

平成19年度 年次報告書  
－活動状況と課題－

大阪大学産業科学研究所

## 目 次

1. はじめに -----	1
2. 研究活動	
1) 組織 -----	2
2) 運営 -----	9
3) 研究費 -----	10
4) 国際研究プロジェクト -----	12
5) 学術講演会・研究集会・研究所間交流プログラム -----	12
6) 広報活動 -----	16
7) 受賞状況 -----	16
3. 教育への関与	
1) 大学院研究科・専攻担当 -----	18
2) 大学院担当授業一覧 -----	19
3) 大学院生の受入数 -----	23
4) 学部、共通教育担当授業一覧 -----	23
4. 国際交流	
1) 活動状況 -----	25
2) 国外との研究者往来 -----	25
5. 産業界との交流 -----	26
6. まとめ (課題と展望) -----	27
[附1] 各研究部門の組織と活動 -----	34
[附2] 各附属研究施設の組織と活動 -----	194
[附3] 共通施設、技術室、事務部の組織と活動 -----	347

本年次報告書は、平成19年度（平成19年（2007年）4月1日から平成20年（2008年）3月31日まで）を対象としたものである。

なお、解説、総説、著書、原著論文については、平成19年（2007年）1月1日から平成20年（2008年）3月31日を対象とした。

## 1. はじめに

最先端の科学を産業に結びつけることを目指して

所長 山口明人

大阪大学産業科学研究所(産研)は、「自然科学に関する特殊事項で産業に必要なものの基礎的学理とその応用の研究」に対する関西の産業界の強い期待と要望を背景に、昭和 14 年に誕生しました。来年(平成 21 年)には創立 70 周年を迎えます。その間、関係各位の御支援により時代の変遷と共に発展し、現在も日々歴史を刻んでいます。

当時は僅か 3 部門で発足した産研は、現在 28 研究分野を含む 7 研究部門と、材料解析センター、放射線実験所と高次インターマテリアルセンターの改組拡充により発足した産業科学ナノテクノロジーセンター(平成 14 年設置)、新産業創造物質基盤技術研究センター(平成 17 年設置)の 3 附属研究施設を擁する、国内でも有数の総合理工学研究所となりました。平成 15 年に実施された国立大学法人化においても、産業科学研究所はいち早く外部委員を加えた運営協議会の設置、役員会の確立など運営体制の整備を行い、さらに、法人の枠を越えた連携研究推進の枠組みとして、全国で初めて、東北大学多元研との間で新産業創造物質基盤技術研究センターを発足させ、産学連携の新しい形としても貢献しています。翌年には北大電子研、東工大資源研を加えて、「ポストシリコン・物質創成アライアンス」へと発展させました。

独法化後作成された中期目標・中期計画は仕上げの段階に入り、次期計画の策定が準備されています。同時に、これまでの大学附置研究所・センターは、新たに全国共同利用・共同研究拠点として文科省の認定を受け、直接支援を受ける拠点研究所と、それ以外の大学法人が自由に設計できる研究所・センターに分けられることになりました。産研は、先の 4 大学研究所間アライアンスを足場に、九大先導研を加えて、「物質・デバイス領域 5 大学附置研究所ネットワーク」を形成し、ネットワーク型共同研究拠点として認定されることを目指しています。また、これを元に、次期アライアンス計画として「ナノ・マクロインターフェース・ブランド戦略」プロジェクトの策定を行っています。

産業科学研究所は、常に時代の要請を先取りし、我が国産業科学の発展に貢献してきました。近年では、ナノテクノロジーの推進の中心的役割を担っています。時代の要請に応じて、さらなる自己変革を遂げるため、ナノテクセンターの拡充強化と産研本体の 3 大部門への改組を進めています。

産研では、理・工・基工・薬・生命機能・情報科学の 6 つの研究科から大学院生を受け入れ、人材育成に努めていますが、これらの学生さんの産研への帰属意識を高め、自発的な融合研究を進められるような様々な試みに取り組んでいます。

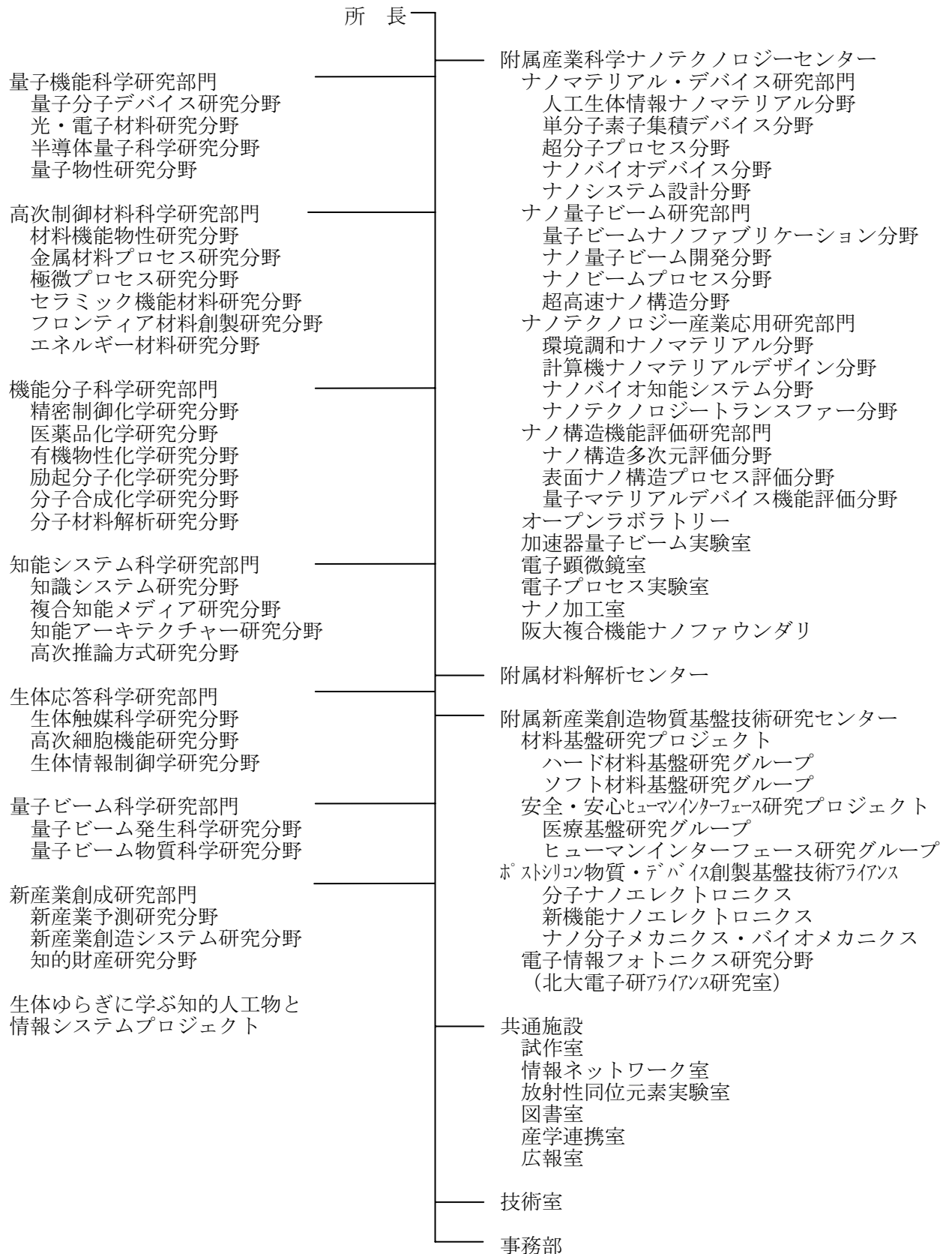
本報告書は、産研による平成 19 年度の研究・教育・社会貢献の成果の記録です。皆さまにご一読いただき、産研のより一層の発展のために、御叱正、御批判を頂ければ幸いです。今後とも皆様のご支援、ご鞭撻をよろしくお願いいたします。

## 2. 研究活動

### 1) 組織

産業科学研究所の機構および教員組織は、次のとおりである。

・機構図（平成20年3月31日現在）



・教員組織 (平成20年3月30日現在)

<b>量子機能科学研究部門</b>			
量子分子デバイス研究分野	教授	工学博士	岩崎 裕
	准教授	博士 (工学)	須藤孝一
	特任助教 (常勤)	博士 (理学)	LIU Hongwen
	特任助教 (常勤)	博士 (工学)	中村 純
光・電子材料研究分野	教授	工学博士	朝日 一
	准教授	工学博士	長谷川繁彦
	助教	理学博士	江村修一
半導体量子科学研究分野	教授	工学博士	松本和彦
	准教授	理学博士	井上恒一
	助教	博士 (工学)	前橋兼三
	助教	博士 (工学)	大野恭秀
量子物性研究分野	教授	理学博士	吉田 博
	准教授	博士 (理学)	森川良忠
<b>高次制御材料科学研究部門</b>			
材料機能物性研究分野	教授	工学博士	弘津禎彦
	准教授	博士 (工学)	石丸 学
	助教	博士 (工学)	平田秋彦
金属材料プロセス研究分野	教授	工学博士	中嶋英雄
	准教授	博士 (工学)	鈴木進補
	助教	博士 (工学)	多根正和
	助教	博士 (工学)	仲村龍介
極微プロセス研究分野	教授	理学博士	川合知二
	助教	博士 (理学)	田中裕行
	助教	Ph. D	柳田 剛
セラミック機能材料研究分野	教授	理学博士	小林 光
	准教授	理学博士	高橋昌男
	助教	理学博士	延谷宏治
	助教	博士 (理学)	松本健俊
フロンティア材料創製研究分野	教授	博士 (理学)	安藤陽一
	准教授	博士 (理学)	瀬川耕司
	助教	博士 (工学)	楠瀬尚史
エネルギー材料研究分野	教授	工学博士	谷村克己
	准教授	理学博士	田中慎一郎
	助教	修士 (理学)	稲見栄一
<b>機能分子科学研究部門</b>			
精密制御化学研究分野	教授	理学博士	中谷和彦
	助教	博士 (工学)	周 大揚
	助教	博士 (エネルギー科学)	萩原正規
	助教	博士 (工学)	堂野主税
医薬品化学研究分野	教授	理学博士	加藤修雄
	准教授	博士 (工学)	大神田淳子

有機物性化学研究分野	助教	理学士	新田 孟
	教授	理学博士	安蘇芳雄
励起分子化学研究分野	助教	博士 (工学)	家 裕隆
	教授	工学博士	真嶋哲朗
	准教授	博士 (工学)	藤塚 守
	助教	工学修士	藤乗幸子
分子合成化学研究分野	助教	博士 (理学)	立川貴士
	教授	工学博士	笹井宏明
	准教授	博士 (理学)	鬼塚清孝
	助教	理学博士	市原潤子
	助教	理学博士	Doss
			Jayaprakas
分子材料解析研究分野	教授 (兼)	理学博士	加藤修雄
	助教	博士 (工学)	高井嘉雄
	助教	博士 (理学)	開發邦宏
	助教	博士 (理学)	武井史恵
	助教	修士 (理学)	朝野芳織
	助教	理学博士	山口俊郎
<b>知能システム科学研究部門</b>			
知識システム研究分野	教授	工学博士	溝口理一郎
	准教授	博士 (工学)	來村徳信
	助教	博士 (工学)	笹嶋宗彦
	特任助教 (常勤)	博士 (工学)	林 雄介
	特任助教 (常勤)	博士 (保健学)	国府裕子
	特任助教 (常勤)	博士 (工学)	周 俊
複合知能メディア研究分野	教授	博士 (工学)	八木康史
	准教授	博士 (工学)	向川康博
	助教	博士 (工学)	佐川立昌
	助教	博士 (工学)	槇原 靖
知能アーキテクチャー研究分野	教授	工学博士	沼尾正行
	准教授	博士 (工学)	栗原 聡
	助教	博士 (工学)	森山甲一
高次推論方式研究分野	教授	工学博士	鷺尾 隆
	助教	博士 (工学)	大原剛三
	助教	博士 (工学)	猪口明博
<b>生体応答科学研究部門</b>			
生体触媒科学研究分野	教授	農学博士	谷澤克行
	准教授	博士 (農学)	黒田俊一
	助教	修士 (工学)	立松健司
高次細胞機能研究分野	教授	博士 (理学)	野地博行
	准教授	理学博士	和田 洋
	助教	博士 (理学)	田端和仁
	助教	博士 (理学)	飯野亮太
生体情報制御学研究分野	教授	薬学博士	山口明人
	准教授	博士 (理学)	村上 聡

	助教	博士（薬学）	西野邦彦
<b>量子ビーム科学研究部門</b>			
量子ビーム発生科学研究分野	教授	理学博士	磯山悟朗
	准教授	博士（理学）	加藤龍好
	助教	工学士	池田稔治
	助教	博士（理学）	柏木 茂
量子ビーム物質科学研究分野	教授	工学博士	田川精一
	准教授（兼）	博士（工学）	関 修平
	助教	工学博士	小林一雄
	助教	博士（工学）	佐伯昭紀
	特任助教（常勤）	博士（工学）	山本洋揮
<b>新産業創成研究部門</b>			
新産業予測研究分野	教授（兼）	理学博士	吉田 博
新産業創造システム研究分野			
知的財産研究分野	特任教授（常勤）（兼）	博士（工学）	清水裕一
<b>■ 附属産業科学ナノテクノロジーセンター</b>			
	センター長（併）		菅沼克昭
<b>ナノマテリアル・デバイス研究部門</b>			
人工生体情報ナノマテリアル分野	教授	博士（理学）	田中秀和
単分子素子集積デバイス分野	教授（兼）	理学博士	川合知二
	准教授	理学博士	松本卓也
	助教	博士（工学）	谷口正輝
超分子プロセス分野	教授（兼）	工学博士	真嶋哲朗
	准教授	博士（工学）	川井清彦
	助教	博士（薬学）	滝澤 忍
	助教	博士（農学）	辛川 誠
ナノバイオデバイス分野	教授（兼）	農学博士	谷澤克行
	准教授	博士（理学）	岡島俊英
	助教	博士（理学）	中島良介
ナノシステム設計分野			
<b>ナノ量子ビーム研究部門</b>			
量子ビームナノファブ리케이션分野	教授	工学博士	吉田陽一
	准教授	博士（理学）	楊 金峰
ナノ量子ビーム開発分野	教授（兼）	理学博士	磯山悟朗
	准教授	工学博士	誉田義英
	助教	工学博士	木村徳雄
ナノビームプロセス分野	教授（兼）	工学博士	田川精一
	教授（兼）	工学博士	平尾俊一
	准教授	博士（工学）	古澤孝弘
	特任助教（常勤）	修士（工学）	岡本一将
超高速ナノ構造分野			
<b>ナノテクノロジー産業応用研究部門</b>			

環境調和ナノマテリアル分野	教授 助教 助教	工学博士 博士（工学） 博士（工学）	菅沼克昭 井上雅博 金 権鉄
計算機ナノマテリアルデザイン分野	教授（兼） 教授（兼） 准教授 助教	理学博士 理学博士 博士（工学） 博士（理学）	吉田 博 赤井久純 白井光雲 佐藤和則
ナノバイオ知能システム分野	教授（兼） 助教	工学博士 博士（工学）	溝口理一郎 古崎晃司
ナノテクノロジートランスファー分野			
ナノ構造機能評価研究部門			
ナノ構造多次元評価分野	教授（兼） 助教	工学博士 博士（工学）	弘津禎彦 内藤宗幸
表面ナノ構造プロセス評価分野	教授（兼） 教授（兼） 准教授	工学博士 工学博士 博士（理学）	谷村克己 森 博太郎 金崎順一
量子マテリアルデバイス機能評価分野	教授（兼） 助教	工学博士 博士（工学）	朝日 一 周 逸凱
■ <u>附属材料解析センター</u>	センター長（併） 准教授		笹井宏明 鈴木健之
■ <u>附属新産業創造物質基盤技術研究センター</u>	センター長（併）		中嶋英雄
・材料基盤研究プロジェクト			
ハード材料基盤研究グループ	教授（兼） 教授（兼） 特任准教授（常勤）	工学博士 工学博士 博士（工学）	中嶋英雄 菅沼克昭 上野俊吉
ソフト材料基盤研究グループ	教授（兼） 教授（兼） 特任准教授（常勤） 特任助教（常勤） 特任助教（常勤）	工学博士 工学博士 博士（工学） 博士（工学） 博士（理学）	真嶋哲朗 笹井宏明 遠藤政幸 坂本雅典 竹中和浩
・安全・安心ヒューマンインターフェース研究プロジェクト			
医療基盤研究グループ	教授（兼） 教授（兼） 特任助教（常勤） 特任助教（常勤）	薬学博士 工学博士 博士（理学） 修士（理学）	山口明人 吉田陽一 西 毅 近藤孝文
ヒューマンインターフェース研究グループ	教授（兼） 教授（兼） 教授（兼） 特任教授（常勤） 特任准教授（常勤）	工学博士 工学博士 理学博士 学士（工学） 博士（工学）	溝口理一郎 沼尾正行 吉田 博 高藤 淳 齋藤 敬

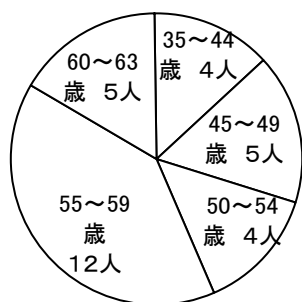


- 産学連携室
- 生体ゆらぎに学ぶ知的人工物と情報システムプロジェクト

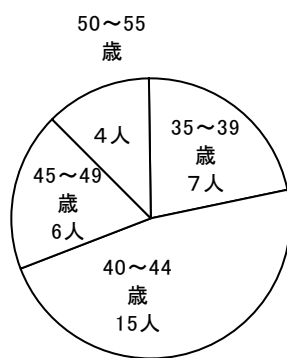
特任助教（常勤）	博士（理学）	中沢 誠
特任助教（常勤）	修士（学術）	福井健一
特任教授（常勤）	博士（工学）	清水裕一
特任教授（常勤）	博士（理学）	河原敏男
特任准教授（常勤）	博士（理学）	浅川直紀
特任助教（常勤）	博士（理学）	神吉輝夫
特任助教（常勤）	博士（理学）	堀田育志

・教員の年齢構成（平成20年3月30日現在。特任教員（常勤）含む。ただし、併任、兼任者は除く。）

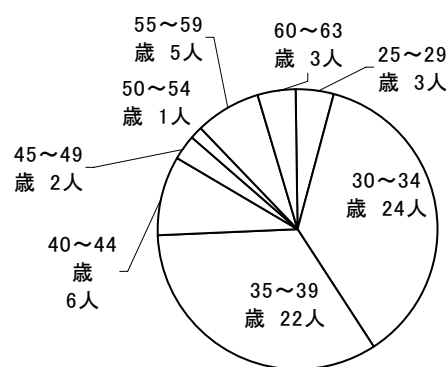
教授



准教授

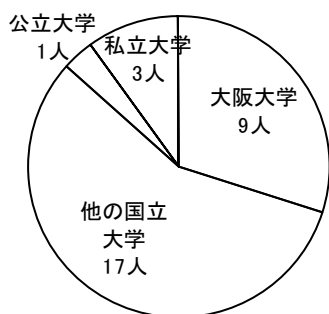


助教

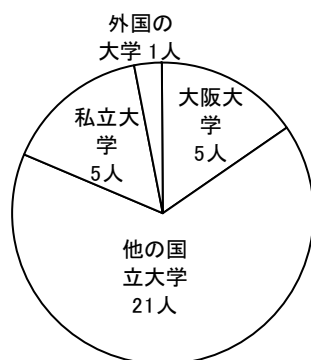


・教員の出身大学（平成20年3月30日現在。特任教員（常勤）含む。ただし、併任、兼任者は除く。）

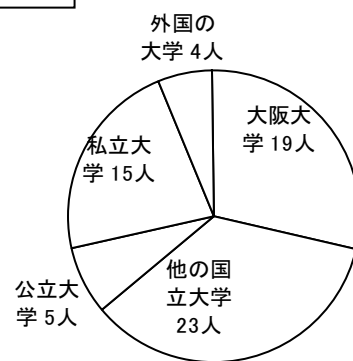
教授



准教授



助教



職員全体では、平成20年3月30日現在で教員128名、事務職員17名、技術職員13名、及び非常勤職員116名を含み、合計274名である。全職員のうち女子は82名である。

・平成19年3月31日から平成20年3月30日までの人事異動は次のとおりである。

異動日	異 動 事 項		氏 名 等	
H19.3.31	定年退職	助教授（有機物性化学）	兼田 隆弘	
		事務部長	田部 信重	
	退 職	助教授（環境調和ナノマテリアル）	奥 健夫（滋賀県立大学 教授へ）	
		助手（医薬品化学）	河野 富一	
		助手（生体情報制御学）	平田 隆弘（城西国際大学薬学部 教授へ）	
		研究助成係長	小野田 紀文	
		特任助教授（常勤）（ハード材料基盤研究グループ）	玄 丞均	
		特任助手（常勤）（ソフト材料基盤研究グループ）	松井嘉津也	
	特任助手（常勤）（ヒューマンインターフェース研究グループ）	関 宗俊（東京大学大学院工学系研究科 助教へ）		
H19.4.1	任 命	新産業創造物質基盤研究センター長	中嶋 英雄	
	採 用	教授（フロンティア材料創製）	安藤 陽一（(財)電力中央研究所 上席研究員から）	
		助教（高次推論方式）	猪口 明博（日本アイ・ビー・エム(株) 主任研究員から）	
		特任事務職員（経理課）	中尾 名見子	
		特任助教（常勤）（超分子プロセス）	辛川 誠	
		特任助教（常勤）（ナノビームプロセス）	岡本 一将	
	昇 任	助教（分子材料解析）	武井 史恵（精密制御化学 教務職員から）	
		助教（分子材料解析）	朝野 芳織（有機物性化学 教務職員から）	
		研究助成係主任	山口 智（研究助成係員から）	
	配 置 換	庶務係員	俊成 謙介（工学研究科総務課庶務係主任へ）	
		経理係主任	花木 信夫（財務部資金管理課経理係主任へ）	
		庶務係員	花岡 宏亮（研究推進・国際部研究推進課学術研究推進係員から）	
		特任助教（常勤）（エネルギー材料）	稲見 栄一（ハード材料基盤研究グループ 特任助手（常勤）から）	
		特任助教（常勤）（生体情報制御学）	西野 邦彦（医療基盤研究グループ 特任助手（常勤）から）	
	転 入	特任助教（常勤）（ソフト材料基盤研究グループ）	竹中 和浩（分子合成化学 特任助手（常勤）から）	
		事務部長	仲田 昇（鳥取大学研究・国際協力部長から）	
		研究助成係長	金井 克典（奈良教育大学 会計課係長（契約担当）から）	
	研究休職	経理係員	岐田 明海（京都大学再生医科学研究所管理運用掛員から）	
	H19.5.1	研究休職	助教（超分子プロセス）	滝澤 忍
	H19.5.1	採 用	助教（励起分子化学）	立川 貴士（励起分子化学 特任助教（常勤）から）
H19.6.1	助教（生体情報制御学）		西野 邦彦（生体情報制御学 特任助教（常勤）から）	
H19.6.1	採 用	特任准教授（常勤）（ハード材料基盤研究グループ）	上野 俊吉（ハード材料基盤研究グループ 特任助教（常勤）から）	
H19.6.21		助教（分子材料解析）	山口 俊郎（分子合成化学から）	
H19.8.1	配 置 換	工作班 技術専門職員	谷畑 公昭（計測班 分析・データ処理係長から）	
		工作班 機械・回路工作係長	大西 政義（計測班 技術専門職員から）	
		計測班 技術専門職員	山本 保（機械・回路工作係長から）	
		計測・情報システム係長	相原 千尋（計測班 技術専門職員から）	
		計測班 分析・データ処理係長	田中 高紀（計測班 計測・情報システム係長から）	
	採 用	特任助教（常勤）（知能システム）	国府 裕子	
H19.9.1	採 用	特任助教（常勤）（知能システム）	周 俊	
H19.9.30	退 職	助教（材料機能物性）	佐藤 和久（東北大学金属材料研究所 助教へ）	
H19.10.1	採 用	助教（フロンティア材料創製）	瀬川 耕司（(財)電力中央研究所 主任研究員から）	

	配 置 換	准教授 (量子ヒューム物質科学)	関 修平 (工学研究科 准教授へ)
		経理係長	白井 政行 (財務部財務課財務企画係長へ)
		経理係長	森 哲也 (総務部総務課専門職員から)
		経理課 専門職員	柏倉 重雄 (奈良先端科学技術大学院大学 会計課調達係長から)
H19. 10. 16	採 用	助教 (環境調和ナノマテリアル)	金 権 侖 (ハード材料基盤研究グループ 特任助教(常勤)から)
		助教 (超分子プロセス)	辛川 誠 (超分子プロセス 特任助教 (常勤) から)
	退 職	准教授 (フロンティア材料創製)	関野 徹 (東北大学多元物質科学研究所 准教授へ)
		技術室長	山田 等 (安全衛生管理部 特任研究員へ)
		助教 (エネルギー材料)	稲見 栄一 (エネルギー材料 特任助教(常勤)から)
	復 職	助教 (超分子プロセス)	滝澤 忍
H19. 12. 1	昇 任	技術室長	石橋 武 (計測班長から)
H19. 12. 14	退 職	経理課 専門職員	今村 康雄
		経理課 事務職員	日高 由希
H19. 12. 31	退 職	経理課長	佐藤 淳郎 (人間科学研究科 特任事務職員へ)
H19. 1. 1	採 用	技術職員	榊原 昇一 (工作班 機械・回路工作係)
		特任事務職員 (エネルギー材料)	野澤 幸代
	昇 任	経理課長	上殿 克巳 (財務部吹田調達センター室室長補佐から)
	配 置 換	総務課 専門職員	村尾眞理子 (総務部人事課給与第二係長へ)
総務課 専門職員		鎌谷 明 (総務部人事課専門職員から)	
H19. 1. 16	昇 任	教授 (人工生体情報ナノマテリアル)	田中 秀和 (極微プロセス 准教授から)
		准教授 (フロンティア材料創製)	瀬川 耕司 (フロンティア材料創製 助教から)
	採 用	特任助教(常勤) (量子ヒューム物質科学)	山本 洋揮

## 2) 運営

産業科学研究所全般の管理運営は所長が行っている。所長は、当研究所の専任教授の中から選挙によって選考される。選挙は第一次選挙と第二次選挙からなり、当研究所の専任教員、事務職員及び技術職員による第一次選挙において3名の候補者が選ばれ、その中から、専任教授、事務部長及び技術室長による第二次選挙において1名の所長候補者が選ばれる。最終的には、教授会によって所長候補者が決定される。所長の任期は2年で、再任は可能であるが、引き続き4年を超えることはできない。平成20年(2008)3月現在の所長は、川合知二教授が併任しており、任期は平成20年(2008)3月31日までである。平成20年(2008)4月1日より山口明人教授が新所長として就任。

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

各附属施設には、円滑な運営を図るために、センター長及び運営委員会が置かれている。当研究所の規程上の研究単位は部門であるが、意見の集約と伝達等の円滑化をはかるために、便宜上部門を2つずつまとめ、3研究部としている。(次頁参照)

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

その他、所内には、規程または申し合わせに従って種々の委員会が設置されて活動している。その内の主なものは、以下のとおりである。( )内は、各委員会の構成を示す。

役員会 (所長、副所長、附属産業科学ナノテクノロジーセンター長、事務部長)

産学官連携問題委員会 (所長、副所長、附属産業科学ナノテクノロジーセンター長、事務部長)

運営協議会 (所長、副所長、附属産業科学ナノテクノロジーセンター長、学外の学識経験者など)

将来計画委員会 (所長、研究推進・企画評価担当の役員会構成員、附属産業科学ナノテクノロジーセンター長、各研究部門から教授1名、事務部長)

研究企画委員会 (所長、研究推進・企画評価担当の役員会構成員、教授若干名など)

評価委員会 (所長、研究推進・企画担当の役員会構成員、学内評価委員会委員、広報委員会委員長など)

財務委員会 (所長、財務担当の役員会構成員、附属研究施設長、教授若干名など)

施設委員会 (所長、財務担当の役員会構成員、附属研究施設長、教授若干名など)

広報委員会 (教育連携・広報担当の役員会構成員、教授若干名、総務課長など)

国際交流推進委員会 (学内国際交流委員会委員、各研究部から教員2名)

教育構想委員会 (教育連携・広報担当の役員会構成員、各研究科への兼任教授など)

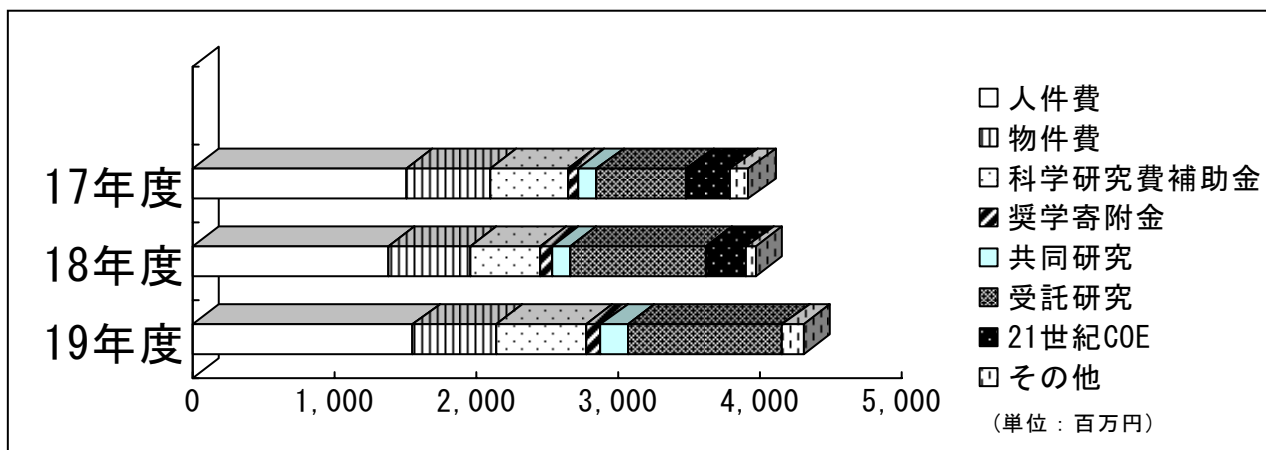
情報ネットワーク室運営委員会 (教授若干名、情報ネットワーク室長など)

教員の欠員が生じた場合には、選考委員会が設置され、後任候補者の選考が行われる。特に、教授が欠員になった場合には、研究分野検討委員会が設置され、当該研究分野の研究内容、将来の方向等について検討される。教授選考委員会は、研究分野検討が終了した後に設置される。研究分野検討委員会は、当該研究部門の全教授と各研究部から選出された教授各1名で構成される。教授選考委員会は、当該研究部の全教授とその他研究部の教授各1名などで構成される。

当研究所では学内の他部局の教授と共同研究を行うために兼任教授制度を採用している。平成19年度は学内から4名の理科系の教員(赤井久純教授(理学研究科)、平尾俊一教授(工学研究科)、森博太郎教授(超高压電子顕微鏡センター)、関修平准教授(工学研究科))を兼任教授に任用した。

