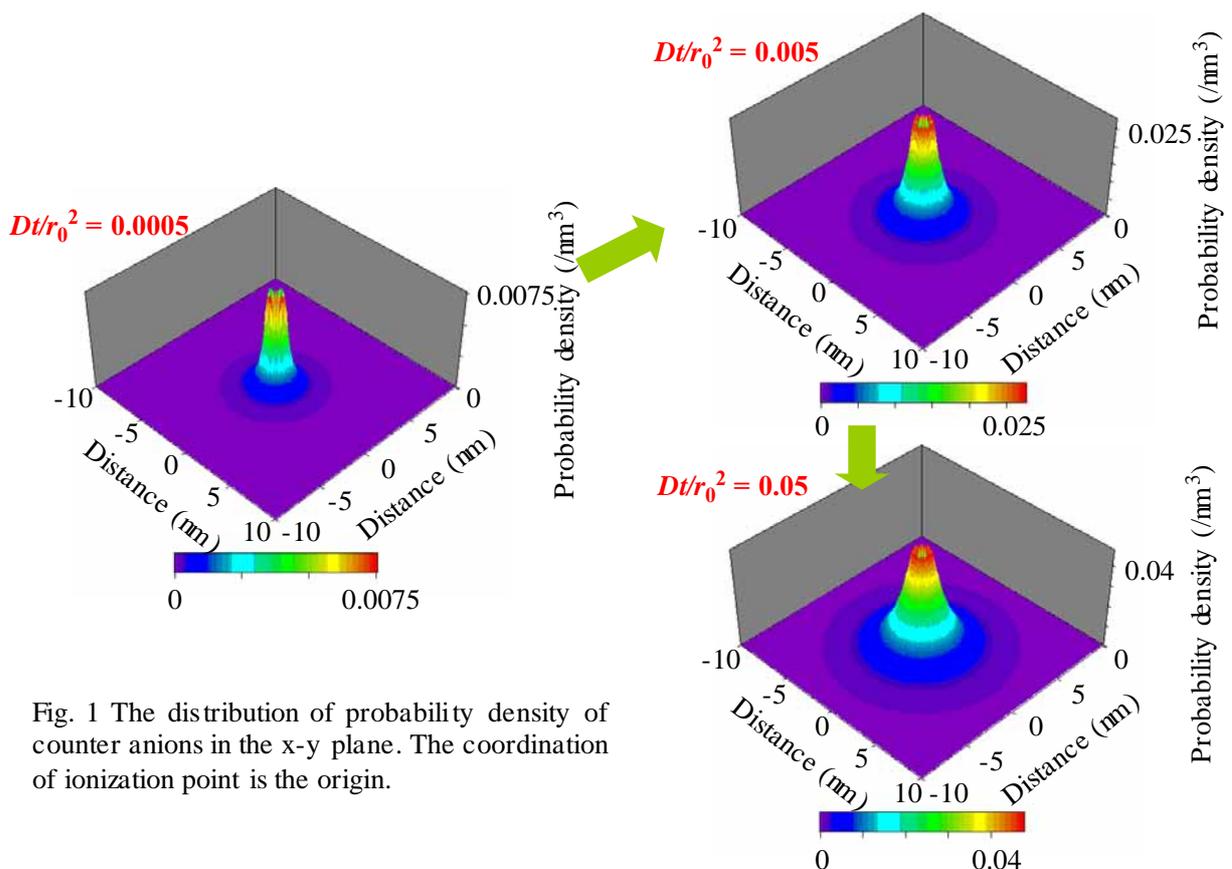


Fig. 1 The distribution of probability density of counter anions in the x-y plane. The coordination of ionization point is the origin.

## 論文

- 1) Electron Dynamics in Chemically Amplified Resists,  
T. Kozawa, H. Yamamoto, A. Nakano, A. Saeki, K. Okamoto and S. Tagawa,  
J. Photopolym. Sci. Technol., 17 (2004) 733-738.
  
- 2) 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., A108 (2004) 1475-1481.
  
- 3) Proton Dynamics in Chemically Amplified Electron Beam Resists,  
H. Yamamoto, T. Kozawa, A. Nakano, K. Okamoto, Y. Yamamoto, T. Ando, M. Sato, H. Komano and S. Tagawa,  
Jpn. J. Appl. Phys., 43 (2004) L848-L850.
  
- 4) Precise Control of Nanowire Formation Based on Polysilane for Photoelectronic Device Application,  
S. Tsukuda, S. Seki, A. Saeki, T. Kozawa, S. Tagawa, M. Sugimoto, A. Idesaki and S. Tanaka,  
Jpn. J. Appl. Phys., 43 (2004) 3810-3814.
  
- 5) Polymer Screening Method for Chemically Amplified Electron Beam and X-Ray Resists,  
H. Yamamoto, A. Nakano, K. Okamoto, T. Kozawa and S. Tagawa,  
Jpn. J. Appl. Phys., 43 (2004) 3971-3973.
  
- 6) Effects of Ester Groups on Proton Generation and Diffusion in Polymethacrylate Matrices,  
A. Nakano, K. Okamoto, T. Kozawa and S. Tagawa,  
Jpn. J. Appl. Phys., 43 (2004) 3981-3983.
  
- 7) Pulse Radiolysis Study on Proton and Charge Transfer Reactions in Solid Poly(methyl methacrylate),  
A. Nakano, K. Okamoto, T. Kozawa and S. Tawaga,  
Jpn. J. Appl. Phys., 43 (2004) 4363-4367.
  
- 8) Modeling and simulation of chemically amplified electron beam, x-ray, and EUV resist processes,  
T. Kozawa, A. Saeki and S. Tagawa,

- J. Vac. Sci. Technol., B22 (2004) 3489-3492.
- 9) Dependence of acid generation efficiency on the protection ratio of hydroxyl groups in chemically amplified electron beam, x-ray and EUV resists,  
H. Yamamoto, T. Kozawa, A. Nakano, K. Okamoto, S. Tagawa, T. Ando, M. Sato and H. Komano,  
J. Vac. Sci. Technol., B22 (2004) 3522-3524.
- 10) Charged Particle and Photon-Induced Reactions in Polymers,  
S. Tagawa, S. Seki and T. Kozawa,  
Charged Particle and Photon Interactions with Matter (Marcel Dekker, New York, 2004)  
551-578.
- 11) ナノリソグラフィ  
古澤孝弘  
The News of Engineering, Vol.26 (2004) 2
- 12) Fabrication of Nano-Wires Using High-Energy Ion Beams,  
S. Tsukuda, S. Seki, S. Tagawa, M. Sugimoto, A. Idesaki, S. Tanaka and A. Ohshima,  
J. Phys. Chem. B, 108 (2004) 3407-3409.
- 13) Dynamics of Positive Charge Carriers on Si Chains of Polysilanes,  
S. Seki, Y. Koizumi, T. Kawaguchi, H. Habara and S. Tagawa,  
J. Am. Chem. Soc. 126 (2004) 3521-3528.
- 14) Inhomogeneous distribution of crosslinks in ion tracks in polystyrene and polysilanes,  
S. Seki, S. Tsukuda, K. Maeda, Y. Matsui, A. Saeki and S. Tagawa,  
Phys. Rev. B, 70 (2004) 144203.
- 15) Delocalization of Positive and Negative Charge Carriers on Oligo- and Poly-fluorenes Studied by Low Temperature Matrix Isolation Technique,  
Y. Koizumi, S. Seki, A. Acharya, A. Saeki and S. Tagawa,  
Chem. Lett., 33 (2004) 1290-1291.
- 16) Formation of benzene trimer radical cation in  $\gamma$ -irradiated low temperature 2-methylpentane matrices,  
M. Todo, K. Okamoto, S. Seki and S. Tagawa,  
Chem. Phys. Lett. 399 (2004) 378-383.

- 17) 157-nm-induced resist outgassing studied by film thickness loss and in-situ quadrupole mass spectrometry,  
Y. Matsui, S. Seki, S. Tagawa, S. Kishimura and M. Sasago,  
J. Photopolym. Sci. Technol., 17 (2004) 671-673.

## 国際会議

- 1) The dependence of acid generation efficiency on the protection ratio of hydroxyl groups in chemically amplified electron beam, X-ray and EUV resists  
H. Yamamoto, A. Nakano, K. Okamoto, T. Kozawa and S. Tagawa, T. Ando, M. Sato and H. Komano,  
48th International Conference on Electron, Ion and Photon Beam Technology and Nanofabrication 2004, June 1-4, San Diego, USA.
- 2) Modelling and Simulation of Chemically Amplified EB, X-ray and EUV Resist Processes,  
T. Kozawa, A. Saeki and S. Tagawa,  
48th International Conference on Electron, Ion and Photon Beam Technology and Nanofabrication 2004, June 1-4, San Diego, USA.
- 3) Subpicosecond Pulse Radiolysis Study on Geminate Ion Recombination Process in n-Dodecane,  
Y. Yoshida, A. Saeki, T. Kozawa, J. Yang and S. Tagawa,  
14th International Conference on Ultrafast Phenomena, 25-30 July, 2004, Niigata, Japan.
- 4) Recent progress in reaction analysis of chemically amplified resists for post-optical lithographies,  
T. Kozawa, H. Yamamoto, A. Nakano, A. Saeki, K. Okamoto and S. Tagawa,  
Micro- and Nano- Engineering International Conference, 19-22 Sep. 2004, Rotterdam, Netherlands.
- 5) Potential Cause of Inhomogeneous Acid Distribution,  
H. Yamamoto, T. Kozawa, A. Nakano, K. Okamoto, S. Tagawa, T. Ando, M. Sato and H. Komano,  
Microprocesses and Nanotechnology, 27-29 Oct. 2004, Osaka, Japan.
- 6) Dependence of Acid Yield on Acid Generator in Chemically Amplified Resist for Post-optical Lithography,  
A. Nakano, K. Okamoto, Y. Yamamoto, T. Kozawa, S. Tagawa, T. Kai and H. Nemoto,

Microprocesses and Nanotechnology, 27-29 Oct. 2004, Osaka, Japan.

- 7) Modelling of Chemically Amplified EUV Resist Processes,  
T. Kozawa, A. Saeki, K. Okamoto and S. Tagawa,  
3rd International EUVL Symposium, 1-4 Nov. 2004, Miyazaki, Japan.
- 8) Transport Properties of Charge Carriers in Single-Walled Carbon Nanotubes by  
Flash-Photolysis Time-Resolved Microwave Conductivity Technique,  
Y. Ohno, K. Maehashi, K. Inoue, K. Matsumoto, A. Saeki, S. Seki and S. Tagawa,  
Proc. ICPS-27 (2004).
- 9) Study of interfaces in polymer bilayers by slow positron beam,  
Y. Terashima, S. Seki, K. Miyamoto, M. Tashiro, Y. Honda, S. Tagawa,  
Materials Science Forum 445-4 (2004) 349-351.
- 10) 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,  
Proc. SPIE, 5376 (2004) 178-185.

## 共同研究

イオンビームによる超微細構造体の形成  
日本原子力研究所 高崎研究所

## 科研費、助成金等

科学研究費補助金(基盤研究(A)(2))

フェムト秒パルスラジオリシス法によるナノ構造内反応機構の解明

7,200千円

田川精一

科学研究費補助金(萌芽研究)

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

1,700千円

関 修平

科学研究費補助金(若手研究(B)(2))

フェムト秒パルスラジオリシスによる極限ナノビームプロセスの創生

1,300千円

古澤孝弘

受託研究 化学増幅レジストの反応機構の研究  
技術研究組合 超先端電子技術開発機構

受託研究 液浸リソグラフィ用液浸液に関する研究  
半導体先端テクノロジーズ

受託研究 平成16年度原子力安全基盤調査研究(放射線化学の最先端の研究を基盤とした安心安全の確保のための目に見える線量計材料の開発)  
独立法人 原子力安全基盤機構

## 極限ナノ加工分野

学内兼任教授

白井 泰治（しらい やすはる）



[所属]

工学研究科附属原子分子イオン制御理工学センター教授（専任）

工学研究科マテリアル科学専攻教授（兼任）

[専門分野]

材料物性、陽電子消滅、格子欠陥

[略歴]

1974.3 京都大学 工学部 大学 卒業

1976.3 京都大学 工学研究科 修士 修了

1979.3 京都大学 工学研究科 博士 単位取得満期退学

1980.7 日本学術振興会奨励研究員

1982.4 京都大学助手

1990.6 京都大学助教授

1996.2 大阪大学教授

[研究内容]

各種機能材料のナノ構造と物性,陽電子ビームを用いた新しい材料評価技術の開発,  
結晶格子欠陥に着目した材料組織制御

## 超高速ナノ構造分野

平成 16 年 6 月 28 日 ~ 10 月 4 日

客員教授 EI Mustapha MOUADDIB

### [研究内容]

複合全方位ステレオセンサのセンシング能力評価のためのシミュレーション環境の構築 .

[専門分野] コンピュータビジョン , ロボット工学

### [略歴]

1983年 フランス・ピカルディー大学, 機械工学科卒業  
1986年 フランス・ピカルディー大学数学・計算機科学科卒業  
1987年 フランス・ナンシー大学理学研究科修士課程修了  
1991年 フランス・ピカルディー大学数学・計算機科学科, 博士課程修了  
1990年 助教授 フランス・ピカルディー大学  
1992年 準教授 フランス・ピカルディー大学  
2001年 教授 フランス・ピカルディー大学  
2000年 センター長 フランス・ピカルディー大学ロボットと電子制御工学センター

[連絡先] University of Picardie Jules Verne, CREA  
7, Rue du Moulin Neuf, 80000 Amiens - France

平成 16 年 10 月 6 日 ~ 平成 17 年 1 月 11 日

客員助教授 MAREK NOWICKI



[所属] Poznan 工科大学工業物理学科固体物理分光学部門

### [略歴]

1997年6月 Poznan 工科大学工業物理学科 修士課程修了  
2001年12月 Poznan 工科大学工業物理学科 博士課程修了  
2001年10月 Poznan 工科大学工業物理学科固体物理分光学部門 助手  
2003年10月 Poznan 工科大学物理学科固体物理分光学部門 助教授 現在に至る

[学位] 2001年12月21日博士(理学) (Poznan 工科大学)

[専門分野] 固体物理、分光法

[研究内容] 自己組織化有機薄膜およびナノ構造の走査トンネル顕微鏡(STM)と STM 誘起発光分光法による研究

平成17年1月12日～3月11日

客員教授 Werner Schlegel (ワーナー シュレーゲル)



[所属] スイス連邦ジュネーブ大学医学部医学研究所

[略歴]

1965年9月 スイス連邦工科大学 (生物科) 卒業

1970年7月 スイス連邦工科大学大学院博士課程修了

1970年9月 スイス連邦工科大学 生物学教員

1976年7月 アメリカ合衆国国立衛生研究所 博士研究員

1979年7月 スイス連邦ジュネーブ大学医学研究所 主任研究員

1997年4月 神戸大学バイオシグナル研究センター 客員教授

1996年5月 スイス連邦ジュネーブ大学医学研究所 所長

[学位] 1974年10月 Ph.D. (スイス連邦工科大学)

[受賞] 1976年9月 アメリカ合衆国国立衛生研究所 Fogarty Fellowship、1976年9月 スイス科学財団若手研究者奨励賞、1998年4月 スイス科学財団 Receptor Research賞

[研究内容] ENH1、Caチャンネル、プロテインキナーゼ群の超複合体が、心肥大誘導に重要な役割を果たす事が示唆されているので、その構造と機能に関する研究を行う。

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

念願の低温実装PJが始動

菅沼 克昭（すがぬま かつあき）

2004年には、念願の国際標準化プロジェクト「低温鉛フリーはんだ実装技術開発」が開始できました。これから、2年間継続する大きなプロジェクトです。技術的レベルも高く、世界が注目するところになっています。法規制まであと1年余。もう待ったなしです。

夏には、昨年続く関西サミット主催の鉛フリー実装シンポジウム（II）で100名の参加を得て、続いて、これまで銀杏際で開催してきた鉛フリーはんだ付け教室を拡大開催しました。今回は、夏休みに合わせて中之島センターで関西企業の協力を得て開催、小学生1年から中学生まで幅広い子供たちを集めて、親子50名の参加でした。にぎやかに開催し、主催側の私たちも大いに楽しみました。大阪の電電タウンの協力も得られ、次回に期待です。

さらに、秋には中国の上海で、上海交通大学、上海電子協会などと協力で日中鉛フリー実装討論会を主催、日本から多くのメーカーの参加を得て会場満員となる大成功でした。上海側も、是非次回をと期待大です。

また、一昨年立ち上げたエレクトロニクス実装学会関西支部もようやく軌道に乗り、若手の成長も著しいものがあり、今年に入ってやっと一息です。

以上、何かと初めてのイベントがことごとく成功した年でした。今年は、更にそれぞれを定着させなければなりませんので、またあっという間にすぎそうです。



写真 上海交通大学にて横断幕の下で集合写真。

## 奥 健夫（おく たけお）



大阪に来て早くも7年半が過ぎました。高次インターマテリアル研究センターから産業科学ナノテクノロジーセンターへと変化があり、にぎやかになってきて喜ばしいことと思います。人々の役に立ち、サイエンス・テクノロジーで重要なテーマで仕事を進めていきたいと考えております。ナノチューブ・フラーレン関連では、成田君、西脇君、小井君とのんびりと仕事を進めさせていただいております。多くの方々の助けを借りながら楽しく仕事をさせていただけることに大変感謝しております。

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

## 山口 俊郎（やまぐち しゅんろう）

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

理学博士

昭和 54 年大阪大学理学部化学科卒

昭和 59 年大阪大学大学院理学研究科中退

昭和 59 年大阪大学産業科学研究所助手、現在に至る

昭和 60 年～62 年 アメリカ合衆国バージニア州立大学博士研究員

研究概要

人工骨および人工軟骨に関する研究

実用化を目指した骨欠損部補填材料の開発

井上雅博 (いのうえ まさひろ)



1993年 4月 防衛大学校 材料物性工学教室 助手  
1997年 10月 大阪大学産業科学研究所 高次インター  
マテリアル研究センター 助手  
2002年 4月 改組により 現職

研究分野:材料科学(セラミックス,金属・金属間化合物,  
有機高分子),界面科学,エレクトロニクス実装

学会活動:エレクトロニクス実装学会関西支部若手研究会幹事  
社会活動:サイエンス・サテライト(大阪科学技術センター)他  
(一般,子供向けの実験教室の企画・実施)

技術員: 谷畑 公昭

事務員: 浦山 奈緒美、井手 こずえ

研究員: 畑村 真理子、金 権銖、山下 宗哲、(林 大和)

大学院学生: 金 迎庵、中田 昌幸、成田 一人、金野 元紀、中川 登志子、山中 公  
博、隈元 聖史、李 在彦、今西 貴之、西脇 篤史、山崎 雄介、小井 成弘

## 研究概要

### 微細回路パターン用金属ナノ粒子ペーストの焼結過程解析

金属ナノ粒子の効果は徐々に明らかになりつつあるが、今はようやく特性が理解され始めたと言える。特に実装においてはアセンブリされた機器の信頼性を保証することが重要であり、金属ナノ粒子の実装性に関する特性を理解しないと実用化への道は遠くなる。現象を十分に理解しない内に実用化に踏み切ってしまうと、思わぬ不具合が生じるかもしれないのである。まだまだナノ領域でどのような現象が生じて接続が為されているかは理解に達していない。実用化は、基礎的現象に関する学術研究の努力に掛かっていると見える。金属ナノ粒子は適当な樹脂に混合しペースト化し、塗料のように利用することができる。エレクトロニクス産業においても電子部品には欠かせない原料となっている。金属ナノ粒子は、バルク材料にない様々な特性が実現でき、これまでも触媒ばかりでなく、電子材料、光学材料、塗料などへ幅広く実用になっている。実装の分野で利用する場合に最も興味深いものは、導電性に着目した金属ナノ粒子を用いたペーストである。ナノ粒子ペーストは、流動性に富み、焼成後の分散状態をコントロールすることで半導体的性質、或いは金属導電性を得ることが可能になる。

今年度は、次世代導電性接着剤や電子回路のファインパタンニング採用に期待されている貴金属ナノ粒子の中で最も有望な銀ナノ粒子ペーストの焼結過程を調べ、新概念の電子実装用ナノペースト開発の基礎研究を行った。銀ナノペーストの焼結過程の熱分析、電気抵抗測定などを通して、焼結プロセスを把握した。熱分析により調べた結果、200 から分散剤の分離が確認され、200 以上の温度で焼結可能であることがわかった。図 1 に焼結温度による電気抵抗値の時間変化と 180 から 250 までの温度区間で 30 分間保持後の微細組織観察結果を示す。180 ~ 250 の焼結温度で 1 時間まで保持した後、電気抵抗を測定した場合、電気抵抗は 200 ~ 250 の温度区間では、時間の経過と共に徐々に電気抵抗値が低下することがわかった。これは図 1 の組織写真のようにナノ粒子の合体が進むことによる低下である。銀ナノペーストは 200 を越える温度で  $10^{-5}\Omega\text{cm}$  の低抵抗が実現できる。

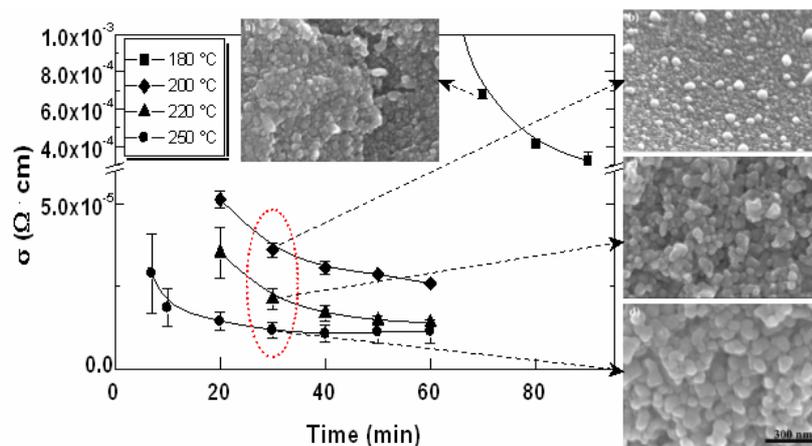


図 1 ナノペーストの焼結温度 - 時間による電気抵抗値と微細組織の変化。

## 鉛フリーはんだ実装における凝固欠陥の抑制技術開発

Sn-Ag-Cu 鉛フリーはんだを用い IC リードや CSP のミクロ接続部分における凝固現象のその場観察を始めて実現し、同時に凝固シミュレーションにより凝固のプロセスを明らかにした。図 1 に CSP のその場観察によるはんだ凝固過程の観察結果と凝固シミュレーションの結果を示す。形成されたはんだフィレットやボールの組織観察から、凝固シミュレーションの正確さが検証された。IC リード材質がはんだの凝固速度へ与える影響を計算により明らかにし、さらにその場観察とはんだフィレットやボール組織との対応を証明した。その結果、はんだ組織の微細化には熱伝導に優れる Cu 配線が Fe 系の配線より有利であることを明らかにした。また、凝固最終部分の予測を可能にし、偏析や欠陥の生じる原因と場所の特定を始めて可能にした。

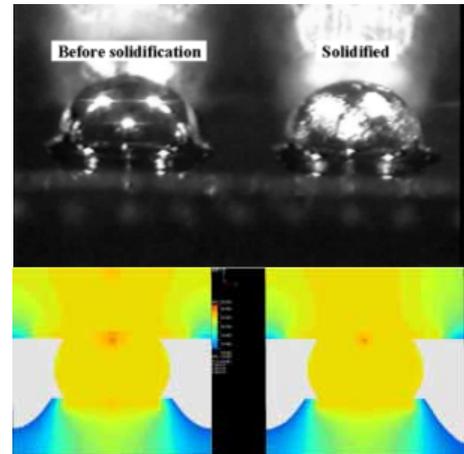


図 1 CSP のその場観察と凝固シミュレーションの結果

## ナノ粒子を用いた新鉛フリーはんだの開発

従来の錫-鉛共晶はんだとは異なり、鉛フリーはんだは過冷現象が生じるため凝固における組織不均一性が顕著になり、しばしば凝固割れやリフトオフなどの欠陥形成に結びつく。3 元系 Sn-3Ag-0.5Cu はんだ合金に第 4 元素(Ni, Ti, Co, Fe, Mn)を添加し、過冷などの特性の改善について検討を行った。ナノ粒子は過冷抑制の観点から見ると Sn に固溶度がないナノ粒子の添加は核生成サイトを提供し凝固がより円滑になると考えられる。即ち、ナノ粒子を中心に凝固が起きるため、より緻密な組織が得られ、過冷をコントロールできる可能性が高く凝固欠陥が生じ難い。緻密な組織の形成は高密度の部品に対応でき、ファインピッチ表面実装が可能になる。図 2 にナノ粒子添加前、後の組織の変化を示す。Sn-3Ag-0.5Cu 合金への金属ナノ粒子の微量添加は過冷を減らし、微細組織の改善にも効果的であることを明らかにした。特に、Ni, Co の添加は微細組織、熔融-凝固過程、機械的特性の評価で最も優れた特性を示し、実装特性が改善された新鉛フリーはんだの開発に成功した。

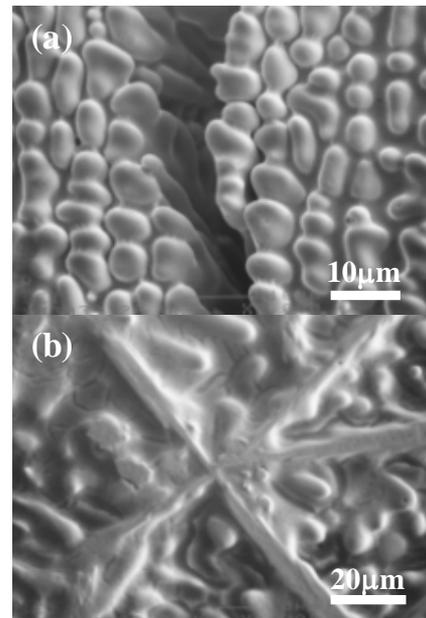


図 2 ナノ粒子添加による微細組織の変化 (a)Sn-3Ag-0.5Cu; (b)Sn-3Ag-0.5Cu-0.1Co

## 導電性接着剤の接続信頼性評価

等方性および異方性導電性接着剤は、鉛フリー、フラックスレス、低温実装、フレキシブル性などの特徴を有することから、先進実装技術用のインターコネクト材料や有機エレクトロニクス用配線材料など様々な用途への利用が期待されている。しかし、これらの接着剤は一般に信頼性が低いとされており、現在のところ使用範囲が限定されている状況にある。導電性接着剤の特性は、バインダーの成分組成やフィラー粒子の体積分率や形状の影響を受けるのはもちろんのこと、バインダーの硬化プロセス条件や部品形状など様々な因子によって大きく左右される。また、湿度等の環境因子も重要なパラメーターとなる。しかし、これらの因子に関する解析が不十分であることが導電性接着剤の信頼性改善の妨げとなっている。

本研究では、導電性接着剤の接続信頼性試験結果に対する学術的根拠を明確にすることと、それに基づく接着剤設計を行うために主として下記の項目について検討している。

- 1) 導電性接着剤のバインダー硬化挙動と導電性発現過程の解析
- 2) バインダーの硬化状態(高分子構造)と電氣的、機械的、熱的特性の関連性
- 3) 導電性接着剤の諸特性の複合則解析
- 4) 接続界面のナノ構造評価
- 5) 環境因子の接続信頼性に及ぼす影響
- 6) 配線形成技術の開発

これらの研究を通じて、導電性接着剤を用いるエレクトロニクス実装技術の学術的基盤が確立され、様々な分野への幅広い応用が実現されることを期待しています。

## 材料工学と生体組織工学を融合した新しい人工関節軟骨モデルの研究

人間は一日に約 10 万回も関節を動かしていると言われている。股関節や膝関節では、立ったり、座ったりといった日常的な使用に耐えることができるように、非常に複雑な構造をしている。しかし、関節軟骨はそれ自身に修復能が無く、1 度損傷を受けてしまうと関節機能に大きな障害が生じるために、最終的な外科的治療として、人工関節術が広く行われている。

ところが、人工関節置換術は疼痛除去効果が著しく、その耐久性は 15 年程である。また生体骨に埋め込まれた人工関節ステムの緩みや UHMWPE (超高密度ポリエチレン) 磨耗粉による炎症反応が生じ、再手術が必要になる。これとは別に、損傷した関節軟骨の部分的な修復が期待できる生体組織工学手法を用いた治療方法が開発され、細胞の直接移植による方法や人工培養軟骨移植による方法が近年注目を浴びている。しかしながら、これらの方法では、(1) 移植した細胞や培養軟骨と移植周辺部の関節軟骨または生体骨と接着しない、(2) 移植した細胞や培養軟骨中の細胞分化を制御しなければならない、という 2 つの大きな問題点があった。

そこで、私たちの研究室では、まず前者 (1) の問題である培養軟骨と生体骨との接着を改善するために、生体骨と置換する人工骨と培養軟骨を組み合わせる培養し、その細胞成長によって培養軟骨と人工骨との接着させるタイプの培養軟骨-多孔質リン酸カルシウム接合システムを用いた新しい人工関節軟骨モデルを考案し、作製した。用いた多孔質リン酸カルシウムは、生体吸収性に優れた多孔質リン酸三カルシウム ( $\beta$ -TCP) である。更に、(2) の問題を解決するために、培養軟骨/多孔質リン酸カルシウム接合システムに中の多孔質リン酸カルシウムの代わりに、細胞増殖因子の一つである骨形成タンパク質-6 (BMP-6) を強固に吸着した多孔質  $\beta$ -TCP を用い、培養軟骨と多孔質  $\beta$ -TCP の界面付近の軟骨細胞の石灰化を試みた。

その結果、細胞成長に適した多孔質  $\beta$ -TCP を泡セラミックス法と水熱処理法を組み合わせる方法で作製することができ、それを用いて培養軟骨-多孔質  $\beta$ -TCP 接合システムを用いた新しい人工関節軟骨モデルを作製することができた。また、本システムにおいて軟骨細胞は成長し、コラーゲン線維及びプロテオグリカンを排出した。これにより培養軟骨と多孔質  $\beta$ -TCP の接着性は向上した。更に、BMP-6 を強固に吸着した多孔質  $\beta$ -TCP を用いることによって、多孔質  $\beta$ -TCP 付近の軟骨細胞の石灰化が促進し、本システムをより生体関節軟骨に近い構造持つことが明らかとなった。

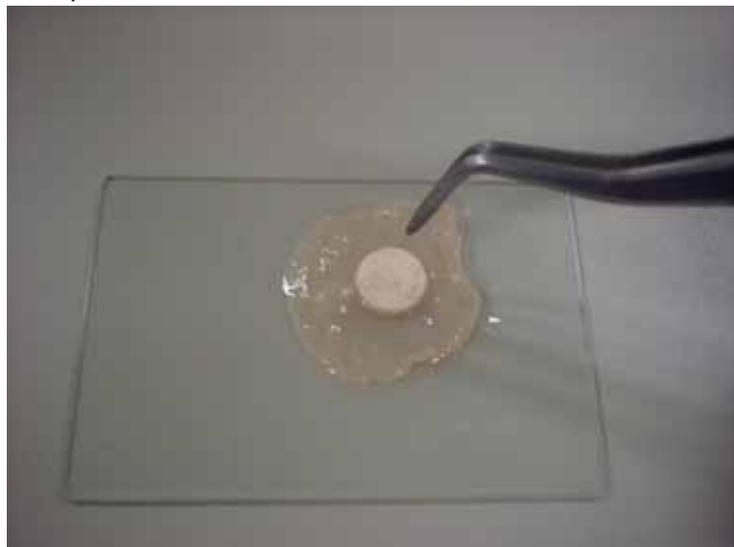


図 培養軟骨-多孔質  $\beta$ -TCP 接合システム

## 原子配列調和物質

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

( <http://www.sanken.osaka-u.ac.jp/~oku/frame.html> )

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

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



## 論文

1. Cu フィラー粒子を用いた等方性導電性接着剤の熱物性解析  
杉村貴弘, 井上雅博, 山下宗哲, 山口俊郎, 菅沼克昭  
エレクトロニクス実装学会誌 7[2] (2004) 147-155.
2. Effect of Cu addition to Sn-Ag lead-free solder on interfacial stability with Fe-42Ni  
C. -W. Hwang and K. Sugauma  
Mater. Trans. 45[3] (2004) 714-720.
3. The observation and simulation of Sn-Ag-Cu solder solidification in chip-scale packaging  
K. -S. Kim, K. Sugauma, J. -M. Kim, and C. -W. Hwang  
JOM 56[6] (2004) 39-43.
4. Effects of composition on microstructure and on thermal stability of Sn-Ag-In lead-free soldered joints  
K. S. Kim, T. Imanishi, K. Sugauma, S. Kumamoto and M. Aihara  
Trans. Mater. Res. Soc. Jpn. 29[5] (2004) 2005-2008.
5. Synthesis and aldehyde absorption [sic] properties of aspartate-octacalcium phosphate inclusion compound.  
S. Aoki, A. Nakahira, H. Nakayama, K. Sakamoto, S. Yamaguchi and K. Sugauma  
Journal of Physics and Chemistry of Solids 65 (2004) 465-470.
6. Preparation of porous calcium phosphates using a ceramic foaming technique combined with a hydrothermal treatment and the cell response with incorporation of osteoblast-like cells  
S. Aoki, S. Yamaguchi, A. Nakahira and K. Sugauma  
Journal of the Ceramic Society of Japan 112 (2004) 193-199.
7. Formation of fluoridated hydroxyapatite by competitive attack of OH<sup>-</sup> and F<sup>-</sup> ions onto a- or b-tricalcium bis(orthophosphate)  
K. Sakamoto, S. Yamaguchi, J. Ichihara, M. Okazaki, Y. Tsunawaki and J. C. Elliott  
Journal of the Ceramic Society of Japan 112 (2004) 6-12.
8. Tetrabutylammonium phosphomolybdate on fluorapatite: an efficient solid catalyst for solvent-free selective oxidation of sulfides  
Y. Sasaki, K. Ushimaru, K. Itaya, H. Nakayama, S. Yamaguchi and J. Ichihara  
Tetrahedron Letters 45(52) (2004) 9513-9515.
9. Transmission electron microscopic study on the migration of Ca ions in Ca-deficient hydroxyapatite during thermal decomposition  
M. Tamai, K. Sakamoto, S. Yamaguchi and A. Nakahira  
Journal of the Ceramic Society of Japan 113 (2005) 131-134.
10. Atomic and electronic structures of endohedral B<sub>36</sub>N<sub>36</sub> clusters with doping elements studied by molecular orbital calculations  
A. Nishiwaki, T. Oku and K. Sugauma

Physica B 349 (2004) 254-259.

11. Atomic structure of boron nitride nanotubes with an armchair-type structure studied by HREM  
I. Narita and T. Oku  
Solid State Commun. 129 (2004) 415-419.
12. Formation and atomic structures of boron nitride nanohorns  
A. Nishiwaki, T. Oku and I. Narita  
Sci. Tech. Adv. Mater. 5 (2004) 629-634.
13. High-resolution electron microscopy of boron nitride nanotube with yttrium nanowire  
T. Oku and I. Narita  
J. Phys. Chem. Solids 65 (2004) 359-361.
14. 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  
Diamond Relat. Mater. 13 (2004) 1254-1260.
15. Atomic structures, electronic states and hydrogen storage of boron nitride nanocage clusters, nanotubes and nanohorns  
T. Oku, I. Narita, A. Nishiwaki and N. Koi  
Defects and Diffusion Forum 226-228 (2004) 113-140.
16. Hydrogen storage in boron nitride and carbon clusters studied by molecular orbital calculations  
N. Koi and T. Oku  
Sol. State Comm. 131 (2004) 121-124.
17. Three-dimensional atomic imaging of Y and  $(B_{12})_{13}$  clusters in  $YB_{56}$  by HREM and crystallographic image processing  
T. Oku  
Sci. Tech. Adv. Mater. 5 (2004) 657-661.
18. Formation and atomic structures of  $B_nN_n$  ( $n = 24-60$ ) clusters studied by mass spectrometry, high-resolution electron microscopy and molecular orbital calculations  
T. Oku, A. Nishiwaki and I. Narita  
Physica B 351 (2004) 184-190.

## 解説・総説

1. Sn-Ag-Cuを中心とする鉛フリーはんだの凝固組織制御  
菅沼克昭, 金槿銖  
高温学会誌, Vol. 30, No. 4 (2004) 185-190.
2. 低融点鉛フリーはんだ技術の現状と信頼性課題  
菅沼克昭, 金槿銖  
金属, Vol. 74, No. 12 (2004) 1258-1262.
3. @BNナノ錬金術 - 未来磁性材料の開発に向けて  
成田一人、奥健夫、菅沼 克昭  
Boundary, Vol. 20, No. 1 (2004) 10-18.
4. BN クラスタと BN ナノチューブの構造 - 炭素系ナノ物質との調和と超越  
奥健夫、成田一人、西脇篤史  
Boundary, Vol. 20, No. 2 (2004) 8-19.
5. BNナノホーンの原子配列・構造安定性と応用可能性  
西脇篤史、奥健夫、成田一人  
Boundary, Vol. 20, No. 1 (2004) 2-5.

## 著書

1. 鉛フリーはんだと導電性接着剤の開発の状況  
菅沼克昭  
Q&Aエレクトロニクスと高分子第5版 (財)化学技術戦略推進機構 ,(2004) p. 68-72.
2. Research and Development in Japan  
C. A. Handwerker, F. G.gayle, E. E. deKluizeneraar and K. Suganuma  
Handbook of Lead-Free Solder Technology for Microelectronic Assemblies, eds. by K. J. Puttlitz and K. A. Stalter, Marcel Dekker, New York, (2004) p. 665-728.
3. Mechanical Behaviour of Intermetallics and Intermetallic Matrix Composites  
M. Inoue and K. Suganuma  
Metal and Ceramic Matrix Composites, ed. by B. Cantor, F. Dunne and I. Stone, Institute of Physics Publishing, Bristol, UK, Chapter 14 (2004) p. 241-256.
4. これならわかる電子顕微鏡 - マテリアルサイエンスへの応用  
奥健夫、化学同人 (2004).

## 国際会議

1. Lead-free soldering status and projects of Japan  
K. Suganuma  
2004 China SMT International Conference, CEPEA/CEAC/SMT China/IPC/Soldertec, Shanghai, Nov.16-17, 2004
2. Lead-free soldering statuses and projects of Japan  
菅沼克昭  
中日無鉛実装技術交流会，上海電子製造工業協会 SMT 委員会/上海交通大学材料科学工学科/大阪大学産業科学研究所，上海，Nov. 18, 2004.
3. Lead-free interconnects engineering in electronics packaging  
K. Suganuma, K. S. Kim, and C. H. Hwang  
International Conference on New Frontiers of Process Science and Engineering in Advanced Materials(PSAE'04, 14<sup>th</sup> Iketani Conference), High Temperature Society of Japan/JWRI Osaka University, Kyoto, Nov. 24-26, 2004.
4. Development of Pb free solders and their industrial applications  
K. Suganuma  
1<sup>st</sup> IMAGINE International Forum on Venture-Business, Osaka, Dec.15-17, 2004.
5. Formation mechanisms of various solidification defects in lead-free soldering and their prevention  
K. Suganuma and K. -S. Kim  
The 3rd International Symposium on Microelectronics and Packaging (ISMP0204), Seoul September 2-3, (2004), pp.181-199.
6. Next generation of lead-free solders: Low temperature solders  
K. Suganuma  
Materials Science & Technology 2004 Conference & Exhibition, TMS, New Orleans, September 26-29, 2004
7. Effect of moisture absorption on ACF interconnects  
M. Inoue, T. Miyamoto and K. Suganuma,  
International Conf. on Electronics Packaging (ICEP 2004), IMAPS Japan/JIEP/IEEE CPMT, Tokyo, April 13-15, 2004, p. 212-216.
8. Relationship between curing conditions and interconnect properties of flexible printed circuit/glass substrate joints using anisotropic conductive films  
M. Inoue, T. Miyamoto, K. Suganuma  
Proc. The sixth IEEE CPMT Conference on High Density Microsystem Design and Packaging and Component Failure Analysis (HDP'04), Shanghai, China, July 1-3, 2004, p. 248-253
9. Analysis of influential factors in determining adhesive strength of ACF joints  
M. Inoue, T. Miyamoto and K. Suganuma  
Proc. Polytronic 2004, Portland, USA, September 12-15, 2004, RT12, CD-ROM.

10. Eco-fabrications and applications of noble metal nano-particles by ultrasound  
Y. Hayashi, M. Inoue, K. Niihara and K. Suganuma  
Proc. Polytronic 2004, Portland, USA, September 12-15, 2004, MP32, CD-ROM.
11. Physicochemical phenomena induced by water sorption in flexible printed circuit/glass substrate joints using anisotropic conductive films  
M. Inoue, T. Miyamoto and K. Suganuma  
The 7th IEEE CPMT International Academic Conference on Next Generation Microsystem Packaging Research and Education, June 28-30, Shanghai, China
12. Interconnect Reliability of Anisotropic Conductive Adhesives for Advanced Electronics Packaging Technologies  
M. Inoue and K. Suganuma  
The 1st Workshop on Anisotropic Science and Technology of Materials and Devices, Oct. 31-Nov. 1, Osaka, Japan
13. Influence of lead contamination on reliability of lead free soldered joints  
K. Suganuma and K. -S. Kim  
IPC and Soldertec Global 2<sup>nd</sup> International Conference on Lead Free Electronics "Towards Implementation of the Rohs Directive" RAI International Congress and Exhibition Centre Amsterdam, Netherlands, June 22-23, 2004
14. Next generation of lead-free solders: Low temperature solders  
K. Suganuma, K. -S. Kim, K. Toyofuku, K. Hagio  
Pb-Free and Pb-Bearing Solders Symposium for 2004 Fall meeting of TMS, New Orleans, USA, September 26-29, 2004.
15. Development of new lead-free solder containing nano sized particles  
K. -S. Kim, K. Suganuma and M. Ueshima  
TMS 133rd Annual Meeting, Charlotte, USA, March 14-18, 2004.
16. Solidification phenomenon in CSP soldering with Sn-Ag-Cu lead-free alloy using in situ observation system with computer simulation  
K. Suganuma, K. -S. Kim and C. W. Hwang  
TMS 133rd Annual Meeting, Charlotte, USA, March 14-18, 2004.
17. Nano paste and new interconnection technology  
K. Suganuma, M. Hayashi, K. -S. Kim, S. Yamaguchi and M. Hatamura  
5th International Symposium on Electrochemical Micro & Nanosystem Technologies (EMT2004), Tokyo, Japan, Sep. 29 - October 1, 2004.
18. Properties of Zn-Sn Alloys and Intermetallic Compound Formation at Zn-Sn/Cu Joint Interface  
J. -E. Lee, K. -S. Kim and K. Suganuma  
International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (ISSIN-2004), Osaka, Japan, 6-7 December, 2004, p. 156.
19. Synthesis and characterization of calcium phosphate-AMP composite material

- M. Kaneno, K. Sakamoto, H. Nakayama, S. Yamaguchi and K. Suganuma  
The 3rd International Symposium on the Science of Engineering Ceramics (EnCera04),  
The Ceramic Society of Japan, Osaka Oct. 31- Nov. 3, 2004
20. Effect of alumina structure on thermal properties of alumina/aluminum composite formed by freeze and dry process and partial sintering process  
M. Nakata and K. Suganuma  
The 3rd International Symposium on the Science of Engineering Ceramics (EnCera04),  
The Ceramic Society of Japan, Osaka Oct. 31- Nov. 3, 2004
  21. fabrication and applications of nano-metal particle composites by ultrasonic eco-process  
Y. Hayashi, Y. Saijo, T. Sekino, K. Suganuma, K. Niihara  
The 3rd International Symposium on the Science of Engineering Ceramics (EnCera04),  
The Ceramic Society of Japan, Osaka Oct. 31- Nov. 3, 2004
  22. Formation of hydroxyapatite from mechanochemically treated  $\beta$ -tricalcium bis (orthophosphate)  
M. Kaneno, K. Sakamoto, S. Yamaguchi, and K. Suganuma  
The 3rd International Symposium on the Science of Engineering Ceramics (EnCera04),  
The Ceramic Society of Japan, Osaka Oct. 31- Nov. 3, 2004
  23. Friction-activated capillary soldering for hermetic seal of vacuum glazing; joining of a pair of glass sheets with lead-free solder  
K. Sakaguchi, S. Domi, and K. Suganuma  
The 3rd International Symposium on the Science of Engineering Ceramics(EnCera04),  
The Ceramic Society of Japan, Osaka Oct. 31- Nov. 3, 2004
  24. Synthesis and structures of boron nitride nanocapsules encaging iron nanoparticles  
I. Narita, T. Oku, M. Yamashita and K. Suganuma  
International Symposium on the Creation of Novel Nanomaterials, Osaka, Japan, 20-22 January (2004).
  25. Synthesis of magnetic nanoparticles in boron nitride nanocapsules by metal organic chemical vapor deposition  
I. Narita, T. Oku, H. Tokoro and K. Suganuma  
13th European Conference on Diamond, Diamond-like materials, Carbon nanotubes, Nitrides and Silicon carbide, Riva Del Garda, Italy, 12-17 September (2004).
  26. Synthesis and magnetic properties of boron nitride nanocapsules encaging metal nanoparticles by annealing of ammine complexes  
I. Narita, T. Oku, H. Tokoro and K. Suganuma  
International symposium on inorganic and environmental materials 2004, Eindhoven, the Netherlands, 18-21 October (2004), Abstracts P. 46.
  27. Atomic structures of multi-walled boron nitride nanohorns  
A. Nishiwaki and T. Oku  
International Symposium on the Creation of Novel Nanomaterials, Osaka, Japan, 20-22 January (2004) p. 105.

28. Atomic and electronic structures of boron nitride nanohorns studied by high-resolution electron microscopy and molecular orbital calculations  
A. Nishiwaki and T. Oku  
15th European Conference on Diamond, Diamond-Like Materials, Carbon Nanotubes, Nitrides, Riva del Garda, Italy, 12-17 September (2004) p. 254.
29. Atomic structures and stability of boron nitride nanotubes with a cup-stacked structure  
A. Nishiwaki, T. Oku, H. Tokoro and S. Fujii  
15th European Conference on Diamond, Diamond-Like Materials, Carbon Nanotubes, Nitrides, Riva del Garda, Italy, 12-17 September (2004) p. 64.
30. Atomic structures and formation mechanism of boron nitride nanotubes and nanohorns synthesized by arc-melting LaB<sub>6</sub> powders  
A. Nishiwaki and T. Oku  
International Symposium on Inorganic and Environmental Materials 2004, Eindhoven, The Netherlands, 18-21 October (2004) p. 54.
31. Molecular orbital calculations of carbon and boron nitride clusters with hydrogen  
N. Koi and T. Oku  
International Symposium on the Creation of Novel Nanomaterials, ISCNN'04, Osaka, Japan, January 20-22, 2004, Abstract p. 94.
32. Effects of endohedral elements in B<sub>24</sub>N<sub>24</sub> clusters on hydrogenation studied by molecular orbital calculation  
N. Koi and T. Oku  
International Symposium on Inorganic and Environmental Materials 2004, ISIEM 2004, Eindhoven, The Netherlands, October 18-21, 2004, Abstract p. 90.
33. Possible hydrogen storage in boron nitride nanotubes and clusters  
N. Koi, T. Oku and K. Suganuma  
Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, SISSIN-2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004, Abstract p. 160.
34. Atomic and electronic structures of multiply-twinned boron nitride nanoparticles with fivefold symmetry  
T. Oku, A. Nishiwaki and I. Narita  
15<sup>th</sup> European Conference on Diamond, Diamond-Like Materials, Carbon Nanotubes, Nitrides and Silicon Carbide, (Riva del Garda, Italy, Sept. 12-17(13), 2004) Abstract Book 5. 7. 14.
35. Effects of titanium addition on the microstructure of carbon/copper composite materials  
T. Oku and T. Oku  
International Symposium on Inorganic and Environmental Materials 2004, Eindhoven, The Netherlands, 18-21(20) October, 2004, Abstract Book. p. 38.
36. Atomic structures of bamboo-type boron nitride nanotubes with cap-stacked structures  
T. Oku, A. Nishiwaki and I. Narita  
International Symposium on Inorganic and Environmental Materials 2004, Eindhoven, The Netherlands, 18-21(20) October, 2004, Abstract Book. p. 39.

## 国内会議

1. ナノテクノロジーの切り開く実装の世界  
菅沼克昭  
エレクトロニクス実装学会平成 16 年春季大会，東京，平成 16 年 3 月 17 日
2. 導電性接着剤およびナノペーストを用いた実装技術の現状  
菅沼克昭  
日本実装技術振興協会高密度実装技術部会第 106 回定例会，東京，平成 16 年 3 月 24 日
3. 鉛含有はんだの規制動向と鉛フリーはんだの開発状況  
菅沼克昭  
鉛フリーはんだ接合研究会，(財)長野県テクノ財団善光寺バレー地域センター主催，長野，平成 16 年 5 月 20 日
4. Sn-Zn 系はんだ実用化プロジェクト活動  
菅沼克昭  
JEITA 鉛フリーはんだ実用化検討成果報告会 2004，大阪/東京，平成 16 年 6 月 29 日，7 月 1 日
5. 低温はんだ実用化の取り組み  
パネル討論「鉛フリー切り替え完遂のための緊急提言」  
菅沼克昭  
JISSO/PROTEC フォーラムジャパン 2004，(社)電子情報技術産業協会，幕張，平成 16 年 10 月 8 日
6. 導電性接着剤とナノペースト実装技術  
菅沼克昭  
第 93 回電子セラミックス・プロセス研究会，東京，平成 16 年 11 月 13 日
7. 低融点鉛フリーはんだの開発状況  
菅沼克昭  
インターネプコン・ジャパン専門技術セミナー、東京、平成 17 年 1 月 20 日
8. 導電性接着剤の開発・実用化動向  
菅沼克昭  
インターネプコン・ジャパン専門技術セミナー、東京、平成 17 年 1 月 20 日
9. 鉛フリーはんだ実装における W E E E / R o H S の動向と業界の動き  
菅沼克昭  
名古屋市工業研究所技術融合化シンポジウム、名古屋、平成 17 年 2 月 22 日
10. 高温保持による Sn-Zn 系低温鉛フリーはんだ接合体の破断パターン変化

- 金迎庵，金槿銖，菅沼克昭  
MES2004 第 14 回マイクロエレクトロニクスシンポジウム，大阪，2004 年 10 月  
14-15 日．p. 213-216.
11. 高温及び高温高湿保持試験による Sn-Ag-In はんだと Cu との接続界面組織及び強度変化  
今西貴之，金槿銖，菅沼克昭  
MES2004 第 14 回マイクロエレクトロニクスシンポジウム，大阪，2004 年 10 月  
14-15 日．p. 229-232.
12. ファインライン形成における銅表面処理  
中川登志子，東嶋豊恵  
第 14 回マイクロエレクトロニクスシンポジウム，大阪，2004 年 10 月 14-15 日.
13. ACF 接続信頼性評価と接合メカニズムの解析  
井上雅博  
技術情報協会，2004 年 4 月 20 日，京都
14. ACF を用いた接着の接続信頼性  
井上雅博  
技術情報協会，2004 年 9 月 17 日，東京
15. ゾル - ゲル電着法によるポーラス金属へのセラミックコーティング形成  
井上雅博，玄丞均，菅沼克昭，中嶋英雄  
金属学会秋期大会，2004 年 9 月 30 日，秋田
16. 導電性接着剤の接続原理と信頼性評価  
井上雅博  
エレクトロニクス実装学会・関西支部若手研究会，2004 年 11 月 10 日，大阪
17. Sn-Zn 系鉛フリーはんだの組織及び接合特性へ及ぼす高温高湿環境の影響  
金槿銖，松浦利典，菅沼克昭  
134th JIM Annual Meeting, Japan Institute of metals, Tokyo, Japan , March 30-April 1,  
2004.
18. Ag-エポキシ系導電性接着剤/Sn 系めっき接続界面のめっき側における高温劣化現象  
山下宗哲，菅沼克昭  
第 6 回関西表面技術フォーラム，滋賀，2004 年 12 月 7-8 日，p. 49.
19. BN ナノ物質の合成と構造  
奥健夫，成田一人，西脇篤史，小井成弘  
平成 16 年度東北大学金属材料研究所ワークショップ「ナノクラスター機能活用新物質開発研究」，仙台，2004 年 10 月 5-6 日

## 学会活動、共同研究

### 菅沼 克昭

1. 経済産業省標準化プロジェクト「低温鉛フリーはんだ実装技術開発」委員長
2. 社) エレクトロニクス実装学会関西支部支部長
3. 社) エレクトロニクス実装学会理事
4. 社) エレクトロニクス実装学会ウヰスカ研究会主査
5. 社) 日本金属学会欧文誌編集委員
6. TMS Annual Meeting, Committee of Phase Stability, Phase Transformation, and Reactive Phase Formation in Electronic Materials (米国)
7. Electronic Components and Technology Conference (ECTC), Materials Processing Committee (米国)
8. JPCAショー最先端実装シンポジウム副委員長、社) プリント回路工業会
9. Electronics Goes Green 2004 International Advisory Board
10. High Density Packaging and Components Failure Analysis(HDP'04), International Advisory Board
11. 国際交流：上海交通大学「日中無鉛接合技術討論会」主催、平成16年11月18日

### 奥 健夫

所属学会：日本金属学会、日本セラミックス協会、日本物理学会、日本顕微鏡学会、国際生命情報科学会

共同研究：

1. 東北大学金属材料研究所、川添良幸教授
2. 東北大学100万ボルト電子顕微鏡室、平賀賢二名誉教授、青柳英二技術員
3. 日立金属(株) 先端エレクトロニクス研究所、所久人研究員、藤井重男主任研究員

### 山口 俊郎

共同研究：

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

### 井上 雅博

共同研究：

1. 大阪大学大学院工学研究科 原子力工学専攻 牟田浩明助手
2. 大阪大学産業科学研究所金属材料プロセス研究分野 玄丞均助手, 中嶋英雄教授
3. 大阪大学大学院工学研究科 知能機能創成工学専攻 石黒浩教授

学会活動： エレクトロニクス実装学会・関西支部 若手研究会 幹事

## 科研費・助成金等

1. 21世紀COEプログラム事業推進担当者  
菅沼 克昭
2. 受諾研究、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」  
菅沼 克昭
3. 受諾研究、日本電気株式会社  
「LSI実装に応用した導電性接着剤接続の実装信頼性に関わるメカニズムの解析」  
菅沼 克昭
4. 平成16年度 科学研究費補助金（特別研究員奨励費）  
「微細回路パターン用金属ナノ粒子ペーストの開発及び焼結過程解析」  
金 槿銖
5. 科学研究費・特別研究員奨励費：平成16年度  
「新規BCNナノクラスターの構造と物性解明」  
成田 一人
6. 21世紀COEプログラム：新産業創造指向インターナノサイエンス」2004年度  
「メタルボロンナイトライド磁性粉末の合成・構造解析及び磁気特性評価」  
成田 一人