### 3) 研究費

当研究所の主な経費は、運営費交付金、科学研究費補助金、奨学寄附金等である。それら研究費の平成17年から3年間の推移は次頁のとおりである。



・予算（平成17～19年度）

（単位：千円）

		17年度	18年度	19年度
運営費交付金 （校費）	人件費	1,511,111	1,381,252	1,558,904
	物件費	586,629	577,474	582,799
科学研究費補助金（件数）		550,601(91)	497,540(106)	634,747(112)
奨学寄附金（件数）		68,873(70)	77,391(62)	108,533(78)
共同研究（件数）		131,709(44)	127,556(57)	192,883(72)
受託研究（件数）		631,971(56)	957,672(63)	1,082,598(63)
21世紀COE（件数）		309,100(1)	288,926(1)	0(0)
その他（件数）		126,257(7)	67,550(7)	152,764(13)
合計		3,916,251	3,975,361	4,313,228

（注）科学研究費補助金については、研究分担者として配分されたものは除く。

・奨学寄附金等

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

	量子機能科学 研究部門	高次制御材料 科学研究部門	機能分子科学 研究部門	知能システム科学 研究部門	生体応答科学 研究部門	量子ビーム科学 研究部門	産業科学ナノテク ロジセンター	その他	合計
平成17	2,200 (3)	12,440 (16)	10,830 (14)	13,930 (10)	1,833 (3)	0 (0)	25,690 (18)	1,950 (6)	68,873 (70)
平成18	4,500 (3)	13,141 (17)	16,400 (13)	10,100 (8)	9,250 (7)	0 (0)	10,700 (9)	13,300 (5)	77,391 (62)
平成19	500 (1)	22,600 (18)	34,999 (20)	19,614 (10)	11,350 (10)	1,600 (2)	17,570 (16)	300 (1)	108,533 (78)

単位：千円 （ ）内は件数

#### 4) 国際研究プロジェクト

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

	日本学術振興会 拠点大学方式による学術交流事業 「多機能型セラミックス複合材料の開発及び機能評価」
	川合 知二 (実施組織代表者)
	関野 徹 (9月まで)・真嶋哲朗 (10月から) (コーディネーター)
	相手側拠点大学：韓国漢陽大学 Kwang Bo Shim 准教授 (コーディネーター)
溝口 理一郎	英国生物工学生物科学研究会議 日本提携助成金 (ジャパン・パートナーシップ・アワード) ウェールズ大学 Ross D. King 教授 「生物情報学のための次世代科学的発見支援ツールに関する研究」
村上 聡	科学技術振興機構 戦略的国際科学技術協力推進事業・イギリス 「多剤排出トランスポーターの結晶構造に基づく、多剤排出メカニズムの解明」 イギリス側研究者代表者：ケンブリッジ大学 Hendrik Willem van Veen 上級講師

#### 5) 学術講演会・研究集会・研究所間交流プログラム

当研究所が平成 19 年度において実施した研究所間交流および主催または共催として実施した学術講演会・研究集会は次のとおりである。

日 付	学術講演会・研究集会・研究所間交流プログラム
6月6日	附置研究所間連携事業「ポストシリコン物質・デバイス創製基盤技術アライアンス」発足記念シンポジウム
7月3日	第1回新しい光触媒を考える研究会
7月27日	半導体新規化学プロセス研究会 第1回例会
8月18,19日	「ポストシリコン物質・デバイス創製基盤技術アライアンス」平成19年度G3「ナノ分子メカニクス・バイオメカニクスグループ」研究会
9月27日	「ポストシリコン物質・デバイス創製基盤技術アライアンス」平成19年度G2「新機能ナノエレクトロニクスグループ」研究会
10月2日	「ポストシリコン物質・デバイス創製基盤技術アライアンス」平成19年度G1「分子ナノエレクトロニクスグループ」研究会
10月30日	第1回ポーラス金属研究会
11月2日	大阪大学産業科学研究所・東京大学生産技術研究所 研究所間ワークショップ
11月16日	第63回学術講演会 教職員、学生による材料・情報・生体に関する最新の研究成果をポスターセッションにより発表するとともに「知のフロンティア育成とグローバル展開」と題するシンポジウムを開催し、7件の講演(うち1件は招待講演)を実施した。(於：接合科学研究所荒田記念館)
11月22日	半導体新規化学プロセス研究会 第2回例会
12月7日	第2回新しい光触媒を考える研究会
12月9日	新産業創造物質基盤技術研究センター・ハード材料基盤研究会
12月14日	第7回加速器量子ビーム実験室研究会「加速器量子ビーム実験室とビーム科学の新展開」
12月20,21日	第1,2回「半導体スピン工学の基礎と応用」研究会 (PASPS-12)
12月25,26日	「ポストシリコン物質・デバイス創製基盤技術アライアンス」平成19年度成果報告会
1月7~10日	第9回エコマテリアルのプロセッシングと設計に関する国際シンポジウム(日韓拠点大学交流プログラム(CUP)第17回国際セミナー)

1月17日	新産業創造物質基盤技術研究センター（産研）平成19年度成果報告会
1月23日	第8回加速器量子ビーム実験室研究会「ビーム利用化学の新展開」
2月4,5日	産研・産業科学ナノテクノロジーセンター・新産業創造物質基盤技術研究センター 国際合同シンポジウム
2月15日	第2回ポーラス金属研究会
2月22日	第3回新しい光触媒を考える研究会
2月27,28日	第3回産研—韓国忠南国立大学共同シンポジウム「ナノサイエンス・ナノテクノロジー」
3月5日	第3回ポーラス金属研究会
3月11日	平成19年度新産業創造物質基盤技術研究センター成果報告会
3月19日	半導体新規化学プロセス研究会 第3回例会
3月13日	平成19年度加速器量子ビーム成果報告会
3月27日	大阪大学産業科学研究所・チェンマイ大学理学部 研究所間ワークショップ（於：チェンマイ大学理学部）
3月31日	大阪大学産業科学研究所と東京大学物性研究所の懇話会「先端ビーム科学研究の現状と今後の展開」（於：東京大学物性研究所）

上記以外にも、外来講師を迎えての講演会、セミナーも随時開催しており、それらの合計は58件（うち外国人を講師に迎えてのものは34件）であった。

日付	講 師	内 容
4月4日	Baldacchino Gerard (サックレー原子力研究所 研究員)	"Primary Events in Radiation Chemistry under Extreme Condition of LET, T, P..."
4月5日	岡部 徹 (Baylor College of Dentistry, USA 教授)	鋳造容易なチタン合金の歯科材料への応用
4月18日	Felix Studt (Center for Atomic-scale Materials Design (CAMD), Department of Physics, Technical University of Denmark 研究員)	Predicting Hydrogenation/Dehydrogenation Reactions from Scaling Relation
6月13日	Vadim N. Gladyshev (ネブラスカ大学生化学科 教授)	Selenoproteins: Roles in Redox Biology and Human Health
6月15日	城口 克之 (早稲田大学理工学術院物理学科 講師)	一分子計測によるミオシン分子の運動メカニズムの研究
6月15日	堀越 正美 (東京大学分子細胞生物学研究所 准教授)	染色体からの遺伝子制御機構論の構築を目指して
6月29日	渡辺 久恒 (株式会社半導体先端テクノロジーズ 代表取締役社長)	半導体産業が期待するデバイスバリエーション
6月29日	松下 光英 (日本電子株式会社 副主任研究員)	透過型電子顕微鏡の最新技術(1) ・ナノ解析電子顕微鏡 JEM-2500SE ・超高圧電子顕微鏡 JEM-1300NEF ・TEMの収差補正装置について
6月29日	新井 善博 (テラベース株式会社 取締役)	透過型電子顕微鏡の最新技術(2) ・位相差電子顕微鏡 ・AIPEL (Atomic Image Projection Electron Lithography system)
6月29日	八瀬 清志 (産業技術総合研究所光技術研究部門 副部門長)	有機エレクトロニクス・フォトニクス

7月4日	Ayyappanpillai Ajayaghosh (Photosciences and Photonics Group, Regional Research Laboratory (CSIR) Trivandrum, India 教授)	Molecular Self-assemblies as Scaffolds for Excitation Energy Transfer
7月9日	大串 哲朗 (広島国際大学 教授)	ロータス型ポーラス金属の応用開発の現状と展望 -電子機器ヒートシンクへの応用-
7月9日	永留 世一 (川崎重工業株式会社 参与)	ロータス型ポーラス金属の応用開発の現状と展望 -航空機エンジン部材への適用-
7月9日	樋口 裕一 (大阪歯科大学 講師)	ロータス型ポーラス金属の応用開発の現状と展望 -歯科インプラントへの応用-
7月10日	Ayyappanpillai Ajayaghosh (Photosciences and Photonics Group, Regional Research Laboratory (CSIR) Trivandrum, India 教授)	Squaraine Dyes: Versatile Chromophores for the Design of Cation Probes and Nanoarchitectures
7月24日	Pavel Kocovsky (グラスゴー大学 教授)	Asymmetric Synthesis: From Transition Metals to Organocatalysis
7月30日	堀邊 英夫 (金沢工業大学 教授)	EUVに関する研究
8月16日	Dr. Jakob Mauss (QTronic GmbH, Berlin, Germany 講師)	Modeling of complex physical systems by Modelica language based on differential equations and finite state machines
8月17日	Sergey V. Anishchik (Institute of Chemical Kinetics & Combustion, Russia 教授)	Time-resolved microwave field effects in recombination fluorescence from non-polar solutions
8月20日	Jiang-Yu Zheng (Indiana University Purdue University Indianapolis 准教授)	Route Panorama for Cityscape Visualization
8月23日	Marc Koper (ライデン大学 教授)	Molecular Simulations of electric Field and solvent effects at electrochemical interfaces
9月14日	布施 玄秀 (SEN-SHI アクセリスカンパニー 主席技師)	シリコンLSI技術の最新トピックス-VLSI シンポより
9月19日	宇野 毅明 (国立情報学研究所 准教授)	あいまいさを考慮したパターン検索
9月26日	Jioon Ihm (ソウル国立大学 教授)	Combinatorial search and computational design of nanomaterials for applications to Hydrogen storage and electronic devices
9月26日	Kee Joo Chang (Korea Advanced Institute Of Science and Technology 教授)	Electronic and transport properties of nanoscale devices based on nanotubes
9月28日	佐々 武史 (山形大学 名誉教授)	フンコクシン型ジテルペノイド研究について
9月28日	今井 繁規 (シャープ株式会社システム技術研究所 所長)	多結晶シリコン薄膜のデバイス展開: システムディスプレイの基本技術
10月3日	Helmut Mehrer (Institut für Materialphysik, Universität Münster 教授)	金属および金属間化合物における拡散
10月5日	Daniele Marre (LAMIA, Genova University 主席研究員)	Recent Developments of research on oxides at LAMIA and COHERENTIA laboratories.
10月5日	Fabio Granozio Miletto (COHERENTIA, NAPOLE UNIVERSITY 博士)	Recent Developments of research on oxides at LAMIA and COHERENTIA laboratories.



10月15日	Asokendu Mozumder (ノートルダム大学放射線研究所 名誉教授)	Some Recent Advances in Theoretical Radiation Chemistry
10月22日	Dirk Bold (Vrije Universiteit Amsterdam 構造生物学准教授)	F1-ATPase の反応制御の研究
10月23日	Peter Bury (ジリナ大学電気工学部 教授)	Acoustoelectric interactions in semiconductor interfaces
10月23日	Qi-Lin Zhou (中国南開大学 元素有機化学研究所 教授)	Catalytic enantioselective synthesis of biologically important compounds
10月26日	今井 繁規 (シャープ株式会社システム技術研究所 所長)	多結晶シリコン薄膜のデバイス展開:液晶プロセスの基本
11月2日	Robert A Crowell (ブルックヘブン国立研究所 主任)	Fundamental Processes of Ionizing Radiation in the Condensed Phase
11月10日	Ortwin Brede (ライプチヒ大学 教授)	Femtosecond events in the bimolecular free electron transfer
11月27日	Pradeep K. Pujari (バーバー原子力研究所 研究員)	Positron annihilation study of freezing of liquid confined in nanodomains
11月28日	西野 達哉 (オックスフォード大学生化学部 ポスドク)	酵母コヒーシ複合体の機能と構造
11月29日	Seidel, Claus A. M. (Heinrich-Heine-Universitaet Dueddeldorf 教授)	Photochemical Aspects of Single-Molecule Angstroem Optics
12月8日	H. Ronald Kaback (カリフォルニア大学ロサンゼルス校 教授)	Structure and Mechanism of the Lactose Permease, an Ion-Coupled Membrane Transport Protein
12月10日	Robert H. Edwards (カリフォルニア大学サンフランシスコ校 教授)	The Regulation of Neurotransmitter Transport into Secretory Vesicles
12月21日	今井 繁規 (シャープ株式会社システム技術研究所 所長)	多結晶シリコン薄膜のデバイス展開:多結晶シリコン TFT プロセスの基本と応用
12月28日	Ramasamy RAMARAJ (Madurai Kamaraj University, India 教授)	NANOMATERIALS FOR ELECTROCATALYSIS AND PHOTOCATALYSIS'
1月21日	Vladimir Kren (Academy of Sciences of the Czech Republic 教授)	Silybin and Silymarin in Cancer Prevention ... and Treatment?
1月21日	小出 誠二 (株式会社 IHI 航空宇宙事業本部情報システムグループ 主任調査役)	セマンティックウェブの理論、RDF(S)とOWLの意味論
1月22日	Michael George (Nottingham University, GB 教授)	Photochemical Aspects by Time-resolved Infrared Spectroscopy
2月1日	佐川 真人 (インターマトリックス株式会社 代表取締役社長)	ネオジム磁石の発展と日本
2月6日	今井 繁規 (シャープ株式会社システム技術研究所 所長)	多結晶シリコン薄膜の高品質化とデバイスの高性能化
2月6日	David G. Whitten (New Mexico University, USA 教授)	Fluorescence detection of functionalized copolymers applied to biological diagnostics
2月6日	Peter Lu (Bowling Green State University, USA 教授)	Single Molecule Science of Biological Aspects
2月7日	Arno Schindlmayr (Institute of Solid State Research, Forschungszentrum Juelich 研究員)	Electronic Excitations and Theoretical Spectroscopy

2月20日	有賀 隆行 (京都大学大学院理学研究科 研究員)	キメラ ATPase の 1 分子計測について
2月25日	Nicola Guarino (ISTC-CNR, Laboratory for Applied Ontology 教授)	An Introduction to Formal Ontology
3月7日	仲井 清眞 (愛媛大学大学院理工学研究科 教授)	構造材料における相変態結晶学とその機械的性質に及ぼす効果ならびに原子力材料における照射誘起相変態
3月10日	Steven Kraines (東京大学領域創成・学術統合化プロジェクト研究部門 准教授)	Mining for semantic patterns in the JST Failure Knowledge Database Steven Kraines
3月14日	Sylvain Darses (ENSCP, Paris, France 准教授)	Potassium organotrifluoroborates : new perspectives in organic chemistry
3月14日	浦川 順二 (高エネルギー加速器研究機構 教授)	S-band 光高周波電子源開発

## 6) 広報活動

当研究所では、広報活動の一環として次の出版物を発行した。

- ・産業科学研究所要覧 (和・英文併記) (2007)
  - ・Memoirs of the Institute of Scientific and Industrial Research, Osaka University Vol.64 (2007)
  - ・年次報告書 (平成18年度版)
  - ・産研ニューズレター (年3回発行)
  - ・産研テクノサロン 講演録・資料 (平成19年度版)
- 「産研ホームページ」も開設しており、産研ニューズレター等を見ることができる。  
(URL:<http://www.sanken.osaka-u.ac.jp>)

## 7) 受賞状況 (平成19年1月2日～平成20年1月1日)

平田 秋彦 弘津 禎彦	21世紀型新材料“金属ガラス”シンポジウム 最優秀ポスター賞 ( (独) 科学技術振興機構 戦略的創造研究推進事業・発展研究)
石丸 学 弘津 禎彦ら	2007 MRS Fall Meeting Best Poster Award (Materials Research Society)
中嶋 英雄	科学技術賞 (平成19年度科学技術分野の文部科学大臣表彰)
朴 宰成 玄 丞均 鈴木 進補 中嶋 英雄	優秀ポスター賞 (21世紀COEプログラム「構造・機能先進材料デザイン研究拠点の形成」)
多根 正和 中嶋 英雄	最優秀ポスター賞 (21世紀COEプログラム「構造・機能先進材料デザイン研究拠点の形成」)
関 宏範ら	ベストポスター賞 (軽金属学会・関西支部大会)
真嶋 哲朗 立川 貴士 内藤 一也	ベストポスター賞 (9th International Symposium on Eco-Materials)

真嶋哲朗	Molecular Science Forum Lecture Professorship (Chinese Chemical Society)
笹井 宏明	Tetrahedron Letter Most Cited Paper 2004-2007 Award
滝澤 忍	TETRAHEDRON:ASYMMETRY-Most Downloaded Papers, 2006
林 雄介	研究奨励賞 (教育システム情報学会第32回全国大会)
向川 康博	情報・システムソサイエティ活動功労賞 (社団法人電子情報通信学会)
楨原 靖	山下記念研究賞 (社団法人情報処理学会)
東 はるか	卒業論文セッション優秀賞 (情報処理学会 コンピュータビジョンとイメージメディア研究会)
沼尾 正行	大川出版賞 (財団法人大川情報通信基金)
栗原 聡ら	F I T2007 論文賞
沼尾 正行 栗原 聡 森山 甲一	Technical Stream 部門 Best 6 papers (AI-2007 Twenty-seventh SGAI International Conference on Artificial Intelligence)
本田 誠一	計測部門研究・技術奨励賞 (社団法人計測自動制御学会)
鷺尾 隆	研究会優秀賞 (人工知能学会)
鷺尾 隆	佳作 (マーケティング分析コンテスト2007)
高林 健登	学生奨励賞 (情報処理学会 データベースシステム研究会)
佐々木 康雄	優秀ポスター賞 (第23回日本 DDS 学会)
今村 博臣	若手奨励賞 (日本生物物理学会)
村上 聡	若手科学者賞 (平成19年度科学技術分野の文部科学大臣表彰)
村上 聡	第5回日本バイオベンチャー大賞「大阪科学機器協会賞」 (フジサンケイビジネスイ)
西野 邦彦	日本抗生物質学術協議会奨励賞 (日本抗生物質学術協議会)
楊 金峰	西川賞 (財団法人高エネルギー加速器科学研究奨励会)
谷口 正輝	若手優秀発表賞 (ナノ学会)
谷口 正輝	分子科学会奨励賞 (分子科学会)
庄司 昂平	優秀ポスター賞 (分子科学会)
近藤 孝文 浅野 晃	ポスター賞 (共著) (日本放射線化学会)
菅沼 克昭 金 権鉄	MES2006 ベストペーパー賞 (社団法人エレクトロニクス実装学会) (Ni フラッシュ処理による Sn ウィスカ抑制効果の検討)
菅沼 克昭	MES2006 ベストペーパー賞 (社団法人エレクトロニクス実装学会) (鉛フリーはんだ微小接合部のエレクトロマイグレーションについて)

### 3. 教育への関与 (平成19年度)

#### 1) 大学院研究科・専攻担当

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

(研究科)	(専攻)	(担当教員)			
理 学	物理学	教授	谷村克己		
		教授	松本和彦		
		教授	弘津禎彦		
		教授	磯山悟朗	准教授	加藤龍好
		教授	朝日 一	准教授	長谷川繁彦
				准教授	井上恒一
		教授	吉田 博	准教授	森川良忠
				准教授	白井光雲
	化 学	教授	川合知二	准教授	松本卓也
		教授	小林 光	准教授	高橋昌男
		教授	中谷和彦		
		教授	加藤修雄	准教授	大神田淳子
		教授	笹井宏明	准教授	鬼塚清孝
	生物科学			准教授	鈴木健之
		教授	谷澤克行	准教授	黒田俊一
				准教授	岡島俊英
	工 学	知能・機能創成工学	教授	菅沼克昭	准教授
マテリアル生産科学		教授	弘津禎彦	准教授	石丸 学
		教授	中嶋英雄	准教授	鈴木進補
応用化学		教授	安蘇芳雄		
		教授	真嶋哲朗	准教授	藤塚 守
				准教授	川井清彦
		教授	安藤陽一	准教授	関野 徹
		教授	田川精一	准教授	関 修平
				准教授	古澤孝弘
生命先端工学		教授	野地博行		
精密科学・応用物理学		教授	岩崎 裕	准教授	須藤孝一
電気電子情報工学		教授	朝日 一	准教授	長谷川繁彦
		教授	鷲尾 隆		
		教授	溝口理一郎	准教授	來村徳信
環境エネルギー工学		教授	谷村克己		

		教授 磯山悟朗	准教授 誉田義英
		教授 吉田陽一	准教授 楊 金峰
基礎工学	物質創成	教授 松本和彦	准教授 井上恒一
		教授 吉田 博	准教授 森川良忠
			准教授 白井光雲
		教授 川合知二	准教授 田中秀和
		教授 谷村克己	准教授 金崎順一
			准教授 田中慎一郎
			教授 八木康史
薬学	分子薬科学	教授 山口明人	准教授 村上 聡
情報科学	情報数理学	教授 沼尾正行	准教授 栗原 聡
		教授 溝口理一郎	
	コンピュータサイエンス	教授 八木康史	准教授 向川康博
生命機能		教授 谷澤克行	
		教授 川合知二	
		教授 野地博行	准教授 和田 洋

## 2) 大学院担当授業一覧

(研究科)	(科目)	(担当教員)
理学	ナノプロセス・物性・デバイス学	田川精一、谷村克己、松本和彦、朝日 一
	超分子ナノバイオプロセス学	真嶋哲朗、藤塚 守、川井清彦
	ナノ構造・機能計測解析学	弘津禎彦
	放射光物理学	磯山悟朗
	加速器科学	磯山悟朗
	固体電子論Ⅱ	吉田 博、森川良忠
	物性理論セミナーⅠ	森川良忠
	物性理論セミナーⅡ	吉田 博、白井光雲
	物性理論特別セミナー	吉田 博、森川良忠、白井光雲
	計算機ナノマテリアルデザインチュートリアル	吉田 博、森川良忠、白井光雲
	半導体半期セミナー	朝日 一、長谷川繁彦
	半導体特別セミナー	朝日 一、長谷川繁彦
	放射光半期セミナー	磯山悟朗、井上恒一、加藤龍好
	放射光特別セミナー	磯山悟朗、井上恒一、加藤龍好
	構造物性化学	川合知二
	触媒化学	笹井宏明、鬼塚清孝、鈴木健之

構造物性化学セミナー I	川合知二、松本卓也
構造物性化学セミナー II	川合知二
半導体化学セミナー I	小林 光、高橋昌男
半導体化学セミナー II	小林 光
機能性分子化学セミナー I、II	笹井宏明、鬼塚清孝、鈴木健之
ゲノム化学	中谷和彦
ゲノム化学セミナー I、II	中谷和彦
ゲノム化学特別セミナー	中谷和彦
合成有機化学セミナー I、II	加藤修雄、大神田淳子
構造物性化学特別セミナー	川合知二
半導体化学特別セミナー	小林 光
合成有機化学特別セミナー	加藤修雄、大神田淳子
機能性分子化学特別セミナー	笹井宏明
生体機能物質学 I	黒田俊一
生体機能物質学 II	谷澤克行
生体機能物質学セミナー	谷澤克行、黒田俊一、岡島俊英
生体機能物質学特別セミナー	谷澤克行、黒田俊一、岡島俊英

工 学	電子機能分子化学	安蘇芳雄、
	励起反応化学特論	真嶋哲朗、藤塚 守、川井清彦
	分子創成化学ゼミナール	真嶋哲朗、安蘇芳雄 藤塚 守、川井清彦
	分子創成化学研究課題企画ゼミナール	真嶋哲朗、安蘇芳雄 藤塚 守、川井清彦
	分子創成化学先端研究情報ゼミナール	真嶋哲朗、安蘇芳雄 藤塚 守、川井清彦
	光物性・光エレクトロニクス	朝日 一、長谷川繁彦
	電気電子情報工学セミナー	朝日 一、鷲尾 隆、長谷川繁彦
	電気電子情報工学演習・実習	朝日 一、鷲尾 隆、長谷川繁彦
	電気電子情報工学特別講義IV	朝日 一、長谷川繁彦
	先端エレクトロニクスデバイス工学特論II	朝日 一、長谷川繁彦
	量子分子工学特論	田川精一、関 修平、古澤孝弘
	複合材料工学特論	安藤陽一、関野 徹
	物質化学ゼミナール	田川精一、安藤陽一、関野 徹
	物質化学研究課題企画ゼミナール	田川精一、安藤陽一、関野 徹、 関 修平、古澤孝弘
	物質化学先端研究情報ゼミナール	田川精一、安藤陽一、関野 徹、 関 修平、古澤孝弘
	応用生物工学ゼミナール 1, 2	野地博行

ナノバイオロジー特論	野地博行
応用生物学実験Ⅴ	野地博行
先端バイオテクノロジーセミナーⅠ,Ⅱ	野地博行
先端バイオテクノロジー実験Ⅰ,Ⅱ	野地博行
Biochemistry	野地博行
量子分子デバイス	岩崎 裕、須藤孝一
応用物理学演習 1, 2	岩崎 裕、須藤孝一
応用物理学実験	岩崎 裕、須藤孝一
応用物理学ゼミナール	岩崎 裕、須藤孝一
創成工学ゼミナール	菅沼克昭
創生工学総合PBL	菅沼克昭
基盤創成工学	菅沼克昭
機能創成工学	菅沼克昭
応用デバイス工学	菅沼克昭
融合科学技術創成	菅沼克昭
基盤PP	菅沼克昭
創成工学ゼミナール (Dr)	菅沼克昭
材料設計論	中嶋英雄、鈴木進補
極微構造解析学	弘津禎彦、石丸 学
マテリアル科学実験	弘津禎彦、中嶋英雄、石丸 学
放射線・量子ビーム工学	吉田陽一、誉田義英
量子ビーム化学	吉田陽一
情報通信システム工学論	鷲尾 隆
データマイニング工学	鷲尾 隆
知識工学論	溝口理一郎、來村徳信
電気電子情報工学セミナー	溝口理一郎、來村徳信
電気電子情報工学演習・実習	溝口理一郎、來村徳信
電子システム工学演習	溝口理一郎、來村徳信
知識処理工学特論	溝口理一郎、來村徳信
原子力工学演習	谷村克己、磯山悟朗
原子力工学セミナー 1	磯山悟朗、谷村克己
原子力工学セミナー 2	磯山悟朗、吉田陽一
ナノ工学	谷村克己
基礎工学	
半導体物性	松本和彦、井上恒一
先端物質設計論	吉田 博、白井光雲、森川良忠
ゼミナールⅠ,Ⅱ	川合知二、吉田 博、松本和彦、井上恒一
先端物質機能科学特論	谷村克己

	物理系研究 I, II	川合知二、吉田 博、松本和彦、 井上恒一、森川良忠
薬 学	細胞生物学ゼミナールII	山口明人
	細胞生物学特別演習	山口明人
	生物薬学特論 I	山口明人
	生物薬学特論 I, ゼミナール I	山口明人
情報科学	情報数理学セミナー I, II	沼尾正行、栗原 聡
	情報数理学演習 I, II	沼尾正行、栗原 聡
	情報数理学研究 I, II	沼尾正行、栗原 聡
	情報数理学概論	沼尾正行、栗原 聡
	知能と学習	沼尾正行
	行動計画知能論	栗原 聡
	知能アーキテクチャ	沼尾正行、栗原 聡
	知能システム概論	八木康史、向川康博
	コンピュータサイエンスセミナー I, II	八木康史、向川康博
	コンピュータサイエンス演習 I, II	八木康史、向川康博
	アルゴリズム論	八木康史、向川康博
	コンピュータサイエンス基礎論	八木康史、向川康博
	コンピュータサイエンスインターンシップ	八木康史、向川康博
	コンピュータサイエンス研究 I a	八木康史、向川康博
	コンピュータサイエンス研究 I b	八木康史、向川康博
	コンピュータサイエンス研究 II a	八木康史、向川康博
	コンピュータサイエンス研究 II b	八木康史、向川康博
	コンピュータサイエンスインターンシップ D	八木康史、向川康博
	コンピュータサイエンスアドバンスセミナー I, II	八木康史、向川康博
	コンピュータビジョン	八木康史、向川康博
情報数理学インターンシップ	沼尾正行、栗原 聡	
情報数理学インターンシップD	沼尾正行、栗原 聡	
生命機能	理工医学 II F	谷澤克行、黒田俊一、和田 洋
	理工医学セミナー II F	谷澤克行、黒田俊一、岡島俊英
	理工医学特別セミナー F	谷澤克行、黒田俊一、岡島俊英



### 3) 大学院生の受入数

(研究科)	(専攻)	(博士前期)	(博士後期)	(小計)
理 学	物理学	11	3	14
	化 学	33	17	50
	生物科学	3	1	4
(小 計)		47	21	68
工 学	生命先端工学	4	0	4
	応用化学	19	14	33
	精密科学・応用物理学	2	0	2
	知能・機能創成工学	2	8	10
	マテリアル生産科学	10	9	19
	電気電子情報工学	12	5	17
	環境・エネルギー工学	4	2	6
(小 計)		53	38	91
基礎工学	物質創成	18	8	26
(小 計)		18	8	26
薬 学	分子薬科学	5	6	11
(小 計)		5	6	11
情報科学	情報数理学	4	10	14
	コンピュータサイエンス	6	3	9
(小 計)		10	13	23
生命機能		11	5	16
(小 計)		11	5	16
合 計		144	91	235

### 4) 学部、共通教育担当授業一覧（平成19年度）

理 学	放射光物理学	磯山悟朗
工 学	量子線物理学	谷村克巳
	コンピュータ工学演習	沼尾正行、栗原 聡
	動物細胞工学	野地博行
基礎工学	知識工学	八木康史、向川康博
	計算機援用工学B	八木康史、向川康博
	情報科学ゼミナールA	八木康史、向川康博、槇原 靖
	情報科学ゼミナールB	八木康史、向川康博、槇原 靖
	プログラミングC演習	佐川 立昌
	情報科学実験C	佐川 立昌

薬学	セラミックス物性 薬学特論Ⅴ		川合知二 山口明人
共通教育	基礎教育セミナー	生活の中の有機化学	加藤修雄、真嶋哲朗、安蘇芳雄 笹井宏明、中谷和彦、 大神田淳子、藤塚 守、 鬼塚清孝 鈴木健之
		最新ナノテクノロジー入門	朝日 一、岩崎 裕、吉田 博、 松本和彦、井上恒一、白井光雲、 長谷川繁彦、森川良忠、須藤孝一
		分子と生命	野地博行、黒田俊一、谷澤克行、 和田 洋、岡島俊英、山口明人、 村上 聡
		知能とコンピュータ	溝口理一郎、八木康史、 沼尾正行、鷺尾 隆、來村徳信、 向川康博、栗原 聡
	先端教養科目	先端ビーム科学	真嶋哲朗、田川精一、磯山悟朗、 吉田陽一
	基礎教育科目	物理学概論Ⅰ	谷村克己、田中慎一郎
		物理学概論Ⅱ	朝日 一
		熱学・統計力学要論	磯山悟朗、加藤龍好、白井光雲
		化学要論	加藤修雄
		基礎有機化学	中谷和彦、鈴木健之
		電磁気学要論	吉田 博
		化学概論	真嶋哲朗、安蘇芳雄、藤塚 守 川井清彦
		分子化学A	田川精一、関 修平、古澤孝弘
		物理学2	森川良忠

## 4. 国際交流

### 1) 活動状況

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

当研究所は、外国研究機関と学術交流協定を結んでおり、シンポジウム・講義の実施、研究者等の交流、情報交換などを行っている。産研における平成19年度の、協定締結機関は以下のとおりである。(合計16機関)

ドイツ	マグデブルグ・オットーフォンゲーリック大学自然科学部	平成6(1994)10.18～
韓国	釜慶大学校基礎科学研究所	平成11(1999)2.26～
ドイツ	ユーリッヒ研究センター	平成13(2001)1.1～
米国	メリーランド大学カレッジパーク校	平成15(2003)4.7～
英国	ユニバーシティカレッジロンドン	平成15(2003)9.26～
韓国	釜山国立大学校自然科学大学	平成16(2004)10.29～
韓国	漢陽大学産業科学研究所	平成16(2004)2.11～
台湾	国立台湾大学理学部	平成17(2005)2.20～
米国	パシフィックノースウエスト国立研究所	平成17(2005)3.10～
フランス	国立科学研究センター(CNRS)	平成17(2005)5.18～
ドイツ	アーヘン工科大学	平成17(2005)9.5～
韓国	慶尚大学校工科大学	平成17(2005)9.9～
韓国	忠南国立大学校自然科学大学	平成18(2006)11.26～
中国	北京大学情報科学技術学院	平成18(2006.5.30)～
台湾	国立台湾師範大学理学部	平成19(2007.1.9)～
スイス	ジュネーブ大学理学部	平成19(2007.8.22)～

当研究所に所属する外国人は、合計57名で、内訳は、助教(特任助教(常勤)含む)6名、外国人研究員1名、非常勤職員2名、大学院博士後期課程19名、博士前期課程10名である。国別は次のとおりである。

韓国(20)、中国(16)、インド(6)、ベトナム(5)、イギリス(1)ハンガリー(1)、ロシア(1)、ブラジル(2)、バングラデシュ(1)、インドネシア(1)、フィリピン(1)、ベネズエラ(1)、エジプト(1)

### 2) 国外との研究者往来(平成19年度)

教員の海外出張は、合計212件であった。訪問先は、米国、韓国、フランス、中国、カナダ、ドイツその他の多岐に渡っている。経費面では、科学研究費補助金によるものが76件で、奨学寄附金が20件、その他によるものが116件であった。

国外から当研究所を訪問した研究者は合計67名であり、内訳は次のとおりである。  
米国(9)、韓国(38)、イギリス(3)、ドイツ(6)、フランス(1)、カナダ(1)、インド(3)、  
スロヴァキア(4)、チェコ(1)、フィンランド(1)

## 5. 産業界との交流

共同研究、受託研究、技術相談など当研究所と産業界との交流が、各教員によって個別に活発に行われている。これに加えて研究所として平成10年度から「産研テクノサロン」を新設した。これは財団法人産業科学研究協会との共同事業である。企業の経営者および、技術者と当研究所の研究者の定期的な交流の場をつくり、研究成果を産業界の人に広く詳しく知ってもらおうと同時に産研側も産業界の抱えている問題を知り、研究テーマの発掘に役立てようというものである。この趣旨に賛同する企業に会員になってもらい、継続的に交流を行っている。平成19年度は4回の会合をもった。

### ・第1回 平成19年5月22日(火)

- 「産研テクノサロンの年間計画」 特任教授 清水 裕一  
「産業科学研究所の活動状況と今後の展開」 所長 川合 知二  
「科学知に基づくイノベーションの創出について」  
東京工業大学大学院イノベーションマネジメント研究科教授 藤村 修三  
「阪大複合機能ナノファウンダリのご紹介」 特任研究員 村杉 政一  
「新産業創造研究会のご紹介」  
「半導体新規化学プロセス研究会」 教授 小林 光  
「ポーラス金属研究会」 特任助教 上野 俊吉  
「排出トランスポーターから創薬を考える研究会」 教授 山口 明人  
「新しい光触媒を考える研究会」 教授 真嶋 哲朗

### ・第2回 平成19年7月31日(火)

- 「地球温暖化とエネルギー：可能性のあるビジネスの例」 四日市大学環境情報学部教授 新田 義孝  
「燃料電池が開く社会と産業」 教授 吉田 博  
「自動車排出ガス浄化の可能性と展望」  
－排出ガス浄化と貴金属資源問題に向けた触媒技術の取り組み－  
ダイハツ工業(株) 先行技術開発部 ETE 田中 裕久  
「「エネルギー・資源・環境の21世紀」における電材技術の展望」  
住友電気工業(株) 常務執行役員 畑 良輔  
「欧州RoHSに始まった電子機器環境規制の現状」  
－ REACH、EuP、中国 RoHS、米国 RoHS、韓国 RoHS－ 教授 菅沼 克昭

・第3回 平成19年10月24日（水）

「ライフサイエンスの新展開」

教授 山口 明人

「DNA と化学の接点：DNA も化学物質」

教授 中谷 和彦

「データマイニングとバイオ・医薬への応用」

教授 鷲尾 隆

「半導体技術を用いたバイオ・医療向け計測技術の開発」

(株) 日立製作所中央研究所部長 内田 憲孝

・第4回 平成20年2月18日（月）

「ポストシリコンテクノロジーの展望」

教授 朝日 一

「センサデータに基づく音楽コンテンツ生成」

教授 沼尾 正行

「デジタルヘルス事業の現状と展望」

インテル株式会社事業開発本部部長 石川 真澄

「地球温暖化対策の制度設計」

大阪大学社会経済研究所教授 西條 辰義

平成12年度より当研究所の技術シーズを公開して関心のある企業の参加で研究会を組織して事業化を目指す目的で「新産業創造研究会」を設置した。19年度は、半導体新規化学プロセス研究会、ポーラス金属研究会、新しい光触媒を考える研究会の3研究会で各3回、総計9回開催した。

## 6. まとめ（課題と展望）

### まとめ

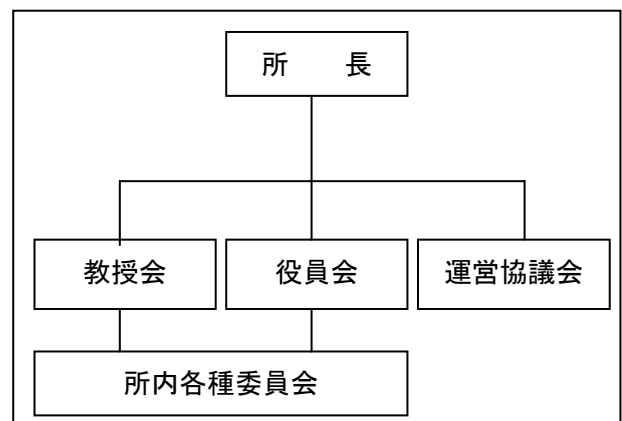
#### 1) 組織・運営

当研究所は、平成20年3月31日現在、28研究分野を含む7研究部門と材料解析センター、産業科学ナノテクノロジーセンター、新産業創造物質基盤技術研究センターの3附属研究施設を擁し、研究を進めている。

教員は、理、工、農、薬、基工とバラエティーに富んだ構成で、更にはほとんどが他大学の経験者であるのが特徴である。選考においては、研究業績を最も重要視しており、教授選考については原則として公募で、選考委員会には他部局の専門家が加わるなど厳正な選考によって行っている。平成13年度から、人事の流動化とより良い競争力の促進を目指し、助手の任期制度を導入している。

運営については、全教授が研究所の運営に関与しているが、迅速な意志決定や将来戦略の円滑化を図るため、所長の下に役員会を置き、外部の意見を取り入れる形の運営協議会を設置している。

また、平成17年度に産学連携室を設置、平成18年度には広報室を設置し、産学連携体制及び広報体制の強化を図っている。また、平成19年度には若手育成策として、特別研究プロジェクト部門を



設立し、優秀な実績を挙げた助教を任期付きの准教授として登用し若手支援を図っている。

## 2) 研究（予算・設備・活動）

「材料」、「情報」、「生体」をキーワードに、産業に繋がる研究を目指して、産研スタッフは各専門分野および分野の壁を越えた融合的な研究を推進している。所員各々のアビリティの高さは年々底上げされており、科研費特別推進研究、基盤研究S、戦略創造研究事業などに採用されるなど、トップレベルの研究を進行している。全国に先駆けて取り組んでいる、ナノサイエンスとナノテクノロジーの研究においても、産業科学ナノテクノロジーセンター、阪大複合機能ナノファウンダリなどを中心に我が国の中核的拠点としての活動を展開している。

平成 17 年度から、特別教育研究経費により、東北大学多元物質科学研究所と連携を組み、新産業創造物質基盤技術研究センターを新たに発足した。さらに、法人を超えた研究推進を行うため、4 大学附置研究所を結ぶアライアンスを形成した。研究成果を産業界のニーズに素早く且つ効率的に還元できるより良い環境が整うと共に、研究環境の改善も進んでおり、第二研究棟(平成 13 年度)、ナノテクノロジー総合研究棟(平成 15 年度)の竣工に引き続き、今までの課題であった第一研究棟の改修工事も進行中である。

## 3) 教育

当研究所の教員陣は、理、工、農、薬、基工とバラエティーに富んだ教員のみならず、産業界の研究者の協力も得ているため、学問的、専門的な教育が行われている。各教員は学部の教育や共通教育機構の教育にも関与するとともに、工学研究科環境・エネルギー工学専攻の協力を得て、ナノ工学集中講義を産研独自の大学院プログラムとして実施している。学生においては、約 200 名の学部生、大学院生が、1 つ屋根の下で研究、勉学に励んでいる。特徴的なのは、理学、工学、基礎工学、薬学、生命機能、情報科学など様々な分野の学生を受け入れていることであり、枠にとらわれない自由な発想・思考を養うと共に、研究の現場における大学院教育を重視している。また、RA を採用するとともに、ポスドクも年々増え、院生として研究に更に密着できる体制となっている。世界で活躍できる研究者育成のため、国際学会出席援助や著名外国人の招待セミナー、国際シンポジウムなどを通じて、院生教育の国際化を図り、一流の研究者を輩出している。

## 4) 社会との連携・社会貢献

研究成果は社会に還元してこそ価値が生まれる。学会での発表や役員就任など所員による学界活動は積極的に行なわれているものの、産業界との連携は一般的に個人的な接触が多いというのも現状であるが、当研究所では、新産業の芽となる原理的な研究を推進するとともに、産業界より客員教授を招き、産業界との一層の連携を推進している。また、産学交流の場として平成 10 年度から会員制の産研テクノサロンを、平成 12 年度からは当研究所で生まれた科学技術のシーズを公開し、関心のある企業が参加して事業化を目指す「新産業創造研究会」を開催し、研究会の中から企業化へという方向も出てきている。平成 17 年度には産学連携室を設置し、さらなる産学連携の強化を目指している。

## 5) 国際交流

当研究所にとって、国際交流は重要な活動の1つである。外国人研究者の受け入れに加え、外国研究機関と学術交流を結ぶことで、国境を越えた交流・情報交換を行っている。毎年20数名の外国人留学生を受入れるとともに、外国人研究者、外国人客員教授が産研の研究に携わっており、国際交流パーティー等で留学生の声を直接反映できる場も設けている。また、平成9年度より当研究所主催で国際会議を開催している。

## 6) 将来計画

設立当初から掲げている、産業に繋がる研究と、成果の社会還元化を目指す基本方針は変わらず保持し、先に述べた産研の展望を目指して課題を達成できるよう努めるとともに、時代に応じて改善を重ね切磋琢磨する。将来像については、将来計画委員会において検討を行い、理想論に終わることがないように、年度ごとに明確な将来計画を策定し、中期目標と中期計画にも反映している。

国立大学法人に於いては、現在、第一期中期目標・中期計画の暫定評価が進んでおり、それに基づいて次期中期目標・中期計画の策定が行われる。それに合わせて、産研では、時代の要請に応えるさらなる研究展開に備えて、産業科学ナノテクノロジーセンターの時限を撤廃し大幅に拡充強化すること、産研本体の6研究部門を3大研究部門に統合することを柱とした改組計画を策定中である。また、次期中期目標から導入される大学附置研究所の共同利用・共同研究拠点認定に向けて、産研は北大電子研、東北大多元研、東工大資源研、九大先導研と共に、5大学附置研究所による「材料・デバイス領域附置研究所ネットワーク（仮称）」を形成し、ネットワーク型共同研究拠点として認定を受けるべく準備を進めている。

## 産研の課題と展望

### 1) 組織・運営

#### ・研究成果還元の効率化

多種多様なバックグラウンドを持つ多彩な人事構成を生かし、各分野が行う研究はもちろん、異分野間／異部門間の融合研究の成果を効率よく推進できる運営体制を構築する。

#### ・独創性と先導性

社会的インパクトが強く、産研の目玉となるような基礎・応用研究を一定の年限で行うプロジェクトを設け、人、予算、研究スペース等において全所的にバックアップする。また、研究成果を大いに評価することはもちろんだが、未開拓領域における研究計画の独創性と先導性を積極的に推進する。

#### ・若手研究者の育成

プロジェクト研究分野の特任教員には任期を設け、また、ポストドクトラルフェローを増員し、レベルの高い研究者の養成に努める。

### 2) 研究

- ・“尊敬される科学”と“役に立つ技術” それらを結ぶ新しい科学技術の創出

何事に関しても進歩が著しい 21 世紀は、科学においても分析的な個別科学のみならず統合的な科学の予測が必要不可欠で、新しい科学が常に求められる。各研究分野が、国内外に類例のない研究を推進すると同時に、あらゆる分野を融合させた科学領域を積極的に開拓し続ける。また、4 大附置研究所を結ぶアライアンスを活性化させ、次期 5 大学附置研究所間連携アライアンスプロジェクト「ナノ・マクロインターフェイス・ブランド戦略（仮称）」実現に向け、叡智を集結し、ニーズに沿った科学技術の創出に努める。

- ・融合型研究による独創性の強化と、情報の開放

産研の特徴は、多様な分野のエキスパートが 1 つの研究所で研究を進めていることである。この多彩な人事構成を生かし、産研の目玉となる独自の研究を積極的に行う必要である。また、他部局、国内外の他大学、他研究機関、外国の研究機関等との共同研究を推進し、産業界との目的指向型の共同研究にも参画する。

- ・研究成果の社会への還元

研究成果を産業・社会に還元してこそ、当研究所の存在意義がある。自己満足な研究に終わることなく、世界をリードする産研の研究成果を積極的に発信し、産業・社会に還元するよう努める

### 3) 教育

- ・アカデミックとプロフェッショナルの育成

大学附置研究所としての使命は、該当分野において一流のアカデミックな研究者と、社会で貢献するプロフェッショナルとしての研究者を育成することである。産研教員は、今後も所属する大学院研究科の指導教員として大学院教育に積極的に参加するとともに、産研教員が各分野の研究と異分野融合プロジェクトへの参画すると共に、全学に産研独自の副教育プログラムを提供することにより、学際融合型産業科学研究者の育成に貢献する。

- ・日本と世界をリードする研究者の育成

大学院生活は、学生にとって勉学に励む最後のチャンスとも言える。学生や若手研究者 1 人 1 人が責任感を持ち、研究生生活を充実したものにできるよう、国内外より研究者を招いたセミナーとシンポジウムを開催し、グローバルな視野を広げるとともに、枠にとらわれない産研の研究環境を大いに生かし、一流の研究者だけでなく、社会で日本と世界をリードできる人材育成に努める。

- ・若手支援

19 年度に若手支援特別プロジェクト研究部門を発足し、研究所内の優秀な実績を挙げた助教を任期付きの准教授に登用し、研究室、研究費、スタッフを備えた独立研究室を運営させることにより研究の展開を支援する制度を開始し、現在その選考中である。

### 4) 社会との連携・社会貢献

- ・時代のニーズ予測と情報発信

産業・社会における産研の役割を明確にし、研究成果、取得特許、ナノテクノロジー関係の設備、材料解析センター等を、ホームページを通して公開し、全学のみならず産業界の利用に供している。

また、テクノサロンや研究会を通して、積極的に情報を発信するとともに、技術相談、技術移転を行い、更なる産学官連携の強化を図る。

- ・積極的な共同研究・受託研究



当研究所では、共同研究、受託研究の数は年々増加しており、これらにより、外部資金の獲得も増加している。今後も、研究の質の向上に取り組むことはもちろん、共同研究、受託研究を積極的に行い、研究成果を産業に還元する。

- ・小中高生へ向けて科学の魅力の伝播

科学の進歩が著しい一方、日本の高校生の理科離れと理工系学生の学力低下が指摘されていることを受け、高校生の研究所見学の受け入れや、小中学生を対象に「ものづくり教室」を開催し、科学に触れ合う機会を設けている。今後も、若者たちに科学の魅力を伝えられるよう努める。また、地域のものづくり教室にも参加し協力している。

## 5) 国際交流

- ・外国人研究者・留学生の受け入れ

当研究所では、海外から多くの研究者や留学生が研究に携っている。国籍を問わず、門戸を広げ、産研のグローバル化を図る。

- ・ボーダレスな情報発信

国際会議を自ら主催するとともに、国際会議の組織委員、招待講演者、議長を務めるなど、積極的に産研をアピールし世界に情報を発信し、自由な意見交換により研究の可能性を広める。

## 6) 総論

産業科学研究所は、時代の変化と社会的・経済的ニーズに応じた研究の推進と、長期的なビジョンの上に立った基礎研究を行う。設立当初より産業への貢献を目指した独創性の高い研究が行われてきたが、その伝統を受け継ぎながらも、「材料」「情報」「生体」の3領域においてナノテクノロジーとナノサイエンスという全く新しい視点を備え、時代の変化に対応し、研究成果を産業へ還元できる適応能力と、産研独自の研究を兼ね備えた魅力ある産研を目指し、トップレベルの研究所として時代をリードする役割を担っている。

現在、産研は多くの共同研究を行っているが、各分野の世界第一級の実績に基づくものであり、さらに、次世代の研究者教育に根ざした産研の特徴を生かしたものである。大阪大学の一員として、今後も大学院各研究科との密接な関係を維持するとともに、企業と手を結び、産研の研究成果を積極的に開放する。また、国境を越えて情報を発信し、世界の研究者と意見交換を行える環境づくりを促進するとともに、産研のグローバルスタンダードを目指す。

大学附置研究所として、研究成果の社会還元だけでなく、人材の社会還元も重要な役割である。大学院生活は、学生にとって勉学に励む最後のチャンスとも言える。学生1人1人が充実した大学院生活を送れるよう、人材育成に重きをおき、一流の研究者だけでなく、社会で日本と世界をリードできる一流の人材育成に努める。

今後も、多種多様なエキスパートが叡智を集結し、知行合一の精神で、“尊敬される科学”と“役に立つ技術”そして“それらを結ぶ 21 世紀の新しい科学技術”を創出できるよう、日々邁進する。それが、産業科学研究所である。

(広報委員)

委員長	(教授)	山口	明人
委員	(教授)※	中谷	和彦
	(教授)	松本	和彦
	(教授)	小林	光
	(教授)	菅沼	克昭
	(准教授)	楊	金峰
	(准教授)	黒田	俊一
	(准教授)※	白井	光雲
	(准教授)※	金崎	順一
	(助教)	笹嶋	宗彦
	(助教)※	開発	邦宏
(計測・情報システム係長)		相原	千尋
(総務課長)		水口	修

※は、編集作業に当たった委員

[附1] 各研究部門の組織と活動

[附2] 各附属研究施設の組織と活動

[附3] 共通施設、技術室、事務部の組織と活動

(注) 各研究分野等の所属者については、平成19年度に在籍した者を全て収録した。  
なお、年度途中の異動者については( )書きで、その異動日を表した。

## 〔附 1〕 各研究部門の組織と活動

# 量子機能科学研究部門

## 概要

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

各研究分野が開発している特色ある研究領域・手法は、表面物理、特に半導体表面・界面の原子的および電子的構造、走査プローブ法を用いた表面ダイナミクス、ナノ加工プロセス、タンパク質結晶成長、分子線結晶成長法を中心とした化合物半導体系の材料合成、低次元量子構造の自己組織的形成、電子分光法・フォトルミネセンス法を中心技術とした評価、電気伝導などの電氣的評価、新物質物性予測と創製プロセス開発が可能な第一原理計算、量子シミュレーションなどである。

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

## 成果

- ・半導体結晶表面におけるナノ構造緩和ダイナミクスの解明
- ・シリコン微細構造の高温アニールによる形状制御
- ・走査トンネル顕微鏡誘起発光分光による有機発光材料薄膜などの構造と物性
- ・タンパク質結晶成長のミクロスコピック過程の理解
- ・室温強磁性半導体の創製、評価と半導体スピントロニクスデバイス創製
- ・半導体-半金属混晶 TI 系新半導体の成長と温度安定波長半導体レーザ作製
- ・窒化物半導体ナノロッドの自己形成と低電界しきい値電子放射特性
- ・Si 基板上局所領域への III-V 族半導体の形成
- ・カーボンナノチューブの成長制御
- ・カーボンナノチューブの物性制御と量子デバイス応用
- ・カーボンナノチューブを用いた集積バイオセンサー応用
- ・第一原理計算による半導体や酸化物を母体とした遷移金属や f 電子系化合物等の新機能性材料やスピントロニクスのためのマテリアル・デバイスデザイン
- ・高効率エネルギー変換材料（太陽電池材料、熱電材料、燃料電池材料）のマテリアルデザイン
- ・電子励起原子移動過程の量子シミュレーション及び新物質創製プロセスデザイン
- ・有機分子エレクトロニクスのための金属-有機物界面の物性予測とマテリアルデザイン

## 量子分子デバイス研究分野

教授	岩崎 裕
准教授	須藤 孝一
特任助手	Liu Hongwen、中村 純
博士研究員	Han Tiezhu
大学院学生	堀 信康、山本 真人
学部学生	岡野 正和、柏木 智仁
事務補佐員	平沢 清美

### a) 概要

21世紀を迎え、より人にやさしくまた高度に情報化された社会の実現が期待され、これらを可能とするデバイスが要求される。本研究分野は、このようなデバイスを実現するために、一つは、ナノスケールからメソスコピックスケールでの、物のかたちについての科学と、二つめは、ナノスケールの物性について研究している。将来のデバイスでは、無機の半導体、金属、絶縁物に加えて、ソフトな有機分子、タンパク質分子などを組み合わせて使われると考えられ、これらの幅広い物質を対象として実験と理論の両面から研究を行っている。具体的には、シリコンや金属酸化物結晶表面上のナノ構造を制御するための原子ステップの研究、次世代 LSI にとって重要な水素アニールによるシリコントレンチの熱緩和とそれに伴う表面ナノ構造の形成の研究、原子間力顕微鏡(AFM)によるタンパク質の結晶成長に関する研究、および走査トンネル顕微鏡(STM)－発光分光法による有機発光素子に関する研究、AFM 陽極酸化を用いたシリコン表面への生体分子の微細パターンニングの研究を行っている。これらの系に共通するナノ～メソスコピックスケールにおける自己組織的な振る舞いに関しても系統的な研究を行っている。

### b) 成果

#### ・半導体表面のナノ・メソスコピックスケール構造のダイナミクスに関する研究

半導体表面のナノ・メソスコピックスケールでの構造変化のメカニズムについて研究した。走査トンネル顕微鏡(STM)を用いて、 $\text{SrTiO}_3(001)$ 表面における2次元アイランドのオストワルトライブニング過程やナノホールの減衰過程をリアルタイムで観察した。その結果、ナノスケール表面構造の緩和過程における物質輸送の詳細なメカニズムが明らかとなった。また、シリコン基板上に形成した高アスペクト比微細ホール配列の高温アニールによる自発的構造変化について調べた。その結果、表面拡散によって起こる複雑な構造変化の詳細な過程が明らかとなった。

#### ・タンパク質結晶成長に関する研究

原子間力顕微鏡(AFM)を用いて、ミクロスコピックな観点から、甘味タンパク質であるタウマチンの結晶成長メカニズムについて調べた。表面分子配列のAFM観察によって、溶液中に存在する1価陽イオンがタウマチンの結晶構造に影響することを発見した。また、タウマチン結晶化過程における、ステップでのタウマチン単分子の取り込み過程をAFMでその場観察することに成功した。

#### ・走査トンネル顕微鏡誘起発光分光(STML)による有機発光材料薄膜の構造と物性の研究

走査トンネル顕微鏡を用いたポリフィリンの分子発光を研究した。走査トンネル顕微鏡の探針、基板の2電極が、金属、非金属を含む種々の組み合わせの場合につき調べ、基板の貴金属のプラズモン誘起電磁場による増強に加え、ナノスケールトンネルギャップのキャビティ効果による増強があることを、実験、理論の両面から解明した。また、HOPG基板上に金を数ナノメートルから90ナノメートルまでの厚さで蒸着し、金局在プラズモンに由来するSTM発光強度を測定した。金STM発光が顕著な強度の増大を示し、これが表面のオーバーオールなラフネスではなく、ラフネスの高空間周波数成分のピークと良い対応を示し、このとき表面では特異的に数十ナノメートルの金クラスターが狭いギャップで高密度に存在していることを見いだした。本研究は、安蘇研究室および九州工大の西谷教授と共同して

行われた。

### [ 原著論文 ]

Decay of multilayer holes on SrTiO<sub>3</sub>(001), M. Yamamoto, K. Sudoh, H. Iwasaki: Surf. Sci., 601 (2007) 1255-1258.

Evolution of one-dimensional gratings with high aspect ratios on Si(001) surfaces by high-temperature annealing, J. Nakamura, K. Sudoh, H. Iwasaki: Jpn. J. Appl. Phys., 46 (2007) 7194-7197.

STM tip-enhanced photoluminescence from porphyrin film, R. Nishitani, H. Liu, A. Kasuya, H. Miyahira, T. Kawahara, H. Iwasaki: Surf. Sci., 601 (2007) 3601-3604.

Bias dependence of tunneling-electron-induced molecular fluorescence from porphyrin films on noble-metal substrates, H. Liu, Y. Ie, R. Nishitani, Y. Aso, H. Iwasaki: Phys. Rev. B, 75 (2007) 115429-1-5.

Mutual enhancement between plasmon and molecular fluorescence of conjugated polymer on metal substrates induced by STM, Y. Lifeng, H. Liu, H. Iwasaki: Chem. Phys. Lett., 433 (2007) 312-316.

STM-induced light emission of conjugated polymer thin film in different chain aggregations, Y. Lifeng, H. Liu, H. Iwasaki: Physica B, 393 (2007) 6-10.

STM-excited molecular fluorescence from MEH-PPV conjugated polymer on Ag and Au, H. Liu, Y. Lifeng, H. Iwasaki: Chem. Phys. Lett., 450 (2007) 101-106.

Study on enhancement of tunneling-induced fluorescence from porphyrin film by substrate plasmon, R. Nishitani, H.W. Liu, A. Kasuya, H. Iwasaki: J. Phys.: Conf. Ser., 61 (2007) 879-883.

Desymmetrization of the polyhedral crystal shape of tetragonal lysozyme due to face growth rate fluctuations, N. Hori, K. Sudoh, H. Iwasaki: J. Cryst. Growth, 309 (2007) 164-169.

Nano-scale morphology and hydrogenation of Si surfaces in the early phase of hydrogen annealing, R. Shimizu, H. Kuribayashi, R. Hiruta, K. Sudoh, H. Iwasaki: J. Phys.: Conf. Ser., 100 (2008) 012031-012035.

Substrate effect of STM-induced luminescence from porphyrin molecules, H. Liu, Y. Ie, R. Nishitani, T. Han, Y. Aso, H. Iwasaki: Thin Solid Films, 516 (2008) 2727-2730.

### [ 解説、総説 ]

水素雰囲気中高温アニール処理によるシリコン微細構造のナノスケール制御、清水了典、岩崎 裕、応用物理, 76[7](2007)764-770.

有機薄膜の STM 発光分光、岩崎 裕、Liu Hongwen、西谷龍介、表面科学, 29[1](2008)50-54.

### [ 著書 ]

「量子ドットの生命科学領域への応用 (分筆)」、岩崎裕、シーエムシー出版、(2007).

[ 国際会議 ]

Relaxation of Nanoscale Structures on SrTiO<sub>3</sub>(001) Surfaces (invited), \*K. Sudoh: Nonequilibrium Interface and Surface Dynamics: Theory, Experiment and Simulation, University of Maryland, USA, April 23-27, 2007.

Nano-scale Morphology and Hydrogenation of Si Surfaces in the Early Phase of Hydrogen Annealing (poster), \*R. Shimizu, H. Kuribayashi, R. Hiruta, K. Sudoh and H. Iwasaki: IVC-17/ICSS-13 and ICN+T2007, July 2-6, 2007, Stockholm, Sweden.

Cavity Effect on Molecular Fluorescence of a Porphyrin Film Induced by Tunneling electrons (poster), \*H. Liu, Y. Ie, Y. Aso, K. Sudoh, H. Iwasaki, R. Nishitani: ChinaNano2007, Beijing 2007.6.4-7.

STM-Induced Light Emission from Gold Films (poster), \*T. Han, H. Liu, K. Sudoh, R. Nishitani and H. Iwasaki: ChinaNano2007, Beijing 2007.6.4-7.

Energy Forbidden Spectra in STM-Induced Molecular Fluorescence (invited), \*H. Liu, T. Han, H. Iwasaki, R. Nishitani: Chinese Physics Society 2007 Fall (CPS2007), Nanjing, China, 2007.9.18-20.

Enhanced Luminescence of Porphyrin in STM Nano-Cavity, \*H. Liu, T. Han, H. Iwasaki, R. Nishitani: Korea-Japan Joint Forum (KJF) 2007 on Organic Materials for Electronics and Photonics, Seoul, Korea, Sep 27-29, 2007.

Cavity effect in STM junction on the tunneling-induced molecular fluorescence (poster), \*R. Nishitani, H. Liu, H. Iwasaki: Korea-Japan Joint Forum (KJF) 2007 on Organic Materials for Electronics and Photonics, Seoul, Korea, Sep 27-29, 2007.

Smoothing of an Atomically Rough Vicinal Surface - STM Observation and MC Simulation, \*K. Sudoh, H. Iwasaki, T. Irisawa, K. Matsumoto, M. Uwaha: The 15th International Conference on Crystal Growth, Salt Lake City, USA, August 12-17, 2007.

Cavity effect in STM junction on the tunneling-induced molecular fluorescence, \*R. Nishitani, H. Liu, H. Iwasaki: 9th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures, Tokyo, Japan, Nov 11-15, 2007.

Cavity Effect and Energy Forbidden Spectra in STM-Induced Molecular Fluorescence, \*H. Liu, T. Han, Y. Ie, Y. Aso, H. Iwasaki, R. Nishitani: 9th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures, Tokyo, Japan, Nov 11-15, 2007.

Blue-shift of Molecular Fluorescence from Porphyrin in STM with Bias (poster), \*H. Liu, T. Han, Y. Ie, Y. Aso, H. Iwasaki, R. Nishitani: 9th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures, Tokyo, Japan, Nov 11-15, 2007.

STM-excited light emission from Au films on HOPG surface (poster), \*T. Han, H. Liu, K. Sudoh, R. Nishitani, H. Iwasaki: 9th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures, Tokyo, Japan, Nov 11-15, 2007.

Effects of Na<sup>+</sup> and K<sup>+</sup> on the Molecular Arrangement of Tetragonal Thaumatin Crystals (110) Surface (poster), \*N. Hori, K. Sudoh, H. Iwasaki and Sonia Antoranz Contera: 9th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures, Tokyo, Japan, Nov 11-15, 2007.



Effect of Short Range Step-Step Interactions on Relaxation of Nano-scale Holes on SrTiO<sub>3</sub>(001) (poster), \*M. Yamamoto, K. Sudoh, H. Iwasaki: 9th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures, Tokyo, Japan, Nov 11-15, 2007.

STM-Induced Molecular Fluorescence in Nano-Cavity, \*H. Liu, T. Han, R. Nishitani, Y. Ie, Y. Aso, H. Iwasaki: 15th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM15), Atagawa, Japan, Dec 6-8, 2007.