## 計算機ナノ材料デザイン分野

教授（兼任）吉田博



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



助教授 白井光雲

私は、半導体結晶成長や光物性分光実験の実験的研究を通して、実験事実を定量的に説明するための手段として用いていた物性理論の計算手法を通して物性理論研究に移り、1995年新たに発足した量子機能科学研究部門・量子物性研究分野を経て、産業科学研究所ナノテクノロジーセンターの計算機ナノ材料デザイン分野の助教授として、計算機ナノ材料デザイン手法の開発を行っています。ナノ構造を持つ新物質を計算物理学手法に基づく第一原理によりデザインすることは人類の大きな夢です。幸い、私は過去7年間にわたり、原子番号だけを入力パラメータにして、物質の基本法則である量子力学の基づき、全エネルギーの原子座標位置における微分である原子に働く力を計算し、これらの力に基づいて有限温度で原子が格子振動したり、高温で融解したり、また高速で冷却することによりアモルファス状態を正確に記述することのできる第一原理分子動力学プログラムについて競争的資金を含む公財政をもとに自ら開発し、OSAKA-2000というプログラム名で無償公開しています。これらのプログラムは、理論家のみならず、多くの実験家や企業の研究者および新物質開発担当者に広く受け入れられており、講習会やチュートリアルなどを通じては好評を得ています。

産研ナノテクノロジーセンターでは、ナノ構造を持つ新物質の計算機ナノマテリアルデザインが可能になる計算機基盤ソフトの開発を目標にしています。この分野は試行錯誤的な要素も多く多くの試練が待ちかまえていますが、チャレンジングな立場に立って、将来の産業応用に不可欠な計算手法とナノマテリアルデザイン・ツールを開発し、社会に提供してゆく研究を進めています。

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



助手 佐藤和則

大阪大学大学院理学研究科物理学専攻で博士（理学）の学位取得後、科学技術振興事業団計算科学研究員、大阪大学産業科学研究所 COE 研究員、日本学術振興会特別研究員、ユーリッヒ研究センター客員研究員を経て、現在産業科学研究所ナノテクノロジーセンター計算機ナノマテリアルデザイン分野の助手を務める。物質の性質を量子力学に基づき第一原理から計算し予測することは非常に難しい問題であるが、基底状態についてはかなり信頼できる計算方法が確立され、計算機の能力の向上のおかげで身近なものとなってきている。有限温度での第一原理計算の方法としては分子動力学法があるが、私は有限温度での磁性の議論のために、第一原理計算で求められたパラメーターを使ってモンテカルロシミュレーションを行うことを試みている。この方法を希薄磁性半導体の強磁性転移温度の予測に応用し、最近はかなり現実的なマテリアルデザインが可能になってきた。将来はこの方法を拡張し材料の合成法も含めてデザインしたい。また、材料だけでなくデバイスのデザインにも第一原理計算を応用できるように電気伝導特性の計算にも取り組んでいきたいと考えている。

## 研究概要

### ナノ構造材料の電子構造とマテリアルデザイン

計算機ナノマテリアルデザイン分野では、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。

### 平成16年度研究成果

- ・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。今年度の成果は以下の通りである。まず電子状態計算に関して、局所密度近似(LDA)を一步進めた一般化密度勾配近似(GGA)を取り入れ、LDAでは解明できなかった物質群に適応できるようにした。分子動力学シミュレーションの技法では、拡散現象など時間のかかるシミュレーションに関して、効率的な計算ができるよう「外部バイアス法」を考案し適応してきた。またその周辺のユーティリティプログラムとして、DOS計算などでの原子軌道分解を行うこと、スピンの計算の安定化などを図った。

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。さらに高圧下での構造変化を調べ、エネルギーギャップが100-200GPaくらいで閉じることを明らかにし、超伝導探索の手がかりをつかむ。

- ・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、光劣化はダングリン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

してきた。これらを防止するためのCN処理法が提案されているが、その高温でのダイナミクスを研究した。高温でもアモルファスシリコン中でのCNは非常に安定であるが、拡散は遅いことが分かった。

- ・ Si 中の不純物の拡散制御

Si 中の不純物の拡散は、デバイスプロセスで重要で、これまでにHやCu不純物に関してその機構を解明してきた。不純物振動の詳細が拡散に大きく関与していることを見いだしてきた。この機構に基づき、不純物振動を利用して拡散を制御することを研究している。不純物振動に共鳴する外部場を導入し、その不純物種の拡散だけを促進することを試みている。今のところ共鳴振動効果に関しては分子動力学シミュレーションで確認できている。さらにこの共鳴効果が拡散につながるかどうかを研究する。

Korringa-Kohn-Rostoker Coherent-potential-method (KKR-CPA)による電子状態計算パッケージ(MACHIKANEYAMA)を用いて、希薄磁性半導体の電子状態計算と半導体スピントロニクス材料の材料設計を行った。

- ・ LDA+U 法による (Ga, Mn)N, (Ga, Mn)As のキュリー温度の計算

局所近似(LDA)の誤差の補正を半経験的なLDA+U法を用いてシミュレートし(Ga, Mn)Nと(Ga, Mn)Asの電子状態計算を行いキュリー温度を見積もった。(Ga, Mn)AsではLDA+U法ではd状態がエネルギーの低い位置にシフトしp-d交換相互作用が主なメカニズムとなり、LDAに比べて若干低い $T_c$ を与える。(Ga, Mn)Nでは、非占有d状態がエネルギーの高い位置に予測されるため超交換相互作用の寄与が抑制され、特に高濃度で高い $T_c$ が予測される。しかし、モンテカルロシミュレーションによると、パーコレーションの効果により実際の $T_c$ はやはり低く、15%程度以上の超高濃度で $T_c$ が室温に近づく。

- ・ LDA-SIC 法による ZnO 系希薄磁性半導体の電子状態

Filippetti らによって提案された自己相互作用補正法(Pseudo-SIC)を KKR-CPA 電子状態プログラム(MACHIKANEYAMA)にとり入れ、ZnO 系の希薄磁性半導体について電子状態計算を行った。得られた状態密度は LDA のものとはかなり異なり、ギャップ中に表れる不純物準位の占有状態と非占有状態が大きく分裂し、フェルミレベルでの状態密度は減少する。Co を添加した系の場合、Co の部分状態密度の最も浅いピークがフェルミレベルの 2-3eV したに現れ、最も深いピークがフェルミレベルから 7eV 程度したに現れるなど、光電子分光実験とのよい一致が得られるようになった。

#### ・Cr 添加 II-VI 族希薄磁性半導体のモンテカルロシミュレーションによるキュリー温度の計算

希薄磁性体でバンドギャップ中にできる不純物バンドの広がりによって強磁性が安定化されている場合、一般的に磁氣的相互作用が短距離で、低濃度では不純物の分布に対して平均場近似を超えた取り扱いをしなければ $T_c$ を精度よく計算できないことが指摘されている。不純物バンドができる典型的な例としてCrを添加したZnS, ZnSe, ZnTeについてそれらのキュリー温度を第一原理計算とモンテカルロシミュレーションを組み合わせで計算した。モンテカルロシミュレーションによると低濃度ではこれらの系の $T_c$ は平均場近似に比べて非常に低く、平均場近似で予測されていた低濃度の急激な $T_c$ の立ち上がりはなくなって、 $T_c$ の濃度依存性はむしろ直線的になる。ZnCrTeにおいて $T_c$ の実験値と計算値の一致は非常によい。II-VI族では遷移金属の溶解度が一般にIII-V族よりも高いことから、II-VI族磁性半導体で高い $T_c$ が期待できる。

#### ・CuAlO<sub>2</sub>ベース希薄磁性半導体の材料設計

デラフォサイト構造をもつCuAlO<sub>2</sub>は、一般の酸化物とは違ってp型にドーピングしやすいことが実験で示されている。多くの希薄磁性半導体はホール添加により強磁性を示すことから、CuAlO<sub>2</sub>は強磁性希薄磁性半導体の候補となりうる。本研究では、CuAlO<sub>2</sub>のCuまたは、Alサイトに3d遷移金属を添加した系の第一原理計算を行い、強磁性状態と不規則状態のエネルギー差を計算した。その結果FeまたはCoをCuサイトに置換した系が最も高い $T_c$ を持つことがわかった。

#### ・強磁性ダイヤモンドのマテリアルデザイン

ダイヤモンドは、その高硬度、高い熱伝導率、高い移動度、高耐電圧性から、非常に特異なワイドギャップ半導体である。また、最近ではBドーピングしたダイヤモンドで超伝導が発見され注目を集めている。本研究ではボロンと水素、又は、リンと水素を同時ドーピングすることで強磁性ダイヤモンドが得られる可能性があることを、第一原理計算を用いて示す。格子間位置にドーピングされた水素はちょうどバンドギャップの中央に不純物バンドを作る。その不純物バンドの占有率をBまたはPの同時ドーピングにより調整することで強磁性が安定な状態を作ることができる。

#### ・Mn添加窒化物希薄磁性半導体の同時ドーピングによる $T_c$ の上昇法

窒化物半導体, AlN, GaN, InNにおいて、Mnドーピングによる格子定数の変化を補償するようにBe(AlN, GaNの場合)、またはCd(InNの場合)を同時ドーピングすると高

濃度で $T_c$ が大きく上昇することを第一原理計算により見いだした。また、格子変化を補償した系においては、 $T_c$ 上昇のためには、さらにホールを添加してやることが非常に有効であることがわかった。

## Publication List

- (1) What is the most stable structure of boron nitrides? K. Shirai, *Boundary* 20 (2004) pp. 2-7 (in Japanese).
- (2) High-pressure properties of icosahedron-based solid borons, K. Shirai, A. Masago, and H. Katayama-Yoshida, *phys. stat. sol. (b)* 241 (2004) pp. 3161-3167.
- (3) Dynamical Study and Material Design of Semiconductors by First-Principles Calculations, K. Shirai, *Solid State Physics* 39 (2004) pp. 875-881 (in Japanese).
- (4) Exchange interactions in diluted magnetic semiconductors, K. Sato, P. H. Dederichs H. Katayama-Yoshida and J. Kudrnovsky, *J. Phys. Condens. Matter* 16 (2004) S5491.
- (5) Enhancement of  $T_c$  by a carrier codoping method with size compensation for nitride-based ferromagnetic dilute magnetic semiconductors, V. A. Dinh, K. Sato and H. Katayama-Yoshida, *J. Phys. Condens. Matter* 16 (2004) S5705.
- (6) Materials Design of Transparent and Half-Metallic Ferromagnets of MgO, SrO and BaO without Magnetic Elements, K. Kenmochi, V. A. Dinh, K. Sato, A. Yanase and H. Katayama-Yoshida, *J. Phys. Soc. Jpn.* 73 (2004) 2952.
- (7) Low temperature ferromagnetism in (Ga, Mn)N: Ab initio calculations, K. Sato, W. Schweika, P. H. Dederichs and H. Katayama-Yoshida, *Phys. Rev. B* 70 (2004) 201202.
- (8) Materials Design of Transparent, Half-metallic and Room-temperature Ferromagnets in I<sup>2</sup>-VI Semiconductors with 4d Transition Metal Element, M. Seike, K. Sato, A. Yanase and H. Katayama-Yoshida, *Jpn. J. Appl. Phys.* 43 (2004) L834.
- (9) New Classes of Diluted Ferromagnetic Semiconductors based on CaO without Transition Metal Elements, K. Kenmochi, M. Seike, K. Sato, A. Yanase and H. Katayama-Yoshida, *Jpn. J. Appl. Phys.* 43 (2004) L934.
- (10) Theoretical prediction of Curie temperature in (Zn, Cr)S, (Zn, Cr)Se and (Zn, Cr)Te by First principles calculations, T. Fukushima, K. Sato, H. Katayama-Yoshida and P. H. Dederichs, *Jpn. J. Appl. Phys.* 43 (2004) L1416.
- (11) Design of Transparent, Half-Metallic Ferromagnetic 4d-transition-metal-doped K<sub>2</sub>S with High Curie Temperature, M. Seike, K. Sato, A. Yanase and H. Katayama-Yoshida, *Jpn. J.*

Appl. Phys. 43 (2004) 3367.

(12) Materials Design of Ferromagnetic Diamond, K. Kenmochi, K. Sato, A. Yanase and H. Katayama-Yoshida, Jpn. J. Appl. Phys 44 (2005) L51.

## Presentation List

### 【国内学会】

2004 年秋の日本物理学会：2004 年 9 月 12 日～15 日（青森大学）

“圧力下における固体ホウ素の安定状態”

真砂啓、白井光雲、吉田博

“デラフォサイト型CuAlO<sub>2</sub>における欠陥についての第一原理的研究II”

浜田幾太郎、吉田博

“希薄磁性半導体(Zn, Cr)Te の電子状態計算とキュリー温度の見積もり”

福島鉄也、佐藤和則、吉田博

“第一原理計算から見た磁性半導体の電子構造”

佐藤和則

“自己相互作用を補正した第一原理電子状態計算手法による ZnO 系磁性半導体の強磁性安定性の予測”

豊田雅之、赤井久純、佐藤和則、吉田博

“第一原理計算によるCuAlO<sub>2</sub>を母体とした希薄磁性半導体のマテリアルデザイン”

木崎栄年、佐藤和則、吉田博

“磁性元素を含まない透明強磁性酸化物の第一原理マテリアルデザイン”

劔持一英、清家聖嘉、佐藤和則、柳瀬章、吉田博

“高次機能調和量子ナノマテリアル・デバイスのデザインと実証”

吉田博

“第一原理計算によるシリコン中の水素の振動問題”

白井光雲、吉田博

2004 年秋の応用物理学会：2004 年 9 月 1 日～4 日（東北学院大学）

“第一原理計算による機能性半導体のマテリアル・デバイスデザイン”

吉田博

“シリコン結晶中の不純物原子の拡散機構と制御”

吉田博、道北俊行、白井光雲

“シリコン中の不純物拡散の第一原理シミュレーション”  
白井光雲、吉田博

“第一原理分子動力学法によるアモルファスシリコン中の CN”  
光田直樹、白井光雲、吉田博

### 【国際会議】

2004 MRS Spring Meeting : April 12-16, 2004 San Francisco, CA USA

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

“Exchange Interactions, Curie Temperatures and Spin-waves in Dilute Magnetic Semiconductors”

Zinc Oxide Workshop : 16-20 May, 2004 Maui, HI USA

H. Katayama-Yoshida

“Ab Initio Materials Design for ZnO-Based Semiconductor Spintronics: Prediction vs. Experiment”

International Conference on Nanospintronics Design & Realization (ICNDR) : 24-28 May, 2004 Kyoto, Japan IAS

H. Katayama-Yoshida

“Materials design for semiconductor spintronics by ab initio electronic structure calculation: Prediction vs. Experiment”

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

“Exchange interactions and Curie temperatures in diluted magnetic semiconductors”

3<sup>rd</sup> International Conference “Computational Modeling and Simulation of Materials” & Special Symposium “Modeling and Simulating Materials Nanoworld” (CIMTEC) : May 30-June 4, 2004 Acireale (Catania), Sicily, Italy

H. Katayama-Yoshida

“Computer modeling and simulation for nanospintronics: prediction vs. experiment”

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

“Exchange interactions and Curie temperatures in diluted magnetic semiconductors”

19th European Photovoltaic Solar Energy Conference: June 7-11, 2004 Paris, France

N. Mitsuda, K. Shirai and H. Katayama -Yoshida

“Ab-initio Molecular Dynamics Simulation of CN in amorphous silicon”

12<sup>th</sup> international Conference on Solid Films and Surfaces (ICSFS-12): June 21-25, 2004,  
Congress Center, Hamamatsu, Japan

H. Katayama-Yoshida

“Electronics and spintronics materials design by first principles approach”

IVC-16 (16<sup>th</sup> International Vacuum Congress)

ICSS-12 (12<sup>th</sup> International Conference on Solid Surfaces)

NANO-8 (8<sup>th</sup> International Conference on Nanometer Scale Science and Technology)

AIV-17 (17<sup>th</sup> Vacuum National Symposium)

June 28-July 2, 2004, Cinema Festival Palace, Venice, Italy

H. Katayama-Yoshida

“Materials Design for Spintronics by ab initio Electronic Structure Calculation”

The 3<sup>rd</sup> International Conference on Physics and Applications of Spin-Related Phenomena  
in Semiconductors (PASPS-III): 21-23 July, 2004, Santa Barbara, California, USA

K. Sato, H. Katayama-Yoshida

“Is High-Tc possible in (Ga, Mn)N?: Monte Carlo Simulation vs. Mean Field Approximation”

K. Kemmochi, M. Seike, K. Sato, A. Yanase, H. Katayama-Yoshida

“New Class of high-Tc Diluted Ferromagnetic Semiconductors Based on CaO without  
Transition Metal Elements”

Van An Dinh, H. Katayama-Yoshida

“Carrier Codoping Method with Size Compensation to Enhance the Tc of Mn-doped Nitrides”

27<sup>th</sup> International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS-27): 26-30 July,  
2004, Flagstaff, Arizona, USA

M. Seike, K. Kemmochi, K. Sato, A. Yanase, H. Katayama-Yoshida

“New class of High-Tc Diluted Ferromagnetic Semiconductors Based on K<sub>2</sub>S without

Transition Metal Elements”

A. Masago, K. Shirai, H. Katayama-Yoshida

“Crystal stability of -and -boron”

I. Hamada, H. Katayama-Yoshida

“Ab initio study of native point defects in Delafossite  $\text{CuAlO}_2$ ”

K. Sato, H. Katayama-Yoshida

“Exchange interactions and Curie temperatures in dilute magnetic semiconductors”

K. Shirai, T. Michikita, and H. Katayama -Yoshida

“A theoretical study of Cu gettering in Si”

11th Int. Conf. on High Pressure Semiconductor Physics, Aug. 1-5, 2004, Berkeley USA

K. Shirai, A. Masago and H. Katayama -Yoshida

“High-pressure properties of icosahedron-based solid borons”

4th Int. Symposium on Advanced Science and Technology of Silicon Materials, Nov.  
22-26, 2004, Kona, Hawaii, USA

K. Shirai, T. Michikita and H. Katayama -Yoshida

“Molecular Dynamics Simulation of Impurity Diffusion in Si”

The 9<sup>th</sup> ASIA PACIFIC PHYSICS CONFERENCE (9<sup>th</sup> APCC): October 25-31, 2004,  
Hanoi, Vietnam

H. Katayama-Yoshida

“Ab initio Materials Design for Semiconductor Spintronics”

IFCAM (International Frontier Center for Advances Materials) Forum on “Electronic  
Properties of Interfaces and Contacts” : Nov. 28-30, 2004, Sendai, Japan

H. Katayama-Yoshida

“Control of the Local Electronic Structure and Engineering of Highly Correlated  
Deep-Impurity Band for Semiconductor Spintronics”

特許

シリコン結晶中のCu不純物のゲッタリング方法

吉田博、白井光雲、道北俊行：特願 2004-135971 (4/30/2004 出願)

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：特許登録番号第 3571034 号 (7/2/2004 登録)

低抵抗 n 型ダイヤモンドの合成法

吉田博：特許番号第 3568394 号 (6/25/2004 登録)

低抵抗 p 型SrTiO<sub>3</sub>の製造方法

吉田博、別役潔、川合知二、田中秀和：米国特許 6790278 (9/14/2004 登録)

強磁性 p 型単結晶酸化亜鉛およびその製造方法

吉田博、佐藤和則：台湾出願 89115311 登録番号 発明第 203716 号 (7/10/2004 登録)

強磁性 p 型単結晶酸化亜鉛およびその製造方法

吉田博、佐藤和則：EP 特許番号 1219731 (4/28/2004 登録)

### 科研費，助成金等

科学技術振興調整費 「ナノスピントロニクスデザインと創製」

研究分担者：吉田 博

研究課題名：透明磁性半導体ベースのデバイスデザインに関する研究

NEDO ナノ機能合成技術プロジェクト

研究課題名：ナノ構造物性シミュレーション技術の開発

研究分担者：吉田 博

科学技術振興事業団計算科学技術活用型特定研究開発推進事業 (ACT - JST)

研究課題名：計算機ナノマテリアル・デザイン手法の開発

研究分担者：吉田 博

科学技術振興事業団戦略的基礎研究 (CREST)

研究課題名：新規化学結合を用いるシリコン薄膜太陽電池

研究分担者：吉田 博

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)

研究課題名：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  
研究分担者：吉田 博

### その他の活動

コンピューテーショナル・マテリアルズ・デザイン（CMD）ワークショップ

第4回（平成16年3月9～13日）国際高等研究所

第5回（平成16年9月7～11日）国際高等研究所

## ナノバイオ知能システム分野



溝口 理一郎 (みぞぐち りいちょう)

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



古崎 晃司 (こざき こうじ)

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

## 研究概要

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．

## オントロジー工学によるナノテク知識の構造化

### 研究目的

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

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

### 研究内容

#### 1) ナノテクオントロジーの開発

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．それらの用語を，プロセス，構造，機能，物質の4つのカテゴリーに分類し，適切な中間概念を導入しつつ，予備的なオントロジーを構築した．

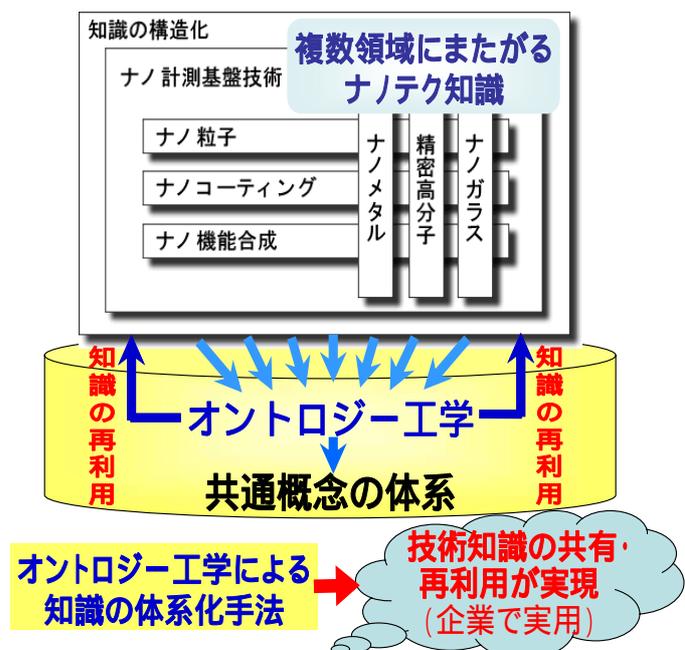


図1：オントロジー工学によるナノテク知識の構造化

## 2) オントロジー工学に基づく材料設計支援システムの開発

機械設計の分野で成果を収めている機能分解木を用いた知識共有の枠組みを、材料分野に適用した。機能分解木とは機能の達成関係を木構造で記述したもので、本枠組みでは機能達成方法の原理などを概念化した「方式」を用いて、対象の構造や物理原理などの背景を表している。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、その原理が材料の持つ「輻射」という性質であることを図2のように表す。

本手法を用いて、既知のナノテク材料知識を分析して基本的な要素知識に分解し、それらの知識を前述のナノテクオントロジーに基づいて体系化して計算機に格納することができる。このように、人間の思考を外化することにより、表現された知識と間の概念的なギャップを埋めることが可能となり、

- 思考過程の明示化・履歴管理が可能となり、網羅性をもって確認できる。
- 外化した知識を他者に容易に伝えることができる。
- 異分野間での知識共有が可能となる。

といった効果を得ることができる。

更に、体系化された知識を用いたナノテク材料設計支援システムの設計・開発を行っている(図3)。一つの機能を達成する方式は複数存在し、設計行為は適用する方式を選択すること行われる。このとき、様々な方式をデータベースとして蓄えておき、必要に応じてユーザーに提示することで、設計支援を行うことができる。材料設計においては、材料が発揮する機能の制御機構(方式)を選択する。その方式が適用可能な材料の選択する。その材料を合成する製造プロセスを選択する。というステップで設計の支援を行う。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今までに無い画期的な発想がなされることが期待される。現在、材料設計支援システムの一部について、プロトタイプを実装し、小規模な例題を用いて知識の体系化を行いつつシステムの有用性の確認と改良点の検討を進めている。

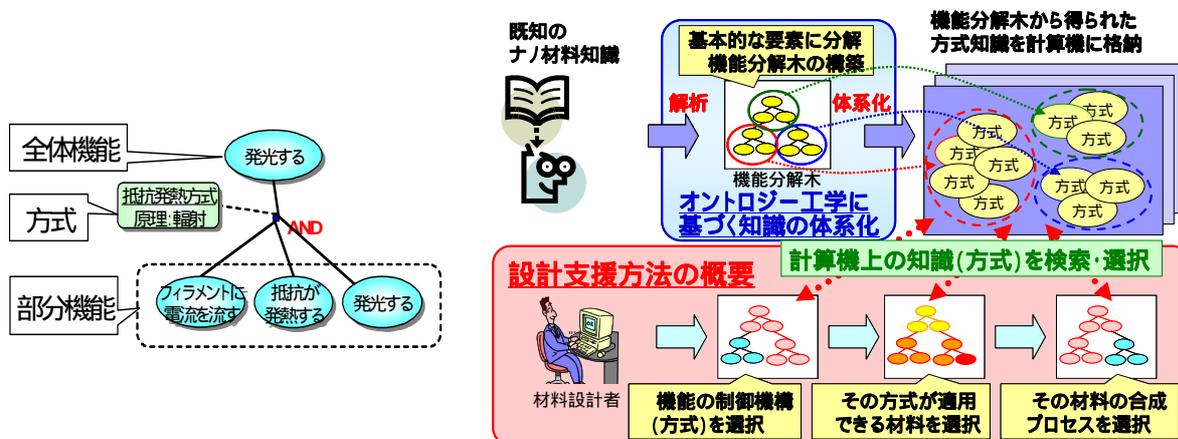


図2：機能分解木

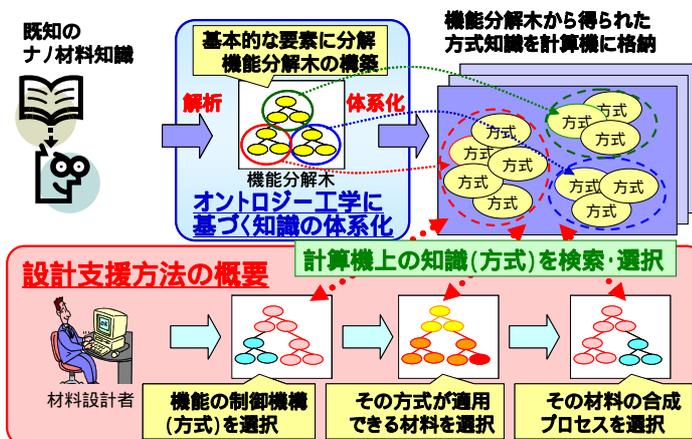


図3：材料設計支援システムの概要

# 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

## 研究目的

本研究は、先に述べたオントロジー工学の手法に基づき、複数の異なる領域を対象としたナノ材料に関する知識の体系化・共有化を行うことを目的としている。現在、産業科学研究所・極微プロセス研究分野の田中秀和助教授とセラミックス構造材料研究分野の中山忠親助手の協力を得て、ナノ薄膜およびナノ粒子の分野を中心とした知識の体系化を行っている。