Non-linear optical properties of porphyrin molecules in STM (poster), \*H. Liu, T. Han, Y. Ie, Y. Aso, R. Nishitani, K. Sudoh and H. Iwasaki: 11th Sanken, 6th Nanotechnology Center and 1st MSTEC International Symposium, Awaji, Japan, Feb. 4-5, 2008.

#### [ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

岩崎 裕                    JEJU 2007 ISPM (International Scanning Probe Microscopy Conference), Jeju, South Korea, June 10~ 14, 2007 (組織委員)

#### [ 国内学会 ]

日本物理学会	4 件
表面科学会	1 件
結晶成長学会	1 件

#### [ 取得学位 ]

修士 (工学)	
堀 信康	原子間力顕微鏡を用いた溶液環境のタンパク質結晶成長への影響に関する研究
山本 真人	SrTiO <sub>3</sub> (001)表面におけるナノ構造の緩和ダイナミクスに関する研究

#### [ 受託研究 ]

Hongwen Liu	独立行政法人科学技術振興機構	金属クラスターを含有する有機分子の分子蛍光の増強に関する研究	2,000
-------------	----------------	--------------------------------	-------

#### [ 奨学寄附金 ]

岩崎 裕	富士電機デバイステクノロジー (株)	500
------	--------------------	-----

## 光・電子材料研究分野

教授	朝日 一
准教授	長谷川 繁彦
助教	江村 修一
博士研究員	Shanthi SUBASHCHANDRAN
研究支援推進員	Daivasigamani KRISHNAMURTHY
大学院学生	木村 重哉、徐 鍾旭、荒木 啓輔、小笹 茂生、丹保 浩行、早川 智子 廣村 友紀、亀岡 恒志、高橋 政寛、田中 裕輔、徳田 克彦、本多 裕也
研究生	劉 金強、Siti Nooraya MOHD TAWIL
事務補佐員	渡邊 明子

### a) 概要

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

### b) 成果

#### ・GaN ベース希薄磁性半導体の結晶成長とスピントロニクスデバイス応用

半導体と磁性体という2つの性質を合わせ持つ希薄磁性半導体は新しい機能を発現できる材料として注目されている。当研究室では平成13年度に、世界に先駆けてGaNベースの磁性半導体GaCrNの成長に成功し、室温発光強磁性を実現した。その後、希土類原子を添加したGaGdNにおいても室温強磁性を見出した。平成17年度には、GaCrN/AlN/GaCrNの強磁性半導体／非磁性半導体／強磁性半導体3層構造デバイスを作製しトンネル磁気抵抗効果を観測した。その後、希土類原子Gdの取り込み量を増加させる目的で300°Cの低温でGaGdNを成長し、Gd濃度12%を実現し磁気を大幅に増加させた。平成19年度には、Siを同時添加することにより、磁化が更に増大することを明らかとした。GaGdN/GaN超格子構造での磁化の増加現象も併せて観測し、それらはキャリア誘起強磁性と理解された。ナノスピントロニクスデバイス作製を念頭に、GaCrN, GaGdN ナノロッド構造の形成し、強磁性を観測した。

#### ・半導体-半金属混晶タリウム系半導体の結晶成長とデバイス応用

禁制帯幅（発光波長）が温度によって変化しない新しい材料としてTl系材料TlInGaP, TlInGaAsを当研究室が提案し、分子線結晶成長法による結晶成長検討から始めて、物性評価、デバイス応用の研究を行っている。これまでに、TlInGaAsのバンドギャップ、屈折率の温度依存性を測定し、予想どおり温度安定化することを確認し、TlInGaAs/TlInP/InP SCHレーザを作製し、比較的広い温度領域で発振ピーク波長の温度変化が0.06 nm/Kと小さいことを確認している。さらに、しきい値電流、発振波長共に温度安定なLD用材料としてTlInGaAs(N)/(Al)GaAsヘテロ構造を提案した。この提案に基づき、Tlを含有するクラッド層、バリア層の導入、Nの添加によりTlの取り込み濃度がかなり向上することを見出した。平成19年度には、N添加による発光特性の劣化の問題を解決するための条件について調べ、熱処理なしでもN無添加TlInGaAsと同等の発光強度の得られる条件を明らかとした。

#### ・窒化物半導体ナノロッドの成長と電界放出電子源への応用

III-V族窒化物半導体は、発光素子や高温素子への応用で注目を浴びている材料である。当研究室では、非晶質の石英ガラス基板あるいは金属基板上に多結晶GaNを成長し、その発光強度が非常に大きいことを示し、多様な応用を提案した。その後、金属基板上多結晶GaNから良好な電界電子放出特性を得て、電子放射源としての可能性を示した。これまでに、Si基板上にGaNナノロッドの形成を試み、しきい値電界  $1.1 \text{ V}/\mu\text{m}$ 、電流密度  $2.5 \text{ mA}/\text{cm}^2$  と極めて良好な電界電子放出特性を得ている。平成 19 年度は、GaN ナノロッド形状の成長条件依存性、形状と電子放出特性の関係を調べ、ナノロッド径、その間隔を制御できることが明らかにした。また、電子放出特性の空間分布測定を行い、真空ギャップ幅を変えることで均一性を向上できることを示した。

#### ・シリコン局所領域への化合物半導体サブミクロン結晶成長

半導体デバイスの微細化が進み、10 年後にはシリコン CMOS は限界を迎えると言われている。ポストシリコン素子材料のひとつに、移動度など電気的特性に優れている化合物半導体がある。シリコンプラットフォーム上に化合物半導体形成のブレイクスルーとして、シリコン局所領域に選択的にサブミクロン結晶を成長させることを提案している。これまでに、Si 酸化膜をマスクとして用いることにより、Si 局所領域にサブミクロンサイズの InP 単結晶成長が可能なること、成長条件を制御することにより、この単結晶粒を核として横方向成長させてミクロンサイズの InP 結晶成長も可能なことを明らかにした。

#### ・磁性金属による希薄磁性半導体へのスピン注入とナノ磁性

磁性金属による希薄磁性半導体へのスピン注入現象は、半導体スピントロニクスデバイス形成上、また、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磁性評価上、重要である。平成 19 年度は、GaN 上に Fe を成長させて、その結晶構造、成長様式、および磁気特性を調べた。室温成長では、ナノサイズ径の Fe ドットが形成されること、蒸着量の増加に伴ってドット径が大きくなっていくこと、成長初期は無配向であるが、ドット径の増加にともない配向し、その後ドットの合体が顕著となりダッシュ状の形状となることが分かった。この形状変化にともなって、磁気特性にも大きな変化が現れ、Fe ダッシュ構造がある場合には室温で強磁性を示したが、ドットの場合非磁性であり、磁化の温度依存性は超常磁性の振る舞いを示すことを明らかとした。

#### ・短チャンネル MOSFET のナノ観察と評価

量子ナノデバイス評価法開発として短チャンネル MOSFET 構造断面のナノ構造・特性評価を走査型トンネル顕微鏡 (STM) により様々な角度から行っている。短チャンネル MOSFET 横断面 (チャンネル長方向) 評価、縦断面 (チャンネル幅方向) の評価を行い、ポテンシャル分布の可視化でき、ソース/ドレイン形状やゲート側面形状のチャンネル幅方向の揺らぎをナノスケールで評価出来ることを示した。また、ポテンシャル分布の 3 次元シミュレーションを行って、デバイスの内部と断面とのポテンシャル分布の違いを調べ、これまでの実験結果を支持する結果を得てきた。平成 19 年度は、*pn* 接合領域 (空乏領域) に STM 短針から注入された電子・正孔の緩和過程、電流経路の可視化の検討を行った。*p* 型側空乏領域に注入された電子は *n* 型領域へと流れていくこと、その割合は接合位置からの距離に依存していること、*p* 型側空乏領域に正孔を注入した場合、正孔が *p* 型領域へ流れると同時に、*n* 型領域から電子が流れ込むことを明らかとした。

#### ・新機能物質の XAFS 評価

XAFS は従来の回折現象を利用した構造解析法ではなく、分光法を使つての新しい構造解析法である。分光を手段に用いる故、長距離秩序は必要なくアモルファスや微量元素などの配位環境を直接に調べる手段としては唯一である。新機能物質である GaCrN や GaGdN のキー微量元素である Cr や Gd の配位環境を評価し、これらの濃度が比較的低い場合は置換型で取り込まれている事を明らかにした。更に、添

加原子である Cr がテトラヒドロンのセンターからずれている可能性を明らかとした。このずれが GaCrN の強磁性に大きく影響を与えていると考えられる。GaCrN ナノロッド中の Cr は、基板温度を 550°C と低下させて成長した場合、III 族サイトを置換型で取り込まれることを明らかとした。

## [ 原著論文 ]

Cr atom alignment in Cr-delta-doped GaN, S. Kimura, S. Emura, H. Ofuchi, Y. Nakata, Y.K. Zhou, C.W. Choi, Y. Yamauchi, S. Hasegawa and H. Asahi: American Institute of Physics, CP 882 (2007) 410-412.

MBE growth of TlInGaAs/TlInP/InP SCH LD structures and their laser operation with low temperature variation of lasing wavelength, A. Fujiwara, D. Krishnamurthy, T. Matsumoto, S. Hasegawa and H. Asahi: J. Cryst. Growth, 301-302 (2007) 109-112.

Growth and Characterization of Ferromagnetic Cubic GaCrN: Structural and magnetic properties, S. Kimura, S. Emura, H. Ofuchi, Y. Zhou, S. Hasegawa and H. Asahi: J. Cryst. Growth, 301-302 (2007) 651-655.

TlGaInNAs/GaAs Double Quantum Well Structures: Effect of Barrier Layers and Substrate Orientation, D. Krishnamurthy, T. Matsumoto, A. Fujiwara, S. Hasegawa and H. Asahi: J. Cryst. Growth, 301-302 (2007) 534-538.

Observation of Valence State Change in Layered  $\text{Li}_{1-y}\text{Ni}_1/3\text{Mn}_1/3\text{Co}_1/3\text{O}_2$ , Hironori Kobayashi, Yoshinori Arachi, Shuichi Emura, K. Handa, K. Tatsumi: AIP Conference Proceedings Volume, 882 (2007) 478 - 480.

Alternation of the Pd Lattice in Nano-Sized-Pd/ZrO<sub>2</sub> Composite during Hydrogen Absorption, Yoshinori Arachi, Shuichi Emura, Akira Omura, Masanobu Nunogaki, Takeshi Asai, Shinichi Yamaura, Akishisa Inoue, Yoshiaki Arata: AIP Conference Proceedings Volume, 882 (2007) 740-742.

Formation process of sharp-pointed structures on GaN nanorods during RF-MBE growth and their field emission characteristics, M. Terayama, S. Hasegawa, K. Uchida, M. Ishimaru, Y. Hirotsu and H. Asahi: Phys. Stat. Sol. (c), 4 (7) (2007) 2371-2374.

Quinary TlGaInNAs DQW Structures: Effect of Growth Temperature and Growth Rate on Tl Incorporation, D. Krishnamurthy, A. Fujiwara, S. Hasegawa and H. Asahi: Proc. 19th Int. Conf. on InP and Related Materials, (2007) 327-330.

Molecular-beam epitaxy growth and characterization of ferromagnetic cubic GaCrN on GaAs substrate, S. Kobayashi, S. Shanthi, S. Kimura, Y.K. Zhou, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi: J. Cryst. Growth, 308 (1) (2007) 58-62.

Surface modification of a metal into a thick ceramic layer and a model for analyzing the increased hardness, S. Emura, M. Nunogaki and Y. Nakata: J. Ceramic Processing Research, 8 (3) (2007) 191-194.

High Gd concentration GaGdN grown at low temperatures, Y.K. Zhou, S.W. Choi, S. Kimura, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi: Journal of Superconductivity and Novel Magnetism, 20 (6) (2007) 429-432.

## [ 解説、総説 ]

半導体ナノスピントロニクス材料創製、長谷川繁彦、周逸凱、朝日一、未来材料 7 (4) (2007) 34-39.

[ 著書 ]

触媒材料を対象とした研究における XAFS 法の有効性—CuZSM-5 での室温での窒素分子の吸着現象の解析, 黒田 泰重、江村 修一、「SPRING-8 の高輝度放射光を利用した先端触媒開発」 (2007) 201-215.

[ 国際会議 ]

Quinary TlGaInNAs based Heterostructures: Properties and Challenges (INVITED) (invited), D. Krishnamurthy, A. Fujiwara, M. Ozasa, K. Araki, S. Hasegawa and H. Asahi: The 2nd Japan-India Workshop on Optoelectronic Materials and Devices based on Micro to Nano-technology.

Quinary TlGaInNAs DQW Structures: Effect of Growth Temperature and Growth Rate on Tl Incorporation, D. Krishnamurthy (poster), A. Fujiwara, M. Ozasa, K. Araki, S. Hasegawa and H. Asahi: 19th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials (IPRM2007).

MBE Growth and Characterization of Rare-Earth Doped Nitride Semiconductors for Spintronics (INVITED) (invited), H. Asahi, Y.K. Zhou, S. Emura and S. Hasegawa: E-MRS2007.

High Gd concentration GaGdN grown at low temperature (poster), Y.K. Zhou, S.W. Choi, S. Kimura, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi: SpinTech-IV.

Enhancement of magnetic moment in GaGdN/GaN superlattice structure (poster), Y.K. Zhou, S.W. Choi, S. Kimura, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi: ChinaNANO 2007.

Enhancement of magnetic moment in GaGdN/GaN superlattice structure, Y.K. Zhou, S.W. Choi, S. Kimura, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi: Material Today Asia.

Growth and characterization of InCrN and (In,Ga,Cr)N diluted magnetic semiconductors (poster), S. Kimura, S. Emura, Y. Hiromura, Y.K. Zhou, S. Hasegawa and H. Asahi: 7th International Conference on Nitride Semiconductors.

Fabrication and analysis of GaN nanorods on the patterned SOI substrate by MBE (poster), J.U. Seo, S. Hasegawa, and H. Asahi: 34th International Symposium on Compound Semiconductors.

Selective growth of InP on localized areas of silicon (100) substrate by molecular beam epitaxy (poster), K. Araki, S. Hasegawa and H. Asahi: 34th International Symposium on Compound Semiconductors.

Visualization of current pathways in depleted regions of Si pn junctions under scanning tunneling microscope observation (poster), S. Hasegawa: 9th International Conference on Atomically Controlled Surfaces.

TlInGaAsN Novel Semiconductors and Temperature-Stable Lasing Wavelength Laser Diodes (INVITED) (invited), H. Asahi, S. Hasegawa, A. Fujiwara and D. Krishnamurthy: 2008 SPIE Photonics West Conference.

Selective Growth of InP on Patterned Si(001) Substrates by Molecular Beam Epitaxy (poster), S. Hasegawa, K. Araki, J.-U. Seo, and H. Asahi: 11th SANKEN International Symposium, 6th Nanotechnology Center International Symposium, 1st MSTEC International Symposium.

Deformation of CrN<sub>4</sub> tetrahedron site symmetry in GaCrN detected by X-ray linear dichroism (poster), S. Emura, S. Kimura, H. Tambo, Y. Hiromura, Y.K. Zhou, S. Hasegawa and H. Asahi: 11th SANKEN International

Symposium, 6th Nanotechnology Center International Symposium, 1st MSTE International Symposium.

Enhancement of magnetic properties in GaGdN/GaN superlattice structure and low-temperature-grown GaGdN layer (poster), Y.K. Zhou, S.W. Choi, S. Kimura, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi: 11th SANKEN International Symposium, 6th Nanotechnology Center International Symposium, 1st MSTE International Symposium.

### [ 国際会議の組織委員、国際雑誌の編集委員 ]

朝日 一	2007 International Conference on Solid State Devices and Materials (プログラム委員)
朝日 一	19th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials (組織委員、国際諮問委員)
朝日 一	International Symposium on Compound Semiconductors 2007 (組織委員、プログラム委員)
朝日 一	4th Vacuum and Surface Science Conference of Asia and Australia (プログラム委員)
朝日 一	2008 International Conference on Solid State Devices and Materials (プログラム委員)
朝日 一	15th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (出版委員)
朝日 一	20th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials (国際諮問委員)
朝日 一	15th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (国際諮問委員)
朝日 一	Second International Symposium on Growth of III-Nitrides (国際諮問委員)
朝日 一	Journal of Crystal Growth (編集委員)
朝日 一	Current Applied Physics (Editorial Board 委員)
朝日 一	J. Materials Science: Materials in Electronics (Editorial Board 委員)
朝日 一	Journal of Ceramic Processing Research (編集委員)
朝日 一	Journal of Physics: Condensed Matter (Advisory Editorial Board 委員)
朝日 一	e-Journal of Surface Science and Nanotechnology (Advisory Board 委員)
長谷川繁彦	19th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials (現地実行委員)
長谷川繁彦	Second International Symposium on Growth of III-Nitrides (財務委員)

### [ 国内学会 ]

応用物理学会	17 件
電子情報通信学会	1 件
電子材料シンポジウム	2 件
PASPS シンポジウム	6 件

### [ 取得学位 ]

#### 修士 (工学)

小笹 茂生	InP 基板上 TlInGaAs(N) の成長と評価に関する研究
丹保 浩行	GaCrN 縦型ナノ構造形成、評価に関する研究
廣村 友紀	希薄磁性半導体 GaGdN の結晶成長及び特性評価に関する研究

#### 修士 (理学)

荒木 啓輔	Si(100) 基板上の局所領域への InP 選択成長
早川 智子	GaN 上の Fe ドット形成とその構造・磁性評価

#### 博士 (工学)

木村 重哉	III 族窒化物希薄磁性半導体の創製とその物性に関する研究
-------	-------------------------------

[ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)		単位：千円
基盤研究 (B) (2)		
朝日 一	室温強磁性窒化物物半導体ナノ構造とナノスピントロニクスデバイス 応用に関する研究	5,500
特定領域研究		
朝日 一	InN をベースとした長波長円偏光半導体レーザー創製に関する研究	3,700
(分担者として配分されたもの)		
学術創成研究		
朝日 一	希土類元素添加の精密制御による物性・機能性の開拓 (代表者：藤原康文)	30,420

[ その他の競争的研究資金 ]

徐 鍾旭	丸文研究交流財団	GaN ナノロッド形成と電界放射に関する研究	1,500
------	----------	------------------------	-------

## 半導体量子科学研究分野

教授	松本 和彦
准教授	井上 恒一
助教	前橋 兼三、大野 恭秀
博士研究員	上村 崇史
大学院学生	長浜 英雄、山本 泰己、浅井 芳啓、桂 大侍、西口 浩平、 岩崎 晋、辻田 雄一、永曾 悟史、
学部学生	辻 智輝、岸本 貴臣
事務補佐員	高野 早織

### a) 概要

電子・光子等が量子力学的効果により独特な振舞いをする極微細半導体構造（量子構造）は優れた性質を持つと期待される。そのために原子的尺度で量子構造を形成し、評価する技術を確立する。同時にコヒーレントな電子波の伝播、光子と電子波の量子相互作用等の量子物性にもとづく新しい概念の半導体素子の創出を目指した研究を行う。

カーボンナノチューブは一次元的な半導体となり、量子構造デバイスの作製に有望な物質である。カーボンナノチューブの特長を生かして、電界効果トランジスタや単一電子トランジスタを作成し、単一の分子、電子、およびスピンをセンシングする素子を開発する。現在、熱 CVD 成長法、ラマン分光法、原子間力顕微鏡、フォトルミネセンス法を中心技術として、カーボンナノチューブの基本特性制御、カーボンナノチューブデバイスの特性・プロセス制御、そしてカーボンナノチューブのセンサー応用の研究を進めている。

### b) 成果

#### ・赤外パルスレーザー照射下のカーボンナノチューブの共鳴ラマン分光

空気中におかれた半導体性カーボンナノチューブの第2電子準位間を赤外領域のパルスレーザー光で励起すると、カーボンナノチューブが壊れ、減少していく。その過程を可視領域のレーザー光を同時に照射することにより、第3電子準位間の共鳴ラマン散乱を測定することによって研究した。減少をおこす光量の閾値、減少量、減少速度を明らかにした。

#### ・プラズマ照射欠陥導入法による室温動作単電子トランジスタ

SiO<sub>2</sub>保護膜を有するカーボンナノチューブ電界効果トランジスタ(CNT-FET)の、カーボンナノチューブチャンネルに酸素プラズマを照射することで、室温動作するカーボンナノチューブ単電子トランジスタの作製に成功した。プラズマ照射されたカーボンナノチューブチャンネルには欠陥が導入され、多重量子ドット構造が形成れる。照射後のCNT-FETのドレイン電流はゲート電圧に対して振動する、クーロン振動特性を示した。この手法で作製されたデバイスの35%以上が単電子トランジスタ特性を示すことから、室温動作単電子トランジスタ作製に有効な手法であることが分かった。

#### ・カーボンナノチューブ電極を有する微小流体チップを用いた生体分子の検出

CNT 電極と二つの空気駆動型マイクロポンプを搭載した分析システムを組み合わせることで、一つのチップ上で溶液を自動的に交換し、微量物質の測定が可能であることを示した。さらに、酵素を化学修飾した CNT 電極と、PDMS 製のポンプつきの微小流路を組み合わせ、バイオチップを作製した。その結果、微量のサンプル溶液を制御し、グルコースの定量分析に成功した。



[ 原著論文 ]

Growth of Suspended Single-Walled Carbon Nanotubes by Laser-Irradiated Chemical Vapor Deposition, Y. Asai, Y. Fujiwara, Y. Ohno, K. Maehashi, K. Inoue and K. Matsumoto: J. Physics, 61 (2007) 46-50.

Single-Walled Carbon Nanotube-Arrayed Microelectrode Chip for Electrochemical Analysis., Jun Okuno, Kenzo Maehashi, Kazuhiko Matsumoto, Kagan Kerman, Yuzuru Takamura and Eiichi Tamiya: Electrochem. Commun., 9 (2007) 13-18.

Formation of single quantum dot in single-walled carbon nanotube channel using focused-ion-beam technique, Kenzo Maehashi, Hirokazu Ozaki, Yasuhide Ohno, Koichi Inoue, Kazuhiko Matsumoto, Shu Seki, Seiichi Tagawa: Appl. Phys. Lett., 90 (2007) 023103/1-3.

Label-free protein biosensors based on aptamer-modified carbon nanotube field-effect transistors, Kenzo Maehashi, Taiji Katsura, Kazuhiko Matsumoto, Kagan Kerman, Yuzuru Takamura and Eiichi Tamiya: Anal. Chem., 79 (2007) 782-787.

Label-free immunosensor for prostate-specific antigen based on single-walled carbon nanotube array-modified microelectrodes, Jun Okuno, Kenzo Maehashi, Kazuhiko Matsumoto, Kagan Kerman, Yuzuru Takamura and Eiichi Tamiya: Biosens. Bioelectron., 22 (2007) 2377-2381.

Coulomb Oscillations at Room-Temperature of Single-Walled Carbon Nanotube Field-Effect Transistors, Yasuhide Ohno, Yoshihiro Asai, Kenzo Maehashi, Koichi Inoue and Kazuhiko Matsumoto: Technical Proceeding of the 2007 NSTI Nanotechnology Conference and Trade Show, 1 (2007) 69-72.

High-sensitive Label-free Biosensors Based on Carbon Nanotube Field-effect Transistors Modified with Aptamers, Kenzo Maehashi, Taiji Katsura, Kazuhiko Matsumoto, Kagan Kerman, Yuzuru Takamura and Eiichi Tamiya: Technical Proceeding of the 2007 NSTI Nanotechnology Conference and Trade Show, 2 (2007) 202-205.

[ 国際会議 ]

Single Charge Detection Using Single-Walled Carbon Nanotube Single-Hole Transistor, \*Takafumi Kamimura, Yasuhide Ohno, and Kazuhiko Matsumoto: International Semiconductor Device Research Symposium, Maryland, USA, December 12 - 14, 2007.

Coexistence of Coulomb blockade effect and coherent transport of hole in carbon nanotube transistor, \*K. Matsumoto and T. Kamimura: International Symposium on Advanced Nanodevices and Nanotechnology, Hawaii, USA, December 2 - 7, 2007.

Determination method of energy band gap of carbon nanotube by high temperature dependence of current (poster), \*Masatoshi Maeda, Takafumi Kamimura, Shin Iwasaki, Kazuhiko Matsumoto: 17th International Vacuum Congress, 13th International Conference on Surface Science and International Conference on Nano Science and Technology, Stockholm, Sweden, July 2 - 6, 2007.

Magnetoresistance in quantum interference regime of single walled carbon nanotube (poster), \*Takafumi Kamimura, Yasuhide Ohno, Kazuhiko Matsumoto: 17th International Vacuum Congress, 13th International Conference on Surface Science and International Conference on Nano Science and Technology, Stockholm, Sweden, July 2 - 6, 2007.

Single Charge Sensing by Carbon Nanotube Single-Hole Transistor, \*Kazuhiko Matsumoto: AVS 54th International Symposium & Exhibition, Seattle, USA, October 14 - 19, 2007.

Determination Method of Energy Band Gap of Carbon Nanotube (poster), \*Masatoshi Maeda, Takafumi Kamimura, Shin Iwasaki, and Kazuhiko Matsumoto: 2007 International Symposium on Compound Semiconductors, Kyoto, Japan, October 15 - 18, 2007.

Dependence on Top Gate Structure for Sensitivity of Biosensors with Carbon Nanotube Field Effect Transistors (poster), \*Masuhiro Abe, Katsuyuki Murata, Tatsuaki Ataka, and Kazuhiko Matsumoto: 2007 International Symposium on Compound Semiconductors, Kyoto, Japan, October 15 - 18, 2007.

Improvement of Hysteresis Characteristics in Carbon Nanotube Field-Effect Transistors (poster), \*Kohei Nishiguchi, Yasuhide Ohno, Kenzo Maehashi, Koichi Inoue, and Kazuhiko Matsumoto: 2007 International Symposium on Compound Semiconductors, Kyoto, Japan, October 15 - 18, 2007.

Laser-Irradiated Chemical Vapor Deposition for Growth of Single-Walled Carbon Nanotubes (poster), \*Yoshihiro Asai, Yasuyuki Fujiwara, Kenzo Maehashi, Yasuhide Ohno, Koichi Inoue, and Kazuhiko Matsumoto: 2007 International Symposium on Compound Semiconductors, Kyoto, Japan, October 15 - 18, 2007.

High-sensitive Carbon Nanotube Protein Sensors (poster), \*Kenzo Maehashi, Jun Okuno, Taiji Katsura, Kazuhiko Matsumoto, Kagan Kerman, Yuzuru Takamura, and Eiichi Tamiya: 2007 International Symposium on Compound Semiconductors, Kyoto, Japan, October 15 - 18, 2007.

Comparison of Top Gate Structure for Carbon Nanotube Field Effect Transistor Biosensor, \*Masuhiro Abe, Katsuyuki Murata, Tatsuaki Ataka, and Kazuhiko Matsumoto: 2007 International Conference on Solid State Device and Materials, Tsukuba, Japan, September 19 - 21, 2007.

Microfluidic Amperometric Biochips Based on Carbon Nanotube Arrayed Electrodes, \*Yuichi Tsujita, Kenzo Maehashi, Kazuhiko Matsumoto, Hyukchang Kwon, Yuzuru Takamura, and Eiichi Tamiya: 2007 International Conference on Solid State Device and Materials, Tsukuba, Japan, September 19 - 21, 2007.

Single charge sensitivity of single-walled carbon nanotube single-hole transistor, \*Takafumi Kamimura, Yasuhide Ohno, and Kazuhiko Matsumoto: 2007 International Conference on Solid State Device and Materials, Tsukuba, Japan, September 19 - 21, 2007.

New Measurement Method of Carbon Nanotube Energy Band Gap, \*Masatoshi Maeda, Takafumi Kamimura, Shin Iwasaki, and Kazuhiko Matsumoto: 2007 International Conference on Solid State Device and Materials, Tsukuba, Japan, September 19 - 21, 2007.

Characteristics of Carbon Nanotube Field-Effect Transistor Biosensor without Top-Gate Metal Electrode, \*Masuhiro Abe, Katsuyuki Murata, Tatsuaki Ataka and Kazuhiko Matsumoto: 49th Electronic Materials Conference, University of Notre Dame, Indiana, USA, June 20 - 22, 2007.

Determination Method of Energy Band Gap of Carbon Nanotube by High Temperature Dependence of Current, \*Masatoshi Maeda, Takafumi Kamimura, Shin Iwasaki and Kazuhiko Matsumoto: 49th Electronic Materials Conference, University of Notre Dame, Indiana, USA, June 20 - 22, 2007.

Room Temperature CNT Single Electron Transistor Formed by Plasma Induced Defect Process, \*Shin Iwasaki, Takafumi Kamimura, Masatoshi Maeda, Kazuhiko Matsumoto and Noboru Miura: 49th Electronic Materials

Conference, University of Notre Dame, Indiana, USA, June 20 - 22, 2007.

High-sensitive Label-free Biosensors Based on Carbon Nanotube Field-effect Transistors Modified with Aptamers, \*K. Maehashi, T. Katsura, K. Matsumoto, K. Keran, Y. Takamura and E. Tamiya: 2007 NSTI Nanotechnology Conference and Trade Show, Santa Clara, California, USA, May 20-24, 2007.

Coulomb Oscillations at Room-Temperature of Single-Walled Carbon Nanotube Field-Effect Transistors (poster), \*Y. Ohno, Y. Asai, K. Maehashi, K. Inoue and K. Matsumoto: 2007 NSTI Nanotechnology Conference and Trade Show, Santa Clara, California, USA, May 20-24, 2007.

Quantum Nano Devices using Carbon Nanotube, \*K. Matsumoto and T. Kamimura: 31th Workshop on Compound Semiconductor Devices and Integrated Circuits, Venice, Italy, May 20-23, 2007.

Effects by Low-Energy Ion Irradiation in Transport Characteristics of n-type Carbon Nanotube Field-Effect Transistors with Passivation Films (poster), \*Kohei Nishiguchi, Yasuhide Ohno, Kenzo Maehashi, Koichi Inoue, Kazuhiro Yamamoto, Kazuhiko Matsumoto: 2008 International Conference On Nanoscience and Nanotechnology, Melbourne, Australia, February 25 - 29, 2008.

Coulomb Oscillation of Single-Walled Carbon Nanotube Field-Effect Transistors with Insulator (poster), \*Yoshihiro Asai, Yasuhide Ohno, Kenzo Maehashi, Koichi Inoue, Kazuhiko Matsumoto: 2008 International Conference On Nanoscience and Nanotechnology, Melbourne, Australia, February 25 - 29, 2008.

High-Performance Local-Electrolyte-Gated Carbon Nanotube Field-Effect Transistors (poster), \*Taiji Katsura, Yasuki Yamamoto, Kenzo Maehashi, Kazuhiko Matsumoto: 2008 International Conference On Nanoscience and Nanotechnology, Melbourne, Australia, February 25 - 29, 2008.

High-Sensitive Label-Free Prostate Specific Antigen Sensors Based on Carbon Nanotube Electrodes, \*Kenzo Maehashi, Kazuhiko Matsumoto, yuzuru Takamura, Eiichi Tamiya: 2008 International Conference On Nanoscience and Nanotechnology, Melbourne, Australia, February 25 - 29, 2008.

Carbon Nanotube Amperometric Biochips With Micro Multi-Pumps, \*Yuichi Tsujita, Kenzo Maehashi, Kazuhiko Matsumoto, Miyuki Chikae, Soichiro Torai, Yuzuru Takamura, Eiichi Tamiya: 2008 International Conference On Nanoscience and Nanotechnology, Melbourne, Australia, February 25 - 29, 2008.

Suppression of Current Fluctuations in Carbon Nanotube Field-Effect Transistors, \*Yasuhide Ohno, Kenzo Maehashi, Koichi Inoue, Kazuhiko Matsumoto: 2008 International Conference On Nanoscience and Nanotechnology, Melbourne, Australia, February 25 - 29, 2008.