## 研究内容

### 1) ナノ材料知識体系化の実施

機能オントロジーに基づく知識共有の枠組みを、ナノ薄膜およびナノ粒子の合成プロセスに関する材料知識に適用し、方法論の検証を行うと同時に、両領域にまたがるナノ材料知識の体系化を実施した。

本枠組みを材料合成プロセスに適用するにあたり、合成プロセスにおける単位操作の達成関係を基に、機能分解木を構築した。機能分解木の構築用に開発した専用ツールを使用し、ナノ粒子合成プロセスに関する機能分解木(図4)およびナノ薄膜合成プロセスに関する機能分解木(図5)の構築を行った。共に、気相法による合成プロセスを中心に構築し、単位プロセスを表すノードの数はナノ粒子が72、ナノ薄膜が128、各単位プロセスの達成方式を表すリンクの数はナノ粒子が46、ナノ薄膜が92ある。両者の機能分解木を比較することで、それぞれの合成プロセスの共通点・相違点が明示され、知識の共有・再利用が促進される。例えば、ナノ粒子・ナノ薄膜の合成プロセスにおいて、最初に行われる「原料となる気体原子を用意する」プロセスは共通している。一方、ナノ粒子の合成においては、「凝集制御や合成後の後処理」が重要となるため、それらに関するプロセスが多く見られるのに対し、ナノ薄膜合成においては「基盤の平坦さ」が重要となるため基盤を平坦にするプロセスが加わっている、などの相違点も明示されている。

このように体系化の実施を通して、本枠組みを用いて材料知識の体系化が行えることを確認できた。

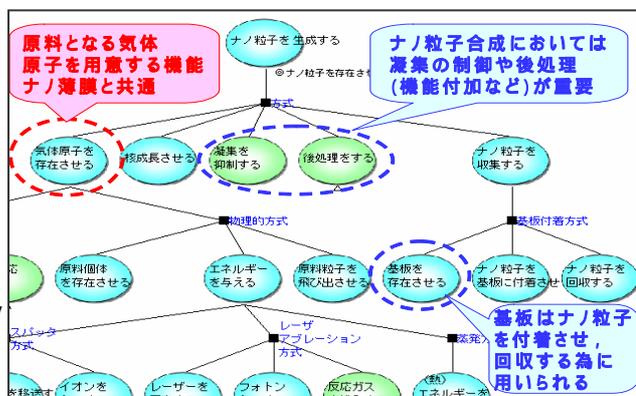


図4：ナノ粒子合成プロセスの機能分解木(一部)

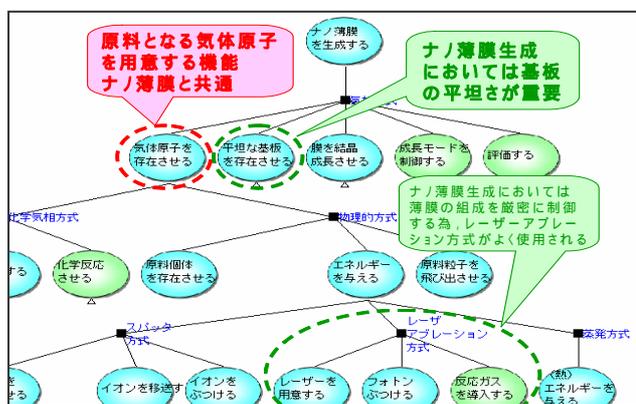


図5：ナノ薄膜合成プロセスの機能分解木(一部)

## 2) オントロジーを用いた具体事例の追試・検証

続いて、体系化したナノ材料知識を用いて、実際の材料開発の具体事例を追試的に記述することを通して、先に述べた材料設計支援システムの有用性の検討を行った。

図6は、中山助手が実施したナノ粒子製造の新プロセスの発想過程を、機能分解木を用いて追試的に記述したものを一部を示す。この製造プロセスにおいて、従来法では物理的気相合成法（PVD法）の考え方から、「Zr 気体を存在させる」という製造プロセスを抵抗に電流を流し、抵抗が発熱することで金属 Zr を加熱し、蒸発させる「抵抗発熱方式」で行っていた。しかし、この方式では金属を気化させる為に高エネルギーが必要となり、大量生産には適していなかった。そこで「Zr 気体を存在させる」を達成する方式を、化学的合成手法（MOCVD法）で用いられる「有機金属錯体昇華方式」に代替することで、大量の Zr 気体を得ることができるようになった。このように新プロセスの発想過程を、計算機上で記述できることを確認した。

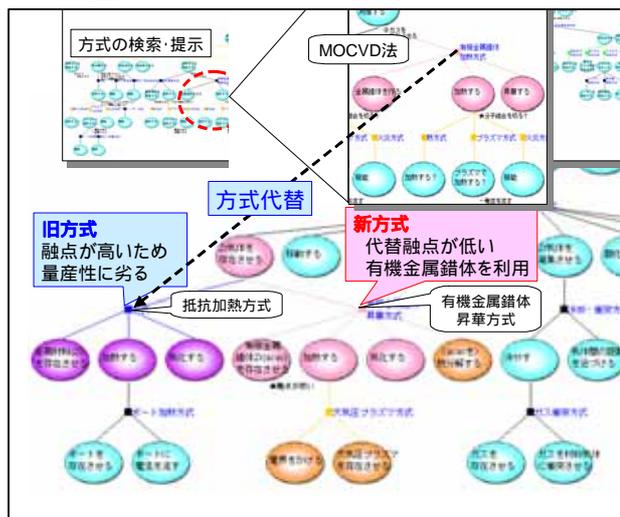


図6：新プロセス発想過程の機能分解木（一部）

一方、田中助教授が実施した新規磁気メモリ材料を目指した電界制御磁性体となるナノ薄膜の設計過程を、材料が発揮する機能の制御機構（方式）を選択。その方式が適用可能な材料の選択。その材料を合成する製造プロセスを選択。のステップに添って追試的に記述することで、材料設計支援システムの想定している支援過程の検証を行った。その結果、の過程については、現状の枠組みで設計に必要なノウハウ的知識を提示することが可能であることが確認された。またの材料選択に関しては、既存の材料データベースと概念レベルで接続する枠組みを導入するなどの検討が必要であることが明らかになった。

また、これらの具体事例をもとに追試的に記述することを通して、知識記述の協力を得た材料分野の専門家より、機能・製造プロセス知識統合的記述枠組みについて次のような評価を得た。

- 自分の持っている材料の機能や製造プロセスに関する知識を網羅性、一覧性を持って記述することができ、雑然としていた知識を整理することができた。
- 自分の専門分野だけでなく、少し離れた他分野の方式を比較して考えることが可能となり、今まで以上に発想の幅を広げることができた。
- この枠組みを用いることで、異分野の知識を理解することが容易になり、分野を越えた新材料の開発に役に立つであろう。

上述のように、設計支援システムを開発することが可能になるということが、具体事例の追試を通して示唆された。

## デバイスオントロジーに基づくシグナル伝達オントロジーの開発

生体は膨大な数の分子が協調的に制御し合うことにより成立するシステムである。生体をシステムとして研究するためには、生体内の反応、プロセス、パスウェイ、機能といった協調作用を研究する手法の開発が緊急に必要となっている。今日では、これらの協調作用をシステムとして余すところなく計算機上に再構築することが物学研究のひとつのゴールであると考えられている。

一般にシステムにおける協調作用の研究は、「量的」属性を扱う立場と「質的」属性を扱う立場に二分されるが、本研究では「質的」研究の基盤モデルとなるオントロジーの開発を行った。本研究が対象とするのは、細胞内の「シグナル伝達」および「代謝」というプロセスと、それにより達成される「機能」である。我々の問題意識は、これまで生物学で使われてきたモデルが不十分であったために、知識の記述に一貫性が欠け、知識の共有や再利用の防げとなっていたことにある。モデルはドメインの目的を正確に反映し、かつ頑強で一貫したものでなければならない。そこで我々は、従来より機械システムの機能のモデル化のために開発してきたデバイスオントロジーを生体分野に初めて導入し、シグナル伝達オントロジーCSNOを開発した。そして、それに基づくシグナル伝達知識の再構築により、これまでモデル化が不十分である原因を明確にし、上述の要求を満たすモデルを構築した。

## 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、オントロジーをグラフィカルに表示・編集する「オントロジーエディタ」、ガイドラインに従いオントロジーを構築支援する「概念工房」、構築したオントロジーを管理する「オントロジーサーバー」、複数のオントロジー間の依存関係を管理する「オントロジーマネージャ」の4つのシステムから構成される(図7)。

オントロジーエディタのインタフェースを改善すると共に、専用のWebサイトを開設し(<http://www.hozo.jp/>)システムの一般公開を行った。

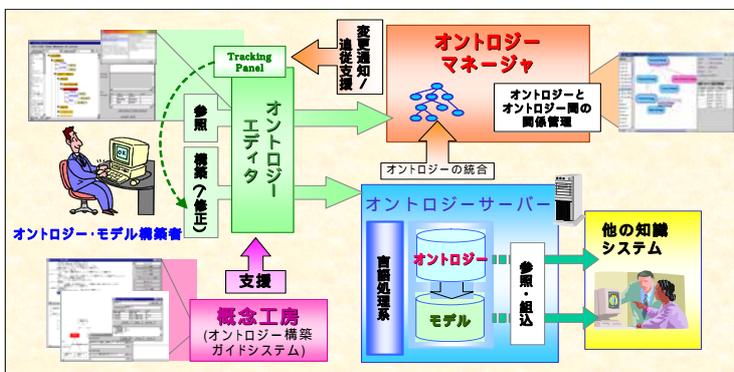


図7：オントロジー構築・利用環境「法造」

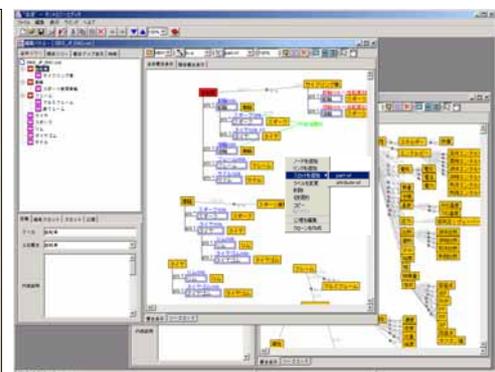


図8：オントロジーエディタの画面例

## Presentation List

### 国際会議

1. A Success Story of Ontological Engineering in a Japanese Company – Engineering Knowledge Management Based on Functional Ontology: Riichiro Mizoguchi, KEST04, Beijing, P.R.China, September 17-19, 2004
2. Ontological integration of data models for cell signaling pathways: Takako Takai-Igarashi, Riichiro Mizoguchi, Proc. of GIW2004, Tokyo, Dec.13-15, 2004.
3. Ontological Models of Two-layer Functional Concepts in Biological System: Mechanical and Elementary Functions: Takako Takai-Igarashi and Riichiro Mizoguchi, Proc. of the 3rd 21st COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" International Symposium, Makino, Shiga, March 9-10, 2005
4. Systematization of Nanotechnology Knowledge Through Ontology Engineering for Creative Design Support: Mechanical and Elementary Functions: Kouji Kozaki, Yoshinobu Kitamura and Riichiro Mizoguchi, Proc. of the 3rd 21st COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" International Symposium, Makino, Shiga, March 9-10, 2005

### 国内会議

1. 古崎 晃司, 來村 徳信, 渡邊 英一, 山形 尚子, 溝口 理一郎  
ナノテク材料技術の知識の構造化プロジェクトにおけるオントロジーの利用  
第5回人工知能学会セマンティックウェブとオントロジー研究会(金沢)  
2004年3月23日
2. 垂見 晋也, 古崎 晃司, 來村 徳信, 渡邊 英一, 溝口 理一郎  
知識構造化のためのナノテク材料の特性と機能に関するオントロジー的考察  
第18回人工知能学会全国大会(金沢)2004年6月2日

### 学会活動、共同研究

溝口 理一郎

共同研究:

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

学会活動：

- ・人工知能学会副会長
- ・セマンティックウェブとオントロジー研究会（人工知能学会）主査
- ・教育システム情報学会理事
- ・The 3<sup>rd</sup> International Semantic Web Conference: ISWC2004 組織委員長
- ・International Semantic Web Science Association メンバー
- ・European Project of Semantically-Enabled Knowledge Technologies, Advisory member

古崎 晃司

共同研究：

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

共同研究：

- 1．オントロジー工学に基づく材料開発プロセス設計支援システムの試作  
セラミックス構造材料研究分野 中山忠親助手

所属学会：人工知能学会，情報処理学会

## 科研費・助成金等

- 1．溝口理一郎  
科学研究費補助金特定 代表  
機能オントロジーに基づく設計・製造知識コンテンツ管理と活用
- 2．溝口理一郎  
科学研究費補助金基盤 A 代表  
Theory-Aware オーサリングワークベンチの開発

## ナノテクノロジープロパテント分野

学内兼任教授

石黒 浩 (イシグロ ヒロシ)

大阪大学大学院工学研究科知能・機能創成工学専攻・教授

1991年 大阪大学大学院基礎工学研究科

物理系専攻修了・工学博士・

同年 山梨大学工学部情報工学科助手・

1992年 大阪大学基礎工学部

システム工学科助手・

1994年 京都大学大学院工学研究科

情報工学専攻助教授・

1998年 同大学大学院情報学研究科

社会情報学専攻助教授・

この間、1998年より1年間、

カリフォルニア大学サンディエゴ校客員研究員・

2000年 和歌山大学システム工学部情報通信システム学科助教授・

2001年より同大学教授・

1999年より ATR 知能映像研究所客員研究員・

現在、大阪大学大学院工学研究科知能・機能創成工学専攻教授および ATR 知能ロボティクス研究所客員室長。知能ロボット、アンドロイドロボット、知覚情報基盤の研究に興味を持つ。



### 研究テーマ

日常活動型ロボットの工学的及び認知科学的研究開発

アンドロイドの工学的及び認知科学的研究開発

柔らかい皮膚センサの研究開発

センサネットワークの研究開発

環境一体型ロボットの研究開発

### 受賞

大阪活力グランプリ(2004)

国際電気通信基礎技術研究所創立記念日表彰(2001, 2004, 2005)

日本ロボット学会論文賞(2001), 日本ロボット学会研究奨励賞(1997)

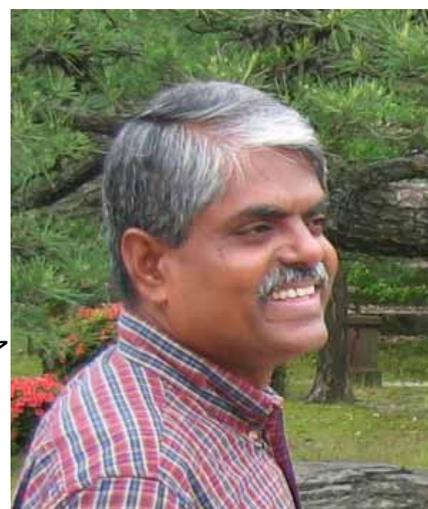
## ナノテクノロジートランスファー分野

平成 16 年 5 月 6 日 ~ 9 月 3 日

客員教授

Ramasamy RAMARAJ (ラマサミー ラマラジ)

現職 インド Madurai Kamaraj 大学 Professor



1956 年 生まれ

1978 年 Madurai Kamaraj 大学 化学科 卒業

1980 年 Madurai Kamaraj 大学 化学科 修士課程 修了

1987 年 Madras 大学 化学科 博士課程 修了

1985 年 理化学研究所 博士 研究員

1986 年 ドイツ マックスプランク線科学研究所 博士 研究員

1988 年 Madurai Kamaraj 大学 Lecturer

1996 年 Madurai Kamaraj 大学 Reader

1996 年 Madurai Kamaraj 大学 光電気化学研究所 所長

2004 年 Madurai Kamaraj 大学 Professor

受賞

1998 年 Tamilnadu Scientist Award (TANSA Award) for Research

2000 年 Chemical Research Society of India (CRSI) Medal for Research

2000 年 Homi J. Bhabha Award for Research in Applied Sciences

2000 年 Elected to Fellow of Academy of Sciences, Indian Academy of Sciences

代表的論文

Iron(III)-Salen Complexes as Enzyme Models: Mechanistic Study of Oxo(salen)complexes Oxygenation of Organic Sulfides, *J. Org. Chem.*, 67, 1506-1514 (2002). Comparison of Reactions of Radical Cations of 1-Phenylalkanols Produced by Photoionization and by One-electron Oxidation in Aqueous Solution, *J. Chem. Soc., Perkin Trans. 2*, 1613-1619 (2001). Extrazeolite Electron Transfer at Zeolite Encapsulated Polypyridyl Metal Complexes Coated Electrodes, *Langmuir*, 14, 2497-2501 (1998). Marcus Inverted Region in the Photoinduced Electron Transfer Reactions of Ruthenium(II)-Polypyridine complexes with Phenolate Ions, *J. Phys. Chem., A* 101, 8195-8199 (1997). Influence of Polymer Structure on the Electrochemistry of Phenothiazine Dyes Incorporated into Nafion Films, *J. Chem. Soc., Faraday Trans.*, 90, 1241-1244 (1994). Oxygen Evolution by Water Oxidation Mediated by Heterogeneous Manganese Complexes, *Angew. Chem., Int. Ed. Engl.*, 25, 825-827 (1986).

平成16年9月6日～10月5日

客員教授 Thomas Wirth

所属：Cardiff 大学（イギリス）

略歴：

1986年12月 Bonn 大学化学科（ドイツ） 卒業  
1989年09月 Bonn 大学大学院 修士課程 修了  
1992年04月 Bonn 大学大学院 博士課程 修了  
1992年04月 Berlin 工科大学（ドイツ） 博士研究員  
1992年08月 京都大学 日本学術振興会  
外国人特別研究員  
1994年03月 Basel 大学（スイス） 研究員  
2000年09月 Cardiff 大学 教授 現在に至る



学位：1992年04月 博士（Ph.D.）（Bonn 大学）  
専門分野：有機合成化学

平成16年10月6日～11月5日

客員教授 Jay A. LaVerne

[研究内容] 高速重荷電粒子によるナノ構造体の形成に関する研究

[専門分野] イオンビーム、放射線化学

[略歴]

1968年 ラマール大学化学科卒業  
1979年 ネブラスカ大学物理化学科博士課程修了  
1979～1984年 ノートルダム大学放射線実験所 研究員  
1984～1986年 ノートルダム大学放射線実験所 助手  
1986～1992年 ノートルダム大学放射線実験所 助教授  
1992～ ノートルダム大学放射線実験所 教授



[連絡先] 314 Radiation Laboratory, University of Notre Dame, Indiana 46556, U.S.A,

平成 16 年 12 月 1 日 ~ 平成 17 年 2 月 28 日

客員助教授

趙 大源 ( ちょう だえ うおん )

現職 韓国 Seonam 大学化学科 Assistant Prof.

1959 年 生まれ

1983 年 Chungnam 国立大学化学科卒業

1985 年 Chungnam 国立大学化学科修士課程修了

1995 年 Chungnam 国立大学化学科博士課程修了



1988 年 Mokwon 大学化学科 Assistant Teacher

1995 年 Seonam 大学化学科 Assistant Prof.

#### 代表的論文

Two-photon induced Excited-state Intramolecular Proton Transfer Process on 1-hydroxyanthraquinone, *Chem. Phys. Lett.*, **2004**, 385, 384-388. Resonance Raman Spectroscopic Investigation of Directly Linked Zinc(II) Porphyrin Linear Arrays, *J. Phys. Chem. A.*, **2002**, 106, 2359-2368. Picosecond Transient Resonance Raman Study on the Excited-state Conformational Dynamics of a Highly Ruffled Nickel Porphyrin, *J. Raman Spectrosc.*, **2001**, 32, 487-493. Transient Absorption and Resonance Raman Investigations on Axial Ligand Photodissociation of Halochromium(III) Tetraphenylporphyrin, *J. Phys. Chem. A.*, **2000**, 104, 4816-4824. Exciplex Formation Dynamics of Photoexcited Copper(II) Tetrakis(4-N-methylpyridyl) Porphyrin with Synthetic Polynucleotides Probed by Transient Absorption and Raman Techniques, *J. Phys. Chem.* **1997**, 101, 5412-5417. Observation of Hydrogen Bonding Effects on Twisted Intramolecular Charge Transfer of *p*-(N,N-Diethylamino)benzoic Acid in Aqueous Cyclodextrin Solutions, *J. Phys. Chem.* **1996**, 100, 15670-15676. 15 Time-Resolved Resonance Raman and Transient Absorption Studies on Water-Soluble Copper(II) Porphyrins, *J. Phys. Chem.*, **1996**, 100, 3075-3083. Time-Resolved Resonance Raman Spectroscopic Study on Copper(II) Porphyrins in Various Solvents: Solvent Effects on the Charge Transfer States, *J. Phys. Chem.*, **1995**, 99, 5826-5833. Excited-State Geometry Change of 4-Biphenylcarboxylic Acid in Aqueous  $\gamma$ -Cyclodextrin Solutions, *J. Phys. Chem.* **1994**, 98, 558-562.

平成17年3月1日～3月31日

客員助教授 El-Maghraby Mohamed A. El-Maghraby

所属：Physics Department, Faculty of Science,  
Assiut University



略歴：

1986年6月 アシウト大学 理学部 物理学科 卒業

1992年6月 アシウト大学大学院 理学研究科  
物理学専攻 博士前期課程 修了

1999年3月 山口大学大学院 工学研究科  
材料科学工学専攻 博士後期課程 修了

1987年10月～1992年6月 アシウト大学 理学部 物理学科 実験助手

1992年6月～1995年10月

アシウト大学 理学部 物理学科 ティーチングアシスタント

1999年11月～2002年9月 アシウト大学 理学部 物理学科 講師

2002年9月～2002年12月 富山大学大学院 理学研究科 客員研究員

2003年4月～2003年8月 富山大学大学院 理学研究科 客員研究員

2003年8月～現在 アシウト大学 理学部 物理学科 講師

ナノ構造機能評価研究部門

## ナノ構造多次元評価分野

弘津 禎彦 (ひろつ よしひこ)

### 略歴

- 1967年 早稲田大学理工学部金属工学科卒業
- 1969年 東京工業大学大学院理工学研究科修士課程修了
- 1969年 東京工業大学工学部助手
- 1980年 長岡技術科学大学工学部助教授
- 1991年 長岡技術科学大学工学部教授
- 1994年 大阪大学産業科学研究所教授
- 2004年 大阪大学産業科学研究所  
産業科学ナノテクノロジーセンター教授(兼任)



専門分野 電子線結晶学、材料科学

研究テーマ アモルファス・非平衡物質の構造解析、ナノ粒子構造と磁性

所属学会 日本金属学会、日本顕微鏡学会、日本物理学会、日本結晶学会

受賞 日本金属学会論文賞、日本電子顕微鏡学会賞(瀬藤賞)

趣味 テニス

内藤 宗幸 (ないとう むねゆき)

### 略歴

- 1997年 神戸大学工学部応用化学科卒業
- 1999年 大阪大学大学院工学研究科物質化学専攻  
博士前期課程修了
- 2004年 大阪大学大学院工学研究科マテリアル科学専攻  
博士後期課程修了
- 2004年 大阪大学産業科学研究所特任助手
- 2005年 大阪大学産業科学研究所  
産業科学ナノテクノロジーセンター助手



専門分野 電子線構造解析、材料科学

研究テーマ 非晶質材料の構造解析、透過電子顕微鏡を用いた新規評価法の開拓

所属学会 応用物理学会

趣味 読書

## 研究概要

### 電子線による先端機能材料構造パラメータの精密定量解析手法の開発に関する研究

#### L1<sub>0</sub>型規則合金ナノ粒子の規則度測定法の開発と粒径依存性の評価

はじめに

L1<sub>0</sub>型規則構造を有するFePt、FePd単磁区ナノ粒子は次世代超高密度磁気記録媒体の候補として期待されている。これらL1<sub>0</sub>型ナノ粒子は非常に大きな結晶磁気異方性エネルギーを有し磁化の熱擾乱に対し非常に安定であることから、極微小粒子サイズ領域においても強磁性を安定に保ち得る。このとき、結晶磁気異方性の大きさは合金の長範囲規則度に依存しており、磁性制御の観点から規則度の定量評価が望まれるが、粒径10nm程度で基板上に2次元分散したL1<sub>0</sub>型FePt、FePdナノ粒子の規則格子反射をX線回折法により高精度に定量評価することは難しい。そこで、本研究では電子線を用いた規則度測定を試みた。電子回折では強度解析に際し電子の多重散乱を考慮する必要がある。また、強度解析に際し、試料厚さ、合金組成、格子定数などを知る必要がある。本研究ではこれら全てのパラメータを電子線を用いて決定した。さらに電子回折の利点であるナノプローブ電子線を用いることにより、個々のナノ粒子規則度を測定し、その粒径依存性を調べた。また、異なる加速電圧を利用した規則度測定法を考案した。以下に順を追ってこれら規則度測定手法詳細と測定精度に関して述べる。

#### 実験方法

電子回折図形は透過電子顕微鏡(JEM-2010、-3000F、H-3000)を用いて観察し、イメージングプレートを用いてデジタル記録した。このとき、[114]、[116]、[118]入射にて $hh0$ 系統反射を励起させることにより、回折強度の試料厚さ依存性を単純化した。またナノビーム電子回折図形はJEM-3000Fを用いて実測ビーム径4nm、電子線収束角0.4mradにて平行照射条件下で観察した。合金組成はJEM-3000Fに搭載したエネルギー分散型X線分光装置を用いて行った。平均組成はFe-56at%Pt、Fe-58at%Pdである。このとき特性X線強度誤差は制限視野で0.1%、ナノビームで1%のオーダーである。試料厚さはFePtナノ粒子は断面観察結果から、FePdナノ粒子はJEM-3000Fに搭載した電子線バイプリズムを用いて観察した干渉像から測定した。平均粒径は楕円の長軸と短軸の平均値と定義して電子顕微鏡像から測定し、対数正規分布関数を用いて整理した。電子回折強度計算はマルチスライス法を用いて行った。計算に際し空間周波数成分は $30\text{nm}^{-1}$ まで取り込み、また、投影ポテンシャルの虚数項は実数項の10%として吸収を考慮した。計算に必要な格子定数はJEM-3000Fを用いて制限視野回折図形から測定した。このとき、Pt多結晶薄膜を標準試料としてカメラ長の較正を行った。Debye-Waller因子はバルクでの報告値を用いた。

#### 実験結果

図1は計算により求めた回折強度比 $I_{110}/I_{220}$ の規則度依存性を表すグラフに実測回折強度比を記入した図である。図中試料番号#1-3はそれぞれFePtナノ粒子(873K-24h熱処理、平均粒径12nm)、FePdナノ粒子(873K-1h熱処理、平均粒径11nm)、FePdナノ粒子(873K-10h熱処理、平均粒径11nm)を示す。図中、実線で示した曲線はバルクの温度因子を用いた場合の結果、破線は $B=1$ を用いた場合の結果である。規則度測定結果を下記表1に示す。粒径低下により温度因子は増大するが、FePt、FePdナノ粒子中におけるFe、Pt、Pdの実測例は無い。図1に示す様に温度因子の増大は規

規則度の低下を生じ、特に規則度が高い領域においてこの傾向が顕著である。

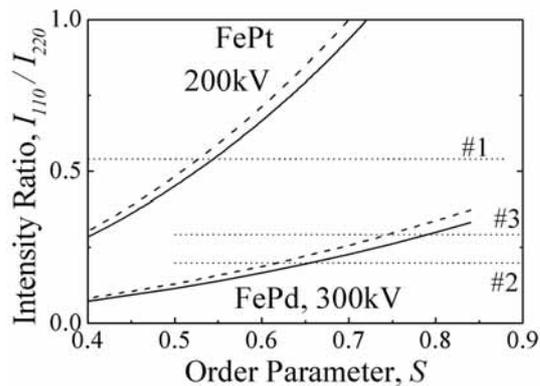


図 1 回折強度比の規則度依存性と実測強度比との関係。

本研究では $B=1^{-2}$ という非常に大きい値を用いた(破線)が、規則度低下は最大7%であった。Fe<sub>42</sub>Pd<sub>58</sub>試料では到達し得る最大の規則度は0.84であるが、実測規則度は0.79であり、相対的に90%以上規則化していることが判明した。

表 1 本研究で測定した長範囲規則度一覧

合金	FePt	FePd	
熱処理	873K-24h	873K-1h	873K-10h
温度因子 B=bulk	S=0.55	S=0.65	S=0.79
温度因子 B=1 <sup>-2</sup>	S=0.53	S=0.62	S=0.75

一方、回折強度計算結果から、加速電圧上昇とともに回折強度比の厚さ依存性が小さくなることが判明した。そこで、超高圧電子顕微鏡を利用して加速電圧 1MV にて制限視野電子回折図形を観察した。このとき、実測強度比を説明し得る規則度と試料厚さとの間には図 2 の関係があることが判明した。さらに、300kV で測定した回折強度比についても同様の関係が成り立ち、両者の交点から規則度と試料厚さがユニークに決定されることが判明した。実験に用いた試料は#3 である。図 2 から、規則度 0.84、試料厚さ 7.6nm と決定されたが、この値は制限視野回折からの測定値  $S=0.79(300kV)$ 、 $S=0.82(1MV)$  ならびに電子線ホログラフィーによる実測厚さ 7.8nm と良い一致を示していることがわかる。この手法は、今後、規則度のみならず不純物の占有原子位置決定や温度因子の決定等、電子回折を利用した多様な展開が期待される。

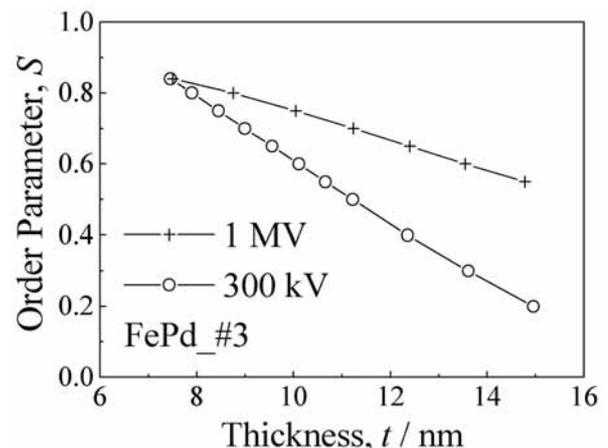


図 2 実測回折強度比をもとにした規則度の試料厚さ依存性。

最後に、規則度の粒径依存性測定結果を示す。この測定では、ナノビーム図形撮影後、直ちに該当粒子の明視野象を観察した。結果を図 3 に示す。粒径 8nm 以上では測定結果は制限視野回折に基づく平均規則度近傍に分布しているが、8nm 以下の領域で規則度が低下している。これは粒径低下に伴う比表面積増大に起因すると考えられる。規則化のサイズ限界に関して有用な知見が得られた。

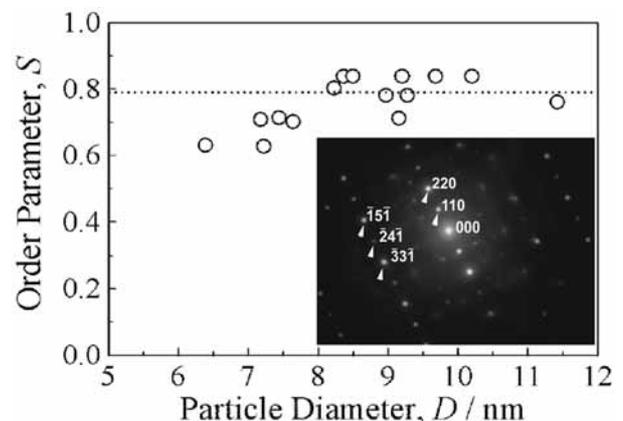


図 3 規則度の粒径依存性。ナノビーム電子回折図形の例を图中に示す。

## ランダム系物質の電子線構造解析手法の開発に関する研究

ランダム系物質の局所構造解析は、これまで主に X 線および中性子線回折によって行われており、試料が均一であることを前提に解析が進められてきた。しかし、実際の材料においては、局所的に不均一な領域が存在し、それが結晶化過程や物性などに大きな影響を及ぼすことも少なくない。そこで、局所的解析に優れた先端透過型電子顕微鏡(TEM)を用いたランダム系物質の構造解析プロセスの確立を試みた。図 1 に TEM によるランダム系物質の構造解析プロセスの流れを示す。図中に示すように、電子線構造解析、高分解能像、およびナノビーム電子回折から得られた情報を矛盾無く満たすような非晶質構造モデルをリバースモンテカルロ法を用いて作成することにより、他の回折手法よりも信頼性の高い構造解析を行なうことが可能であり、様々なランダム系物質への適用が期待される。

図 1 に TEM によるランダム系物質の構造解析プロセスの流れを示す。図中に示すように、電子線構造解析、高分解能像、およびナノビーム電子回折から得られた情報を矛盾無く満たすような非晶質構造モデルをリバースモンテカルロ法を用いて作成することにより、他の回折手法よりも信頼性の高い構造解析を行なうことが可能であり、様々なランダム系物質への適用が期待される。

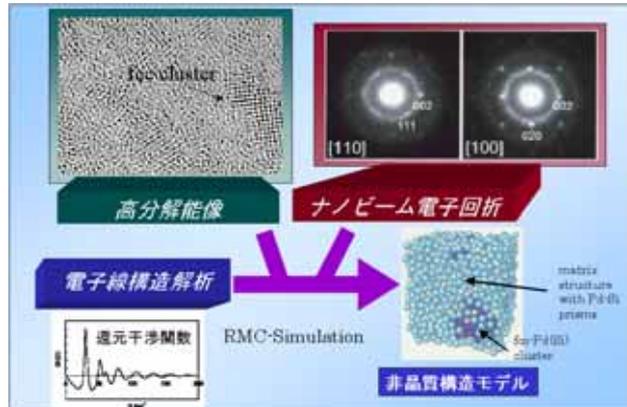


図 1 . 透過型電子顕微鏡によるランダム系物質の構造解析プロセス

図中に示すように、電子線構造解析、高分解能像、およびナノビーム電子回折から得られた情報を矛盾無く満たすような非晶質構造モデルをリバースモンテカルロ法を用いて作成することにより、他の回折手法よりも信頼性の高い構造解析を行なうことが可能であり、様々なランダム系物質への適用が期待される。

## アモルファス $\text{Fe}_{84}\text{Nb}_7\text{B}_9$ 合金の電子線構造解析

次に、上述した解析プロセスを、アニールにより微細なナノbcc-Fe組織を形成し、優れた軟磁性特性を示すアモルファス $\text{Fe}_{84}\text{Nb}_7\text{B}_9$ 合金に応用した例を報告する。図 2 には確立した解析プロセスによって、アモルファス $\text{Fe}_{84}\text{Nb}_7\text{B}_9$ 合金から得られた構造モデルに対し、ボロノイ多面体解析を行なった結果を示す。Feを中心とする多面体にはbcc的クラスターが多く見られ、これはナノbcc-Fe結晶の形成に直接関係していると考えられる。一方、Nbを中心とする多面体には配位数の大きい(14~16) Fe-Nb化合物的なものが比較的多く見出され、これは原子拡散を困難にし、結晶粒成長を抑制する作用があると思われる。

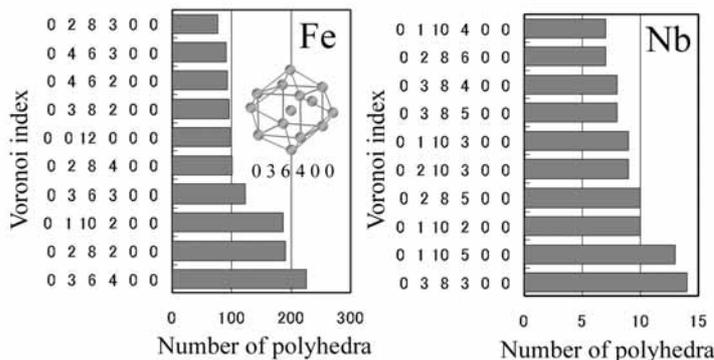


図 2 . リバースモンテカルロ計算により得られた構造モデル中に見られる配位多面体

にはbcc的クラスターが多く見られ、これはナノbcc-Fe結晶の形成に直接関係していると考えられる。一方、Nbを中心とする多面体には配位数の大きい(14~16) Fe-Nb化合物的なものが比較的多く見出され、これは原子拡散を困難にし、結晶粒成長を抑制する作用があると思われる。

## デバイス材料の電子線ナノ構造解析手法の確立に関する研究 ナノ電子ビームを用いた相変化型光ディスクの極微構造解析

近年の情報技術の急速な進歩に伴い高密度、高速な記録媒体が求められているが、相変化型光ディスクはこれらの条件を満たす記録媒体として現在最も注目されているものの一つであり、DVD-RW などに応用されている。この相変化型記録は結晶相 - 非晶質相の相変化に伴う光学特性の変化を利用した記録方式であり、結晶化させた記録材料にレーザー光を照射し熔融急冷させることでサブミクロンサイズの非晶質相を形成させ、記録ビットとしている。また、形成させた非晶質相に再びレーザーを照射し結晶化温度以上で加熱することで初期状態（結晶）に戻すことが出来る。Ge-Sb-Te (GST) 系は極めて大きな結晶化速度を有し、かつ繰り返し特性に優れていることなどから相変化型記録材料として代表的なものとなっている。

ところで、実際の相変化型記録媒体において記録層の膜厚は 20 nm 以下であり、上下保護層に挟まれた構造であるのに対し、従来の相変化型記録材料の構造解析で用いられた試料の多くは、ガラス基板などに成膜された膜厚が数 100 nm 程度の膜である。相変化型記録媒体に限らずデバイス材料の微細化が進むなか、従来の構造解析手法では実用材の解析が困難なケースが増加する傾向にあるが、実用材の特性を理解し、より優れた材料を開発するためには、その構造解析は極めて重要である。本研究では、透過電子顕微鏡法、高分解能電子顕微鏡法およびナノビーム電子回折法を併用することで、光ディスク内部における GST 系相変化型記録材料の非晶質構造および結晶構造に関する知見を得る手法の確立を目指した。

### Ge-Sb-Te 非晶質薄膜の局所構造解析

図 1(a)に as-deposited GST 非晶質薄膜の高分解能像を示す。図中白丸で示した様におよそ 2 nm サイズの中範囲規則領域(MRO)が存在することが確認された。図 1 (b)に示すように、このような MRO は melt-quenched GST (非晶質記録マーク) においても同様に観察されたが、as-deposited GST に比べて MRO の観察頻度が高く、サイズもやや大きいことが明らかとなった。高分解能像の自己相関関数解析より、これらの MRO の構造は結晶 Sb に類似したものであることを明らかにした。

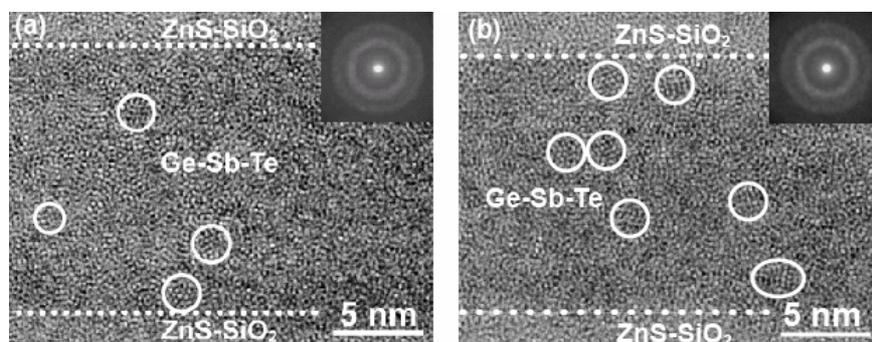


図 1.(a)as-deposited および(b) melt-quenched GST の高分解能像

また、ナノビーム電子線動径分布解析の結果、as-deposited および melt-quenched GST の構造は、非晶質 Sb に類似した構造であることが明らかとなった。

さらに、図 2 に示すように as-deposited GST に比べ melt-quenched GST の 2 体分布関数において、図中 で示した位置に微細なピークあるいは肩が発達しているのが見られた。これらのピーク位置は図中 で示した結晶 Sb における原子相関距離とよい一致を示す。as-deposited および melt-quenched GST の 2 体分布関数に見られたこのような差異は高分解能像で確認された MRO の存在頻度およびサイズに起因すると考えられ、先に述べた自己相関関数解析の結果ともよい対応を示している。

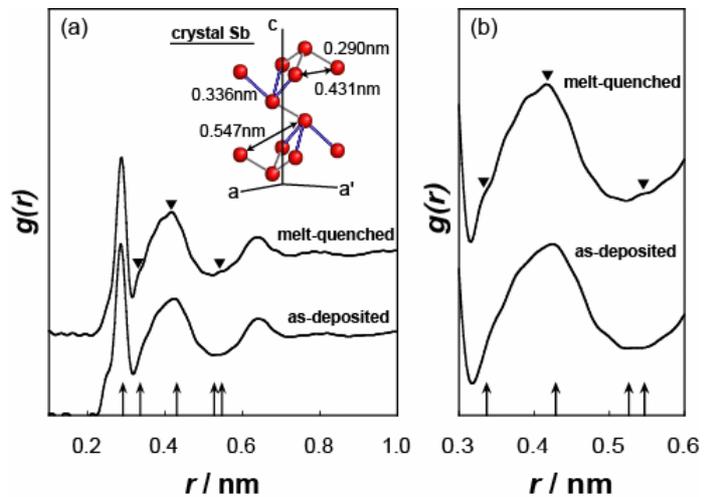


図 2. (a) as-deposited および melt-quenched GST の 2 体分布と (b) その拡大図

#### Ge-Sb-Te 結晶におけるソフトフォノン解析

図 3(a), (b) は、Ge-Sb-Te 結晶から得られたナノビーム電子回折図形である。図中に矢印で示したように、ブラッグ反射点を横切るすじ状散漫散乱が観察された。Ge-Sb-Te の結晶構造は結晶 Sb とほぼ等しいが、今回観察されたすじ状散漫散乱のすじの方向はすべて、 $[2\bar{2}01]$ 、 $[\bar{2}021]$  および  $[02\bar{2}1]$  方向に伸びる原子鎖のいずれかと直交しており、また散漫散乱の強度は入射電子線と原子鎖のなす角に依存することが確認された。これらのことから、今回観察されたすじ状散漫散乱が Ge-Sb-Te 結晶中の原子鎖の熱振動に起因するものであることが明らかとなった。

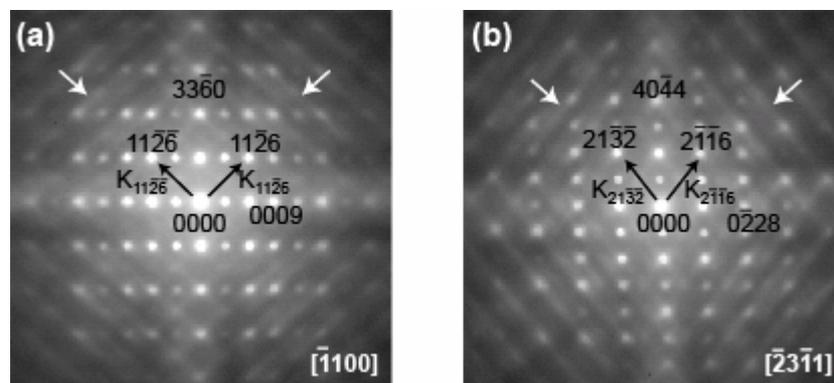


図 3. (a), (b) GST 結晶より得られたナノビーム電子回折図形

## 論文

1. Nanoscale Phase Separation in an  $\text{Fe}_{70}\text{Nb}_{10}\text{B}_{20}$  Glass Studied by Advanced Electron Microscopy Techniques  
T. Hanada, Y. Hirotsu and T. Ohkubo  
*Mater. Trans.* **45**, 1194-1198 (2004).
2. Prominent Nanocrystallization of  $25\text{KO}\cdot 25\text{Nb}_2\text{O}_5\cdot 50\text{GeO}_2$  Glass  
K. Narita, Y. Takahashi, Y. Benino, T. Fujiwara, T. Komatsu, T. Hanada and Y. Hirotsu  
*J. Am. Ceram. Soc.* **87**, 113-118 (2004).
3. Nanoscale Phase Separation in Metallic Glasses Studied by Advanced Electron Microscopy Techniques  
Y. Hirotsu, T. Hanada, T. Ohkubo, A. Makino, Y. Yoshizawa and T. G. Nieh  
*Intermetallics* **12**, 1081-1088 (2004).
4. Glass-forming Ability and Crystallization Behavior of  $\text{Nd}_{60}\text{Al}_{10}\text{Ni}_{10}\text{Cu}_{20-x}\text{Fe}_x$  ( $x=0, 2, 4$ ) Bulk Metallic Glass with Distinct Glass Transition  
Z. Zhang, W. H. Wang and Y. Hirotsu  
*Mater. Sci. Eng. A* **385**, 38-43 (2004).
5. Fabrication of Exchange-coupled  $\alpha\text{-Fe}/\text{L}_{10}\text{-FePd}$  Nanocomposite Isolated Particles  
J. Kawamura, K. Sato and Y. Hirotsu  
*J. Appl. Phys.* **96**, 3906-3911 (2004).
6. Magnetoanisotropy, Long-range Order Parameter and Thermal Stability of Isolated  $\text{L}_{10}$  FePt Nanoparticles with Mutual Fixed Orientation  
K. Sato and Y. Hirotsu  
*J. Magn. Magn. Mater.* **272-276**, 1497-1499 (2004).
7. The Investigation of Multiply Twinned  $\text{L}_{10}$ -type FePt Nanoparticles by Transmission Electron Microscopy  
A. Kovács, K. Sato, G. Sáfrán, P. B. Barna and Y. Hirotsu  
*Philos. Mag.* **84**, 2075-2081 (2004).
8. Local Structure Analysis of Ge-Sb-Te Phase Change Materials Using High-resolution Electron Microscopy and Nanobeam Diffraction  
M. Naito, M. Ishimaru, Y. Hirotsu and M. Takashima  
*J. Appl. Phys.* **95**, 8130-8135 (2004).
9. Solid Phase Epitaxy of Amorphous Silicon Carbide: Ion Fluence Dependence  
I.-T. Bae, M. Ishimaru, Y. Hirotsu and K. E. Sickafus  
*J. Appl. Phys.* **96**, 1451-1457 (2004).
10. Local Structural Change of Amorphous Ge-Sb-Te Thin Film during Annealing  
M. Naito, M. Ishimaru, Y. Hirotsu and M. Takashima  
*J. Non-Cryst. Solids* **345/346**, 112-115 (2004).
11. Structural Characterization of Oriented  $\text{L}_{10}\text{-FePd}$  Nanoparticles

K. Sato and Y. Hirotsu  
Trans. Mater. Res. Soc. Jpn. **29**, 1647-1650 (2004).

## 解説・総説

1. Fe-B アモルファス合金におけるナノスケール相分離  
花田 剛、平田秋彦、弘津禎彦、大久保忠勝、V. Bengus  
まてりあ **43**, 1002 (2004).
2. 強磁性L1<sub>0</sub>型規則合金ナノ粒子の構造と長範囲規則度  
佐藤和久、弘津禎彦  
顕微鏡 **39**, 144-149 (2004).

## 国際会議

1. Y. Hirotsu, K. Sato and J. Kawamura  
“Two dimensionally dispersed Fe/FePd nanocomposite particles synthesized by electron beam deposition”  
Int’l Conf. New Frontiers of Process Science and Engineering in Advanced Materials,  
November 24-26, 2004, Kyoto.
2. Y. Hirotsu and K. Sato  
“Growth and atomic ordering of hard magnetic L1<sub>0</sub>-FePt, FePd and CoPt alloy nanoparticles studied by transmission electron microscopy”  
ICCG&D2004, November 10-14, 2004, Seoul.
3. Y. Hirotsu and K. Sato  
“Fabrication and Structural Analysis of Oriented L1<sub>0</sub>-FePt and FePd Nanoparticles”  
The First Asia Forum on Magnetism, September 21-24, 2004, Okinawa.
4. Y. Hirotsu, T. Ohkubo and T. Hanada  
“Local Structure Analysis of Metallic Glasses Using HREM and Electron Diffraction”  
8<sup>th</sup> Asia-Pacific Conf. on Electron Microscopy, June 7-11, 2004, Kanazawa.
5. Y. Hirotsu and K. Sato  
“Structure and metallurgy of alloy nanoparticles in Fe-Pd system”  
L1<sub>0</sub> Ordered Intermetallic and Related Phases for Permanent Magnet and Recording Applications, August 15-20, 2004, Colorado.
6. Yoshihiko Hirotsu, Akihiko Hirata, Tadakatsu Ohkubo and A.Makino  
“Nanostructures of binary and ternary Fe-B based glasses studied by HREM and electron diffraction”  
5th Polish-Japanese Symposium on Advanced Methods of Materials Characterization,  
August 29-September 1, 2004, Niedzica, Poland

7. K. Sato and Y. Hirotsu  
 “Nanostructure and Long-range Order Parameter of L10-FePd Particles”  
 5th Polish-Japanese Symposium on Advanced Methods of Materials Characterization,  
 August 29-September 1, 2004, Niedzica, Poland.
8. K. Sato and Y. Hirotsu  
 “Determination of long-range order parameter of L1<sub>0</sub>-FePt and FePd nanoparticles by  
 electron diffraction”  
 L1<sub>0</sub> Ordered Intermetallic and Related Phases for Permanent Magnet and Recording  
 Applications, August 15-20, 2004, Colorado.
9. K. Sato, J. Kawamura and Y. Hirotsu  
 “Characterization of isolated Fe-Pd nanoparticles with orientation”  
 8<sup>th</sup> Asia-Pacific Conference on Electron Microscopy, June 7-11, 2004, Kanazawa.
10. E. Matsubara, T. Ichitsubo, S. Tanaka, A. Hirata, Y. Hirotsu and A. Makino  
 “Local Structures and Nanocrystallization in Fe-Nb-B Amorphous Alloys”  
 11<sup>th</sup> International Symposium on Metastable, Mechanically Alloyed and Nanocrystalline  
 Materials, August 22-26, 2004, Sendai.
11. I.-T. Bae, M. Ishimaru, Y. Hirotsu and K. E. Sickafus  
 “Effects of Amorphous Structures on Recrystallization of Silicon Carbide”  
 8<sup>th</sup> Asia-Pacific Conf. on Electron Microscopy, June 7-11, 2004, Kanazawa.
12. J. H. Won, K. Sato, M. Ishimaru and Y. Hirotsu  
 “Epitaxially-grown  $\alpha$ -FeSi<sub>2</sub> Nano-particle Synthesized by Electron Beam Deposition”  
 8<sup>th</sup> Asia-Pacific Conf. on Electron Microscopy, June 7-11, 2004, Kanazawa.
13. J. H. Won, K. Sato, M. Ishimaru and Y. Hirotsu  
 “Fabrication and Characterization of FeSi<sub>2</sub> Nanoparticles on Si(100) Substrate”  
 Int’l Conf. New Frontiers of Process Science and Engineering in Advanced Materials,  
 November 24-26, 2004, Kyoto.
14. M. Naito, M. Ishimaru, Y. Hirotsu and M. Takashima  
 “Structural Analysis of As-sputtered and Melt-quenched Ge-Sb-Te Thin Film”  
 8<sup>th</sup> Asia-Pacific Conference on Electron Microscopy, June 7-11, 2004, Kanazawa.