The Effect of Charged Ions for Bio-molecule Sensing Using Carbon Nanotube Field-Effect Transistors (poster), \*Y. Yamamoto, T. Katsura, K. Maehashi, Y. Ohno, K. Inoue and K. Matsumoto: 11th SANKEN, 6th Nanotechnology Center and 1st MSTEC International Symposium, Awaji, Japan, February 4 - 5, 2008.

Defect-Induced Plasma Process for Room-Temperature Carbon Nanotube Single-Electron Transistors (poster), \*S. Iwasaki, M. Maeda, T. Kamimura, Y. Ohno, K. Maehashi and K. Matsumoto: 11th SANKEN, 6th Nanotechnology Center and 1st MSTEC International Symposium, Awaji, Japan, February 4 - 5, 2008.

Low-Energy Ion Implantation Effects on n-type Carbon Nanotube Field-Effect Transistors with Passivation Films (poster), \*S. Nagaso, K. Nishiguchi, Y. Ohno, K. Maehashi, K. Inoue, K. Yamamoto and K. Matsumoto: 11th SANKEN, 6th Nanotechnology Center and 1st MSTEC International Symposium, Awaji, Japan, February 4 - 5,

2008.

Microfluidic Carbon Nanotube Biochips with Pneumatic Micro Pumps (poster), \*Y. Tsujita, K. Maehashi, K. Matsumoto, M. Chikae, S. Torai, Y. Takamura and E. Tamiya: 11th SANKEN, 6th Nanotechnology Center and 1st MSTEC International Symposium, Awaji, Japan, February 4 - 5, 2008.

Carbon Nanotube Devices and Applications (invited), \*K. Matsumoto: Nano and Giga Challenges in Electronics and Photonics From Atoms to Materials to Devices to System Architecture.

Single-walled carbon nanotube-based biosensors for label-free detection of protein (poster), \*K. Maehashi, K. Matsumoto: Second SANKEN- CNU Joint Symposium on Nanoscience and Nanotechnology.

Aptamer-based Biosensing Using Optical and Electrical Properties of Nanomaterials, \*Kagan Kerman, Do-Kyun Kim, Kenzo Maehashi, Taiji Katsura, Miyuki Chikae, Shohei Yamamura, Yuzuru Takamura, Kazuhiko Matsumoto and Eiichi Tamiya: 2007 Material Research Society Spring Meeting.

Label-free biosensing based on carbon nanotube devices (invited), \*K. Maehashi, K. Matsumoto: Int. Carbon Nanotube Conference in NU.

#### [ 国内学会 ]

応用物理学会

15 件

#### [ 取得学位 ]

修士 (工学)

浅井 芳啓	アルミナトンネル接合を有する室温動作カーボンナノチューブ単一電子トランジスタ
桂 大侍	カーボンナノチューブ電界効果トランジスタを用いたタンパク質センシング
西口 浩平	カーボンナノチューブ電界効果トランジスタにおけるイオン照射の影響

#### [ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

基盤研究 (C)

井上 恒一 二重励起法によるカーボンナノチューブの研究

1,820

基盤研究 (C)

前橋 兼三 カarbonナノチューブ多項目高感度バイオセンサーアレイの開発

2,860

#### [ その他の競争的研究資金 ]

単位：千円

松本 和彦 科学技術振興機構

カーボンナノチューブ単一電子・スピン計測システムの確立

65,000

松本 和彦 新エネルギー・産業技術総合開発機構

パーソナルQOLシステムのためのCNT超高感度生体分子センサーの研究開発

18,000

## 量子物性研究分野

教授	吉田 博
准教授	森川 良忠
研究支援推進員	柳瀬 章
招へい教授	本河 光博
博士研究員	Dinh Van An、濱田 幾太郎、柳澤 将
大学院学生	木崎 栄年、豊田 雅之、福島 鉄也、林田 英樹、豊田 健治、出倉 春彦、 原田 邦彦、江藤 基比古、中野 洋輔、山口 宏信、魚住 昭文、實宝 秀幸、 石定 惇、藤井 将
学部学生	寺谷 祐樹、富永 隆介
事務補佐員	浅田 美香、伊藤 僚子

### a) 概要

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

### b) 成果

#### ・電子励起原子移動を利用した新物質創製法のマテリアルデザイン

電子励起下での原子移動の機構解明とそれに立脚した制御を可能にするシミュレーション技術を開発し、電子励起原子移動による準安定状態を利用した新物質の創製と設計に応用できるようにした。ダイヤモンド、グラファイト、アモルファスシリコンの電子励起原子移動に適用し、原子移動の微視的機構を第一原理計算から明らかにした。また、内殻励起により価電子帯に正孔をドーピングすると基底状態とは逆に、グラファイトよりもダイヤモンドの方が安定化し、常温・定圧でダイヤモンドを創製するためのプロセスのデザインを行った。擬ヤンテラー効果による電子励起原子移動の一般的なメカニズムを提案し、具体的な系にこれを応用した。これらは、最近になって、電子線、放射線、X線励起に伴う内殻励起や価電子帯のレーザー励起により実験的に実証された。さらには、シリコン中不純物の選択的励起による拡散機構をデザインするため、水素 (H)、ボロン (B)、燐 (P) や酸素 (O) の電子励起による拡散促進についても第一原理分子動力学シミュレーションを行った。

#### ・半導体ナノスピントロニクのためのマテリアルデザインとスピン制御法の予測

第一原理計算に基づいて、磁性不純物を含むII-VI族半導体、III-V族半導体、ZnO、CuAlO<sub>2</sub>などの透明酸化物の価電子制御法とスピン間相互作用に関する電子状態の第一原理計算を行い、二重交換相互作用やp-d交換相互作用による長距離のキャリア誘起強磁性機構と、短距離の強磁性及び反強磁性超交換相互作用との競合による強磁性発現機構を解明した。これらの計算結果に基づいて透明強磁性体のマテリアルデザインを行った。さらに高い強磁性転移温度を持つ物質のデザインを行った。第一原理計算により磁気力定理から交換相互作用の距離依存性を計算し、その結果に基づいてモンテカルロ計算により、精密に強磁性転移温度を予測し、デザインする方法論を開発した。II-VI族半導体やIII-V族半導体ベースの希薄強磁性半導体について強磁性転移温度( $T_C$ )を第一原理からデザインし、不純物が一様に分布する系では理論的予測と実験的検証が良い一致を示した。また、非一様なナノスケールの析出機構を予測した。

透明な酸化物であるCuAlO<sub>2</sub>をベースとした強磁性透明ハーフメタリック材料デザインをおこなった。Cu位置とAl位置を遷移金属不純物で置換することにより完全スピン分極強磁性体をデザインし、その強磁性機構が二重交換相互作用と超交換相互作用との競合で決まる一般則を発見した。高スピン状態と低スピン状態について3d遷移金属不純物の入る結晶学的位置を制御した強磁性安定化エネルギーの計算と強磁性転移温度の予測、およびアクセプターやドナーによる磁性のドーピング依存性の予測を行った。

#### ・ナノスケールのスピノーダル分解を用いた高い強磁性転移温度を持つナノ超構造の材料デザイン

透明なワイドバンドギャップ希薄強磁性半導体では、磁性イオン間に強い引力が働き非平衡結晶成長法によりナノスケールのスピノーダル分解が生じることがシミュレーションにより明らかになり、これらを制御・利用することにより、高い強磁性転移温度を持ち、擬次元ナノ超構造を持つテラビット密度のナノ強磁性体を自己組織化によるボトムアップ・ナノテクノロジーで、しかも、高速に創製する非平衡結晶成長手法を発見し、デバイス応用に必要なデバイス・プロセスデザインを行った。今までの強磁性体の概念になかったようなエキゾチックなナノ強磁性体をデザインし、実験グループに検証を依頼した。その結果、(Ga,Cr)N, (Zn,Co)O, (Zn,Cr)Te, (Al,Cr)N, (Ga,Mn)N, GeMnなどで、このようなナノ強磁性体の存在が明らかになった。

#### ・磁性不純物（遷移金属や希土類金属）を含まないハーフメタル室温強磁性半導体の材料デザイン

第一原理計算に基づいて、磁性不純物（遷移金属や希土類金属）を含まないハーフメタル強磁性半導体の材料デザインをおこなった。ダイヤモンドに同時ドーピングしたBとH, PとH, もしくはSiO<sub>2</sub>にドーピングしたN, CaO, BaO, SrO, MgOなどのイオン結晶中にドーピングしたB, C, Nなどの深い不純物バンドのバンド幅は狭く、電子相関エネルギーとの競合により、磁性状態が実現し、さらに、不純物状態による二重交換相互作用や強磁性的超交換相互作用を不純物濃度によってバンド幅を制御することにより強磁性状態を安定化させるための材料デザインを行った。また、自己相互作用補正の効果を取り入れて、モンテカルロ法により強磁性転移温度を正確に予測した。

#### ・ワイドギャップ透明半導体の価電子制御と新機能性の材料デザイン

ワイドバンドギャップ半導体、CuAlO<sub>2</sub>やダイヤモンドにおいて、第一原理計算からアクセプター不純物、原子空孔、侵入型原子の形成エネルギーや不純物準位を予測し、価電子制御のためのアクセプターやドナーの補償機構を解明し、低抵抗化のためのアクセプターとドナーの同時ドーピング法による不純物バンドを利用した新しい価電子制御法の材料デザインを行った。これらの系についての同時ドーピング法による価電子制御法の予言はその後、実験的に検証された。また、これらの価電子制御に基づいたp型透明酸化物伝導体や透明超伝導体、また高効率熱電機能の材料デザインをおこなった。

#### ・シリコン中の遷移金属不純物のゲッターリングの機構とゲッターリングセンターの材料デザイン

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

#### ・白金電極界面における水素原子の挙動

本研究では密度汎関数法を用い、白金表面上における水素の安定性と振動状態を第一原理的に計算した。超高真空における水素吸着白金表面の計算だけではなく、被覆率、電場、および溶媒分子である水の効果を系統的に取り入れた計算を行い、水素原子の安定性と振動状態に対する電気化学的環境のおよぼす影響を検討した。最近、國松らは電気化学的な実験を行い、水素発生領域において白金(111)表面上のオントップサイトに吸着している水素の伸縮振動モード( $\nu_{Pt-H}$ )を観測し、その電位依存性を報

告している。我々はこの振動モードに着目して、 $\nu_{\text{Pt-H}}$ の吸着水素の被覆率と電場依存性、さらに水の溶媒効果の詳細を調べた。その結果、溶媒効果、電場効果の振動数に対する影響はそれほど小さくなく、被覆率の増加による影響が最も大きいことが明らかとなった。

#### ・有機/金属界面の電子構造

本年は、簡単なモデルであるにもかかわらず、有機/金属界面での電子準位接続を良く再現するモデルとして提案されている、Induced Density of Interface State (IDIS)モデルについて、その妥当性と適用限界について詳しく検討した。分子が基板金属から離れている領域( $Z_C > 0.32\text{nm}$ )では、分子から基板へ電子移動が起こり、IDISモデルを用いた界面電気二重層  $\Delta_{\text{IDIS}}$ は負の値になる。この結果はGGAにより精度良く見積もった界面電気二重層  $\Delta_{\text{GGA}}$ と良く一致している。ところが、分子が基板に近い( $Z_C < 0.32\text{nm}$ )領域では、基板から分子の非占有状態への電子移動が起こり、 $\Delta_{\text{IDIS}}$ と  $\Delta_{\text{GGA}}$ の一致は悪くなる。すなわち、分子軌道と基板金属の軌道混成が顕著になる領域ではIDISモデルはうまく働かないことが判る。今後、さらに、軌道混成を取り入れたモデルを構築していく必要がある。

#### ・分子スケールエレクトロニクスにおける電極表面上での分子スイッチの機構解明

分子スイッチの機構解明の研究をさらに進め、表面での電場が吸着有機分子の構造と電子状態に及ぼす影響を詳しく調べた。特に、分子構造の違いによる影響の違いを詳しく調べた。また、ベンゼンチオレート、ベンゼンセレノレート分子のPt(111)表面上での吸着構造と電子状態について実験グループと共同で研究を行った。さらに、有機分子と金属電極とを接続する部位としてDBP-S分子の吸着構造と電子状態について、実験グループと共同で研究を進めた。

#### ・インテリジェント触媒の自己再生機構の解明とデザイン

ペロブスカイト型酸化物に担持されたPd触媒の自己再生機構を解明するため、第一原理電子状態計算と熱力学・統計力学を組み合わせた手法を用いて、Pd, Rh, Pt貴金属のLaFeO<sub>3</sub>, CaTiO<sub>3</sub>ペロブスカイト酸化物への固溶析出状態の安定性について、外部雰囲気ガス依存性を調べた。Pdに関して、LaFeO<sub>3</sub>への固溶/析出の境界が1000Kで酸素分圧が10気圧付近になり、一方、CaTiO<sub>3</sub>への固溶は不安定であることを示し、実験と比較的良く一致する結果が得られた。さらに、CaTiO<sub>3</sub>中への固溶はかなり不安定であることが計算から示されているが、これは、実験的にも固溶しないことが報告されており、よく一致した計算結果を得た。Rhに関しても実験と傾向は一致している。Ptに関してはLaFeO<sub>3</sub>, CaTiO<sub>3</sub>への固溶/析出の境界に近いことは、実験と定性的に一致していることがわかった。以上のように、第一原理電子状態計算により、触媒構造の雰囲気ガス依存性が半定量的に再現できることが明らかとなった。今後はさらに、安定性を支配する要因を明らかにすると共に、固溶-析出の安定性の母体酸化物依存性について広範な材料を調べ、より望ましい貴金属と酸化物の組み合わせを求め、新たな触媒設計の指針を与えることを目指す。

#### [ 原著論文 ]

Theory of ferromagnetic semiconductors, H. Katayama-Yoshida, K. Sato, T. Fukushima, M. Toyoda, H. Kizaki, V. A. Dinh and P. H. Dederichs: Phys. Stat Solidi a, 204 (2007) 15-32.

First-principles study on the ferromagnetism and Curie temperature of Mn-doped AlX and InX (X = N, P, As and Sb), K. Sato, P. H. Dederichs and H. Katayama-Yoshida: J. Phys. Soc. Jpn., 76 (2007) 24717 (12pp).

Computational nano-materials design for high- $T_c$  ferromagnetism in wide-gap magnetic semiconductors, H. Katayama-Yoshida, K. Sato, T. Fukushima, M. Toyoda, H. Kizaki, V. A. Dinh and P. H. Dederichs: J. Magn. Magn. Mater., 310 (2007) 2070-2077.

Ab initio materials design for transparent conducting oxide based new functional materials, H. Katayama-Yoshida, K. Sato, H. Kizaki, H. Funashima, I. Hamada, T. Fukushima, V. A. Dinh, M. Toyoda: Appl. Phys. A, 89 (2007) 19-27.

Super-paramagnetic blocking phenomena and room-temperature ferromagnetism in wide band-gap dilute magnetic semiconductor (Ga, Mn)N, K. Sato, T. Fukushima and H. Katayama-Yoshida: Jpn. J. Appl. Phys., 46 (2007) L682-L684.

Ferromagnetism and spinodal decomposition in dilute magnetic nitride semiconductors, K. Sato, T. Fukushima, H. Katayama-Yoshida: J. Phys. Condens. Matter, 19 (2007) 365121 (8pp).

Dilute magnetic semiconductors based on half-Heusler alloys, T. Fukushima, K. Sato, H. Katayama-Yoshida and P. H. Dederichs: J. Phys. Soc. Jpn., 76 (2007) 94713-1-5.

Computational nano-materials design for colossal thermoelectric-cooling power by adiabatic spin-entropy expansion in nano-superstructures, H. Katayama-Yoshida, T. Fukushima, V. A. Dinh and K. Sato: Jpn. J. Appl. Phys., 46 (2007) L777-L779.

Trends of exchange interactions in dilute magnetic semiconductors, B. Belhadji, L. Bergqvist, R. Zeller, P. H. Dederichs, K. Sato and H. Katayama-Yoshida: J. Phys. Condens. Matter, 19 (2007) 436227 (12pp).

First-principles study of the superexchange interaction in (Ga, Mn)V (V = N, P, As and Sb), Y. H. Chang, C. H. Park, K. Sato and H. Katayama-Yoshida: Phys. Rev. B, 76 (2007) 125211 (7pp).

Design of colossal solubility of magnetic impurities for semiconductor spintronics by the co-doping method, K. Sato and H. Katayama-Yoshida: Jpn. J. Appl. Phys., 46 (2007) L1120-L1122.

Atom relaxation of H in silicon, K. Shirai, H. Dekura and H. Katayama-Yoshida: J. Phys.: Conference Series, 92 (2007) 012147-012150.

On the elastic softening due to a vacancy in Si, J. Ishisada, K. Shirai, H. Dekura and H. Katayama-Yoshida: J. Phys.: Conference Series, 92 (2007) 012063-012066.

Control of Impurity Diffusion in Silicon by IR Laser Excitation, K. Shirai, H. Yamaguchi and H. Katayama-Yoshida: J. Phys. Condens. Matter, 19 (2007) 365207 (7pp).

Valence Control of  $\alpha$ -rhombohedral Boron by Electronic Doping, H. Dekura, K. Shirai and H. Katayama-Yoshida: J. Phys. Condens. Matter, 19 (2007) 365241 (8pp).

Control of impurity diffusion by IR excitations, K. Shirai, H. Yamaguchi and H. Katayama-Yoshida: Physica B, 401-402 (2007) 682-685.

Valence control and metallization of boron by electronic doping, H. Dekura, K. Shirai and H. Katayama-Yoshida: Physica B, 401-402 (2007) 702-705.

Diffusion of TM impurities in silicon, K. Matsukawa, K. Shirai, H. Yamaguchi and H. Katayama-Yoshida: Physica B, 401-402 (2007) 151-154.

First-Principles Molecular Dynamics Simulation of biased Electrode/Solution Interface, O. Sugino, I. Hamada, M.



Otani, Y. Morikawa, Y. Okamoto and T. Ikeshoji: Surf. Sci., 601 (2007) 5237-5240.

Oxygen at high pressures: a theoretical approach to monoatomic phases, T. Oda, K. Sugimori, H. Nagao, I. Hamada, S. Kagayama, M. Geshi, H. Nagara, K. Kusakabe, N. Suzuki: J. Phys. Condens. Matter, 19 (2007) 365211 (7pp).

Comparison of localized basis and plane-wave basis for density-functional calculations of organic molecules on metals, K.H. Lee, J.J. Yu, and Y. Morikawa: Phys. Rev. B, 75 (2007) 045402-1-5.

A First-principles Investigation on the Mechanism of Nitrogen Dissolution in the Na Flux Method, M. Kawahara, F. Kawamura, M. Yoshimura, Y. Mori, T. Sasaki, S. Yanagisawa and Y. Morikawa: J. Appl. Phys., 101 (2007) 066106-1-3.

First-principles molecular dynamics study of Al/Alq<sub>3</sub> interfaces, K. Takeuchi, S. Yanagisawa and Y. Morikawa: Sci. Tech. Adv. Mater., 8 (2007) 191-195.

A first-principles study on nitrogen solubility in Na flux toward theoretical search for a novel flux for bulk GaN growth, M. Kawahara, F. Kawamura, M. Yoshimura, Y. Mori, T. Sasaki, S. Yanagisawa and Y. Morikawa: J. Crystal Growth, 303 (2007) 34-36.

A New Aspect of Heterogeneous Catalysis: Highly Reactive cis-(NO)<sub>2</sub> Dimer and Eley-Rideal Mechanism for NO-CO Reaction on a Co-Dimer/ $\gamma$ -Alumina Catalyst, T. Taniike, M. Tada, R. Coquet, Y. Morikawa, T. Sasaki and Y. Iwasawa: Chem. Phys. Lett., 443 (2007) 66-70.

Local Electronic Properties Induced at the Molecule-Metal Interface, S. Masuda, Y. Koide, M. Aoki and Y. Morikawa: J. Phys. Chem. C, 111 (2007) 11747-11750.

Adsorption state of methylthiolate on the Au(111) surface, A. Nagoya and Y. Morikawa: J. Phys. Condensed Matter, 19 (2007) 365245 (7pp).

Origin of strange vibrational spectra of NO on Pt(111) surface, H. Aizawa, Y. Morikawa, S. Tsuneyuki, K. Fukutani and T. Ohno: e-J. Surf. Sci. and Nanotech., 5 (2007) 122-125.

Effective Exchange interactions in CuAlO<sub>2</sub>-based dilute magnetic semiconductors by first-principles calculations, H. Kizaki, K. Sato and H. Katayama-Yoshida: Physica B, 401 (2007) 462-464.

New high-*T<sub>c</sub>* half-Heusler ferromagnets NiMnZ (Z = Si, P, Ge, As), V. A. Dinh, K. Sato and H. Katayama-Yoshida: J. Phys. Soc. Jpn., 77 (2008) 14705-1-6.

Electrode Dynamics from First Principles, M. Otani, I. Hamada, O. Sugino, Y. Morikawa, Y. Okamoto, T. Ikeshoji: J. Phys. Soc. Jpn., 77 (2008) 024802-1-6.

## [ 解説、総説 ]

TiO<sub>2</sub>(110)表面の化学反応の理論的なアプローチ, 森川良忠, 表面科学, 28 (10) (2007) 556-560.

第一原理電子状態計算による赤外吸収分光, および, 高分解能電子エネルギー損失分光(HREELS)の評

価, 森川良忠, 表面科学, 29 (3) (2008)202-205

[ 著書 ]

“Magnetism in Semiconducting Oxides” (Ed. N. G. Hong) Chap. 1 ‘Computational materials design of ZnO-based semiconductor spintronics’, K. Sato, M. Toyoda, T. Fukushima, V. A. Dinh, H. Kizaki and H. Katayama-Yoshida, Transworld research network, (2007) 1-21

[ 特許 ]

「強磁性 III-V 族系化合物及びその強磁性特性の調整方法」吉田博、佐藤和則、特許第 3989182 号

「強磁性 II-VI 族系化合物及びその強磁性特性の調整方法」吉田博、佐藤和則、特許第 3998425 号

“Magnetoresistive Random-Access Memory Device”, H. Yoshida, K. Sato, US patent US 7, 164, 180 B2

“Circular Polarization Spin Semiconductor Laser Using Magnetic Semiconductor and Laser Beam Generating Method”, H. Yoshida, K. Sato, US patent US 7,254,150 B2

「II-VI 族または III-V 族系単結晶強磁性化合物及びその強磁性特性の調整方法」吉田博、佐藤和則、中国特許第 02 805828.3 号

「強磁性 IV 族系半導体、強磁性 III-V 族系化合物半導体、または強磁性 II-VI 族系化合物半導体とその強磁性特性の調整方法」吉田博、佐藤和則、韓国特許第 10-0703154 号

「強磁性 GaN 系混晶化合物およびその強磁性特性の調整方法」吉田博、佐藤和則、特許第 3938284 号

「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、特許第 3953238 号

[ 国際会議 ]

Ab initio Materials Design for Room Temperature Ferromagnetism in Diluted Magnetic Semiconductors (invited), H. Katayama-Yoshida, K. Sato, T. Fukushima, M. Toyoda, H. Kizaki, V. A. Dinh and P. H. Dederichs: MRS Spring Meeting, San Francisco, USA, April 9-13, 2007.

Materials Design of CuAlO<sub>2</sub>-based Dilute Magnetic Semiconductors for Semiconductor Spintronics (poster), H. Kizaki, K. Sato, H. Katayama-Yoshida: MRS Spring Meeting, San Francisco, USA, April 9-13, 2007.

Computational nano-materials design for semiconductor spintronics (invited), H. Katayama-Yoshida: International conference on Nanospintronic Design and Realization (ICNDR2007), Dresden, Germany, May 21-25, 2007.

Spinodal decomposition thermodynamics and nano-scale phase separations in half-Heusler compounds XYZ from first principle calculations (poster), V. A. Dinh: International conference on Nanospintronic Design and Realization (ICNDR2007), Dresden, Germany, May 21-25, 2007.

First-principles design of fabrication process for tera-bit-density nano-magnets in dilute magnetic semiconductors (poster), T. Fukushima: International conference on Nanospintronic Design and Realization (ICNDR2007), Dresden, Germany, May 21-25, 2007.

Ferromagnetism in Half-Heusler  $\text{Fe}_2\text{A}$  (A=Si, B, C and N) (poster), V. A. Dinh, K. Sato, H. Katayama-Yoshida: 4th International School and Conference on Spintronics and Quantum Information Technology (Spintech-IV), Hawaii, USA, June 17-22, 2007.

Ab initio Design of Self-Organized Tera-Bit Density Nano-Magnets in Dilute Magnetic Semiconductors by Spinodal Decomposition (poster), T. Fukushima, K. Sato, H. Katayama-Yoshida, P. H. Dederichs: 4th International School and Conference on Spintronics and Quantum Information Technology (Spintech-IV), Hawaii, USA, June 17-22, 2007.

Curie Temperature of  $\text{CuAlO}_2$  Based Dilute Magnetic Semiconductors by First-Principles Calculations and Monte Carlo Simulations (poster), H. Kizaki, K. Sato, H. Katayama-Yoshida: 4th International School and Conference on Spintronics and Quantum Information Technology (Spintech-IV), Hawaii, USA, June 17-22, 2007.

First-Principles SIC-LDA Studies of Magnetism in Transition-Metal-Doped ZnO (poster), M. Toyoda, H. Akai, K. Sato, H. Katayama-Yoshida: 4th International School and Conference on Spintronics and Quantum Information Technology (Spintech-IV), Hawaii, USA, June 17-22, 2007.

First-principles molecular dynamics simulation of chemical reactions at electrode surfaces (invited), Y. Morikawa: Joint Symposium on Fundamental Aspects of Nanostructured Materials and Electrocatalysis, Hokkaido, Japan, June 22-23, 2007.

First principles simulations of electrochemical reactions at the water/Pt(111) interface, I. Hamada, M. Otani, Y. Morikawa, O. Sugino, Y. Okamoto, T. Ikeshoji: International Conference on Electrified Interfaces 2007 (ICEI 2007), Hokkaido, Japan, June 24- 29, 2007.

Theoretical analysis of Hydrogen on Pt(111): effect of coverage and an electric field (poster), I. Hamada, Y. Morikawa: International Conference on Electrified Interfaces 2007 (ICEI 2007), Hokkaido, Japan, June 24- 29, 2007.

Atom relaxation of H in silicon, K. Shirai, H. Dekura and H. Katayama-Yoshida: 12th International Conference on Phonon Scattering in Condensed Matter, Paris, France, July 15-20, 2007.

On the elastic softening due to a vacancy in Si (poster), J. Ishisada, K. Shirai, H. Dekura and H. Katayama-Yoshida: 12th International Conference on Phonon Scattering in Condensed Matter, Paris, France, July 15-20, 2007.

Valence control and metallization of boron by electronic doping (poster), H. Dekura, K. Shirai and H. Katayama-Yoshida: 24th International Conference on Defects in Semiconductors (ICDS-24), Albuquerque, USA, July 22-27, 2007.

#### [ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

- |       |   |
|-------|---|
| 吉田 博  | 第 24 回半導体中の欠陥国際会議(ICDS-24) (国際運営委員)   |
| 吉田 博  | International conference on Quantum Simulators and Design (組織委員)                        |
| 吉田 博  | 第 4 回半導体中のスピンに関連する物理と応用国際会議 (PASPS-VI) (国際諮問委員及びプログラム委員)                                |
| 森川 良忠 | International Symposium on Theories of Organic/Metal Interfaces 2007 (ISTOMI07) (組織委員長) |

[ 国内学会 ]

日本物理学会	16 件
応用物理学会	9 件
PASPS-12	7 件
その他	4 件

[ 取得学位 ]

修士 (工学)	
中野 洋輔	ベンゼン/金属、ペンタセン/金属界面における界面電気二重層の理論的研究
修士 (理学)	
江藤 基比古	スピノーダル分解を利用した $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ におけるナノ超構造のデザイン
山口 宏信	シリコン中における銅不純物の安定位置と電子状態
博士 (理学)	
木崎 栄年	酸化物半導体スピントロニクスのための第一原理マテリアルデザイン
豊田 雅之	第一原理電子状態計算における自己相互作用補正の開発と応用:スピントロニクス材料のマテリアル・デザイン
福島 鉄也	第一原理計算と統計力学的手法を用いた希薄磁性半導体の電子構造と有限温度磁性の研究

[ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)		単位: 千円
特定領域研究		
森川 良忠	サブミクロンサイズ量子シミュレータの開発・公開・応用	2,300
森川 良忠	超並列大規模量子ダイナミクスシミュレータの開発・応用	12,700
(分担者として配分されたもの)		
特定領域研究		
森川 良忠	ナノリンク分子の理論	2,900
特定領域研究		
森川 良忠	新型多機能ナノチューブデバイスのデザイン	

[ 受託研究 ]

森川 良忠	科学技術振興機構 戦略的基礎研究(CREST)	単一分子伝導・接合シミュレーション	10,110
森川 良忠	科学技術振興機構 戦略的基礎研究(CREST)	電極二相界面のナノ領域シミュレーション	12,010
森川 良忠	科学技術振興機構 元素戦略プロジェクト	脱貴金属を目指すナノ粒子自己形成触媒の新規発掘 (ナノ粒子自己形成触媒の解明と脱貴金属触媒のデザインの理論的研究)	

[ 共同研究 ]

吉田 博	科学技術振興機構	先端計測・分析技術に関する調査研究	1,960
吉田 博	日本原子力研究機構	グリッド環境における物性解析・	

森川 良忠	豊田中央研究所	材料設計シミュレーション LDA+U 法の第一原理計算アルゴ リズム開発	1,800
森川 良忠	松下電器産業	第一原理計算による有機・金属界 面の解析に関する研究	1,500
森川 良忠	神戸製鋼所	第一原理計算による界面構造シミ ュレーションの研究	1,045

# 高次制御材料科学研究部門

## 概要

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

## 成果

- Fe 基バルク金属ガラスの熱処理に伴う局所構造変化
- 強磁性合金ナノ粒子分散膜の第 3 元素添加による高配向化と低温合成
- 複合酸化物セラミックスにおける照射誘起構造変化
- 連続鋳造法を用いたロータス型ポーラス炭素鋼の量産化技術の開発と軽量・制振性工作機械移動体への応用
- ガス元素を含む化合物の熱分解法によるロータス型ポーラス金属の製法の発明
- 拡散のカーケンドール効果を利用したナノ中空金属球の創製
- レーザープロセスによる機能調和人工格子、ヘテロ構造スピンドバイスの創成
- SPM による DNA 等のバイオ分子の観察とマニピュレーション
- DNA を用いたバイオ分子デバイスの開発
- 硝酸酸化法を用いる SiO<sub>2</sub>/Si 構造の低温創製と TFT への応用
- 欠陥消滅型半導体洗浄技術の開発と半導体デバイスの高性能化
- SiC の低温酸化法の開発と SiC-MOS デバイスの高性能化
- 低次元ナノ構造制御による多機能型セラミックス及びポリマーナノコンポジットの創製と応用
- 酸化物ナノチューブ系材料の高次機能化ならびに環境エネルギーシステムへの応用
- 光誘起相転移による新物質構造相の創製と評価
- 光励起による半導体表面構造不安定性の原理の確立
- 半導体表面における超高速キャリア動力学的研究

## 材料機能物性研究分野

教授	弘津 禎彦
准教授	石丸 学
助教	平田 秋彦、佐藤 和久 (平成 20 年 10 月 31 日迄)
博士研究員	Andras Kovács、元 鍾漢
大学院学生	柳 韓尉、川原直人、木村洋介、中村文彦、山本 悌
事務補佐員	富井 茂子

### a) 概要

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

### b) 成果

#### ・ Fe 基バルク金属ガラスの熱処理に伴う局所構造変化

本年度は、主にFe基バルク金属ガラスの相安定性を構造的観点から調べるため、熱処理による局所構造変化および結晶化挙動の特徴について透過型電子顕微鏡法を用いて研究を行い、以下の成果を得た。(1)FeCoSiBNbバルク金属ガラスにおいて、結晶化温度近傍での熱処理により複雑なFe<sub>23</sub>B<sub>6</sub>構造を有するナノ結晶組織が得られた。ガラス転移点以下での保持では中範囲規則領域の発達が見られたが、その構造的特徴は初期結晶相とは異なっていた。一方、ガラス転移点近傍で保持することで、結晶相の特徴が徐々に現れ始め、その臨界粒サイズは 5nm前後であることが明らかとなった。(2)FeSiBPバルク金属ガラスの結晶化過程においては、一次元長周期を有する複雑化合物相が初期析出相として出現することを見出した。またガラス転移点以下での保持により中範囲規則領域の発達が見られたが、その構造は初期結晶相の特徴とは異なっていることが明らかとなった。以上の結果より、初期結晶相が複雑構造であることに加え、結晶相とは異なる特徴を持った中範囲規則構造の形成が、バルク金属ガラス中での結晶核生成の抑制に寄与するものと思われる。

#### ・ 強磁性合金ナノ粒子分散膜の第3元素添加による高配向化と低温合成

近年、高密度磁気記録媒体への応用として、L1<sub>0</sub>-型構造を持つFePt、FePd系ナノ粒子膜の合成が注目されて来ている。これらの規則合金では、高い結晶磁気異方性により高保磁力は得られるが、応用に向かうためには、(a)同じ結晶方位を持つナノ粒子の2次元的高密度分散、更に、(b)同じ結晶方位を持つナノ粒子の2次元規則配列化、また、(c)これらの形態を持つナノ粒子膜の低温合成、などの手法を確立することが重要となり、多くの方法が試みられている。本年度は、第3元素添加に注目し、(a)、(c)に関する研究を行い、以下の成果が得られた。(1)岩塩(001)基板上で、Pd/Co/Feの順で逐次蒸着(基板温度 200°C)を行い、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>アモルファス膜を蒸着後、525°Cにてアニールを施し、L1<sub>0</sub>-(FeCo)<sub>49</sub>Pd<sub>51</sub>ナノ粒子膜を作製した。Co添加により、L1<sub>0</sub>-(FeCo)<sub>49</sub>Pd<sub>51</sub>ナノ粒子のc-軸(容易磁化軸)が膜面垂直となり、優れた垂直磁気特性(SQUIDによる磁化曲線測定)を示すことが判明した。また、Co添加量の増加(12at%までL1<sub>0</sub>相)により保磁力は減少するが磁化は増大(Co無添加と比べ12at%Coで14%増大)することが判明した。(2)RFマグネトロンスパッタ法により、岩塩基板温度~350°CでのL1<sub>0</sub>-FePt系ナノ粒子の合成を行うため、融点降下により拡散を早めることが期待できるCuの添加を行った。340°Cの基板温度でのFeCuPtのスパッ

タ堆積により、L1<sub>0</sub>-FeCuPtナノ粒子が直接、アニールなしで合成できることを見出した。

#### ・複合酸化物セラミックスにおける照射誘起構造変化

放射性廃棄物処理用コンテナ材料の候補としては、優れた耐照射性を有することが1つの条件として挙げられる。我々は耐照射性材料の開発指針を確立するため、蛍石型構造に関連した複合酸化物セラミックスの照射挙動を系統的に調べた。その結果、温度-組成状態図において規則相の高温側に不規則相が存在する場合は、非晶質化が抑制される、換言すれば耐照射性に優れることを見いだした。この傾向は、蛍石型以外の構造を有する複合酸化物に対しても有効であると考えられる。また、イオン照射 $\delta$ -Sc<sub>4</sub>Zr<sub>3</sub>O<sub>12</sub>において不規則相から新たな規則相が形成されるという、特異な振る舞いを見いだした。電子回折により決定された空間群および消滅則から、この規則相はC-希土構造（ビクスピアイト型構造）を有することが明らかとなった。

#### [ 原著論文 ]

Direct Imaging of Local Atomic Ordering in a Pd-Ni-P Bulk Metallic Glass using Cs-Corrected Transmission Electron Microscopy, A. Hirata, Y. Hirotsu, T. G. Nieh, T. Ohkubo, N. Tanaka: *Ultramicroscopy*, 107 (2007) 116-123.

Mössbauer Study of Ultrathin Fe/Al Multilayer Films, D. Kaptás, J. Balogh, T. Kemény, L. F. Kiss, L. Bujdosó, A. Kovács, A. Hirata, I. Vincze: *Phys. Rev. B*, 75 (2007) 014417(1)- 014417(9).

Local Atomic Structure Analysis of Zr-Ni and Zr-Cu Metallic Glasses using Electron Diffraction, A. Hirata, T. Morino, Y. Hirotsu, K. Itoh, T. Fukunaga: *Mater. Trans.*, 48 (2007) 1229-1303.

Voronoi Analysis of the Structure of Ni-Zr-Al Ternary Metallic Glass, T. Fukunaga, K. Itoh, T. Otomo, K. Mori, M. Sugiyama, H. Kato, M. Hasegawa, A. Hirata, Y. Hirotsu, A. C. Hannon: *Mater. Trans.*, 48 (2007) 1698-1702.

Structural Analysis of BiFeO<sub>3</sub> Polycrystalline Films by Transmission Electron Microscopy, H. Naganuma, A. Kovács, A. Hirata, Y. Hirotsu, S. Okamura: *Mater. Trans.*, 48 (2007) 2370-2377.

Fabrication of L1<sub>0</sub>-PdCoFe Nanocrystalline Particles with Tilted Magnetic Easy Axis, A. Kovács, Y. Hirotsu: *Appl. Phys. Lett.*, 91 (2007) 193106(1)- 193106(3).

Melt-Spun L1<sub>0</sub> Fe-Pt-(Zr, Nb and Ti)-B Nanocrystalline Alloys with High Coercivity, A. Makino, T. Bitoh, A. Inoue, Y. Hirotsu: *Mater. Sci. Eng. A*, 449-451 (2007) 66-70.

Magnetic Properties and Structure of Fe-Pt-M-B (M=Zr, Nb and Ti) Alloys Produced by Quenching Technique, A. Makino, T. Bitoh, A. Inoue, Y. Hirotsu: *J. Alloys Comp.*, 434-435 (2007) 614-617.

Magnetic Properties and Microstructure of FePt-M-B (M=Zr, Nb, La) Films, H. Okumura, S. Nishinakagawa, T. Bitoh, A. Makino, K. Sato, Y. Hirotsu: *J. Magn. Magn. Mater.*, 310 (2007) 2527-2528.

Particle Size Dependence of Atomic Ordering and Magnetic Properties of L1<sub>0</sub>-FePd Nanoparticles, H. Naganuma, K. Sato, Y. Hirotsu: *J. Magn. Magn. Mater.*, 310 (2007) 2356-2358.

Strong Perpendicular Magnetic Anisotropy of Fe-Pd Nanocrystalline Particles Enhanced by Co Addition, A. Kovács, K. Sato, Y. Hirotsu: *J. Appl. Phys.*, 101 (2007) 033910(1)-033910(4).

Low-Temperature Atomic Ordering of Oriented L1<sub>0</sub>-FePtCu Nanoparticles with High Areal-Density



Characterized by Transmission Electron Microscopy and Electron Diffraction, H. W. Ryu, K. Sato, Y. Hirotsu: *Mater. Trans.*, 48 (2007) 903-908.

High-Resolution Transmission Electron Microscopy Analysis of L10 Ordering Process in Fe/Pd Thin Layers, A. Kovács, K. Sato, Y. Hirotsu: *J. Appl. Phys.*, 102 (2007) 123512(1)-123512(4).

Improvement of Structural and Magnetic Properties of L10-FePd Nanocrystals by Co Addition, A. Kovács, K. Sato, Y. Hirotsu: *IEEE Trans. Mag.*, 43 (2007) 3097-3099.

Size-Dependent Structural Transition from Multiple-Twinned Particles to Epitaxial fcc Nanocrystals and Nanocrystal Decay, K. Sato, W. J. Huang, F. Bohra, S. Sivaramakrishnan, A. P. Tedjasaputra, J. M. Zuo: *Phys. Rev. B*, 76 (2007) 144113(1)-144113(8).

Synthesis of Iron Silicides by Electron-Beam Evaporation: Effects of Substrate Pre-Baking Temperature and Fe Deposition Thickness, J. H. Won, K. Sato, M. Ishimaru, Y. Hirotsu: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 46 (2007) 732-737.

Radiation-Induced Amorphization Resistance and Radiation Tolerance in Structurally Related Oxides, K. E. Sickafus, R. W. Grimes, J. A. Valdez, A. Cleave, M. Tang, M. Ishimaru, S. M. Corish, C. R. Stanek, B. P. Uberuaga: *Nature Mater.*, 6 (2007) 217-223.

Effect of Ionization Rates on Dynamic Recovery Processes during Electron-Beam Irradiation of 6H-SiC, I.-T. Bae, W. J. Weber, M. Ishimaru, Y. Hirotsu: *Appl. Phys. Lett.*, 90 (2007) 121910(1)-121910(3).

Exchange Interactions in Hydrogen-Induced Amorphous YFe<sub>2</sub> (invited), K. Suzuki, K. Ishikawa, K. Aoki, J. M. Cadogan, M. Ishimaru, Y. Hirotsu: *J. Non-Cryst. Solids*, 353 (2007) 748-752.

Post-Annealing Recrystallization and Damage Recovery Process in Fe Ion Implanted Si, M. Naito, A. Hirata, M. Ishimaru, Y. Hirotsu: *Nucl. Instrum. Meth. B*, 257 (2007) 340-343.

Surface Sputtering in High-Dose Fe Ion Implanted Si, M. Ishimaru: *Nucl. Instrum. Meth. B*, 258 (2007) 490-492.

Ion-beam-induced phase transformations in delta-Sc<sub>4</sub>Zr<sub>3</sub>O<sub>12</sub>, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, M. Tang, J. A. Valdez, K. E. Sickafus: *J. Appl. Phys.*, 102 (2007) 063532(1)-063532(7).

Formation process of sharp-pointed structures on GaN nanorods during RF-MBE growth and their field emission characteristics, M. Terayama, S. Hasegawa, K. Uchida, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, H. Asahi: *Physica Status Solidi C*, 4 (2007) 2371-2374.

Formation processes of iron silicide nanoparticles studied by ex situ and in situ transmission electron microscopy, J. H. Won, A. Kovács, M. Naito, M. Ishimaru, Y. Hirotsu: *J. Appl. Phys.*, 102 (2007) 103512(1)-103512(7).

Change of Nanostructure in (Fe<sub>0.5</sub>Co<sub>0.5</sub>)<sub>72</sub>B<sub>20</sub>Si<sub>4</sub>Nb<sub>4</sub> Metallic Glass on Annealing, A. Hirata, Y. Hirotsu, K. Amiya, N. Nishiyama, A. Inoue: *Mater. Sci. Forum*, 539-543 (2007) 2077-2081.

Low-Temperature Synthesis of Oriented L10-FePtCu Nanoparticles with High Coercivity, H. W. Ryu, K. Sato, Y. Hirotsu: *Solid State Phenom.*, 124-126 (2007) 855-858.

Structure and Magnetic Properties of Nanocrystalline Pd-Co and Pd-Co-Fe Layers, A. Kovács, K. Sato, Y. Hirotsu: *Solid State Phenom.*, 124-126 (2007) 907-910.

Direct Synthesis of Isolated L10-FePtCu Nanoparticles by RF-Magnetron Sputtering, H. W. Ryu, K. Sato, Y. Hirotsu: Solid State Phenom., 127 (2007) 129-134.

### [ 解説、総説 ]

最新電子線技術、弘津禎彦、吉田陽一、波紋 17 (2007) 75-80.

アモルファス鉄シリサイド薄膜の局所構造と結晶化過程、内藤宗幸、平田秋彦、石丸 学、弘津禎彦、日本結晶学会誌 49 (2007) 115-121.

金属ガラスの電子線局所構造解析、平田秋彦、弘津禎彦、日本結晶学会誌 49 (2007) 122-128.

相変化光記録材料の電子線構造解析、内藤宗幸、石丸 学、弘津禎彦、あたりあ 46 (2007) 652-659.

$\delta$ -Sc<sub>4</sub>Zr<sub>3</sub>O<sub>12</sub>におけるイオン照射誘起構造変化の透過電子顕微鏡法による解析、石丸 学、日本結晶学会誌 49 (2007) 328-334.

### [ 国際会議 ]

Temperature dependence of electron-beam-induced effects in amorphous apatite (poster), I.-T. Bae, Y. Zhang, W. J. Weber, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, M. Higuchi: The 14th International Conference on Radiation Effects in Insulators, Caen-France (August 28-September 1, 2005).

A surprising crystal structure produced by an ion-beam-induced phase transformation in d-Sc<sub>4</sub>Zr<sub>3</sub>O<sub>12</sub>, K. E. Sickafus, B. P. Uberuaga, C. R. Stanek, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, J. A. Valdez, M. Tang, P. Hosemann, and A. L. Johnson, H. T. Thao: The 14th International Conference on Radiation Effects in Insulators, Caen-France (August 28-September 1, 2005).

Structural characterization of ion-beam-induced amorphous silicon carbide by advanced electron microscopy (invited), M. Ishimaru: 15th International Conference on Surface Modification of Materials by Ion Beams, Mumbai, India (September 30 - October 5, 2007).

In situ TEM study on the formation process of iron silicide nanoparticles on Si substrate (poster), J. H. Won, A. Kovacs, M. Ishimaru, Y. Hirotsu: Materials Research Society 1998 Fall Meeting, Boston, USA (November 26-30, 2007).

Observation of Local Structural Change in the Course of Primary Crystallization of Metallic Glasses (invited), Y. Hirotsu, A. Hirata: 14th International Symposium on Metastable and Nano Materials, Corfu, Greece (August 26-30, 2007).

Medium Range Order Structures and their Changes in the Course of Primary Crystallization in some Metallic Glasses (invited), Y. Hirotsu: WPI & IFCAM Joint Workshop, Sendai (February 18-19, 2008).

Fabrication of Oriented Hard-Magnetic Alloy Nanoparticles and Their Characterization (invited), Y. Hirotsu, K. Sato, A. Kovacs, H. Naganuma, H. W. Ryu: 1st International Symposium on Advanced Magnetic Materials, Jeju, Korea (May 28 - June 1, 2007).

Local Structure Studies of Metallic Glasses using HREM and Electron Diffraction (invited), Y. Hirotsu, A. Hirata,

T. Ohkubo: International Workshop on Bulk Metallic Glasses: Science & Technology, Bangalore, India (January 12-17, 2007).

[ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

弘津 禎彦 7<sup>th</sup> Polish-Japanese Joint Seminar on Micro and Nano Analysis (顧問委員)  
石丸 学 Japanese Journal of Applied Physics (編集委員)

[ 国内学会 ]

日本金属学会	7 件
応用物理学会	3 件
日本顕微鏡学会	4 件

[ 取得学位 ]

修士 (工学)	
川原 直人	Fe-Si-B-P バルク金属ガラスの局所構造と結晶化過程
木村 洋介	硬質磁性 FePt ナノ粒子の構造と磁気特性
博士 (工学)	
柳 韓尉	Low temperature synthesis and characterization of oriented hard magnetic L1 <sub>0</sub> -FePtCu nanoparticles

[ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)		単位: 千円
特定領域研究(2)		
弘津 禎彦	融体・金属ガラスの局所原子構造のその場観察	9,800
基盤研究(S)(2)		
弘津 禎彦	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	14,430
基盤研究(C)		
石丸 学	照射環境下における炭化ケイ素の非晶質化過程と化学的短範囲規則性	2,730
若手研究(B)		
佐藤 和久	L1 <sub>0</sub> 型FePt、FePdナノ粒子構造・磁気物性の透過電子顕微鏡による定量解析	2,500

[ 受託研究 ]

弘津 禎彦	(財)次世代金属・複合材料研究開発協会 NEDO (革新的部材産業創出プログラム)	高機能複合化金属増ガラスを用いた革新的部材技術開発 複合化金属ガラスの微細構造解析	3,150
弘津 禎彦	松下電工(株)	ガラスに塗布された無機及び有機材料の組織形態に関する研究	400

## 金属材料プロセス研究分野

教授	中嶋 英雄
准教授	鈴木 進補
助教	多根 正和、仲村 龍介
特任研究員	金 相烈
研究支援推進員	中居 由忠
大学院学生	久次米 利彦、朴 宰成、井手 拓哉、大西 洋史、Kelly Alvarez 関 宏範、千葉 博、金 泰範、秋田 真吾、渡辺 一功、和田 剛優 川島 多絵、河村 勇樹、谷口 恒太、鄭 鍾錫
研究生	Juan Lobos(2007.10.24-2008.11.1)
事務補佐員	松本 聡子

### a) 概要

金属材料は構造材料や機能材料の基幹材料として我々の生活に不可欠なものであり、新たな需要および技術革新に対してさらに耐熱強靱性、軽量化、高機能化、長寿命化などが要求されてきている。この金属材料を優れた構造材料、機能性材料として開発することを目的とした金属材料プロセスの新しい展開をめざすことが本研究分野の主なテーマである。これまでは、構造材料、機能材料を問わず、合金元素の添加、結晶粒微細化、熱処理などによって組織や結晶構造を制御し、強度をはじめとする種々の材料特性を向上させることに主要な力点が置かれていた。このような観点とは別に、本研究分野では、従来ほとんど注目されていなかった鑄造欠陥と見なされていた気孔を材料特性の向上に利用する試みを行っている。具体的には、融体の凝固制御法や格子欠陥制御法を駆使して、合金、金属間化合物、半導体、セラミックスなどの先端機能性材料を創製し、それらの材料に関する新規物性の探索と発現機構の解明を行うと共に、応用製品化の実現を目指している。

本研究分野では、これまで金属を水素や窒素などの高圧ガス中で溶解し一方向凝固させて孔の向きのそろったロータス（レンコン）型ポーラス金属を作製してきたが、本年度は高圧ガスを使用しない低コストで安全なロータス金属の製法を開発した。また、強度を維持・負荷したロータス金属を開発することを目的として力学物性の解明を行い、実用化を目的としてロータスアルミニウム合金や炭素鋼などの軽量化構造部材の開発、ロータス金属の生体材料への応用開発を行った。また、新規ナノマテリアルの開発を目指して、ナノサイズの気孔を有するナノポーラス金属に関する研究も行っており、本年度は金属ナノ粒子の酸化によって形成される酸化物ナノ中空粒子の構造安定性と内部の孔の消滅メカニズムを明らかにした。

### b) 成果

#### ・化合物の熱分解を利用したロータス金属の新製法の開発

水素や窒素を含む化合物粉末を熔融金属中で熱分解させ、熱分解反応により発生したガス原子を熔融金属に溶解させた後、熔融金属を一方向凝固させることによりロータス金属を作製する方法を開発した。化合物粉末の添加量やアルゴンガス雰囲気圧力を変化させて実験を行い、気孔率や気孔径の制御が可能となった。本方法は水素などの暴爆性ガスを用いずにロータス金属を作製することができ、量産化に極めて有利である。銅以外にも、アルミニウム、マグネシウム、鉄などをこの方法を用いてロータス型に多孔質化することに成功しており、本手法およびロータス金属の広い応用展開が期待される。

#### ・ロータス金属の圧縮および疲労特性の解明

脆性材料であるロータス TiAl やロータスマグネシウムの強度特性に関する研究を行った。ロータス TiAl に対する圧縮試験の結果、0.2%耐力は気孔率の増加に伴い減少し、気孔端部や大きな気孔の近傍に

て起こる局所的な変形および破壊の影響であることを明らかにした。ロータスマグネシウムの疲労強度を調べた結果、負荷の方向に関係なく気孔率の増加に伴い疲労強度は低下すること、破面観察の結果からロータスマグネシウムの破面には凹凸が激しく脆性的な破面を示すことが分かり、ロータスマグネシウムの疲労強度は気孔および母材の特性に影響されることを明らかにした。

#### ・連続鋳造法による実用ロータス金属の作製

これまで開発してきた加圧ガス雰囲気中での連続鋳造法を用い、銅および実用構造材料である Al-Si や炭素鋼等を用いてロータス金属を作製した。作製時の溶湯温度、雰囲気圧力、凝固速度などにより気孔率や気孔径を制御する方法を確立し、実用化のための基礎的研究を行った。これによりロータス金属の低コスト、量産化が可能となり、工作機械、輸送機部品、スポーツ用品、ヒートシンク材、医療材料などの応用分野への実用化に向けた基礎が築かれた。

#### ・生体医療用ロータス型ポーラス Ni フリーステンレス鋼の開発

ロータス型ポーラスステンレス鋼を生体医療用へ応用することを目的として、MRI 断層撮影に影響を与えない程度の低い帯磁率を有し、かつ人間の皮質骨と同程度の圧縮強度を持つロータス型ポーラス Ni フリーステンレス鋼を開発した。強度試験、腐食試験、細胞培養実験、ラット実験を実施した結果、ロータス型ポーラス Ni フリーステンレス鋼が優れた生体適合性を示すことを明らかにした。

#### ・酸化物ナノ中空粒子の構造安定性

Cu および Ni 酸化物ナノ中空粒子を高温でアニールし、中空構造の高温における安定性に関する研究を行った。酸化および還元雰囲気いずれにおいても、高温下では、内部の孔を消滅させるような原子移動が起こることが明らかとなり、中空粒子の収縮が起こる条件を見出した。

### [ 原著論文 ]

Fabrication of Lotus-type Porous Metals by Continuous Zone Melting and Continuous Casting Techniques, H. Nakajima, S.-K. Hyun, J.-S. Park, M. Tane: Mater. Sci. Forum, 539-543 (2007) 187-192.

Lotus-Type Porous Nickel-free Stainless Steel with High Temperature Nitriding, K. Alvarez, S.-K. Hyun, H. Nakajima: Mater. Sci. Forum, 539-543 (2007) 756-761.

Fabrication of Lotus-type Porous Copper-Aluminum Alloy by Unidirectional Solidification in Hydrogen Atmosphere, S.-K. Hyun, T. Awadu, T. Ikeda, H. Nakajima: Mater. Sci. Forum, 539-543 (2007) 1898-1902.

Hollow Oxide Formation via Oxidation of Al Nanoparticles at Low Temperatures, R. Nakamura, J.-G. Lee, D. Tokozakura, H. Mori, H. Nakajima: Mater. Sci. Forum, 544-545 (2007) 347-350.

Fabrication of Lotus-type Porous Ni-(15, 28 and 31) at.% Al Alloys by Unidirectional Solidification in Hydrogen Atmosphere, S.-K. Hyun, T. Ikeda, H. Nakajima: Mater. Sci. Forum, 544-545 (2007) 323-326.

Formation of Hollow ZnO through Low Temperature Oxidation of Zn Nanoparticles, R. Nakamura, J.-G. Lee, D. Tokozakura, H. Mori, H. Nakajima: Mater. Lett., 61 (4・5) (2007) 1060-1063.

Pore Morphology of Lotus-Type Porous Copper Fabricated by Continuous Casting Technique, J.-S. Park, S.-K. Hyun, M. Tane, H. Nakajima: Solid State Phenomena, 124-126 (2007) 1725-1728.

Fabrication of Lotus-type Porous NiAl and Ni<sub>3</sub>Al intermetallic Compounds, T. Ide, M. Tane, H. Nakajima: Solid State Phenomena, 124-126 (2007) 1721-1724.

Prediction of Laser Fusion Zone Profile lotus-type Porous Metals by 3D Heat Transfer Analysis, T. Tsumura, F. Ye, T. Murakami, H. Nakajima, K. Nakata: *Solid State Phenomena*, 127 (2007) 307-312.

Extended Mean-field Method for Predicting Yield Behaviors of Porous Materials, M. Tane, T. Ichitsubo, M. Hirao, H. Nakajima: *Mech. Mater.*, 39 (1) (2007) 53-63.

Fabrication of Lotus-type Porous NiTi Shape Memory Alloys using the Continuous Zone Melting Method and Tensile Property, M. Sugiyama, S.K. Hyun, M. Tane, H. Nakajima: *High Temp. Mater. Proces.*, 26 (4) (2007) 297-301.

Hollow Oxide Formation by Oxidation of Al and Cu Nanoparticles, R. Nakamura, D. Tokozakura, H. Nakajima, J.-G. Lee, H. Mori: *J. Appl. Phys.*, 101 (7) (2007) 74303.

Fabrication, Properties and Application of Porous Metals with Directional Pores, H. Nakajima: *Prog. Mater. Sci.*, 52 (7) (2007) 1091-1173.

Three-dimensional Image-based Modeling of Lotus-type Porous Carbon Steel and Simulation of its Mechanical Behavior by Finite Element Method, T. Kujime, M. Tane, S.-K. Hyun, H. Nakajima: *Mater. Sci. Eng. A*, 460-461 (2007) 220-226.

Effects of Pore Morphology on Fatigue Strength and Fracture Surface of Lotus-type Porous Copper, H. Seki, M. Tane, M. Otsuka, H. Nakajima: *J. Mater. Res.*, 22 (7) (2007) 1331-1338.

生体材料最適形状設計のための金属インプラント周囲ならびに一方向性孔内部に導入される新生骨の骨質評価, 石本卓也, 中野貴由, 寒知子, 大橋芳夫, 藤谷渉, 馬越佑吉, 服部友一, 樋口裕一, 多根正和, 中嶋英雄: *日本金属学会誌*, 71 (4) (2007) 432-438.

Effective-Mean-Field Theory for Electrical Conductivity of Multiphase Composite Materials, M. Tane, H. Nakajima: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 46 (8) (2007) 5221-5225.

Anisotropic Fusion Profile and Joint Strength of Lotus-type Porous Magnesium by Laser Fusion, T. Murakami, T. Tsumura, T. Ikeda, H. Nakajima, K. Nakata: *Mater. Sci. Eng. A*, 456 (2007) 278-285.

Effect of transference velocity and hydrogen pressure on porosity and pore morphology of lotus-type porous copper fabricated by continuous casting technique, J.-S.Park, S.-K.Hyun, S. Suzuki, H. Nakajima: *Acta Mater*, 55 (16) (2007) 5646-5654.

Transmission electron microscopy observation of oxide layer growth on Cu nanoparticles and formation process of hollow oxide particles, D. Tokozakura, R. Nakamura, H. Nakajima, J.-G. Lee, H. Mori: *J. Mater. Res.*, 22 (10) (2007) 2930-2935.

Effects of Anisotropic Pore Structure and Fiber Texture on Fatigue Properties of Lotus-type Porous Magnesium, H. Seki, M. Tane, H. Nakajima: *J. Mater. Res.*, 22 (11) (2007) 3120-3129.

Fatigue strength of lotus-type porous magnesium, H. Seki, M. Tane, H. Nakajima: *Mater. Sci. Forum*, 561-565 (2007) 1681-1684.

Oxidation Behavior of Cu Nanoparticles and Formation of Hollow Cu<sub>2</sub>O Spheres, R. Nakamura, D. Tokozakura,

J.-G. Lee, H. Mori, H. Nakajima: Mater. Sci. Forum, 561-565 (2007) 1703-1706.

Microstructure and Deformation Behavior of Lamellar Ti-rich TiAl Crystal with Lotus-type Aligned Pores, T. Nakano, T. Tachibana, K. Hagihara, Y. Umakoshi, T. Ide, M. Tane and H. Nakajima: Mater. Sci. Forum, 561-565 (2007) 383-386.

ロータス型ポーラス鉄のレーザ溶接, 柳野博泰, 津村卓也, 中嶋英雄, 玄丞均, 中田一博: 日本金属学会誌, 71 (10) (2007) 896-900.

連続鋳造法によるロータス型ポーラス銅の作製, 朴宰成, 玄丞均, 鈴木進補, 中嶋英雄: 銅と銅合金, 46 (1) (2007) 270-273.

ロータス型ポーラス銅の疲労強度に及ぼす気孔率および気孔径分布の影響, 関 宏範, 多根正和, 中嶋英雄, 大塚正久: 銅と銅合金, 46 (1) (2007) 90-94.

Fabrication of Porous Copper with Directional Pores through Thermal Decomposition of Compounds, H. Nakajima, T. Ide: Metal. Mater. Trans. A, 39 (2) (2008) 390-394.

窒素ガスを用いた一方向凝固によるロータス型ポーラス炭素鋼の作製と機械的性質, 檜原 一、米谷周、小尾孝宏、玄 丞均、鈴木進補、中嶋英雄: 鉄と鋼, 94 (1) (2008) 30-34.

Fatigue Crack Initiation and Propagation in Lotus-type Porous Copper, H. Seki, M. Tane, H. Nakajima: Mater. Trans., 49 (1) (2008) 144-150.

Oxidation Behaviour of Ni Nanoparticles and Formation Process of Hollow NiO, R. Nakamura, J.-G. Lee, H. Mori, H. Nakajima: Philos. Mag., 88 (2) (2008) 257-264.

Formation of Hollow Zinc Oxide by Oxidation and Subsequent Thermal Treatment, J.-G. Lee, R. Nakamura, D. Tokozakura, H. Nakajima, H. Mori, J.-H. Lee: Solid State Phenomena, 135 (2008) 11-14.

Fabrication of Porous Magnesium with Directional Pores through Use of Hydrogen Thermally Decomposed from MgH<sub>2</sub> Powders during Unidirectional Solidification, M. Tane, H. Nakajima: J. Mater. Res., 23 (3) (2008) 849-855.

Fabrication and Properties of Lotus-type Porous Nickel-free Stainless Steel with High Temperature Nitriding, K. Alvarez, K. Sato, S.-K. Hyun, H. Nakajima: Mater. Sci. Eng. C, 28 (1) (2008) 44-50.

Corrosion Behaviour of Lotus-type Porous High Nitrogen Nickel-free Stainless Steels, K. Alvarez, S.-K. Hyun, H. Tsuchiya, S. Fujimoto, H. Nakajima: Corro. Sci., 50 (1) (2008) 183-193.

Steady State Comparative-longitudinal Heat Flow Method Using Specimen of Different Thicknesses for Measuring Thermal Conductivity of Lotus-type Porous Metals, H. Chiba, T. Ogushi, H. Nakajima, K. Torii, T. Tomimura, F. Ono: J. Appl. Phys., 103 (1) (2008) 013515.

## [ 解説、総説 ]

ロータス型ポーラス金属の巨視的弾性率予測: 新たな平均場近似法による定量予測, 多根正和、市坪哲、平尾雅彦、中嶋英雄, まてりあ, 46[2] (2007) 70-76.

酸化による金属ナノ粒子の中空化, 仲村龍介, 李正九, 森博太郎, 中嶋英雄, 触媒, 49[5] (2007) 344-349.

TiAl 金属間化合物単結晶における拡散, 野瀬嘉太郎, 寺下直宏, 池田輝之, 中嶋英雄, まてりあ, 46[9] (2007) 587-593.

ロータス型ポーラス炭素鋼の 3D イメージベースモデリングと解析, 久次米利彦, 多根正和, 中嶋英雄, まてりあ, 46[12] (2007) 836.

連続鋳造法によるロータス型ポーラス金属の作製, 鈴木進補, 朴宰成, 玄丞均, 金相烈, 樫原一, 米谷周, 中嶋英雄, 高温学会誌, 34[1] (2008) 38-44.