## 国内学会

1. 弘津禎彦  
 アモルファス合金構造の電子顕微鏡による解析  
 日本金属学会・鉄鋼協会北陸信越支部、本多光太郎記念講演、新潟大学、  
 2004年12月
2. 弘津禎彦、花田剛  
 金属ガラスの電子線構造解析

47 回日本学術会議材料研連講演会、京大会館、2004 年 10 月

3. 佐藤和久、弘津禎彦:  
FePt、FePd ナノ粒子サイズとL1<sub>0</sub>型規則構造形成  
日本金属学会 2004 年秋期(第 135 回)大会、秋田大学、2004 年 9 月
4. 西中川卓、尾藤輝夫、牧野彰宏、佐藤和久、弘津禎彦  
Fe-Pt-Zr-B スパッタ薄膜の微細構造と磁気特性  
日本金属学会 2004 年秋期(135 回)大会、秋田大学、2004 年 9 月
5. 佐藤和久、弘津禎彦、森博太郎、王洲光、平山司  
電子回折によるL1<sub>0</sub>-FePd ナノ粒子分散膜の規則度測定  
日本金属学会 2004 年春期(第 134 回)大会、東京工業大学、2004 年 3 月
6. 元鐘漢、佐藤和久、石丸学、弘津禎彦  
Epitaxially-grown FeSi<sub>2</sub> nanoparticles synthesized by electron beam deposition  
日本金属学会 2004 年春期(134 回)大会、東京工業大学、2004 年 3 月
7. 川村純一、佐藤和久、弘津禎彦  
方位配向Fe/L1<sub>0</sub>-FePd複合ナノ粒子の微細構造と磁氣的性質  
日本金属学会 2004 年春期(第 134 回)大会、東京工業大学、2004 年 3 月
8. 小寺貴士、佐藤和久、弘津禎彦  
Co-Pt 合金薄膜の形成と欠陥構造の電子顕微鏡観察  
日本金属学会 2004 年春期(第 134 回)大会、東京工業大学、2004 年 3 月
9. Akihiko Hirata, Takeshi Hanada, Yoshihiko Hirotsu  
Electron diffraction and high-resolution electron microscopy studies of amorphous Fe<sub>80</sub>B<sub>20</sub>  
and Fe<sub>70</sub>Nb<sub>10</sub>B<sub>20</sub> alloys  
日本金属学会 2004 年秋期(135 回)大会、秋田大学、2004 年 9 月
10. 平田 秋彦、弘津 禎彦、田中 哲、市坪 哲、松原 英一郎、牧野 彰宏  
アモルファスFe<sub>84</sub>Nb<sub>7</sub>B<sub>9</sub>合金におけるナノ結晶化過程の高分解能電顕観察および電子線構造解析  
日本金属学会 2004 年秋期(135 回)大会、秋田大学、2004 年 9 月
11. Yoshihiko Hirotsu, Akihiko Hirata, Takeshi Hanada, and Tadakatsu Ohkubo  
Nanoscale phase separation in metallic glasses studied by HREM and electron diffraction  
日本金属学会 2004 年秋期(135 回)大会、秋田大学、2004 年 9 月
12. 弘津 禎彦、平田 秋彦、石丸 学、是枝 淳夫、網谷 健児、西山 信行、井上 明久  
バルク金属ガラスの局所構造解析  
日本金属学会 2004 年秋期(135 回)大会、秋田大学、2004 年 9 月
13. E. Matsubara, T. Ichitsubo, S. Tanaka, A. Hirata, Y. Hirotsu and A. Makino  
Nanocrystallization Behavior in Fe-Nb-B Amorphous Alloys

日本金属学会 2004 年秋期(135 回)大会、秋田大学、2004 年 9 月

14. 内藤宗幸、石丸 学、弘津禎彦、高島正樹  
透過電子顕微鏡法による Ge-Sb-Te 結晶薄膜の断面観察  
応用物理学会 2004 年秋期(第 65 回)大会、東北学院大学、2004 年 6 月

## 共同研究

東北大学金属材料研究所 松原英一郎 「金属ガラスの局所構造解析法」  
京都大学原子炉研究所 福永俊春 「金属ガラスの局所構造解析法」  
日立ツール株式会社 「サーメット合金のナノ構造解析」  
株式会社三菱化学科学技術研究センター 「相変化型記録材料の局所構造解析」

## 学会活動

日本金属学会理事 (2003 年 4 月 ~ 2005 年 3 月)  
日本金属学会評議員  
Materials Transactions 誌編集委員  
日本顕微鏡学会評議員

## 科研費、助成金等

1. 弘津禎彦  
科研費・特定領域研究(2) A02 班長  
「融体・金属ガラスの局所原子構造のその場観察」
2. 弘津禎彦  
科研費・基盤研究 S  
「気相急冷による硬質磁性合金ナノ粒子の形成と電子線構造解析  
ならびに磁性 評価」
3. 弘津禎彦  
科学技術振興調整費  
「ナノヘテロ金属材料の機能発現メカニズムの解明に基づく  
新金属材料創製に 関する研究」
4. 弘津禎彦  
産学連携等研究費 (次世代金属・複合材料研究開発協会)  
「金属ガラスの成形加工技術」

## 表面ナノ構造プロセス評価分野

谷村 克己 (たにむら かつみ)



### 略歴

1949年 兵庫県生まれ  
1972年 大阪大学工学部原子力工学科 卒業  
1977年 大阪大学大学院工学研究科  
博士課程 修了 (工学博士)  
1983年 名古屋大学工学部 助手  
1986年 名古屋大学理学部 助手  
1988年 名古屋大学大学院 理学研究科 助教授  
1995年 名古屋大学大学院 理学研究科 教授  
2000年 大阪大学産業科学研究所 教授  
(専門分野) 電子励起科学  
(所属学会) 日本物理学会

金崎 順一 (かなさき じゅんいち)



### 略歴

1963年2月 大阪府生まれ  
1985年3月 名古屋大学工学部原子核工学科 卒業  
1987年3月 名古屋大学工学研究科結晶材料工学専攻  
博士前期課程 修了  
1988年7月 名古屋大学理学研究科物理学専攻  
博士後期過程 中退  
1988年8月 名古屋大学理学部 助手  
1999年10月 大阪市立大学工学部 助教授  
2004年9月 大阪大学産業科学研究所  
産業科学ナノテクノロジーセンター 助教授  
博士(理学) 名古屋大学  
(専門分野) 表面界面物性、電子励起科学  
(所属学会) 日本物理学会、応用物理学会  
(趣味) 音楽鑑賞、絵画鑑賞、スキー

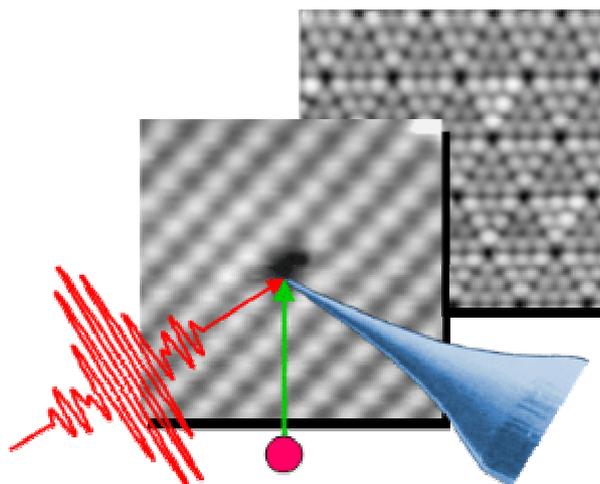
## 研究概要

多くの非金属物質において、電子系の励起により基底状態の構造が変化する現象が観察されている。この現象は、一般には、電子系の励起によって凝集原子間の力のバランスが崩れ、新しい凝縮形態への大きな構造変革が誘起されることによるものと捉えることができる。次世代高機能素子の主要材料である半導体においては、従来、電子系と格子系との相互作用が弱く、電子励起による構造変化は欠陥近傍に限った特異な現象と考えられてきた。しかしながら、最近の研究により、光や電子線などにより電子系を励起すると、半導体結晶表面の完全格子サイトにおいても原子結合が電子的に切断（電子的結合切断）され、表面原子の脱離や移動、空格子点の生成が誘起されることが明らかとなった。この結果は、擬2次元系である半導体再構成表面においては、表面電子系と表面格子系の相互作用が本質的に強い事を明確に示している。

このような電子励起誘起構造変化の機構を解明することは、基底構造に加えて励起状態までも取り込んだ凝縮系の存在様式を、もう一段高いレベルからの統一的理解することにつながり、物性物理学における重要な研究課題の一つとして位置づけることができる。また、応用的には、この現象は、半導体表面を改変し、新しい特性・機能をもった表面構造相やナノ構造を実現するために電子励起状態という新しい経路を選択できる事も示唆している。この電子励起状態の反応誘起性・促進性・選択性を利用した材料プロセスは、電子系が基底状態にある材料を熱的に制御することを基本原理とする従来のプロセスとは全く異なるものであり、従来の熱的プロセスでは決して得られない凝縮系の新しい物性・機能の発現あるいは構造相の制御・組織化が期待できる。このように、電子励起科学の研究は物性物理学、材料制御学の両分野に跨り、新たな発展が期待される重要な研究課題である。

本研究分野では、まず、固体表面での電子励起状態が誘起する基礎的過程を完全に理解することを目的とし、さらに、その基礎的知見を電子励起による表面構造制御・組織化へと発展させる。励起条件をエネルギー、時間、空間について高次元的に変化させることにより、発生させる電子励起状態と誘起される表面構造変化の過程を制御し、結合切断のサイト制御及び高速化による表面ナノパターンニング技術の確立、完全・無欠陥表面の創製、

さまざまな電子励起源により発生する電子励起状態を制御



- ・ 誘起される構造・電子状態の変化を原子スケールで直接観察
- ・ 共鳴/非共鳴イオン化分光による放出粒子の高感度検出

図 1

従来の熱的過程では起こらない、電子励起状態を介した新規材料プロセスの構築、に向けた研究を展開している。上記研究課題を遂行するため、短パルスレーザー光・電子線ビーム、トンネル電子注入などを駆使して特定の電子励起状態を選択的かつ制御して発生させ、誘起される表面構造変化を走査型トンネル顕微鏡(STM)を用いて原子スケールで直接観察すると共に、共鳴・非共鳴イオン化分光による放出粒子種の高感度検出をおこなっている。(図1)

以下において、本年度実施した研究内容を紹介する。

## 1. 電子線励起による半導体表面構造変化

電子励起による構造不安定性の現象は、発生する電子励起種の性質や表面の基礎物性により異なることが予想されます。したがって、電子励起誘起構造変化の現象を体系的に理解するためには、表面の構造的・電子的性質と誘起される構造変化の特徴を、発生する電子励起種の性質という観点から系統的に解明することが本質的に重要となる。これまでの光励起による構造変化の場合、価電子系の個別励起により発生した表面正孔の多重局在が局所的・サイト選択的結合切断を誘起することが明らかになっている。表面電子系の励起形態には、価電子や内殻電子系の個別励起の他に、価電子系の集団励起であるプラズモンも存在する。しかしながら、集団的電子励起モードに起因する半導体表面構造の不安定性に関する知見は全く得られていない。本研究課題では、プラズモン励起により誘起される半導体表面構造変化の特徴を明らかにすると共に、集団励起による構造不安定化の機構を解明することにあります。プラズモンは電磁波と結合しないため、本研究では、低エネルギー電子線を励起源として用い、Si(111)-(7x7)表面において電子線照射により誘起される構造変化の特徴及び効率の励起強度・エネルギー依存性を明らかにした。

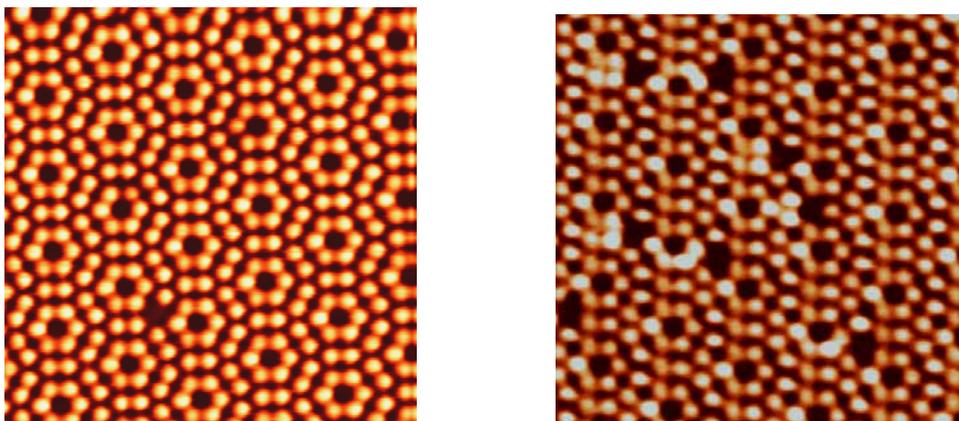


図2. 低エネルギー電子線励起における Si(111)-(7x7)表面構造変化。左図は照射前、右図は電子線照射(50eV)後のSTM像。

図 2(a)および(b)は電子線励起前後における Si(111)-(7x7)表面の STM 像である。電子線の励起により、最外層原子が消失して空格子点が生成されていることがわかる。得られた結果の統計的解析により、生成される空格子点の大部分が孤立空格子点で、その生成効率は強いサイト選択性を示すことがわかった。また、誘起された構造変化の特徴は光励起の場合とよく一致する。この構造変化の特徴の類似性は、光と電子線とで、結合切断を発生させる電子的過程の最終段階が共通であることを示唆している。次にこの空格子点生成効率の励起強度依存性及び電子線エネルギー依存性の結果をそれぞれ図 3(a)(b)に示す。空格子点生成効率は電子線のフラックスに比例し、入射電子線のエネルギーに対しては 15eV からエネルギーの増大と共に急激に減少するという結果を得た。以上の実験結果は、表面プラズモン励起（共鳴エネルギー10.2eV）により発生する電荷疎密波の寿命内におこる表面正孔の多重局在により合理的に説明できる。

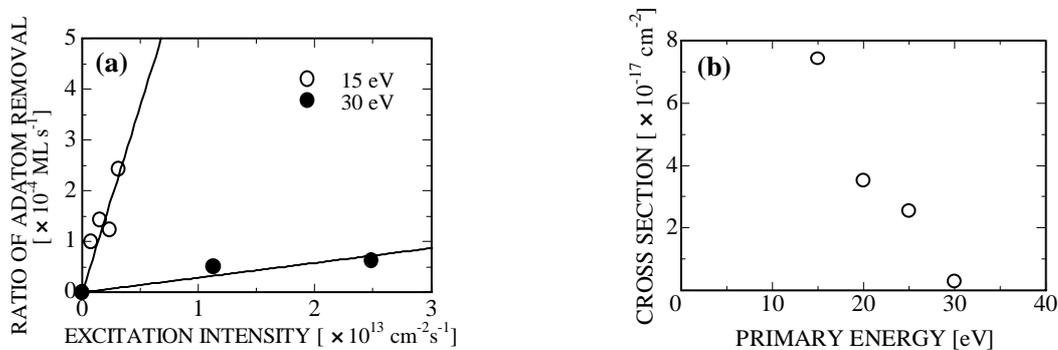


図 3. Si(111)-(7x7)表面での電子線励起による空格子点生成効率の励起強度依存性(a;左図)と、空格子点生成断面積の入射電子エネルギー依存性(b;右図)

## 2. 電子励起誘起結合切断による新表面構造相・完全無欠陥表面の創製

デバイスの寸法がナノメートル領域になると、これまで問題とならなかった程度の表面や結晶中の微量欠陥がデバイスの性能に大きく影響してくることが予想されます。特に、現在の半導体デバイスにおいてもっとも重要な表面である Si(001)表面では、表面の空格子点密度を熱的に軽減することが困難であり、この事は将来のナノデバイスにとって深刻な問題となっている。本研究では、電子励起誘起結合切断の反応選択性を利用し、Si(001)-(2x1)表面の最外原子層のみを選択的に除去することにより、通常の熱的処理では実現不可能な、結晶内部の周期構造と同じ構造を有する (1x1) 新表面構造相を、完全無欠陥状態で創製する励起条件を最適化し、且つ、新表面構造相の基礎物性を明らかにする取り組みを行っている。

これまでの研究により、表面ダイマーの除去効率が、励起波長 530nm近傍におい

てピークを形成する事、 励起強度に対して非線形に増大する事、また、  $100\text{mJ}/\text{cm}^2$  以上の強度では表面テラス上でアドダイマーが形成され、平坦な表面の形成が阻害される事、などがわかった。本研究では、これらの知見に基づいて励起条件を最適化し、ダイマー除去による新表面構造相を得た。図 4 は、 $532\text{nm}, 80\text{mJ}/\text{cm}^2$  のナノ秒レーザー励起前後における STM 像である。表面ダイマーを除去することにより露出した  $(1\times 1)$  新構造相(図 4b)は極端に低い空格子点密度を示した。現在、95%程度のダイマーを除去することに成功している。今後は、残存ダイマー除去の効率化及びダイマーの完全除去が課題である。

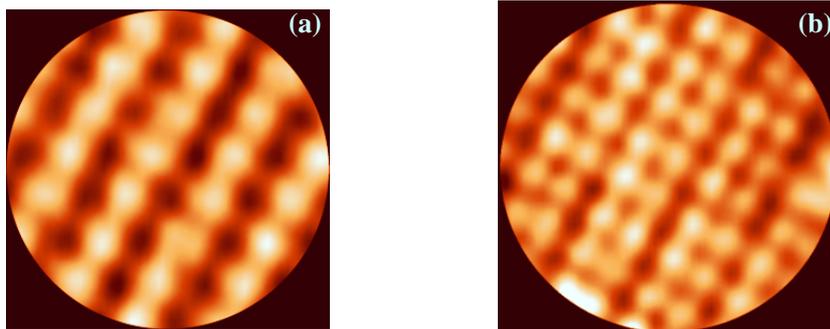


図 4. 波長  $532\text{nm}$  のナノ秒レーザーパルス照射前(a)及び照射後の  $\text{Si}(001)$  表面 STM 像

### 3 . 高密度電子励起によるグラファイト - ダイヤモンド相転移

グラファイトは、 $\text{sp}_2$ 混成軌道の 結合による強い面内結合とファンデルワールス力による弱い面間結合からなる半金属・層状物質である。このような特徴的な構造的・電子的性質を持つグラファイトの電子系を励起することにより誘起される原子過程は大変興味深い課題である。また、最近の第一原理計算により、グラファイトの価電

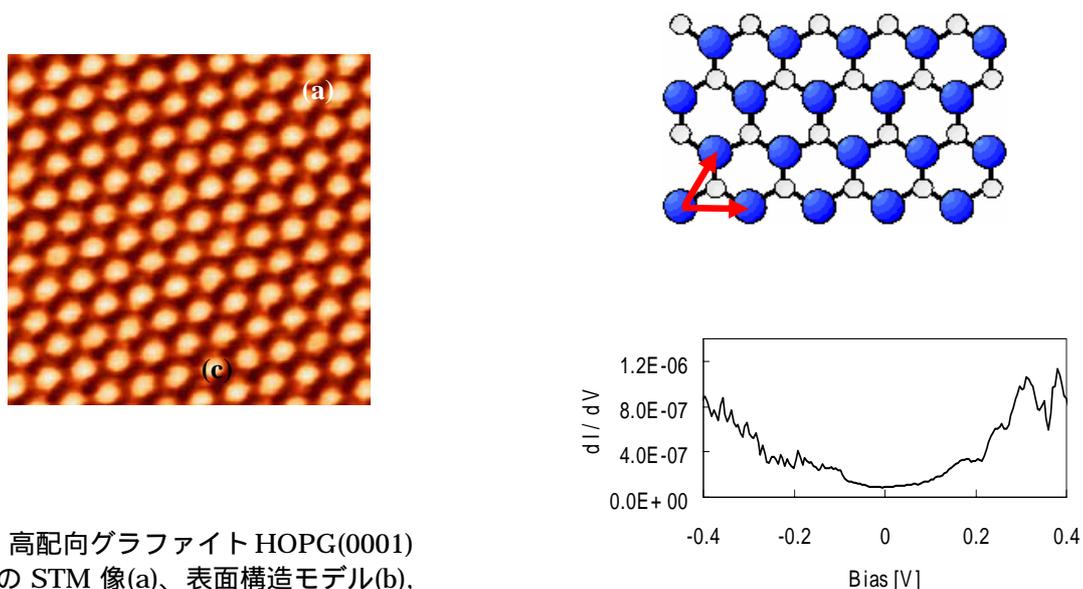


図 5. 高配向グラファイト HOPG(0001) 表面の STM 像(a)、表面構造モデル(b)、及び STS スペクトル(c)

子帯へ高密度に正孔注入することによりダイヤモンドへの相転移することが予見されている。そこで、フェムト秒パルスレーザーを用いて高配向グラファイト HOPG(0001)表面を光励起し、高密度励起下で誘起される構造変化の微視的形態と電子状態を、トンネル顕微鏡及びトンネル分光法(STS)により明らかにした。

図 5a-cは、光照射前のHOPG(0001)表面のSTM像(a)、表面構造モデル(b)、そしてSTSスペクトル(c)である。よく知られているように、(0001)面内では一つの炭素原子が六方格子の各頂点に位置しているが、その6つの炭素原子は等価ではなく、積層している隣接面の炭素原子との相対的位置関係により2つの種類(図5b中の青丸及び白丸)に分類できる。図5aのSTM像では、一方の炭素原子のみが観察されており、この表面構造は、2.45Åの菱形格子から成る。また、STSスペクトル(図5c)より、フェルミ準位近傍に電子状態が存在し、金属的性質を示していることがわかる。この表面を励起強度  $93\text{mJ}/\text{cm}^2$ のフェムト秒パルスレーザーで照射後にSTM観察した結果が図6(a)であるが、グラファイト表面と全く異なる構造を示している。照射後における表面構造は基本並進ベクトル  $a = 2.4\text{Å}$ ,  $b = 4.5\text{Å}$ から成る直交格子から成る一次元的構造となっている。さらに、図6bに示すように、電子状態密度分布は明らかにフェルミ準位近傍での状態が消失し、半導体的性質を示していることが分る。これらの構造的・電子的性質は、ダイヤモンド(111)表面の最構成構造である  $2 \times 1$  チェーン構造(図6-c)の特徴と一致することが分った。今回照射した励起強度から見積もられる温度上昇は  $300\text{K}$ 程度であり、グラファイト構造の熱的安定性から判断すると、誘起された構造相転移は熱的過程によるのではなく、電子的過程によるものと考えられる。現在、構造相転移を発生させるに必要な励起条件を確認すると共に、相転移の電子的機構について研究を継続している。

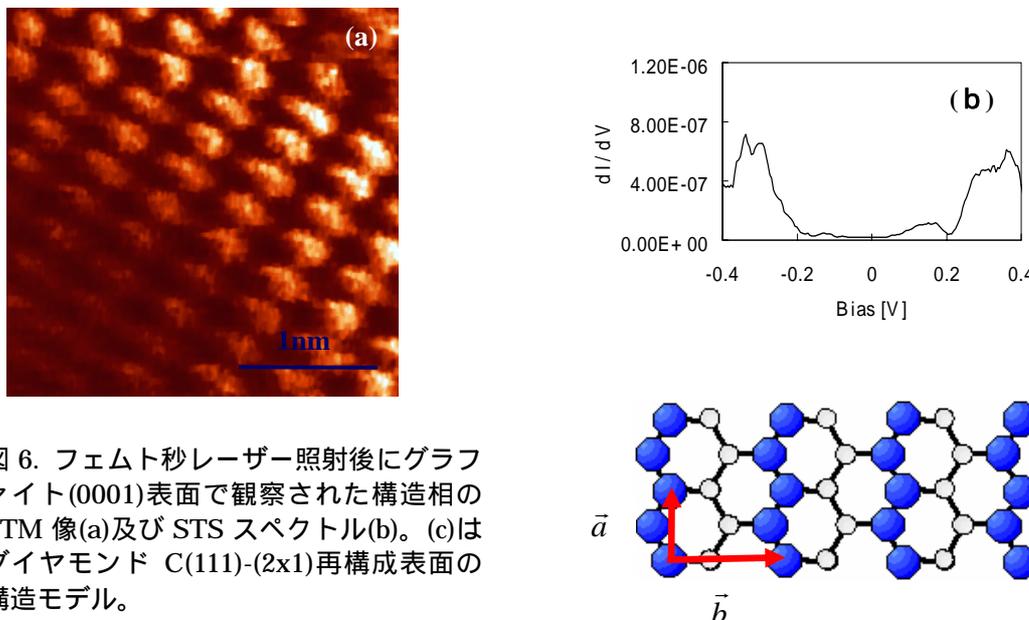


図 6. フェムト秒レーザー照射後にグラファイト(0001)表面で観察された構造相のSTM像(a)及びSTSスペクトル(b)。(c)はダイヤモンド C(111)-(2x1)再構成表面の構造モデル。

## 論文

1. Electronic Bond Rupture of Si-dimers on the Si(001)-(2x1)  
J. Kanasaki, K. Katoh, Y. Imanishi, and K. Tanimura, Applied Physics A79,  
pp.865-868(2004).
2. Photoinduced Structural Instability of the InP(110)-(1x1) Surface  
T. Gotoh, S. Kotake, K. Ishikawa, J. Kanasaki, and K. Tanimura, Physical Review  
Letters 93(11), art no. 117401(2004).
3. Femtosecond time-resolved reflection spectroscopy of photoinduced ionic-neutral phase  
transition in TTF-CA crystals  
K. Tanimura, Physical Review B70, 144112(2004).
4. Temperature-dependent yield of Frenkel pairs generated by valence excitation in NaCl  
K. Tanimura and W. P. Hess, Physical Review B69, 155102(2004).
5. 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, Physical Review B69, 033301(2004).

## 解説・総説

1. レーザービームによる半導体表面原子結合の局所的切断  
金崎順一、谷村克己  
応用物理学会誌, 第 73 巻(4), pp.485-489 2004

## 国際会議

1. Site-selective yields of laser-induced bond rupture of Si-Dimers on Si(001)-(2x1) surface  
J. Kanasaki, K. Katoh, Y. Imanishi, and K. Tanimura,  
The 16<sup>th</sup> International Vacuum Congress / The 12<sup>th</sup> International Conference on Solid  
Surfaces / The 8<sup>th</sup> international Conference on Nanometer-Scale Science and Technology,

2004.6.28-7.2 (Venice, Italy)

2. Photoinduced structural instability on Si(111)-(2x1)

E. Inami and K. Tanimura

The 10<sup>th</sup> International Workshop on Desorption Induced by Electronic Transitions (DIET10), 2004.11.8-11 (Susono, Japan)

3. Structural instability of Si(111)-(7x7) induced by low-energy electron irradiation

Y. Sugita, J. Kanasaki and K. Tanimura

The 10<sup>th</sup> International Workshop on Desorption Induced by Electronic Transitions (DIET10), 2004.11.8-11 (Susono, Japan)

## 国内学会

1. 低エネルギー電子線励起による Si(111)-(7x7)表面構造の変化 II

杉田吉聡、金崎順一、谷村克己

日本物理学会学術講演会 2004 年秋季大会 2004.9.12-15 (青森大学)

2. Si(111)-(2x1)表面における光誘起構造変化機構 IV

稲見栄一、谷村克己

日本物理学会学術講演会 2004 年秋季大会 2004.9.12-15 (青森大学)

3. InP(110)-(1x1)表面の光誘起ボンド切断におけるサイト相関

鶴田淳二、金崎順一、谷村克己

日本物理学会学術講演会 2004 年秋季大会 2004.9.12-15 (青森大学)

4. III-V 族化合物半導体表面構造の自発崩壊と 2 正孔局在

谷村克己

日本物理学会学術講演会 2004 年秋季大会 2004.9.12-15 (青森大学)

5. ナノ秒パルスレーザー励起によるグラファイト表面の構造変化

近藤孝文、北村発徳、金崎順一

日本物理学会学術講演会 2004 年秋季大会 2004.9.12-15 (青森大学)

6. Si(001)-(2x1)表面の時間分解 2 光子光電子分光 IV

田中慎一郎、谷村克己

日本物理学会学術講演会 2004 年秋季大会 2004.9.12-15 (青森大学)

7. 光誘起磁性体スピネル型フェライト薄膜( $\text{Al, Ru, Fe}$ ) $_3\text{O}_4$ のフェムト秒分光  
谷村克己、関宗利、田畑仁、川合知二  
日本物理学会学術講演会 2004 年秋季大会 2004.9.12-15 (青森大学)
8. レーザービームによる半導体表面原子結合の局所的切断  
金崎順一  
日本学術振興会ナノプローブテクノロジー第 167 委員会第 36 回研究会  
2004.10.22 (京都大学)
9. 電子励起による半導体表面構造の不安定性  
金崎順一  
ナノテクノロジー研究会  
2004.11.15-16 (大阪大学産業科学研究所)
10. 低エネルギー電子ビーム励起による半導体表面構造プロセス  
金崎順一  
2004.11.26 大阪大学産業科学研究所第 60 回学術講演会(大阪大学産業科学研究所)
11. 半導体表面構造の電子励起誘起制御と新凝縮表面相の創製  
金崎順一  
2005.1.20 21 世紀 COE:IT グループ第 2 回セミナー (大阪大学産業科学研究所)
12. 電子励起による半導体表面構造の不安定性  
- 電子励起による半導体表面原子操作の可能性 -  
金崎順一  
2005.3.9-10 神戸大学研究活性化シンポジウム“量子ビーム理工学研究最前線 - その現状と今後の展望” (神戸大学)
13. 低エネルギー電子線励起による  $\text{Si}(111)-(7\times 7)$ 表面構造の変化 II  
杉田吉聰、堀池秀紀、金崎順一、谷村克己  
日本物理学会学術講演会 2005 年春季大会 2005.3.24-27 (東京理科大学)
14. フェムト秒パルスレーザーによるグラファイト表面構造の変化  
金崎順一、宮内國男、谷村克己  
日本物理学会学術講演会 2005 年春季大会 2005.3.24-27 (東京理科大学)
15.  $\text{Si}(001)(2\times 1)$ 表面における局所構造とキャリアダイナミクスの相関

田中慎一郎、谷村克己

日本物理学会学術講演会 2005 年春季大会 2005.3.24-27 (東京理科大学)

## 学協会活動

谷村克己

- ・ The 10<sup>th</sup> International Workshop on Desorption Induced by Electronic Transitions (Susono, 2004.11.8-11)  
実行委員長  
国際運営委員
- ・ SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004(SISSIN-2004)  
(Osaka, 2004.12.6-7)  
実行委員

金崎順一

- ・ The 10<sup>th</sup> International Workshop on Desorption Induced by Electronic Transitions (Susono, 2004.11.8-11)  
現地実行委員
- ・ 大阪市立大学工学部 非常勤講師