ロータス型ポーラス金属の疲労強度, 関宏範, 多根正和, 中嶋英雄, 高温学会誌, 34[2] (2008) 56-59.

ロータス型ポーラス金属の航空機用エンジン部材への適用, 永留世一, 田口弘毅, 玄丞均, 中嶋英雄, 高温学会誌, 34[2] (2008) 66-73.

## [ 著書 ]

「Cellular and Porous Materials: Thermal Properties Simulation and Prediction」(A. Ochsner, G. E. Murch, M. J. S. de Lemos 編集), T. Ogushi, H. Chiba, M. Tane, H. Nakajima, WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, (2008) 239-265.

「多孔体の精密制御と機能・物性評価」, 中嶋英雄, サイエンス&テクノロジー, (2008) 53-62.

## [ 特許 ]

「多孔質体の製造方法」中嶋英雄, 井手拓哉, 国際出願番号 PCT/JP2007/062769

「Metal Porous Body Manufacturing Method」中嶋英雄, 国際出願番号 PCT/JP2005/014731

## [ 国際会議 ]

Electrochemical Behavior of High Nitrogen Ni-free Austenitic Stainless Steels in L929 and Cell Culture Medium, \*K. Alvarez, S.-K. Hyun, H. Nakajima, S. Fujimoto: 211th Meeting of The Electrochemical Society.

Fabrication and Functional Properties of Porous Metals with Directional Pores (invited), \*H. Nakajima: Asian Foundry Congress 2007.

Fabrication and Plastic Deformation Process of Lotus-type Porous Metals (poster), \*S. Suzuki, J.-S. Park, S.-K. Hyun, H. Utsunomiya, H. Nakajima: International Workshop for R&D Clustering among China, Japan, Korea in Eco-materials Processing (The 16th JSPS-KOSEF Core University Program (CUP) Seminar between Japan and Korea.

Mechanical Properties of Lotus-type Porous Metals (invited), H. Nakajima, \*M. Tane, S.-K. Hyun, H. Seki: International Union of Theoretical and Applied Mechanics (IUTAM) Symposium on Mechanical Properties of Celluler Materials.

Elastic, Plastic and Electrical Properties of Lotus-Type Porous Metals: Comparison with Effective-Mean-Field and Micromechanical-Mean-Field Theories (keynote), \*M. Tane, H. Nakajima: TMS 2008 137th Annual Meeting & Exhibition.



New Fabrication Method for Lotus-Type Porous Metals and its Application (invited), \*H. Nakajima: 5th International Conference of Porous Metals and Metallic Foams (MetFoam2007).

Fabrication of Lotus-type Porous Carbon-steel by Continuous Casting Technique in Nitrogen Atmosphere, K. Kashihara, \*S. Suzuki, S.-K. Hyun, H. Yonetani, H. Nakajima: 5th International Conference of Porous Metals and Metallic Foams (MetFoam2007).

Equal-channel Angular Extrusion of Lotus-type Porous Copper, \*S. Suzuki, H. Utsunomiya, H. Nakajima: 5th International Conference of Porous Metals and Metallic Foams (MetFoam2007).

Fabrication of Lotus-type Porous Aluminum using Moisture (poster), \*M. Tane, H. Nakajima: 5th International Conference of Porous Metals and Metallic Foams (MetFoam2007).

Fabrication of Lotus-type Porous Magnesium using Hydrogen Desorption from MgH<sub>2</sub> (poster), \*M. Tane, H. Nakajima: 5th International Conference of Porous Metals and Metallic Foams (MetFoam2007).

Effects of pore size distribution and loading direction on fatigue property of lotus-type porous copper with anisotropic pore structure (poster), H. Seki, \*M. Tane, H. Nakajima: 5th International Conference of Porous Metals and Metallic Foams (MetFoam2007).

Fabrication of Lotus-type Porous Magnesium by Continuous Casting Technique (poster), S.-K. Hyun, \*S. Suzuki, H. Nakajima: 5th International Conference of Porous Metals and Metallic Foams (MetFoam2007).

Formation of a Nano-pore during Oxidation of Metal Nanoparticles (poster), \*R. Nakamura, D. Tokozakura, J.-G. Lee, H. Mori, H. Nakajima: 5th International Conference of Porous Metals and Metallic Foams (MetFoam2007).

Impact Properties of Lotus-type Porous Carbon Steel Measured by Instrumented Charpy Testing (poster), \*T. Kujime, S.-K. Hyun, H. Nakajima: 5th International Conference of Porous Metals and Metallic Foams (MetFoam2007).

Fabrication of Lotus-type Porous Al-Si by Continuous Casting Technique (poster), J.-S. Park, S.-K. Hyun, \*S. Suzuki, H. Nakajima: 5th International Conference of Porous Metals and Metallic Foams (MetFoam2007).

Fabrication of Lotus-type Porous Nickel with Atmospheric Pressure and Foaming Agents by Mold Casting Technique, \*S.-Y. Kim, B.-Y. Hur, H. Nakajima: 5th International Conference of Porous Metals and Metallic Foams (MetFoam2007).

Oxidation Behavior of Cu Nanoparticles and Formation of Hollow Cu<sub>2</sub>O Spheres (poster), \*R. Nakamura, D. Tokozakura, J.-G. Lee, H. Mori, H. Nakajima: The Sixth Pacific Rim International Conference on Advanced Materials and Processing (PRICM6).

Fatigue Strength of Lotus-type Porous Magnesium, H. Seki, \*M. Tane, H. Nakajima: The Sixth Pacific Rim International Conference on Advanced Materials and Processing (PRICM6).

Fabrication and Properties of Lotus-Type Porous Metals (invited), \*H. Nakajima: 9th International Symposium on Ecomaterials Processing & Design (ISEPD2008).

Fabrication of Lotus-type Porous Nickel through Thermal Decomposition Method in Ar Atmosphere (poster),

\*S.-Y. Kim, H. Nakajima: 9th International Symposium on Ecomaterials Processing & Design(ISEPD2008).

Structural Stability of Hollow Oxide Nanoparticles at High Temperatures (poster), \*R. Nakamura, H. Nakajima, H. Mori: 11th Sanken, 6th Nanotechnology Center, 1st MSTEC International Symposium.

### [ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

中嶋 英雄	Fifth International Conference on Porous Metals and Metal Foaming Technology (MetFoam2007) (組織委員会委員)
中嶋 英雄	High Temperature Materials and Progress (国際編集委員)
中嶋 英雄	High Temperature Materials and Processes (ゲストエディター)
中嶋 英雄	Advanced Engineering Materials (ゲストエディター)
中嶋 英雄	Materials Transactions (ゲストエディター)
中嶋 英雄	Diffusion and Defect Data (編集顧問)
中嶋 英雄	Materials Science Foundations (編集顧問)
中嶋 英雄	Sixth Pacific Rim International Conference on Materials (PRICM-6) (組織委員会委員)
中嶋 英雄	International Conference on New Frontiers of Process Science and Engineering in Advanced Materials (組織委員会委員)
中嶋 英雄	4th International Conference on Diffusion in Solids and Liquids (名誉組織委員長)
中嶋 英雄	International Conference on Eco-Materials Processing and Design VIII (国際顧問)
中嶋 英雄	2nd International Symposium on Cellular Metals for Structural and Functional Applications (プログラム委員会委員)
中嶋 英雄	International Conference on Advanced Structure and Functional Materials Design (組織委員会委員)
中嶋 英雄	First International Conference on Light Alloy Technology and Application (組織委員会委員)
中嶋 英雄	THRMEC International Conference on Advanced Materials (国際顧問)

### [ 国内学会 ]

日本金属学会	32 件
軽金属学会	3 件
銅および銅合金技術研究会	1 件
日本伝熱シンポジウム	1 件
高温学会	2 件

### [ 取得学位 ]

修士 (工学)	
秋田 真吾	生体用 $\beta$ 型 Ti-Nb-Ta-Zr 合金の弾性挙動
渡辺 一功	化合物の熱分解反応によるロータス型ポーラスアルミニウムの作製
和田 剛優	化合物の熱分解反応によるロータス型ポーラス鉄の作製と気孔形態の制御
博士 (工学)	
久次米 利彦	ロータス型ポーラス炭素鋼の機械的性質の測定と解析
朴 宰成	連続鋳造法を用いたロータス型ポーラス銅および Al-Si 合金の作製
井手 拓哉	ロータス型ポーラスステンレス鋼および金属間化合物の作製と機械的性質
大西 洋史	配向性気孔を有するポーラスニッケルの構造制御および磁気的特性
アルバレス ケリー	生体用ロータス型ポーラス Ni フリーステンレス鋼の作製と評価

## [ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)			単位：千円
基盤研究(S)			
中嶋 英雄	革新的金属ナノ中空球および金属ナノチューブの創製と機能性解明		15,470
若手研究(B)			
鈴木 進補	マルチモールド連铸による異種材料から成る複合ロータス金属の創製		1,000
若手研究(B)			
仲村 龍介	ナノ金属中空多面体の創製および中空化機構の解明		1,000

## [ 受託研究 ]

中嶋 英雄	高度機械加工システム開発事業	軽量高剛性構造材料と評価技術の開発	17,599
中嶋 英雄	科学技術振興機構	産学共同シーズイノベーション化事業: 高熱伝達性ポーラスシリコンヒートシンクの開発	4,893

## [ 奨学寄附金 ]

中嶋 英雄	村山技術士事務所		1,000
中嶋 英雄	ロータスアロイ株式会社		1,000
中嶋 英雄	ロータスアロイ株式会社		6,000
中嶋 英雄	株式会社妙徳		1,000

## [ その他の競争的研究資金 ]

中嶋 英雄	軽金属奨学金	軽金属の物性解明	250
鈴木 進補	池谷科学技術振興財団	連続铸造法による衝撃吸収性を有する軽量高剛性ポーラスアルミニウムの創製と特性評価	1,500
仲村 龍介	日本鉄鋼協会	酸化反応を利用した Fe および Ni ナノ粒子の中空化プロセス	1,500

## 極微プロセス研究分野

教授	川合 知二
特任教授	李 恵りょん
准教授	田中 秀和 (H20.1.15 まで)
助教	田中 裕行、柳田 剛
研究員	Aurelian Marcu、安立 京一 (H20.2.29 まで)、鈴木 直毅、李 奉局、松浦 寛、高見 知秀 (H19.9.30 まで)、金井 真樹、銚之原 瞳、筒井 真楠、高木 昭彦、韓 美正 (H19.4.16 から)
大学院学生	鈴木 光治、山田 郁彦、李 尚恩、高橋 拓也、仲里 卓、小林 匠、横田 一道、長島 一樹、川口 英幸、鷹尾伏 純一、坂本 広明、山中 理、庄司 昂平、五嶋 数哉、岡 敬祐
学部学生	瀬川 祐司、中川 純一、河野 正人、森本 康友
事務補佐員	藤林 乃理子、永井 由美 (H20.1.15 まで)

### a) 概要

私達のグループでは、“すぐれた機能材料・デバイス・システム”の創成に向かって、「多機能が調和した材料・デバイスの科学」「バイオ分子デバイスの科学」を主な研究課題としています。レーザーを用いた原子層制御材料の設計・合成により、通常は実現できない構造や機能を持つ物質・材料を人工的に創りだし、それを“五感センサ・脳型メモリ”へと発展させること、走査プローブ顕微鏡によりDNAなど表面上にある1分子の観察および分光と分子マニピュレーションを行い、バイオ分子デバイスや新しいバイオチップの開発へと展開することを行っています。また、コンピューターを利用して物質の結晶構造変化や電子状態を予測する計算科学も主要な研究課題としています。

主な研究課題としては、①レーザープロセスによる機能調和人工格子及びナノ構造の創成、②SPMによるDNA等のバイオ分子の観察とマニピュレーション、③バイオチップの開発、④DNAを用いたバイオ分子デバイスの開発、が挙げられる。

### b) 成果

#### ・ レーザープロセスによる機能調和人工格子及びナノ構造体の創成

新規強相関電子系強磁性酸化物( $\text{Fe, M})_3\text{O}_4$  ( $\text{M}=\text{Zn, Mn}$ )を設計し、室温における外場応答(磁場・電場)を示す、酸化物スピンドデバイス(強磁性電界効果トランジスタ、ダイオード)の作製に成功した。更に金属酸化物ナノ構造形成技術を開発し(Moナノマスク-AFMナノリソグラフィ法、Moマスク-ナノインプリント法)、多様な遷移金属酸化物薄膜において、超高分解能(30-100nm)および大面積酸化物ナノ構造形成を達成した。自己集合的に形成される30nm以下の酸化物ナノワイヤ( $\text{MgO}$ )を用いて、種々のヘテロナノワイヤ構造体( $\text{MgO/TiO}_2$ ,  $\text{MgO/NiO}$ ,  $\text{MgO/Fe}_3\text{O}_4$ )をin-situで作製することに成功した。

#### ・ SPMによるDNA等のバイオ分子の観察とマニピュレーション

一分子シーケンシングするためのDNA分子の伸張固定方法を独自に開発することにより、7千塩基も有する長い実際のファージDNAの個々のヌクレオチドを走査型トンネル顕微鏡により可視化することに世界で初めて我々は成功しました。その結果、グアニン塩基特有の局所状態密度を可視化・分光及びマッピングに成功し、得られたグアニンの配列パターンが、データベースのそれとほぼ一致することを明らかにしました。一方、膜蛋白質の原子間力顕微鏡(AFM)での観察に向けて、生体膜をより生体に近い測定環境の構築のために、アガロースゲルを使い基板そのものが含水した平坦なAFM観察用基板を開発しました。また、基板上にアセチルコリン受容体を、またカンチレバーにアセチルコリンを修飾し、原子間力顕微鏡による力測定を行いました。現在、詳細な結合過程を明らかにするために、力の速度依存性の測定を試みています。さらに、AFM観察・測定及び電気生理計測の同時計測を実現させるために、脂

質膜及びゲル固定用基板として加熱した探針によりテフロン薄膜に真円に細近い孔を開ける方法を開発しました。

#### ・ ナノバイオチップの開発

次世代医療産業用のナノアレイバイオチップの開発のため、ナノサイズの空間で自己組織化を融合し、人工的な生体膜であるリポソーム分子一つ一つが表面に選択的に固定することに成功しました。親水性・化学結合界面の組み合わせで生体親化成ナノウェルアレイ構造体を製作することにより、生体分子の破壊や凝集体の生成を防ぐことが明らかになった。今後、生体分子数が  $1\text{cm}^2$  あたり  $10^5$ – $10^7$  個で極めて微量試料でも特異的な分子認識を目指す。電氣的信号を適用することにより迅速なデータ処理が可能であり、蛍光分子など修飾が要らないことで安価のチップになる。

#### ・ DNAを用いたバイオ分子デバイスの開発

Poly-L-Lysine のナノパターンニングを、ナノインプリント技術を用いて行うことで、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に初めて成功した。また、DNA をテンプレートに用いた金ナノパーティクルの一次元配列を作製することも可能となった。これを、作製に成功したナノトランスファープリンティングを用いた金ナノ電極と組み合わせることで、バイオ分子デバイスの開発を行っている。さらに、IS-FET を用いた一塩基多型 (SNPs) 検出や塩基に特異的に結合する錯体の開発にも成功した。

#### [ 原著論文 ]

Stepwise Self-Assembled Protein Nanoarray with a Nanoimprinted Poly(Ethylene Glycol) Hydrogel, B.K.Lee, H.Y.Lee, P.N.Kim, K.Y. Suh, J.H.Seo, H.J.Cha, T.Kawai: *Small*, 3 (2008) 342-348.

Molded nanowell electrodes for site-selective single liposome arrays, P.N.Kim, B.K.Lee, H.Y.Lee, T.Kawai, and K.Y. Suh: *Advanced Materials*, 20 (2008) 31-36.

Single Probe DNA Immobilization on Chemically Modified Single Protein by controlling Ionic Strength and PH, R.Yamazaki, M.Ito, B.K.Lee, H.S.Jung, H.Y.Lee, T.Kawai: *Analytica Chimica Acta*, 603 (2007) 76-81.

Analytical studies of penicillamine enantiomer surfaces: the molecularly flat surface and the functionality, W.S.Kim, H.Y.Lee, T.Kawai, H.W.Kang, H.Muramatsu, I.H.Kim, K.M.Park, S.M. Chang, J.M.Kim: *Sensors&Actuators B(chemical)*, 129 (2007) 126-133.

Facile and Rapid Direct Gold Surface Immobilization with Controlled Orientation for Carbohydrates, J.H.Seo, K.Adachi, B.K.Lee, D.G.Kim, Y.K.Kim, K.R.Lee, H.Y.Lee, T.Kawai, H.J.Cha: *Bioconjugate Chemistry*, 18 (2007) 2197-2201.

Electrochemical detection of  $17\beta$ -estradiol using a DNA aptamer immobilized gold electrode chip, Y.S.Kim, H.S.Jung, T.Matsura, H.Y.Lee, T.Kawai, and M.B.Gu: *Biosensor and Bioelectronics*, 22 (2007) 2525-2531.

A review of DNA functionalized/Grafted Carbon Nanotubes and their characterization, S.Daniel, T.P.Rao, Kota S. Rao, S.U.Rani, G.R.K.Naidu, H.Y.Lee, T.Kawai,: *Sensors&Actuators B(chemical)*, 122 (2007) 672-682.

Functional Lipid Vesicles Based on Artificial Electric-Taster Sensor,, H.S.Jung, Hide.Tanaka, H.Y.Lee, and T.Kawai,: *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, 463 (2007) 271[553]-279[561].

Electronic structures of  $\text{Fe}_{3-x}\text{M}_x\text{O}_4$  (M=Mn, Zn) spinel oxide thin films investigated by x-ray photoemission spectroscopy and x-ray magnetic circular dichroism, Takaobushi, J., M.Ishikawa, S.Ueda, E.Ikenaga, J.Kim, M.Kobata, Y.Takeda, Y.Saitoh, M.Yabashi, Y.Nishino, D.Miwa, K.Tamasaku, T.Ishikawa, I.Satoh, H.Tanaka, K.Kobayashi and T.Kawai: *Phys. Rev. B*, 76 (2007) 205108.

Interface Effect on Metal-Insulator Transition of Strained Vanadium Dioxides Ultra Thin Films, Nagashima, K.,

T.Yanagida, H.Tanaka and T.Kawai: J. Appl. Phys., 101 (2007) 26103.

Thickness Dependence of Structure and Magnetization of BiFeO<sub>3</sub> Films on (LaAlO<sub>3</sub>)<sub>0.3</sub>(Sr<sub>2</sub>AlTaO<sub>6</sub>)<sub>0.7</sub> (001) Substrate, Rana, D.S., K.Takahashi, K.R.Mavani, I.Kawayama, H.Murakami, M.Tonouchi, T.Yanagida, H.Tanaka and T.Kawai: Phys. Rev. B, 75 (2007) 60405.

Epitaxial Growth of MgO Nanowires by Pulsed Laser Deposition, Nagashima, K., T.Yanagida, H.Tanaka and T.Kawai: J. Appl. Phys., 101 (2007) 124304.

Control of Magnesium Oxide Nanowire Morphologies by Ambient Temperature, Nagashima, K., T.Yanagida, H.Tanaka and T.Kawai: Appl. Phys. Lett., 90 (2007) 233103.

Transport Properties of ZnFe<sub>2</sub>O<sub>4-d</sub> Thin Films, Marcu, A., T.Yanagida, K.Nagashima, H.Tanaka and T.Kawai: J. Appl. Phys., 102 (2007) 23713.

Effect of Ablated Particle Flux on MgO Nanowire Growth by Pulsed Laser Deposition, Marcu, A., T.Yanagida, K.Nagashima, H.Tanaka and T.Kawai: J. Appl. Phys., 102 (2007) 16102.

Mechanism of Catalyst Diffusion on Magnesium Oxide Nanowire Growth, Yanagida, T., K.Nagashima, H.Tanaka and T.Kawai: Appl. Phys. Lett., 91 (2007) 61502.

Effect of Heterointerface on Transport Properties of In-situ Formed MgO/titanate Core-shell Nanowires, Nagashima, K., T.Yanagida, H.Tanaka, S.Seki, A.Saeki, S.Tagawa, and T.Kawai: J. Am. Chem. Soc., 130 (2008) 5378.

Crucial Role of Inter-diffusion on Magnetic Properties of In-situ Formed MgO/Fe<sub>3</sub>O<sub>4-d</sub> Heterostructured Nanowires, Marcu, A., T.Yanagida, K.Nagashima, K.Oka, H.Tanaka and T.Kawai: Appl. Phys. Lett., 92 (2008) 173119.

Epitaxial Transition Metal Oxide Nanostructures Fabricated by a Combination of AFM Lithography and Molybdenum Lift-Off, Suzuki, N., H.Tanaka and T.Kawai: Advanced Materials, 20 (2008) 909-913.

Synthesis of Dendritic Oligothiophenes and Their Self-Association Properties by Intermolecular - Interactions, N. Negishi, Y. Ie, M. Taniguchi, T. Kawai, H. Tada, T. Kaneda, Y Aso: Org. Lett., 9 (2007) 024009-024014.

Control of the Electrode-Molecule Interface for Molecular Devices, K. Yokota, M. Taniguchi, T. Kawai: J. Am. Chem. Soc., 129 (2007) 5818-5819.

Electronic states of the DNA polynucleotides poly(dG)poly(dC) in the presence of iodine, M. Furukawa, H. S. Kato, M. Taniguchi, K. Kawai, T. Hatsui, N. Kosugi, T. Yoshida, M. Aida and M. Kawai: Phys. Rev. B, 75 (2007) 45119.

Scanning Tunneling Spectroscopy Of Single Strand Deoxyribonucleic Acid For Sequencing, Y.Yoshida, J.Nojima, H.Tanaka and T.Kawai: J. Vac. Sci. Technol. B, 25 (2007) 242.

Anchoring Gold Nanoparticles Onto a Mica Surface by Oxygen Plasma Ashing for Sequential Nanocomponent Assembly, A. Takagi, K. Ojima, E. Mikamo, T. Matsumoto and T. Kawai: Appl. Phys. Lett., 90 (2007) 43122.

Refinement of Conditions of Point-contact Current Imaging Atomic Force Microscopy for Molecular-Scale Conduction Measurements, T. Yajima, H. Tanaka, T. Matsumoto, Y. Otsuka, Y. Sugawara and T. Ogawa: Nanotechnology, 18 (2007) 95501.

Tunnelling Charge Injection into a Pentacene Layer Using Dynamic-Mode Scanning Force Microscopy, T. Kusaka, K. Ojima, T. Matsumoto and T. Kawai: Nanotechnology, 18 (2007) 95503.

Discrete Dihedral-Angle Modulation in Porphyrin Wheels Adsorbed on Cu(100) Observed by Scanning Tunneling Microscopy, A. Takagi, T. Hori, X. Peng, N. Aratani, T. Matsumoto, A. Osuka and T. Kawai: Surf. Sci., 601 (2007)

2178-2181.

Dielectric Properties of Ba(Zr, Ti)O<sub>3</sub> Thin Films Fabricated by Pulsed Laser Deposition, Takanori Hino, Minoru Nishida, Takao Araki, Takahiro Ohno, Toshio Kawahara, Masakazu Murasugi, Hitoshi Tabata and Tomoji Kawai: Journal of Laser Micro/Nanoengineering, 2 (2007) 166-169.

Possibility of reverse Monte Carlo modelling for hydrogenated amorphous Si deposited on reactive ion etched Si substrate, Toshio Kawahara, Yoshinori Matsui, Seiichi Tagawa, Tomoji Kawai and Hideki Matsumura: J. Phys.: Condens. Matter, 19 (2007) 335211.

#### [ 解説、総説、翻訳 ]

「自己組織化配線法を用いたナノ分子デバイスの開発」谷口正輝、川合知二  
ナノ学会会報、6, (2007) 23-28.

「電子ドーブ系マンガ氧化物の強磁性起源」柳田剛、田中秀和、川合知二：大阪大学低温センターだより、139, (2007) 9-14.

#### [ 特許 ]

「一本鎖ヌクレオチド多量体の伸張固定化基板およびその製造方法」高見 知秀、田中 裕行、特願 2007-196620 (平成 19 年 7 月/27 日)

“Probe device”, Takuya Matsumoto, Yasuhisa Naitoh, Tomoji Kawai,  
登録番号 US 7,250,602 B2 登録日 : Jul. 31, 2007

#### [ 国際会議 ]

Programmed Self-organization for NanoBio-devices (invited), Tomoji KAWAI: 8th International Symposium on Biomimetic Materials Processing.

Nano-Structured Functional Oxides (invited), Tomoji KAWAI: International Conference on Nano and Microelectronics (ICONAME-2008).

Nano-structured functional oxides (invited), Tomoji KAWAI: 7th France-Japan Workshop on Nanosciences and Nanomaterials.

Nano-structured Functional Oxides (poster), Kawai, T., H.Tanaka, T.Yanagida, N.Suzuki, S.Yamanaka, Y.Yanagisawa, K.Nagashima and A.Marcu: The 14th International Workshop on Oxide Electrics.

High resolution imaging and spectroscopy of DNA by STM/STS (invited), Tomoji KAWAI: Colloquium Spectroscopicum Internationale XXXV.

DNA Nanotechnology toward Future Nanoelectronics (invited), Tomoji KAWAI: Osaka Univ./LANL International Workshop.

Nanoscience and Nanotechnology in Japan and Kawai Laboratory (invited), Tomoji KAWAI: The First Thailand National Nanotechnology Conference.

Nano-structured biosensors –An integrated digital biosensor with functional vesicle using oriented nanoWell array electrode (invited), Tomoji KAWAI: IVC-17/ICSS-13 and ICN+T2007.

SPM for nanobio-science and technology –single-nucleotide detection of DNA base molecules- (invited), Tomoji KAWAI: JEJU 2007 ISPM (International Scanning Probe Microscopy Conference).

Inelastic tunneling spectroscopy of single molecule using nanofabricated mechanically controllable break-junction (invited), M. Taniguchi, M. Tsutsui, K. Shoji, T. Kawai,: CREST Symposium on Theories and Simulations for Charge Migration and Chemical Reactions at Nano-Scale Interfaces.

Self-organized interconnect method for molecular devices (invited), M. Taniguchi, Jun Terao, and Tomoji Kawai: CREST-Nanolink joint international workshop on “Electron transport through a linked molecule in nano-scale” .

Toward Digital NanoBioCHIP (invited), H.Y.Lee, B.K.Lee, T.Kawai: Invited Seminar, Department of veterinary and biomedical science, Penn State Neuroscience Institute.

Well-Oriented NanoWell Array Metrics for Digital NanoBioChip (poster), H.Y.Lee, B.K.Lee, T.Kawai: APS-March Conference.

Integrated Biocompatible Nanobiochip (invited), H.Y.Lee, B.K.Lee, T.Kawai: The 3rd CNU-SANKEN Joint Symposium on Advanced Materials Science.

NanoWell based Electrochemical NanobioCHIP toward mult-Nanomedicine (invited), H.Y.Lee, B.K.Lee, T.Kawai: The 6th Japan-Korea Nanotech Industrialization Forum.

Biocompatible NanoWell Geometry-BioCHIP toward Digital Analysis (poster), H.Y.Lee, B.K.Lee, T.Kawai: 11th Sanken International Symposium.

Integrated Electronic-Nanowell BioCHIP (poster), H.Y.Lee, B.K.Lee, T.Kawai: The 1st Global COE International Symposium- Electronic Devices Innovation - (EDIS2008).

Facile and Rapid Direct Gold Surface Immobilization with Controlled Orientation for Carbohydrates (poster), J.H.Seo, K.Adachi, B.K.Lee, D.G.Kang, Y.K.Kim, K.R.Kim, H.Y.Lee, T.Kawai, H.J.Choa: The 1st Global COE International Symposium- Electronic Devices Innovation - (EDIS2008).

Integrated Electric NanobiosensorCHIP (invited), H.Y.Lee, B.K.Lee, T.Kawai: Plenary talk, Korea-MRS.

NanoWell Geometry-BioCHIP toward Single Molecular Analysis (invited), H.Y.Lee, B.K.Lee, T.Kawai: Biochemical Engineering of Korea.

Nanoarray of Tethered Bilayer Lipid Membrane (tBLM)-Formed Lipid Rafts with a Nanoimprinted Poly(Vinyl Alcohol) Hydrogel (invited), B.K.Lee, H.Y.Lee, T.Kawai: Biochemical Engineering of Korea.

Self-assembled biomolecule nanoarray for electronic biochips (invited), H.Y.Lee: The 3rd Nanoelectronics and Dynamics of DNA.

Self-organized Functional Lipid Vesicle Array for Sensitive Immunoassay chip (invited), H.Y.Lee, T.Kawai: ISPM (International Scanning Probe Microscopy) conference.

Surface Potential and Capacitance Images of Biological Molecules on Insulating Substrates (poster), T. Matsumoto, F. Yamada, E. Mikamo-Sato, A. Takagi, T. Kawai: 10<sup>th</sup> International Non-Contact AFM 2007.

Molecule Recognition Imaging by Frequency Shift Detection in Liquid (poster), T. Matsumoto, T. Kawahara, H. Hokonohara, T. Kawai: 10<sup>th</sup> International Non-Contact AFM 2007.

Surface Potential and Capacitance Images of Biological Molecules on Insulating Substrates (poster), T. Matsumoto, F. Yamada, E. Mikamo-Sato, A. Takagi, T. Kawai: 15th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM15).

Nanowire Heterostructures of Transition Metal Oxides (poster), Yanagida, T., K.Nagashima, A.Marcu, K.Oka, H.Tanaka and T.Kawai: 14th International Workshop on Oxide Electronics.



Heterostructures of Transition Metal Oxide Nanowires (poster), Yanagida, T., K.Nagashima, A.Marcu, K.Oka, H.Tanaka and T.Kawai: Material Research Society Fall Meeting.

Nature of Transport Properties in Low Temperature Grown NiO films (poster), Oka, K., T.Yanagida, K.Nagashima, H.Tanaka and T.Kawai: 15th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy.

Role of Three Dimensional Epitaxy on MgO/NiO Heterostructured Oxide Nanowire Formation (poster), Oka, K., T.Yanagida, K.Nagashima, H.Tanaka and T.Kawai,: 15th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy.

Effect of Heterointerface on Transport Properties of In-situ Formed MgO/titanate Core-shell Nanowires (poster), Oka, K., K.Nagashima, T.Yanagida, H.Tanaka and T.Kawai: 15th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy.

Crucial role of heterointerface on MgO/titanate core-shell nanowires (poster), Nagashima, K., T.Yanagida, K.Oka, H.Tanaka, S.Seki, A.Saeki, S.Tagawa and T.Kawai: 1st Global COE International Symposium Electronic Devices Innovation.

Significance of 3D Epitaxy on Heterostructured Oxide Nanowires (poster), Oka, K., T.Yanagida, K.Nagashima, H.Tanaka and T.Kawai: 1st Global COE International Symposium Electronic Devices Innovation.

Transport Nature of Low Temperature Grown NiO Thin Films (poster), Oka, K., T.Yanagida, K.Nagashima, H.Tanaka and T.Kawai: 11th Sanken, 6th Nanotechnology Center and 1st MSTEC International Symposium New Advances in Nanoscience & Nanotechnology.

In-situ Formation of MgO/NiO Heterostructured Oxide Nanowires (poster), Oka, K., T.Yanagida, K.Nagashima, H.Tanaka and T.Kawai: 11th Sanken, 6th Nanotechnology Center and 1st MSTEC International Symposium New Advances in Nanoscience & Nanotechnology.

Crucial Role of Heterointerface on Transport Properties of In-situ Formed MgO/titanate Core-Shell Nanowires (poster), Oka, K., T.Yanagida, K.Nagashima, H.Tanaka and T.Kawai: 11th Sanken, 6th Nanotechnology Center and 1st MSTEC International Symposium New Advances in Nanoscience & Nanotechnology.