## 科研費、助成金等

谷村 克己

基盤研究(B)(2)

「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」

金崎 順一

基盤研究(B)(2)

「シリコン(0 0 1)表面における光誘起結合切断と新表面構造相の創製」

## 量子マテリアルデバイス機能評価分野

朝日 一 (あさひ はじめ)

### 略歴

1971年 東京大学工学部物理工学科卒業

1973年 東京大学大学院工学系研究科物理工学専門課程修士課程修了

1976年 東京大学大学院工学系研究科物理工学専門課程博士課程修了

1976年 日本電信電話公社武蔵野電気通信研究所・研究員

1983年 日本電信電話公社厚木電気通信研究所・研究専門調査役

1985年 日本電信電話株式会社厚木電気通信研究所・主幹研究員

1987年 大阪大学産業科学研究所・助教授

2001年 大阪大学産業科学研究所・教授

専門分野： 電子材料工学

所属学会： 応用物理学会、日本表面科学会、日本物理学会、電子情報通信学会、電気学会

研究内容： (量子マテリアルデバイス機能評価分野：周逸凱助手、光・電子材料研究分野：長谷川繁彦助教授、江村修一助手、S. Shanthi 研究員と共同)

高度情報化社会を支える光・電子・スピndeバイs、そしてその基となる光・電子・スピン材料として半導体材料を中心に研究を行っている。新しい機能を持つ新しい半導体材料の創製、極めて細かい構造を持つ半導体の創製、創製プロセス、光・電子・スピndeバイsへの応用、更にその基盤となる機能評価の研究。



周 逸凱 (ぞう いかい)

略歴

1996年 大阪大学理学部物理学科卒業

1998年 大阪大学大学院工学研究科応用物理専攻  
前期課程修了

2001年 大阪大学大学院工学研究科電子情報エネ  
ルギー工学専攻博士後期課程修了

2001年 大阪大学産業科学研究所・非常勤研究員

2002年 大阪大学産業科学研究所・助手 現在に  
至る

専門分野： 電子材料工学

所属学会： 応用物理学会



学生 (光・電子材料研究分野)： D2 金武成、D2 藤原淳志、D1 崔誠佑、M2 木  
村重哉、M2 島田隆司、M2 土井航、M2 向井俊和、M2 宗像宏典、M2 山下剛司、  
M1 内田夏苗、M1 小林覚、M1 松野俊輔、M1 松本武、M1 藪内敦

## 研究概要

### 1. 希薄磁性半導体の物性評価

遷移金属 Cr または希土類元素 Gd 添加 GaN は室温で強磁性を示すだけでなく、伝導性、発光特性を示し、電荷・光・スピンを複合制御した半導体スピントロニクス材料として魅力的な磁性半導体である。従来の III-V 族希薄磁性半導体 InMnAs、GaMnAs では相分離を抑制するために InAs、GaAs の通常の成長温度に比べてかなり低温で成長されており、光学的品質は劣化しており PL 発光が観測されていない。これに対して、遷移金属または希土類元素添加 GaN は、相分離なしで GaN の通常の成長温度で成長を行うことができるため、この材料は光励起或いは電流励起で発光する。それらの発光メカニズムの解明のため、光学特性評価及び構造解析を行った。

#### 1-1. 時間分解 PL 評価

すでに GaCrN から 10 K から室温に渡って比較的強い PL 発光が観測された。時間分解 PL 測定をしたところ、GaCrN の発光寿命は低エネルギー側に行くほど、長くなっているが、その大きさは GaN の励起子の発光寿命と同じくらいである (図 1)。このことから、band to band 遷移による発光であることがわかった。つまり、約 3.3 eV のピークは混晶の GaCrN によるものと判断される。

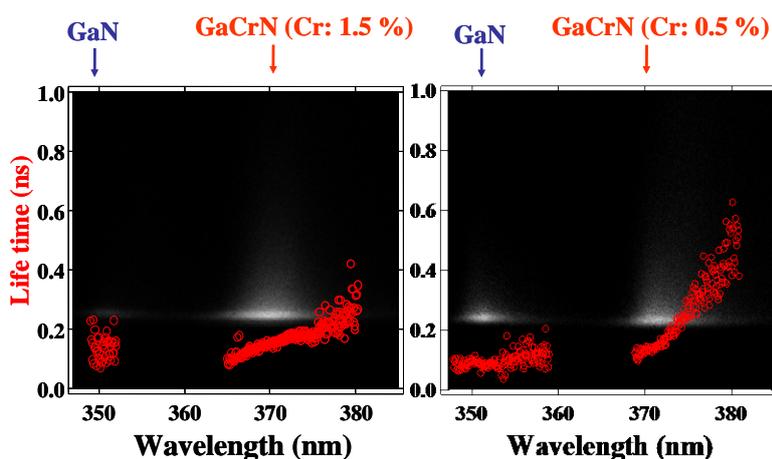


図 1 遷移金属添加 GaN, GaCrN の時間分解 PL 評価：発光寿命は約 0.1 nsec である。

同様に、Gd を 6 % 添加した GaGdN においても、低温 (7 K) と室温で明瞭な飽和特性、ヒステリシス特性が観測されており、強磁性を示すことが見出された。GaGdN からは、653 nm 付近に鋭い発光ピークが観察された。発光起源を究明するために、時間分解 PL 測定を行ったところ、発光寿命は 25  $\mu\text{s}$  (20 K) と長いことから、希土類元素 Gd イオンの f 電子による内殻遷移によるものであることを明らかにした(図 2)。

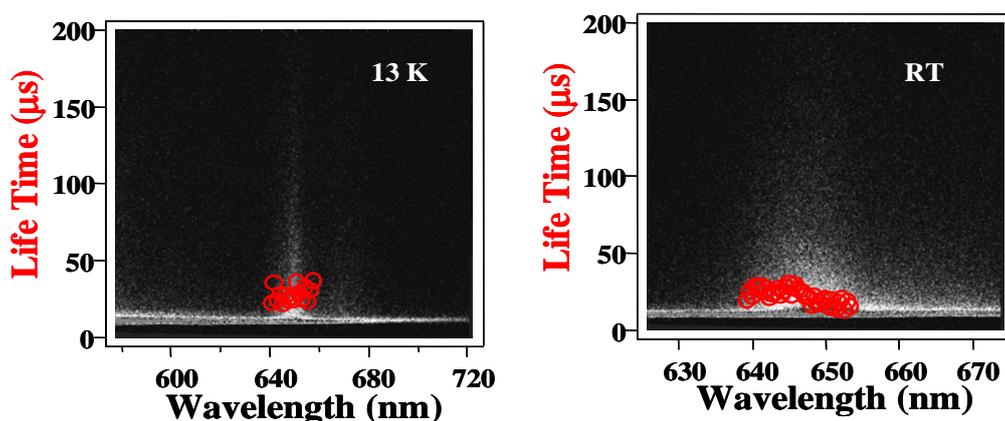


図 2 GaGdN の時間分解 PL 評価：発光寿命は約 15  $\mu\text{sec}$  である。

### 1-2. ラマン散乱分光評価

図 3 では、GaCrN のラマンスペクトルを示す。553  $\text{cm}^{-1}$  付近のピークは Cubic GaN によるもので、568  $\text{cm}^{-1}$  付近のもの Hexagonal GaN からの散乱スペクトルである。それ以外のサファイヤ基板の散乱ピークも見られた。ラマン散乱測定は、結晶構造を含め、結晶性や電気特性なども、非破壊で評価できる。

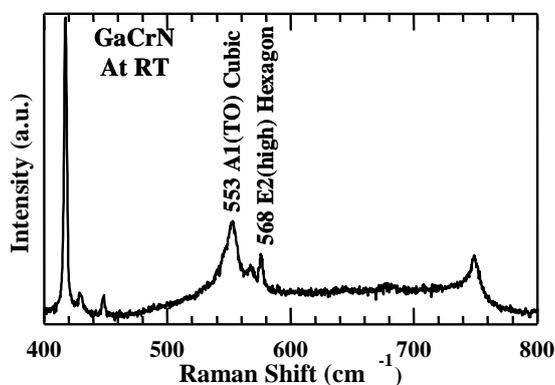


図 3 GaCrN のラマンスペクトル

### 1-3. EXAFS 評価

Cr 濃度 1.0%から 9.2%の GaCrN に対して、EXAFS 測定を用いて、局所構造解析を行った。図 4 に、Cr の K 吸収端の EXAFS 振動のフーリエ変換スペクトルを示す。Cr 濃度 1%から 2.6%の GaCrN 試料においては、Cr 原子が Ga サイトに入り、Ga 原子と置き換えていることがわかった。Cr 濃度が 3%以上になると、第 2 近接原子間(Cr-Ga) 距離が縮み、NaCl 構造を持つ第 2 相の GrN の析出が確認できた。

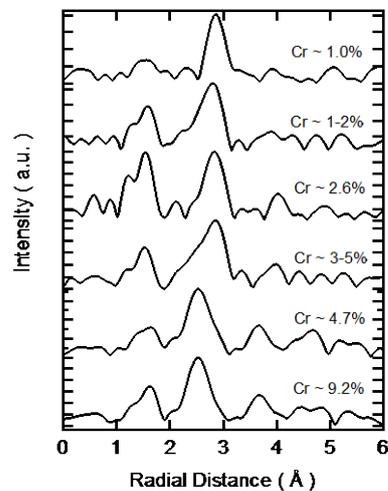


図 4 EXAFS 測定により 3%以下のサンプルでは Cr が Ga 原子位置を置換していることが確認された。

## 2. GaN ナノロッドの構造、機能評価

ガラス、金属基板上に MBE 成長した GaN は、多結晶半導体にも拘わらず、強い発光特性を示す、n 形 p 形の伝導形制御が出来るなどユニークな特性を示すことが、光・電子材料研究分野（朝日研究室）で見出されて、多結晶半導体フォトニクスデバイスへの応用が提案されている。更に、GaN はその電子親和力が小さいことから電界放出電子源への応用の期待もある。事実、金属基板上に成長した多結晶 GaN に対して良好な電界電子放出特性が得られている。更なる特性向上の観点から、Si 基板上に GaN を成長させた。ここでは、Si 基板上成長 GaN の構造ならびに電界放出特性の評価・解析を行った。

### 2-1. 構造評価

評価したサンプルは、SiO<sub>2</sub> 自然酸化膜が表面に残っている Si(100)基板上に RF プラズマ励起活性窒素源を用いた MBE 法により成長したものである。

MBE 成長室での RHEED（反射高速電子線回折）観察により、GaN の c 軸が基板表面の垂直に配向していることが確認された。AFM（原子間力顕微鏡）観察により直径は 100 nm 以下程度で凹凸が平均約 12 nm のナノロッドの構造をもってい

ることが明らかとなった (図5)。

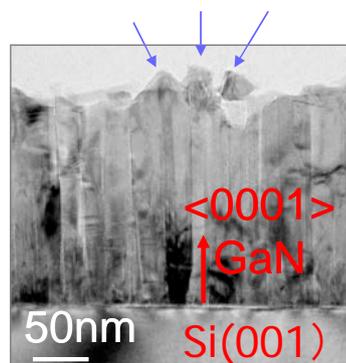
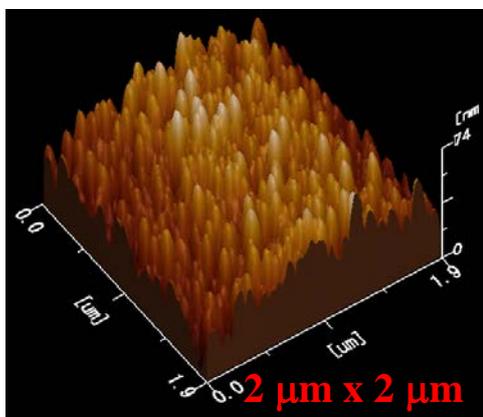
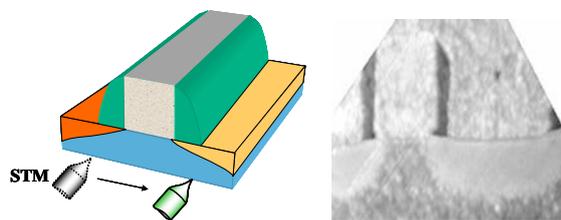
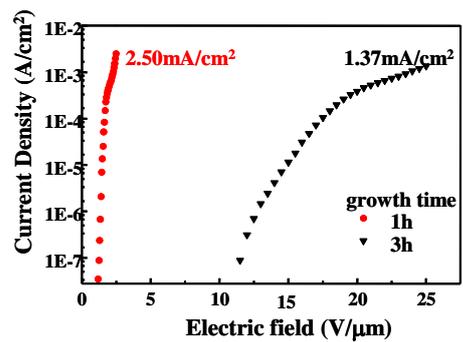


図5 Si(100)基板上成長したGa<sub>N</sub>ナノロッドのAFM像 図6 Si(100)基板上成長したGa<sub>N</sub>ナノロッドの断面TEM像

また、断面TEM観察により詳細に調べた。図6から分かるように、成長初期から柱状成長しており、配向性の良いナノロッド構造となっている。各ナノロッドは結晶欠陥の少ない単結晶となっている。したがって、基板面に垂直方向に電流を流す場合には抵抗は小さく寄生的な電圧降下は起らない構造となっていると考えられる。更に、ナノロッドの先端には突起状の構造が観測された。この突起状構造では電界集中が起り易く、低電圧での電界電子放出に有利な構造である。

## 2-2. 電界放出特性

電界放出電子源への応用可能性を検討するために、電界電子放出特性を調べた。図7に示すように、Ga<sub>N</sub>ナノロッドサンプルからは、しきい値電界  $1.25 \text{ V}/\mu\text{m}$  と低電界で電子放出が開始し、 $2.5 \text{ V}/\mu\text{m}$  で  $2.5 \text{ mA}/\text{cm}^2$  の大きな電流の得ることが明らかとなった。この特性は、最近話題になっているカーボンナノチューブ(CNT)による電界電子放出特性に比べ同等以上である。基板(下地)との密着性の良さを考慮すると、電界放出電子源への応用が有望である。



## 論文

1. M. Hashimoto, H. Tanaka, R. Asano, S. Hasegawa, and H. Asahi, “Observation of photoluminescence emission in ferromagnetic semiconductor GaCrN”, *Appl. Phys. Lett.* 84 (21) (2004) 4191–4193.
2. J.H. Noh, S. Hasegawa, T. Suzuki, T. Arakawa, K. Tada and H. Asahi, “Migration Enhanced Epitaxy (MEE) Growth of Five-Layer Asymmetric Coupled Quantum Well (FACQW) and Its Cross-sectional STM Observation”, *Physica E* 23 (2004) 482–486.
3. J. Mori, T. Nakano, T. Shimada, S. Hasegawa and H. Asahi, “Wavelength control of 1.3–1.6  $\mu\text{m}$  light emission from the quantum dots self-formed in GaAs/InAs short-period superlattices grown on InP (411)A substrates”, *J. Appl. Phys.* 96 (3) (2004) 1373–1375.
4. A. Imada, H.J. Lee, A. Fujiwara, T. Mukai, and H. Asahi, “Temperature stability of the refractive index and the direct-band edge in TlInGaAs quaternary alloys”, *Appl. Phys. Lett.* 84(21) (2004) 4212–4214
5. J. Mori, T. Nakano, T. Shimada, S. Hasegawa and H. Asahi, “1.3–1.5  $\mu\text{m}$  wavelength GaAs/InAs superlattice quantum dot light emitting diodes grown on InP(411)A substrates”, *Jpn. J. Appl. Phys.* 43(7A) (2004) L901–L903.
6. S. Nishida, T. Yamashita, S. Hasegawa and H. Asahi, “Barrier height control for electron field emission by growing an ultra-thin AlN layer on GaN/Mo”, *Thin Solid Films*, 464–465 (2004) 128–130.
7. H. Asahi, Y.K. Zhou, M. Hashimoto, M.S. Kim, X.J. Li, S. Emura and S. Hasegawa, “GaN-based magnetic semiconductors for nanospintronics”, *J. Phys.: Condens. Matter.* 16 (48) (2004) S5555–S5562.
8. Y.K. Zhou, M.S. Kim, X.J. Li, S. Kimura, A. Kaneta, Y. Kawakami, Sg. Fujita, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, “Optical properties of GaN-based magnetic semiconductors”, *J. Phys.: Condens. Matter.* 16 (48) (2004) S5743–S5748.
9. M.S. Kim, Y.K. Zhou, X.J. Li and H. Asahi, “Magnetic, optical and transport properties of GaN-based ferromagnetic/nonmagnetic heterostructures”, *J. Phys.: Condens. Matter.* 16 (48) (2004) S5711–S5716.
10. N. Hasuike, H. Fukumura, H. Harima, K. Kisoda, M. Hashimoto, Y.K. Zhou and H. Asahi, “Raman scattering characterization of GaN-based spintronics materials”, *J. Phys.: Condens. Matter.* 16 (48) (2004) S5811–S5814.

11. M. Hashimoto, H. Tanaka, S. Emura, M.S. Kim, T. Honma, N. Umesaki, Y.K. Zhou, S. Hasegawa and H. Asahi, "Local structural change in GaCrN grown by radio frequency plasma-assisted molecular-beam epitaxy", J. Cryst. Growth 273 (2004) 149-155.
12. M.S. Kim, Y.K. Zhou, S. Kimura, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, "Magnetic, optical and transport properties of GaCrN-based ferromagnet/nonmagnet/ferromagnet trilayer structures", J. Cryst. Growth (in press)
13. S.W. Choi, S. Emura, S. Kimura, M.S. Kim, Y.K. Zhou, N. Teraguchi, A. Suzuki, A. Yanase, and H. Asahi, "Emission spectra from AlN and GaN doped with rare earth elements", J. Alloys and Compounds (in press)
14. S. Hasegawa, S. Nishida, T. Yamashita and H. Asahi, "Polycrystalline GaN for light emitter and field electron emitter applications", Thin Solid Films (in press)
15. T. Yamashita, S. Hasegawa, S. Nishida, M. Ishimaru, Y. Hirotsu and H. Asahi, "Electron field emission from GaN nanorod films grown on Si substrates with native silicon oxides", Appl. Phys. Lett. (in press)
16. H. Asahi, Y.K. Zhou, M.S. Kim, S. Emura, S. Shanthi, S. Kimura and S. Hasegawa, "GaN-based diluted magnetic semiconductors for spintronics", Inst. Phys. Conf. Ser. (in press)

## 国際会議発表

1. 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, "Luminescence from Gd Site in Dilute Magnetic Semiconductor GaGdN", 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, January 13-14, 2004, Osaka, Japan, #P53.
2. M.S. Kim, Y.K. Zhou, X.J. Li and H. Asahi, "Tunneling magnetoresistance effect in magnetic semiconductor heterostructure DyN/GaN", 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, January 13-14, 2004, Osaka, Japan, #P50.
3. T. Shimada, J. Mori, S. Hasegawa and H. Asahi, "1.3-1.5  $\mu\text{m}$  wavelength quantum dot light emitting diodes by growing GaAs/InAs short-period superlattices on InP(411)A", 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, January 13-14, 2004, Osaka, Japan, #P52.

4. A. Fujiwara, H. J. Lee, A. Imada, K. Mukai, S. Hasegawa and H. Asahi, “Temperature-stability of lasing wavelength for TlInGaAs/InP DH laser diodes and 77K CW operation”, 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, January 13-14, 2004, Osaka, Japan, #P51.

★5. H. Asahi, Y. K. Zhou, M. Hashimoto, M. S. Kim, X. J. Li, S. Emura and S. Hasegawa, “GaN-based magnetic semiconductors for nanospintronics”, International Conference on Nanospintronics Design and Realization, May 24-28, 2004, Kyoto, Japan. #25N-04.

6. Y. K. Zhou, M. S. Kim, X. J. Li, S. Kimura, A. Kaneta, Y. Kawakami, Sg. Fujita, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, “Optical properties of GaN-based magnetic semiconductors”, International Conference on Nanospintronics Design and Realization  
May 24-28, 2004, International Institute for Advanced Studies, Kyoto, Japan.  
#C-125.

7. M. S. Kim, Y. K. Zhou, X. J. Li and H. Asahi, “Magnetic, optical and transport properties of GaN-based ferromagnetic/nonmagnetic semiconductor heterostructures”, International Conference on Nanospintronics Design and Realization, May 24-28, 2004, Kyoto, Japan. #C-117.

8. H. Fukumura, N. Hasuike, H. Harima, K. Kisoda, M. Hashimoto, Y. K. Zhou and H. Asahi, “Raman scattering characterization of GaN-based spintronics materials”, International Conference on Nanospintronics Design and Realization, May 24-28, 2004, Kyoto, Japan. #C-141b.

★9. H. Asahi, H. J. Lee, A. Fujiwara, A. Imada, K. Mukai and S. Hasegawa, “Gas source MBE growth of Tl-containing semiconductors and their application to temperature-insensitive wavelength laser diodes”, 16th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials, May 31-June 4, 2004, Kagoshima, Japan, #WB-2-1.

10. A. Imada, A. Fujiwara, H. J. Lee, T. Mukai, S. Hasegawa and H. Asahi, “Reduced temperature dependence of refractive index in TlInGaAs by addition of Tl”, 16th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials, May 31-June 4, 2004, Kagoshima, Japan, #P2-42.

11. T. Shimada, J. Mori, S. Hasegawa and H. Asahi, “GaAs-InAs short-period superlattice/InP(411)A self-formed quantum dot light emitting diodes with

- 1.3-1.5  $\mu\text{m}$  light emission”, 16th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials, May 31-June 4, 2004, Kagoshima, Japan, #TuA-3.
12. H. Asahi, M. Hashimoto, H. Tanaka and S. Hasegawa, “Photoluminescence emission from room temperature ferromagnetic semiconductor GaCrN”, International Workshop on Nitride Semiconductors 2004 (IWN-2004), July 19-23, 2004, Pittsburgh, USA, #B2.2.
13. T. Yamashita, S. Nishida, S. Hasegawa and H. Asahi, “Electric field emission characteristics of GaN nanorods grown on Si substrates with native oxides”, International Workshop on Nitride Semiconductors 2004 (IWN-2004), July 19-23, 2004, Pittsburgh, USA, #B17.3.
14. M.S. Kim, Y.K. Zhou, S. Kimura, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, “Magnetic, optical and transport properties of GaCrN-based ferromagnet/nonmagnet/ferromagnet trilayer structure”, 13th International Conference on Molecular Beam Epitaxy, August 22-27, 2004, Edinburgh, UK, #FB1.6.
- ★15. H. Asahi, Y.K. Zhou, M.S. Kim, S. Emura, S. Shanthi, S. Kimura and S. Hasegawa, “GaN-based diluted magnetic semiconductors for spintronics”, 31st International Symposium on Compound Semiconductors (ISCS-2004), September 12-15, 2004, Seoul, Korea, # Mo-1D-2.
- ★16. S. Hasegawa, S. Nishida, T. Yamashita and H. Asahi, “Polycrystalline GaN for field electron emitter application”, International Conference on Polycrystalline Semiconductors (POLYSE) 2004, September 5-10, 2004, Potsdam, Germany, #Fr 1.1.
17. Y.K. Zhou, M.S. Kim, H. Kimura, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, “Magnetoresistance in GaCrN-based ferromagnet/nonmagnet/ferromagnet trilayer structures”, 13th Semiconducting and Insulating Materials Conference, September 20-25, 2004, Beijing, China, Abstracts p.113.
18. S.W. Choi, Y.K. Zhou, M.S. Kim, S. Kimura, S. Shanthi, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, “Magnetic, electric and optical properties of AlN and GaN doped with rare-earth element Gd”, The 3rd Asian International Symposium on the Science of Engineering Ceramics, October 31-November 3, 2004, Osaka, Japan, #SP-P-58.
19. H. Munakata, S. Matsuno, S. Hasegawa and H. Asahi, “Optical properties of Cr-doped GaN/AlN quantum dots”, The 3rd Asian International Symposium on the Science of Engineering Ceramics, October 31-November 3, 2004, Osaka, Japan, #SP-P-59.

20. S. Emura, S.W. Choi, S. Kimura, M.S. Kim, Y.K. Zhou, N. Teraguchi, A. Suzuki, A. Yanase, and H. Asahi, “Emission spectra from AlN and GaN doped with rare earth elements”, International Conference on Rare Earths in Nara, November 7-12, 2004, Nara, Japan, #FI-17.
- ★ 21. S. Hasegawa and H. Asahi, “Electron field emission from polycrystalline GaN nanorods”, 2004 Fall International Symposium on Crystal Growth and Devices, November 10-13, 2004, Seoul, Korea, #I-5.
22. S. Hasegawa, W. Doi, A. Yabuuchi and H. Asahi, “Evaluation of device configurations through different cross-sectional planes of 0.1  $\mu\text{m}$  MOSFETs by scanning tunneling microscopy/spectroscopy”, 12th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, Izu-Atagawa, Shizuoka, December 9-11, 2003, #P-58.
23. S. Emura, S.W. Choi, S. Kimura, S. Kobayashi, M.S. Kim, S. Shanthi, Y.K. Zhou, N. Teraguchi, A. Suzuki and H. Asahi, “Luminescence properties of GaN and AlN doped by rare earth elements”, Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, December 6-7, 2004, Osaka, #P039.
24. S. Shanthi, M. Hashimoto, S. Kimura, Y. K. Zhou, S.W. Choi, M. S. Kim, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, “Effect of chromium doping on the luminescence properties of GaCrN on sapphire”, Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, December 6-7, 2004, Osaka, #P042.
25. W. Doi, A. Yabuuchi, S. Hasegawa and H. Asahi, “Cross-sectional scanning tunneling microscopy study of 100 nm MOSFETs through the different cross sections”, Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, December 6-7, 2004, Osaka, #P045.

## 国内学会

- ★1. 朝日 一、李 輝宰、藤原淳志、今田明範、周 逸凱、長谷川繁彦, “TlInGaAs 系新半導体による温度安定波長半導体レーザー”, 第 51 回応用物理学会関係連合講演会予稿集 (2004. 3. 28-31) 29p-ZY-4.
2. 山下剛司、西田聡佑、長谷川繁彦、朝日一, “SiO<sub>2</sub>/Si 基板上に形成した GaN ナノロッド (1) 成長方法と構造評価”, 第 51 回応用物理学会関係連合講演会予稿集 (2004. 3. 28-31) 28p-YN-12.
3. 山下剛司、西田聡佑、長谷川繁彦、朝日一, “SiO<sub>2</sub>/Si 基板上に形成した GaN ナノロッド (2) フィールドエミッション特性”, 第 51 回応用物理学会関係連

合講演会予稿集 (2004. 3. 28-31) 28p-YN-13.

4. 向井俊和、今田明範、李輝宰、藤原淳志、長谷川繁彦、朝日一, “InP 基板上 TlInGaAs 膜の光学特性(III)”, 第 51 回応用物理学会関係連合講演会予稿集 (2004. 3. 28-31) 29a-YL-10.
5. 藤原淳志、李輝宰、今田明範、向井俊和、長谷川繁彦、朝日一, “TlInGaAs/InP DH メサストライプレーザの発光特性”, 第 51 回応用物理学会関係連合講演会予稿集 (2004. 3. 28-31) 29a-YL-11.
6. 木村重哉、周逸凱、李西軍、S. Shanthi、金武成、金田昭男、川上養一、藤田茂夫、寺口信明、鈴木彰、江村修一、長谷川繁彦、朝日一, “希土類ドーピング GaN の光学特性”, 第 51 回応用物理学会関係連合講演会予稿集 (2004. 3. 28-31) 30a-ZK-1.
7. 江村修一、周逸凱、柳瀬章、橋本政彦、田中浩之、金武成、木村重哉、S. Shanthi、李西軍、寺口信明、鈴木彰、金田昭男、川上養一、藤田茂夫、朝日一, “希薄磁性半導体 GaGdN の新発光とその起源”, 第 51 回応用物理学会関係連合講演会予稿集 (2004. 3. 28-31) 30a-ZK-2.
8. 李西軍、周逸凱、金武成、木村重哉、S. Shanthi、寺口信明、鈴木彰、江村修一、長谷川繁彦、朝日一, “希土類金属(Gd, Dy) ドーピング GaN 及び AlN の輸送特性”, 第 51 回応用物理学会関係連合講演会予稿集 (2004. 3. 28-31) 30a-ZK-6.
9. 蓮池紀幸、播磨弘、橋本政彦、田中浩之、朝日一、木曾田賢治, “希薄磁性半導体 GaCrN のラマン散乱研究”, 第 51 回応用物理学会関係連合講演会予稿集 (2004. 3. 28-31) 30a-ZK-7
10. 金武成、周逸凱、木村重哉、李西軍、S. Shanthi、江村修一、長谷川繁彦、朝日一, “MBE 法による GaCrN 三層構造の結晶構造とその評価”, 第 51 回応用物理学会関係連合講演会予稿集 (2004. 3. 28-31) 30a-ZK-8
11. 土井航、長谷川繁彦、朝日一, “異なる面方位で切り出した 100 nm MOSFET 断面の走査型トンネル顕微鏡による評価”, 第 51 回応用物理学会関係連合講演会予稿集 (2004. 3. 28-31) 31a-ZG-3
12. 藤原淳志、李輝宰、今田明範、向井俊和、長谷川繁彦、朝日一, “TlInGaAs/InP DH メサストライプレーザの発光特性 (2)”, 第 65 回応用物理学会学術講演会予稿集 (2004. 9. 1-9. 4) 1a-P1-41.
13. 向井俊和、藤原淳志、松本武、長谷川繁彦、朝日一, “TlInGaAs/GaAs 量子井戸構造からの EL 発光特性 (2)”, 第 65 回応用物理学会学術講演会予稿集 (2004. 9. 1-9. 4) 1a-P1-40.
14. 島田隆司、森淳、長谷川繁彦、朝日一, “GaAs/InAs 短周期超格子成長自己形成量子ドット LED (2)”, 第 65 回応用物理学会学術講演会予稿集 (2004. 9. 1-9. 4)

2p-ZK-10.

15. S. Shanthi, Y. K. Zhou, M. S. Kim, S. W. Choi, S. Kimura, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, “Luminescence properties of the Chromium doped GaN”, 第 65 回応用物理学会学術講演会予稿集 (2004. 9. 1-9. 4) 1a-ZD-7.
16. 金武成、周逸凱、崔誠佑、木村重哉、江村修一、長谷川繁彦、朝日一, “希薄磁性半導体 GaCrN の磁気、光学特性”, 第 65 回応用物理学会学術講演会予稿集 (2004. 9. 1-9. 4) 1a-ZD-5.
17. 崔誠佑, 周逸凱, 金武成, 木村重哉, S. Shanthi, 寺口信明, 鈴木彰, 江村修一, 長谷川繁彦, 朝日一 “希土類元素 Gd ドープ AlN, GaN の電気、磁気及び光学特性”, 第 65 回応用物理学会学術講演会予稿集 (2004. 9. 1-9. 4) 1a-ZD-8.
18. 木村重哉, 周逸凱, 金武成, 崔誠佑, S. Shanthi, 江村修一, 長谷川繁彦, 朝日一, “希薄磁性半導体 GaCrN のドーピング効果”, 第 65 回応用物理学会学術講演会予稿集 (2004. 9. 1-9. 4) 1a-ZD-6.
19. 宗像宏典, 松野俊輔, 長谷川繁彦, 朝日一, “Cr ドープ GaN/AlN 量子ドットの光学特性”, 第 65 回応用物理学会学術講演会予稿集 (2004. 9. 1-9. 4) 2p-ZK-14.
20. 土井航、藪内敦、長谷川繁彦、朝日一, “異なる面方位で切り出した 100 nm MOSFET 断面の走査トンネル顕微鏡による評価(2)”, 第 65 回応用物理学会学術講演会予稿集 (2004. 9. 1-9. 4) 1p-ZC-4.
21. 山下剛司、内田夏苗、長谷川繁彦、朝日一, “SiO<sub>2</sub>/Si 基板上に形成した GaN ナノロッド (3) 低温バッファ層の効果”, 第 65 回応用物理学会学術講演会予稿集 (2004. 9. 1-9. 4) 4a-W-4.

## 学会活動

### 朝日一

1. 応用物理学会評議員
2. 日本表面科学会関西支部副支部長
3. Japan. J. Appl. Phys. 編集委員
4. e-Journal of Surface Science and Nanotechnology, Member of Advisory Board
5. J. of Materials Science: Materials in Electronics (Chapman and Hall) Member of the Editorial Board.

6. Current Applied Physics (Elsevier Science BV), Member of the Editorial Board.
7. 16th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials, Kagoshima, Japan, May 31-June 4, 2004, International Steering Committee member, Organizing Committee member.
8. International Conference on Nanospintronics Design and Realization, Kyoto, Japan, May 24-28, 2004, Organizing Committee member.
9. International Workshop on Nitride Semiconductors 2004, Pittsburgh, USA, July 19-23, 2004, International Advisory Committee member.
10. 12th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, Izu-Atagawa, Japan, December 9-11, 2004, Management Committee General Affairs, Publication Committee member.
11. 電子材料シンポジウム運営委員会委員

## 科研費、助成金等

1. 朝日一、周逸凱：文部科学省書科学技術振興調整費（代表：笠井秀明）「ナノスピントロニクスデザインと創製」
2. 朝日一、長谷川繁彦：科研費・基盤(B)「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」
3. 周逸凱、朝日一：科研費・特定領域「GaN ベースの透明強磁性半導体の創製に関する研究」
4. 長谷川繁彦、朝日一：科研費・基盤(B)「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」
5. 江村修一、朝日一：科研費・基盤(C)「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」

## ナノ構造機能理論・シミュレーション分野

学内兼任教授

竹田 精治 (たけだ せいじ)

所属 大阪大学大学院理学研究科



略歴

- 1981年 広島大学大学院理学研究科  
物性学専攻博士課程修了
- 1983年 日本学術振興会奨励研究員
- 1983年 大阪大学教養部助手
- 1984年 米国カリフォルニア大学ローレンスバークレー研究所博士研究員
- 1990年 大阪大学教養部助教授
- 1992年 科学技術庁無機材質研究所客員研究官
- 1994年 大阪大学理学部助教授
- 1996年 大阪大学大学院理学研究科助教授
- 2000年 大阪大学大学院理学研究科教授
- 2004年 大阪大学産業科学研究所産業科学ナノテクノロジーセンター  
ナノ構造機能理論・シミュレーション分野教授(兼任)

専門分野 固体構造、電子顕微鏡

研究テーマ 半導体物質の極微構造

所属学会 日本金属学会、日本結晶学会、日本顕微鏡学会、日本物理学会

受賞 日本電子顕微鏡学会賞(瀬藤賞)

特許 ナノ微細構造体の製造方法、結晶系IV族半導体の非晶質化方法 など

## 加速器量子ビーム実験室

加速器量子ビーム実験室は、ナノテクノロジーと関連分野の基盤研究、ならびにビーム科学・技術研究を推進するための大型装置を保有して、それらの維持と管理、運転を行なっている。実験室の主な装置は、ライナック棟に設置されている 40 MeV L バンド電子ライナックと、150 MeV S バンド電子ライナック、40 MeV RF 電子銃ライナックならびに加速器量子ビーム実験室にあるコバルト 60 ガンマ線照射装置である。このうち、L バンド電子ライナックとコバルト 60 ガンマ線照射装置を全学の共同利用に供している。

加速器量子ビーム実験室の平成 16 年度の兼任教職員は、( ナノ量子ビーム研究部門 ) 吉田 陽一 教授、菅田 義英 助教授、関 修平 助教授、古澤 孝弘 助教授、楊 金峰 助手、木村 徳雄 助手、( ナノマテリアル・デバイス研究部門 ) 遠藤 政幸 助手、( 励起分子科学研究分野 ) 真嶋 哲朗 教授、藤塚 守 助教授、藤乗 幸子 助手、川井 清彦 助手、( 量子ビーム科学研究分野 ) 磯山 悟朗 教授( 実験室長 )、加藤 龍好 助教授、池田 稔治 助手、柏木 茂 助手、( 量子ビーム物質科学研究分野 ) 田川 精一 教授、山本 幸男 助教授、小林 一雄 助手、佐伯 昭紀 助手、( 技術室 ) 山本 保 機械回路工作掛長、馬場 久美子 計測班専門職員である。これに川口奈央子 事務補佐員が加わり合計の計 22 名で運営されている。

L バンド電子ライナックと S バンド電子ライナック、RF 電子銃ライナックは、平成 15 年度から引き続き立上調整作業を行なった。L バンド電子ライナックの改造と、S バンド電子ライナックの運転条件の変更、RF 電子銃ライナックの新設、ならびに非密封と密封放射性同位元素の使用核種の変更に伴う放射性同位元素等の承認使用にかかわる変更申請を文部科学省に提出し、平成 16 年 6 月 25 日に許可証が交付された。新設の RF 電子銃ライナックは、平成 16 年 7 月 26 日付けで施設検査に合格し、3 台の電子線形加速器の放射線発生装置としての使用が可能になった。これに伴い、平成 14 年度後期以来休止していた L バンド電子ライナックの共同利用を平成 16 年度後期から再開した。

以下に平成 16 年度一般共同利用 ( 前期 ) と ( 後期 ) の採択テーマ一覧を示す。前期は、コバルト 60 ガンマ線照射装置 ( コバルトと記載 ) の使用のみであり、後期の募集で L バンド電子ライナック ( パルスと記載 ) 単独またはコバルトとの併用の研究が付け加わった。L バンドライナックは、平成 16 年 6 月から平成 17 年 2 月末までで 985 時間運転し、S バンドライナックは同じ期間に 81 時間運転した。コバルトは、平成 16 年 4 月から 17 年 2 月末までで合計 2553 時間使用した。

加速器量子ビーム実験室関係の行事として、平成 17 年 2 月 9 日 ( 水 ) には、加速器量子ビーム実験装置完成披露式典が行なわれた。また、平成 16 年度共同利用成果報告会が平成 17 年 3 月 14 日 ( 月 ) に行なわれた。これらの行事の詳細は、本報告書の別所に掲載する。

平成16年度一般共同利用（前期）申し込み

番号	研究課題	所属	氏名	対象	新規・継続	世話人
1	ナノエレクトロニクス用高分子材料の反応素過程	産研	田川精一	コバルト	継続	古澤
2	機能性分子の電子状態についての分光分析	産研	関修平	コバルト	継続	関
3	ラジカルイオンの化学	産研	真嶋哲朗	コバルト	継続	真嶋
4	ラジカルイオンの光励起状態	産研	真嶋哲朗	コバルト	継続	真嶋
5	放射線化学反応活性種	産研	真嶋哲朗	コバルト	継続	真嶋
6	酸性オルガネラの機能と形成に関する研究	産研	和田 洋	コバルト	継続	池田
7	放射線による遺伝子損傷の直接効果	産研	小林一雄	コバルト	新規	小林
8	アモルファスSiO <sub>2</sub> における局所ナノ構造欠陥の研究	産研	谷村克己	コバルト	新規	関
9	電子スピン共鳴(ESR)法による線照射効果の研究( )	理学研究科	山中千博	コバルト	継続	池田
10	電子スピン共鳴(ESR)法による線照射効果の研究( )	理学研究科	山中千博	コバルト	継続	池田
11	放射線を利用したソフトマテリアルの機能化	工学研究科	江間喜美子	コバルト	継続	池田
12	微粒子懸濁水溶液系の放射線照射効果	工学研究科	山本孝夫	コバルト	継続	池田
13	包接重合	工学研究科	宮田幹二	コバルト	継続	池田
14	セラミック電気絶縁ケーブル材料の放射線照射効果	工学研究科	飯田敏行	コバルト	継続	池田
15	DNA損傷の修復機構の解析	微研	品川日出夫	コバルト	継続	池田
16	真核生物の細胞周期制御の分子機構	微研	奥崎大介	コバルト	継続	池田
17	交互積層法によるナノ構造制御材料の開発	工学研究科	木田敏之	コバルト	新規	池田

18	低線量放射線の生体影響の分析	RI センター	清水喜久雄	コバルト	新規	池田
19	出芽酵母細胞の放射線に対する応答の解析	蛋白研	篠原 彰	コバルト	新規	池田

平成16年度一般共同利用（後期）申し込み

番号	研究課題	所属	氏名	対象	新規・継続	世話人
1	線照射による酸化チタン光触媒上での希薄有機物の酸化反応	工学研究科	山下弘巳	コバルト	新規	池田
2	生分解性高分子の Co60 線照射による分解性と物性制御	歯学研究科	寺岡文雄	コバルト	新規	池田
3	高輝度電子ビームの発生と特性測定	産研	柏木 茂	パルス	継続	柏木
4	共役高分子の電子線パルスラジオリシス法による電子構造推定	産研	関 修平	パルス	継続	関
5	ピコ秒・サブピコ秒パルスラジオリシスによる水溶液及び生体関連物質の放射線化学初期過程の研究	産研	田川精一	パルス	継続	古澤
6	時間分解マイクロ波伝導度測定によるナノ材料中での伝導度評価	産研	田川精一	パルス	新規	佐伯
7	サブピコ秒パルスラジオリシスによるナノ空間反応初期過程の研究	産研	田川精一	パルス	継続	古澤
8	パルスラジオリシス法を用いたナノ空間非均質反応場での過渡現象に関する研究	産研	吉田陽一	パルス	新規	関
9	ナノ秒領域での量子ビーム誘起化学反応基礎過程	産研	吉田陽一	パルス	新規	楊
10	ナノストラクチャー内放射線誘起反応高時間分解測定	産研	吉田陽一	パルス	新規	楊
11	マイクロ秒ミリ秒パルスラジオリシス法における放射線化学の研究	産研	小林一雄	パルス	新規	小林
12	赤外FELによるテラヘルツ波源開発	産研	磯山悟朗	パルス	継続	加藤
13	集束型ウイグラー開発の基礎研究	産研	磯山悟朗	パルス	新規	柏木
14	SASEによるX線レーザーの基礎研究	産研	加藤龍好	パルス	継続	加藤
15	OTR によるウィーク場とパンチ構造の評価	産研	加藤龍好	パルス	新規	加藤

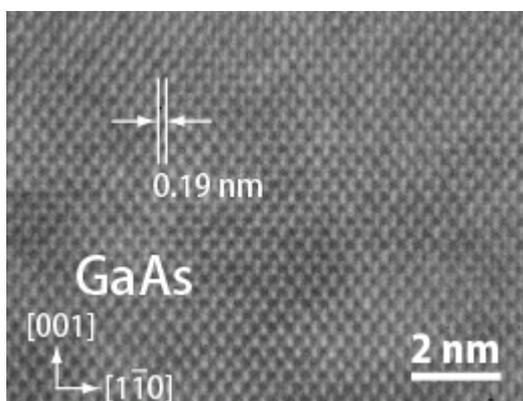
16	時間空間反応解析用シンチレータに関する研究	産研	吉田陽一	パルス	新規	楊
17	微粒子懸濁水への放射線照射による水素発生過程のパルスラジオリシスによる検討	産研	吉田陽一	パルス	新規	楊
18	ナノエレクトロニクス用高分子材料の反応素過程	産研	古澤孝弘	パルス・コバルト	継続	関
19	放射線化学反応活性種	産研	真嶋哲朗	パルス・コバルト	継続	藤塚
20	ラジカルイオンの光勃起状態	産研	真嶋哲朗	パルス・コバルト	継続	藤塚
21	放射線照射による遺伝子損傷の分子機構	産研	小林一雄	パルス・コバルト	継続	小林
22	ラジカルイオンの反応性	産研	真嶋哲朗	パルス・コバルト	継続	藤塚
23	パルスラジオリシス法を用いた新奇銅型亜硝酸還元酵素中の分子内電子移動反応の解析	理学研究科	鈴木晋一郎	パルス・コバルト	継続	小林
24	パルスラジオリシス法による芳香族お呼び芳香族含有高分子の放射線化学初期過程の研究	産研	田川精一	パルス・コバルト	継続	関
25	陽電子寿命測定法によるレジスト高分子の評価	産研	木村徳雄	施設利用	継続	木村
26	高強度陽電子ビームの生成・加工・利用	産研	誉田義英	施設利用	継続	誉田
27	陽電子消滅法を用いたソフトマテリアルのナノ空間	産研	誉田義英	施設利用	継続	誉田
28	陽電子消滅法を用いた高分子薄膜中のナノ空間評価	産研	誉田義英	施設利用	継続	誉田
29	RFフォトカソードパルスラジオリシスによるナノ加工レジスト材料中での初期過程の研究	産研	田川精一	施設利用	新規	古澤
30	フォトカソードRF電子銃ライナックによるフェムト秒電子パルスの発生とフェムト秒パルスラジオリシスシステムの開発	産研	吉田陽一	施設利用	新規	楊
31	低エミッタンスフェムト秒電子線とナノ	産研	吉田陽一	施設利用	新規	楊

	周期構造デバイスとの相互作用の研究					
--	-------------------	--	--	--	--	--

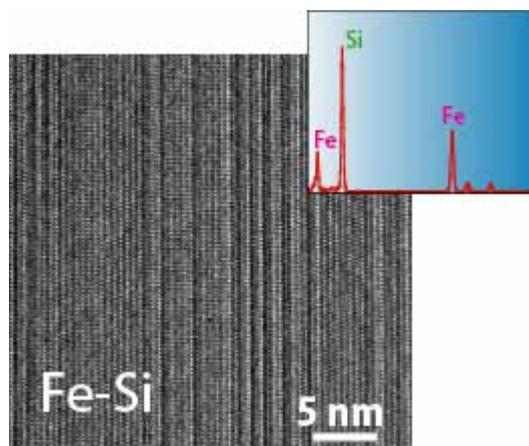
## 電子顕微鏡室

電子顕微鏡室は昭和 26 年に共通利用施設として設置され、以来、所内各研究部門の固体構造・組織に関する研究に大きく貢献してきた。平成 16 年度より産業科学ナノテクノロジーセンター附属の研究施設となり、センター内はもちろん所内各研究部門のナノテクノロジー研究をナノレベルでの形態観察および構造解析の立場から支援するものである。

電子顕微鏡室ではこれまで 100 kV 透過電子顕微鏡(HU-11DS)、650 kV 超高圧電子顕微鏡(HU-650)、100 kV 電界放出型電子銃搭載の分析電子顕微鏡(H-600FE)など、それぞれの時代の最先端を行く電子顕微鏡を設置してきた。現在、300 kV 電界放射型透過電子顕微鏡(JEM-3000F)、走査電子顕微鏡(S-2250N)などが稼働しており、これらの装置は各種試料の原子レベルでの観察、ナノメートルサイズの極微小部の電子回折による結晶構造解析、ナノメートルサイズの部位の元素分析およびバルク試料の表面組織観察などに有効に利用されている。特に、平成 10 年より稼働を始めた 300 kV 透過電子顕微鏡(上写真)の最高分解能は 0.17 ナノメートルであり、本装置搭載のエネルギー分散型 X 線検出器による組成分析はホウ素以上で可能である。



GaAs 単結晶の高分解能観察



Fe-Si 結晶における欠陥構造

## 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	前橋兼三
（兼任）	助手	周 逸凱

電子プロセス実験室は、産業科学研究所の共通施設として平成3年（1991）に設置されたものである。平成16年度4月に、産業科学ナノテクノロジーセンターにナノ構造機能評価研究部門が設置されたのに伴い、産業科学ナノテクノロジーセンター附属の実験室となった。当実験室は、ナノテクノロジーおよび関連基盤研究を推進するために、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、2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、ナノテクノロジーセンターおよび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。

平成16年度の利用状況は、10研究室が利用し、1ヶ月当たり延べ約50件（年間約610件）の利用があった。



電子プロセス室内の様子

## オープンラボラトリー

オープンラボラトリー管理室長 田畑 仁

<http://www.sanken.osaka-u.ac.jp/labs/OpenLab/>

オープンラボラトリーは、物質・材料やデバイスを対象としたナノテクノロジーの科学技術発展の基盤となるべき、独創的、先進的な学術研究の推進を目的とした総合的研究に利用するものとし、平成16年4月より利用者の受け入れを開始した。

- ・ 本ラボラトリーを利用することができる者は、原則として産業科学ナノテクノロジーセンターの学内兼任教官及び客員教官並びに産業科学研究所に属する研究者グループ及び大阪大学のナノテクノロジー研究者のグループとする。
- ・ ナノテクノロジー研究推進を目的とする為、本ラボラトリーを使用することができる。利用期間は、原則として1年以上3年以内とする。ただし委員会が特に必要があると認めた場合は、2年間の限度として利用期間の延長を認めることができる。
- ・ 利用面積は、1申請当たり200 m<sup>2</sup>を超えないものとする。
- ・ 利用する負担金は、年間1 m<sup>2</sup>当たり、20,000円とする。
- ・ 研究実施に係る光熱水料等とクリーンルームに係る諸費用は使用する部屋に応じて利用者の負担とする。
- ・ 利用の申請があったときは、所長が本ラボラトリー利用専門委員会に諮り、委員会が適当と認めた者について利用を許可する。

以上の募集要項に従って利用者を募集したところ、平成16年度の利用者を次ページに示す。

オープンラボラトリー 平成 16 年度利用者リスト

部屋番号	グループ名	研究課題	研究代表者	所属
101	掛下研究室	ペロブスカイト型マンガン酸化物ならびに強磁性形状記憶合金の超高压下における構造相転移	掛下知行教授	工学研究科
102	山本研究室	磁性を有する超薄膜・ハイブリッド多層膜・高品位人工格子の材料開発とデバイス化	山本雅彦教授	工学研究科
103-1	佐々木研究室	バルク GaN 完全結晶育成技術の開発 - ナノ領域の完全性をマクロへ広げる -	佐々木孝友教授	工学研究科
103-2	森研究室	ナノ構造制御高効率UV発光素子用半導体開発プロジェクト	森勇介助教授	工学研究科
104-2	吉野研究室	ナノ構造液晶の創成	吉野勝美教授	工学研究科
105	藤原研究室	ナノ構造制御による半導体/金属/絶縁体複合量子機能材料の創製	藤原康文教授	工学研究科
108-1 111	尾浦研究室	ナノカーボン材料の作製制御とナノデバイス応用	尾浦憲治郎教授	工学研究科
108-2 113 501 502-1 502-2 509 511 609	産研	研究所間プロジェクト/21世紀COE	川合知二教授	産業科学研究所
502-3	ナノテクノロジー・プロセスファウンドリー	ナノテクノロジー研究の総合支援(産学官連携)	村衫政一客員助教授	産業科学研究所
503-1	増原研究室	ナノフォトニクスセンターのスタートアップ	増原宏教授	工学研究科
503-2	朝日研究室	液中レーザーアブレーションによる有機ナノ粒子作製	朝日剛助教授	工学研究科
506	河田研究室	近接場ナノフォトニクス	河田聡教授	工学研究科
507	フロンティア研究機構	ナノフォトニクスデバイス創製のための大面積高速光微細加工システムの開発	田中拓男特任助教授	フロンティア研究機構
513-1 513-2	川合研究室	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 プログラム自己組織化による人工生体情報材料創製 1分子DNA解析システムの開発	川合知二教授	産業科学研究所
513-3	山崎研究室	生活習慣病早期診断治療システムの構築	山崎義光助教授	医学系研究科
601	福住研究室	ナノクラスター触媒を用いた水中窒素固定法の開発	福住俊一教授	工学研究科
602	ナノサイエンス・ナノテクノロジー研究推進機構	全学横断の大学院ナノ教育研究訓練プログラム	馬越佑吉教授	ナノサイエンス・ナノテクノロジー研究推進機構
603	井上・和田研究室	外部刺激による機能制御能力を有するナノ組織体の創成	和田健彦助教授	工学研究科
604 607	桑畑研究室	ナノ電気化学材料の創製と機能	桑畑進教授	工学研究科
605	明石研究室	交互積層法によるナノ構造制御材料の開発	明石満教授	工学研究科
606	中村研究室	非線形ナノフォトニクスによる光ナノ加工	中村收教授	生命機能研究科
613 617	福井研究室	ナノメディクスを利用した新規医薬品の開発	福井希一教授	工学研究科

## 事務補佐員

池田 恵 (いけだ めぐみ)

### 【略歴】

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

### 【趣味】

旅行、スポーツ、温泉、散歩など



【一言】今年も学生も増えて研究室が一層楽しくなりました。田畑先生をはじめ、研究室の皆様や、客員教官として来て頂いた先生方にも大変お世話になりました。来年度も研究室みんなが楽しく過ごせるように努力していきます。

寺下 美絵 (てらした みえ)

### 【略歴】

2003年 関西外国語大学外国学部英米語学科 卒業  
2003年 産業科学研究所吉田陽一研究室 秘書

### 【趣味】

英会話、お茶、着付け、旅行



【一言】働き始めてからもう 2 年にもなるのに秘書としてまだまだ未熟なところが多々あり、研究室のメンバーをはじめ周りの方々にいつも助けていただいております。もっとしっかりしなければ!と思う毎日です。今年も精神的にも体力的にも強い女を目指してがんばりたいと思っています。どうぞよろしくお願い致します。

浦山 奈緒美（うらやま なおみ）



【略歴】

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

【趣味】

旅行、音楽鑑賞、自然散策、水泳

【一言】菅沼研では、2004年2月より井手こずえさんが来られ、秘書が2人体制となりました。主に井手さんが対外的な仕事、私が産研内での仕事を担当し、机も向かい合わせで楽しく働いています。

井手 こずえ（いで こずえ）



【略歴】

1975年 広島県生まれ  
1998年 大阪教育大学教養学科芸術専攻卒業  
2002年 大阪大学文学研究科卒業  
2004年2月 高次インターマテリアル研究センター  
菅沼研究室 秘書

【趣味】

読書、旅行、美術鑑賞

【一言】一年がたち、ようやく仕事に慣れてきたところです。浦山さんをはじめ、親切なスタッフの方々には感謝しております。今後とも頑張っていきますので、よろしく願いいたします。

**\* 編集後記 \***

産業科学ナノテクノロジーセンター報告書ははやくも第3巻目となりました。時のたつ速さをしみじみと感じています。

原稿をご準備してくださった皆様、本当にありがとうございました。

(吉田、滝澤、井上、金崎、古澤)

大阪大学産業科学研究所  
産業科学ナノテクノロジーセンター報告書  
Vol. 3 (2004年)

発行元 大阪大学産業科学研究所  
産業科学ナノテクノロジーセンター  
TEL 06-6879-8518 FAX 06-6879-8518  
URL: <http://www.sanken.osaka-u.ac.jp/labs/nano/index.html>  
発行日 平成17年3月31日  
印刷 セイエイ印刷(株)

発行日 2005年 3月

事務連絡先

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

〒567-0047 大阪府茨木市美穂ヶ丘8 - 1  
8-1 Mihogaoka,Ibaraki,Osaka 567-0047,Japan

TEL:06-6879-8518  
TEL: + 81-6-6879-8518

FAX:06-6879-8518

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