Fabrication of Heterostructured Oxide Nanowires and Effect of Heterointerface on the Transport and Magnetic Properties (invited), Yanagida, T., K.Nagashima, K.Oka, H.Tanaka and T.Kawai: Workshop on SAKURA Project.

Heterostructured Oxide Nanowires (poster), Yanagida, T., K.Nagashima, K.Oka, H.Tanaka and T.Kawai: The 3rd CNU-SANKEN Joint Symposium on Advanced Materials Science.

Size and distribution control of Co nano clusters grown by arc plasma gun (poster), \*Toshio Kawahara, Teruo Kanki, Yasushi Hotta, Naoki Asakawa, Tomoji Kawai, Hitoshi Tabata: 9th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures (ACSIN9), Tokyo, Japan, Nov. 11-15, 2007.

Magneto-Electric Properties of Photoinduced Magnet (Al,Ru,Fe)<sub>3</sub>O<sub>3</sub> Thin Films (poster), \*T.Kanki, Y.Hotta, N.Asakawa, T.Kawahara, H.Tabata, T.Kawai: The 14th. Internatinal Workshop on Oxide Electronics.

Epitaxial growth of spinel ferrite oxide (Al,Ru,Fe)<sub>3</sub>O<sub>4</sub> on a GaAs(001) substrate using a MgO buffer layer (poster), \*T.Kanki, T.Kawahara, N.Asakawa, Y.Hotta, Y.Terai, Y.Fujiwara, H.Tabata, T.Kawai: 2007 MRS fall meeting.

[ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

川合 知二 Nanotech 実行委員長

川合 知二 Surface Science エディトリアルボード

[ 国内学会 ]

応用物理学会	21 件
日本分子生物学会	1 件
日本化学会	3 件
日本物理学会	7 件
その他	11 件

## [ 取得学位 ]

### 博士 (学)

山田 郁彦 DNA を用いた微粒子及び分子複合体のナノスケール電気・磁気物性に関する研究  
Studies on nanoscale electrical and magnetic properties of DNA complexes with nanoparticles and molecules

### 修士 (理学)

坂本 広明 ポリマーDNA の伸長化および個々のヌクレオチドの構造と電子状態の STM 観察  
Extension of DNA polymer and STM/STS of structure and electronic states of individual nucleotides

### 修士 (生命機能)

小林 匠 無細胞系タンパク合成における受容野周囲刺激による反応修飾の時空間特性  
Polysome analysis of translation process in cell-free protein synthesis system

### 修士 (基礎工学)

川口 英幸 両極性有機 FET における絶縁膜の効果  
Effect of insulating layer on ambipolar organic field effect transistor

### 修士 (基礎工学)

長島 一樹 室温動作ナノデバイスに向けた遷移金属酸化物のナノ構造創成と物性評価  
Synthesis and characterization of transition metal oxide nano-structures toward room temperature operating devices

### 修士 (基礎工学)

鷹尾伏純一 強相関電子系半導体(Fe,Zn)<sub>3</sub>O<sub>4</sub>薄膜の作製と電界効果スピン素子への応用  
Preparation of (Fe,Zn)<sub>3</sub>O<sub>4</sub> thin films as a magnetic semiconductor with strongly correlated electron system and application to the field effect spin device

## [ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

川合 知二	DNA ナノ構造体の創成と物性の研究	直接経費	15,600
		間接経費	4,680

若手研究 (B)

柳田 剛 構造制御された遷移金属酸化物ナノワイヤの創成と物性評価 2,100

[ 特別研究員奨励費 ]

Marcu Aurelian パルスレーザデポジション法による酸化物薄膜成長機構解明と機能性材料創成への展開 1,200

筒井 真楠 機械的破断接合法による単一有機分子の光スイッチング特性評価に関する研究 1,200

[ 受託研究費 ]

川合 知二 受託研究「文部科学省 科学技術振興費」(代表:茅幸二) 生命分子の集合原理に基づく分子情報の科学研究ネットワーク拠点 直接経費 7,058 産研部局間接経費 1,058

川合 知二 受託研究「(独) 科学技術振興機構」 プログラム自己組織化による人工生体情報材料創成 実質使用可能金額 58,614 間接経費 17,670 消費税相当額 285

川合 知二 共同研究「NEDO 個別化医療の実現のための技術融合バイオ診断技術開発 / バイオ診断ツール実用化開発プロジェクト」(東レ株) 前処理装置を搭載した高感度遺伝子多型検出バイオチップシステムの開発 実質使用可能金額 6,432 産学官連携推進活動経費 670 光熱水料 268

川合 知二 共同研究「シスメックス」 微小電極を用いた高感度バイオセンサーの研究 直接経費 4,772 産学官連携推進活動経費 477

川合 知二 共同研究「松下電器産業」 被覆共役分子を用いた分子レベルデバイスに関する研究 実質使用可能金額 1,968 産学官連携推進活動経費 410 光熱水料 82

[ その他の競争的研究資金 ]

川合 知二 科学技術振興機構「戦略的創造研究推進事業」 プログラム自己組織化による人工生体情報材料創製 109,500 (大学への受託研究費含)

川合 知二 先端研究施設共用イノベーション創出事業「ナノテクノロジー・ネットワーク」 阪大複合機能ナノファウンダリ 103,000

宮原 秀夫 (分担者) 科学技術振興調整費「先端融合イノベーション創出拠点の形成」(宮原秀夫) 生体ゆらぎに学ぶ知的人工物と情報システム 78,530

柳田 剛 (独) 科学技術振興機構 [平成 19 年度シーズ発掘試験] 酸化物ナノワイヤ構造を用いた不揮発性メモリ素子の 2,000

柳田 剛	日本学術振興会 二国間 (日仏) 交流共同研究事業 SAKURA	開発 遷移金属酸化物における動的歪み効果に関 する学際研究	1,000
------	--	-------------------------------------	-------

## セラミック機能材料研究分野

教授	小林 光
助教授	高橋 昌男
助手	延谷 宏治、松本 健俊
客員教授	岩佐 仁雄、寺川 澄雄、中戸 義禮
研究支援推進員	正司 雅美
研究員	劉 玥伶、山田 幹浩、吉田 亮
大学院学生	石川 幸男、マダニ・モハマト、一花 裕一、金 佑柄 今村 健太郎、浦郷 将英、宍戸 豪、岩田 隆、柳瀬 隆
学部学生	東 裕子
事務補佐員	黒崎 千香、野櫻 玲子

### a) 概要

半導体技術は、急速に進歩する現代社会を支えているといっても過言ではない。当研究分野では、新規の半導体化学プロセスを開発することによって、種々の半導体デバイスの高性能化と低コスト化を目指す研究を行っている。半導体デバイスとしては、(1)エネルギー問題と環境問題の解決を目指した太陽電池、(2)LSIの基本構造である金属-酸化物-半導体(MOS)デバイス、(3)液晶ディスプレイに用いられる薄膜トランジスターに関する基礎研究を行っている。また、上記デバイスの特性を大きく影響する半導体界面の高感度観測に関する研究も行っている。

### b) 成果

#### ・化学的手法を用いたシリコンとシリコンカーバイドの基板上への酸化薄膜の低温創製と TFT や LSI への応用

液晶ディスプレイの駆動などに用いられる TFT は、硝子基板に堆積した多結晶シリコン上に、プラズマ気相成長法 (CVD法) を用いて SiO<sub>2</sub> 膜を堆積する方法で製造されている。CVD法で SiO<sub>2</sub> 膜を堆積する理由は、硝子基板を用いるために良質の SiO<sub>2</sub> 膜が形成できる高温熱酸化法 (800°C以上) を利用できないためである。堆積膜は膜質が悪く、さらに凹凸のある多結晶シリコン上に均一な膜厚で SiO<sub>2</sub> 膜を形成することが不可能であり、その結果十分に低いリーク電流を達成するためには 50nm 程度の大きな膜厚を必要とする。さらに、堆積法では堆積前の表面が堆積後に界面になるため、表面汚染や不完全な結合の存在により界面特性は悪い。これらの結果、消費電力が増大し、また画像処理速度が低下する。

我々は、硝酸を用いて約 120°C の低温でシリコンを酸化して SiO<sub>2</sub> 厚膜を形成できる「二段階硝酸酸化法」を開発した。これは、シリコンを濃度が約 40% の硝酸に浸漬して、その後濃度 68% の共沸硝酸に浸漬する方法である。二段階硝酸酸化法を用いて、15nm 以上の膜厚を持つ SiO<sub>2</sub> 膜を約 120°C の低温で形成することができた。一段目の硝酸酸化では、ナノオーダーサイズ以下の細孔が存在する極薄 SiO<sub>2</sub> 膜が形成できる。二段目の浸漬中に、この細孔で共沸硝酸が分解して、酸化力の非常に強い酸素イオン (O<sup>-</sup>) が生成するために、120°C という低温でも SiO<sub>2</sub> 厚膜が形成できる。二段階硝酸酸化法で創製した SiO<sub>2</sub>/シリコン構造は、従来の CVD法に比較して格段に良好な電気特性を持つことを見出した。特に、金属不純物濃度 10ppt 以下の超高純度硝酸を用いて酸化した場合、リーク電流密度は 800°C 以上の高温で形成される熱酸化膜に匹敵した。二段階硝酸酸化法で多結晶シリコン薄膜を酸化した場合、凹凸のある表面にも均一な膜厚の SiO<sub>2</sub> 膜が形成できた。硝酸酸化法で形成した SiO<sub>2</sub> 膜は良質であることから、SiO<sub>2</sub> 膜厚を減少でき、TFT の低消費電力化、画像処理速度の向上などの高性能化が達成できると考えられる。さらに、硝酸酸化法では約 120°C の低温で SiO<sub>2</sub> 膜が形成できるため、PET などのプラスチック基板上に TFT を作製することも可能となり、フレキシブル TFT が達成できると期待される。

次に、32×40cm<sup>2</sup> のサイズの TFT 基板用の硝酸酸化装置を改良し、重金属汚染が全反射蛍光 X 線の検出

限界以下で、LSI(大規模集積回路) に用いることの出来る  $3 \times 10^9$  atoms/cm<sup>2</sup>以下に抑制することに成功した。また、沸騰硝酸中にSiウェーハやTFT基板を投入できるようになり、短時間での硝酸酸化処理が可能になった。

3C-SiCウェーハ基板上に、硝酸酸化法を用いて、SiO<sub>2</sub>酸化膜を形成し、この酸化膜の特性についても検討した。SiCは、ワイドバンドギャップ化合物や高熱伝導性化合物として知られており、パワーデバイスへの応用が期待されている化合物半導体である。さらに、電子の移動度がSiよりも極めて大きいため、高周波デバイスへの応用も期待されている。しかし、これまで、熱酸化膜法では、SiO<sub>2</sub>薄膜を形成する際に、Siは下地から引き抜かれるが、Cは燃焼せずにSiC-SiO<sub>2</sub>界面に蓄積されて、MOSTランジスタの特性が極めて悪いことが知られている。そこで、水素雰囲気中で 400°Cで加熱してSiC表面を平坦化した後、二段階硝酸酸化法を用いて、SiO<sub>2</sub>薄膜を形成したところ、10 nm以上の均一な酸化膜を容易に形成でき、極めて低いリーク電流密度を示した。これにより、二段階硝酸酸化法によってSiCウェーハ上に形成したSiO<sub>2</sub>薄膜は、MOSTランジスタへの応用を期待できる電気特性を示すことを明らかにした。

#### ・新規化学反応を用いる半導体欠陥消滅型洗浄法の開発

新規の半導体洗浄法「非エッチング欠陥消滅型洗浄法」を開発した。この半導体洗浄技術では、半導体上のシアン化物イオンが金属汚染物と非常に安定な錯イオンを形成することによってこれを除去する。このため、洗浄液中に除去された金属の再付着が起これらなく、 $10^9$ 原子/cm<sup>2</sup>オーダー以下にまで金属汚染を除去でき、さらに洗浄液の反復使用が可能である。この洗浄液の金属汚染除去能力は非常に大きく、従来の半導体洗浄液の濃度が 5%程度であることに対して、0.2%以下の濃度で十分な洗浄能力を有する。さらに、従来の半導体洗浄液が 50~80°Cで使用する必要があったのに対して、室温で使用できる。その上、この半導体洗浄液は半導体中の欠陥準位(シリコンダングリングボンドなど)を消滅する能力を有しており、LSI、TFT、太陽電池等の半導体デバイスの特性を向上することができる。

そこで、SiO<sub>2</sub>やSi上の種々の金属汚染物が新洗浄法によって除去できることを証明すると共に、ニッケル汚染のSiO<sub>2</sub>表面からの除去のメカニズムを解明した。ニッケルは、SiO-NiOHとして表面に吸着しており、二段階の反応で除去されることが分かった。速い反応はテラス上で、遅い反応はステップ上で起こることが分かった。アンモニア水溶液中での反応と比較すると、シアン化物水溶液中の方が、除去反応が速かった。これは、Ni化合物との反応性の高さでNi(CN)<sub>4</sub><sup>2-</sup>が安定でNiイオンが表面に再吸着しないことによると考えられる。

#### ・太陽電池の発電効率の向上

新規反射防止膜の形成により、アモルファスシリコン型の太陽電池の発電効率の向上に成功した。反射防止膜には、酸化アルミ微粒子を利用した。これにより、開放電圧や曲線因子は変化しないものの、短絡光電流が大きく増加した。量子効率スペクトルより、570-750 nmの光の吸収が増加したことが分かった。これは、入射光が酸化アルミ微粒子内で乱反射し、光路が増大したためと考えられる。

### [ 原著論文 ]

Nitric acid oxidation of 3C-SiC to fabricate MOS diodes with a low leakage current density, M. Takahashi, S-S. Im, M. Madani and H. Kobayashi: J. Electrochem. Soc., 155 (1) (2008) H47-H51.

Complete removal of copper contaminants on bare silicon surfaces by use of HCN aqueous solutions, H. Narita, M. Takahashi, H. Iwasa and H. Kobayashi: J. Electrochem. Soc., 155 (2) (2008) H103-H107.

On interface properties of ultra-thin and very-thin oxide/a-Si:H structures prepared by oxygen based plasmas and chemical oxidation, E. Pincik, H. Kobayashi, R. Hajossy, H. Gleskova, M. Takahashi, M. Jergel, R. Brunner, L. Ortega, M. Kucera, M. Kral and J. Rusnak: Appl. Surf. Sci., 253 (16) (2007) 6697-6715.

Mechanism of Ni removal from Si materials using hydrogen cyanide aqueous solutions, Y-L. Liu, M. Takahashi and H. Kobayashi: J. Electrochem. Soc., 154 (1) (2007) H16-H19.

On formation of thin SiO<sub>2</sub>/a-Si:H interface when biased oxidized semiconductor surface interacts with plasma or liquid solution, E. Pincik, H. Kobayashi, M. Takahashi, R. Brunner, S. Jurecka and J. Rusnak: Central Euro. J. Phys., 5 (3) (2007) 428-445.

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 微粒子を用いた光閉じ込め構造を有する a-Si 太陽電池の作製, 毎田修, 岡藤麻子, 小林克稔, 小林光: 真空, 50 (8) (2007) 534-536.

Nitric Acid Oxidation Method to Form SiO<sub>2</sub>/3C-SiC Structure at 120 ° C, S.-S. Im, S. Terakawa, H. Iwasa and H. Kobayashi: Appl. Surf. Sci., 254 (12) (2008) 3667-3671.

Si cleaning method without surface morphology change by cyanide solutions, M. Takahashi, Y.-L. Liu, H. Narita and H. Kobayashi: Appl. Surf. Sci., 254 (12) (2008) 3715-3720.

Nitric acid method for fabrication of gate oxides in TFT, S. Mizushima, S. Imai, Asuha, M. Tanaka and H. Kobayashi: Appl. Surf. Sci., 254 (12) (2008) 3685-3689.

Photoluminescence of very thin oxide/a-Si:H structures passivated in HCN solutions, E. Pincik, R. Brunner, H. Kobayashi, M. Takahashi and M. Kucera: Appl. Surf. Sci., 254 (12) (2008) 3710-3714.

#### [ 特許 ]

「半導体素子ならびに半導体素子製造法」長澤弘幸、八田直紀、河原孝光、小林光、特願 2007-293258

「絶縁膜形成方法、絶縁膜形成装置、半導体装置の製造方法、および半導体装置並びにシリコンカーバイドの基板の表面処理方法」小林光、PCT/JP2007/64759

「絶縁膜形成方法、絶縁膜形成装置、半導体装置の製造方法」小林光、特許第 4095615 号（特願 2005-039721）（成立）

「半導体装置の洗浄方法、洗浄溶液の製造方法ならびに半導体装置製造用機器の洗浄方法および洗浄装置」小林光、特許査定済み（特願 2004-092281）（成立）

#### [ 国際会議 ]

Nitric Acid Oxidation of Si and SiC for the Low Temperature Fabrication of MOS Structure (invited), H. Kobayashi, Asuha, T. Matsumoto and M. Takahashi: Interntional Seminar on Semiconductor Surface Passivation 2007.

Surface Chemistry in Si Cleaning with Cyanides Solutions (invited), M. Takahashi, Y.-L. Liu and H. Kobayashi: Interntional Seminar on Semiconductor Surface Passivation 2007.

On Formation and Passivation of Defect States in Si- and GaAs-Based Semiconductor Structures (invited), E. Pincik, H. Kobayashi, R. Brunner, M. Takahashi, Y.-L. Liu, K. Imamura and J. Rusnak: Interntional Seminar on Semiconductor Surface Passivation 2007.

New Advanced Charge Version of Deep Level Transient Spectroscopy Equipment and Its Application at Investigation of Passivated Very Thin Oxide/Silicon Structures (poster), J. Rusnak, E. Pincik, M. Takahashi, R. Brunner and M. Ruzinsky: Interntional Seminar on Semiconductor Surface Passivation 2007.

Photoluminescence of Passivated a-Si:H (poster), R. Brunner, E. Pincik, H. Kobayashi, M. Takahashi, M. Kucera and J. Rusnak: International Seminar on Semiconductor Surface Passivation 2007.

Nitric Acid Oxidation of Si (NAOS) and Defect Passivation Etch-Less Cleaning (DPEL) Method to Improve Si Devices (poster), T. Matsumoto, Asuha, Y.-L. Liu, S. Imai, S. Mizushima, M. Takahashi, and H. Kobayashi: 3rd Handai Nano Symposium.

Nitric Acid Oxidation of SiC for Fabrication of 3C-SiC Based MOS Deveices (poster), H. Kobayashi, S. Im, M. Takahashi and H. Nagasawa: International Conference on Silicon Carbide and Related Materials 2007.

Removal of Copper Adsorbate from Silicon Surfaces by the use of Semiconductor Cleaning Solutions with Capability of Defect Passivation (poster), M. Takahashi, H. Narita, T. Shishido, H. Iwasa and H. Kobayashi: 11th Sanken, 6th Nanotechnology Center and 1st MSTEC Internationa Symposium.

#### [ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

小林 光 Applied Surface Science (編集委員長)  
高橋 昌男 Applied Surface Science (Guest Editor)

#### [ 国内学会 ]

日本物理学会	2 件
応用物理学会	7 件
表面科学会	2 件
表面・界面スペクトロスコピー	1 件

#### [ 取得学位 ]

修士 (理学)	
今村 健太郎	硝酸反応による二酸化シリコン膜の形成メカニズム解明とゲート酸化膜への応用
浦郷 将英	硝酸酸化法により多結晶シリコン上に低温で形成された二酸化シリコン膜の物性と電気特性
宍戸 豪	単結晶シリコン太陽電池の光電変換特性の評価：微小領域光電圧測定と Si/Al 界面の構造観察

#### [ 受託研究 ]

小林 光	科学技術振興機構	硝酸酸化法による TFT ゲート酸化膜の低温創製と低消費電力化	74,100
小林 光	日本学術振興会	新規欠陥消滅法及び低温酸化法のメカニズムとシリコン太陽電池への応用	2,500
高橋 昌男	科学技術振興機構	多結晶 Si のシアン処理、キャリア再結合の低減	6,240



## フロンティア材料創製研究分野

教授	安藤 陽一
准教授	瀬川 耕司(平成 20 年 1 月 16 日昇任)、関野 徹(平成 19 年 10 月 31 日退職)
助教	瀬川 耕司(平成 19 年 10 月 1 日採用～平成 20 年 1 月 15 日まで)、楠瀬 尚史
特任研究員	Taskin Alexey(平成 20 年 1 月 1 日採用)、金 成浩
博士研究員	Narges Fathy Fahim
大学院学生	趙 明濟、韓 淵圭、橋本 英樹、文 淑英、林 明日香、清水 孝子、叶 興平、 朴 動鎮、三輪 利幸
学部学生	江藤 数馬、三棹 貴史
事務補佐員	末廣 理恵

### a) 概要

本研究分野には平成 19 年 4 月に安藤教授が着任し、新たなスタートを切った。今後本研究分野では、試料作製から物性測定までを一貫して行うことにより新奇な材料が示す特徴的な電子機能物性の発現機構を探求し、その知見に基づいた画期的新材料の創製を目指す。特に注目する物性は、高温超伝導、スピンホール効果、高効率熱電変換などである。この目的を達成するため、(1) フローティング・ゾーン法を用いた高品質単結晶成長や精密酸素量制御などによる特色ある試料作製、(2) その特色ある試料を用いて先端無機材料が示す電子機能物性の発現機構を探求、(3) 発現機構に関する知見を活かしてさらに優れた材料を創製、というプロセスで研究を推進する。

### b) 成果

- 不足ドープ領域の銅酸化物における特徴的な電子状態である「フェルミアーク」と輸送現象の関係性を定量的に調べ、電子の自己組織化が果たしている役割を明らかにした。
- 極低温における高温超伝導体の熱伝導率の物理的意味について考察を行い、最近カナダのグループによって報告された新奇なボソンの存在が疑わしいことを明らかにした。
- 高温超伝導体の高品質単結晶試料を軸にした共同研究を推進し、銅酸化物が示す様々な特異物性の解明を行った。

### [ 原著論文 ]

Visualizing pair formation on the atomic scale in the high-T<sub>c</sub> superconductor Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8+d</sub>, K. K. Gomes, A. N. Pasupathy, A. Pushp, S. Ono, Y. Ando and A. Yazdani: Nature, 447 (7144) (2007) 569-572.

Hierarchy of multiple many-body interaction scales in high-temperature superconductors, W. Meevasana, X. J. Zhou, S. Sahrakorpi, W. S. Lee, W. L. Yang, K. Tanaka, N. Mannella, T. Yoshida, D. H. Lu, Y. L. Chen, R. H. He, H. Lin, S. Komiya, Y. Ando, F. Zhou, W. X. Ti, J. W. Xiong, Z. X. Zhao, T. Sasagawa, T. Kakeshita, K. Fujita, S. Uchida, H. Eisaki, A. Fujimori, Z. Hussain, R. S. Markiewicz, A. Bansil, N. Nagaosa, J. Zaanen, T. P. Devereaux and Z. X. Shen: Phys. Rev. B, 75 (17) (2007) 174506/1-7.

Low-energy electronic structure of the high-T<sub>c</sub> cuprates La<sub>2-x</sub>Sr<sub>x</sub>CuO<sub>4</sub> studied by angle-resolved photoemission spectroscopy, T. Yoshida, X. J. Zhou, D. H. Lu, S. Komiya, Y. Ando, H. Eisaki, T. Kakeshita, S. Uchida, Z. Hussain, Z. X. Shen and A. Fujimori: J. Phys.-Condes. Matter, 19 (12) (2007) 125209/1-23.

Low-temperature vortex liquid in La<sub>2-x</sub>Sr<sub>x</sub>CuO<sub>4</sub>, L. Li, J. G. Checkelsky, S. Komiya, Y. Ando and N. P. Ong: Nat.

Phys., 3 (5) (2007) 311-314.

Strong charge fluctuations manifested in the high-temperature Hall coefficient of high-T<sub>c</sub> cuprates, S. Ono, S. Komiya and Y. Ando: Phys. Rev. B, 75 (2) (2007) 24515/1-8.

Spin-glass state of individual magnetic vortices in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub> and La<sub>2-x</sub>Sr<sub>x</sub>CuO<sub>4</sub> below the metal-to-insulator crossover, J. E. Sonier, F. D. Callaghan, Y. Ando, R. F. Kiefl, J. H. Brewer, C. V. Kaiser, V. Pacradouni, S. A. Sabok-Sayr, X. F. Sun, S. Komiya, W. N. Hardy, D. A. Bonn and R. Liang: Phys. Rev. B, 76 (6) (2007) 64522/1-9.

Microscopic annealing process and its impact on superconductivity in T'-structure electron-doped copper oxides, H. J. Kang, P. C. Dai, B. J. Campbell, P. J. Chupas, S. Rosenkranz, P. L. Lee, Q. Z. Huang, S. L. Li, S. Komiya and Y. Ando: Nat. Mater., 6 (3) (2007) 224-229.

Muon spin relaxation study of superconducting Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2-x</sub>La<sub>x</sub>CuO<sub>6+d</sub>, P. L. Russo, C. R. Wiebe, Y. J. Uemura, A. T. Savici, G. J. MacDougall, J. Rodriguez, G. M. Luke, N. Kaneko, H. Eisaki, M. Greven, O. P. Vajk, S. Ono, Y. Ando, K. Fujita, K. M. Kojima and S. Uchida: Phys. Rev. B, 75 (5) (2007) 54511/1-14.

Interlayer electrostatics and unconventional vortex state in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub>, A. D. LaForge, W. J. Padilla, K. S. Burch, Z. Q. Li, S. V. Dordevic, K. Segawa, Y. Ando, and D. N. Basov: Phys. Rev. B, 76 (6) (2007) 54524/1-13.

Fast oxygen diffusion in A-site ordered perovskites, A. A. Taskin, A. N. Lavrov and Y. Ando: Prog. Solid State Chem., 35 (2007) 481-490.

Magnetization, Nernst effect and vorticity in the cuprates, L. Li, Y. Y. Wang, M. J. Naughton, S. Komiya, S. Ono, Y. Ando, and N. P. Ong: J. Magn. Magn. Mater., 310 (2) (2007) 460-466.

Depairing field, onset temperature and the nature of the transition in cuprates, L. Li, Y. Wang, J. G. Checkelsky, M. J. Naughton, S. Komiya, S. Ono, Y. Ando and N. P. Ong: Physica C, 460 (2007) 48-51.

Gap distributions and spatial variation of electronic states in superconducting and pseudogap states of Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>CuO<sub>8+d</sub>, K. K. Gomes, A. Pasupathy, A. Pushp, S. Ono, Y. Ando and A. Yazdani: Physica C, 460 (2007) 212-215.

Effects of Zn-impurity scattering in La<sub>2-x</sub>Sr<sub>x</sub>CuO<sub>4</sub> studied by angle-resolved photoemission spectroscopy, Yoshida, T; Zhou, XJ; Hussain, Z; Shen, ZX; Fujimori, A; Komiya, S; Ando, Y; Eisaki, H; Uchida, S: Physica C, 460 (2007) 872-873.

Spin blockade of electron transport in correlated cobalt oxide GdBaCo<sub>2</sub>O<sub>5+x</sub>, A. A. Taskin and Y. Ando: J. Magn. Magn. Mater., 310 (2) (2007) 969-971.

Peculiar ferrimagnetism associated with charge order in layered perovskite GdBaMn<sub>2</sub>O<sub>5,0</sub>, A. A. Taskin and Y. Ando: Phys. Rev. Lett., 98 (20) (2007) 207201/1-4.

Large magnetothermal conductivity in GdBaCo<sub>2</sub>O<sub>5+x</sub> single crystals, X. F. Sun, A. A. Taskin, X. Zhao, A. N. Lavrov and Y. Ando: Phys. Rev. B, 77 (5) (2008) 54436/1-5.

Quantum spin excitations through the metal-to-insulator crossover in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6+y</sub>, S. L. Li, Z. Yamani, H. J. Kang, K. Segawa, Y. Ando, X. Yao, H. A. Mook and P. C. Dai: Phys. Rev. B, 77 (1) (2008) 14523/1-8.

Comment on "Onset of a Boson Mode at the Superconducting Critical Point of Underdoped  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ ", Y. Ando: *Phys. Rev. Lett.*, 100 (2) (2008) 29701/1.

Electronic origin of the inhomogeneous pairing interaction in the high-Tc superconductor  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+d}$ , A. N. Pasupathy, A. Pushp, K. K. Gomes, C. V. Parker, J. S. Wen, Z. J. Xu, G. D. Gu, S. Ono, Y. Ando and A. Yazdani: *Science*, 320 (5873) (2008) 196-201.

Doping dependence of phonon and quasiparticle heat transport of pure and Dy-doped  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+d}$  single crystals, X. F. Sun, S. Ono, X. Zhao, Z. Q. Pang, Y. Abe and Y. Ando: *Phys. Rev. B*, 77 (9) (2008) 94515/1-10.

Doping evolution of the electronic structure in the single-layer cuprate  $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-x}\text{La}_x\text{CuO}_{6+d}$ : Comparison with other single-layer cuprates, M. Hashimoto, T. Yoshida, H. Yagi, M. Takizawa, A. Fujimori, M. Kubota, K. Ono, K. Tanaka, D. H. Lu, Z. X. Shen, S. Ono and Y. Ando: *Phys. Rev. B*, 77 (9) (2008) 94516/1-9.

Observation of a 500 meV collective mode in  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  and  $\text{Nd}_2\text{CuO}_4$  using resonant inelastic x-ray scattering, J. P. Hill, G. Blumberg, Y. J. Kim, D. S. Ellis, S. Wakimoto, R. J. Birgeneau, S. Komiya, Y. Ando, B. Liang, R. L. Greene, D. Casa and T. Gog: *Phys. Rev. Lett.*, 100 (9) (2008) 97001/1-4.

Fabrication of machinable AlN-BN composites with high thermal conductivity by pressureless sintering turbostatic BN-coated AlN nanocomposite powders, T. Kusunose, T. Sekino, Y. Ando and K. Niihara: *J. Mater. Res.*, 23 (1) (2008) 236-244.

Why can't experimentalists agree on the superconducting critical exponents?, M. C. Sullivan, D. R. Strachan, S. Li, H. Xu, K. Segawa, Y. Ando, S. M. Anlage and C. J. Lobb: *Physica C*, 468 (4) (2008) 284-287.

Mechanical properties of  $\text{Y}_2\text{O}_3$ -stabilized  $\text{ZrO}_2$  polycrystals fabricated by the solid phase mixing and sintering method, H. Ohnishi, H. Naka, T. Sekino, Y. Ikuhara and K. Niihara: *J. Ceram. Soc. Jpn.*, 116 (1351) (2008) 491-496.

Electrophoretic deposition behavior of ceria-stabilized zirconia/alumina powder, T. Nakamura, H. Nishida, T. Sekino, M. Nawa, K. Wakabayashi, S. Kinuta, Y. Mutobe and H. Yatani: *Dent. Mater. J.*, 26 (5) (2007) 623-627.

Synthesis of photoresponsive azobenzene chromophore-modified multi-walled carbon nanotubes, Y. Y. Feng, W. Feng, H. Noda, T. Sekino, A. Fujii, M. Ozaki and K. Yoshino: *Carbon*, 45 (12) (2007) 2445-2448.

Production of a grain boundary phase as conducting pathway in insulating AlN ceramics, T. Kusunose, T. Sekino and K. Niihara: *Acta Mater.*, 55 (18) (2007) 6170-6175.

Contact damage of silicon carbide/boron nitride nanocomposites, T. Kusunose, T. Sekino and K. Niihara: *J. Am. Ceram. Soc.*, 90 (10) (2007) 3341-3344.

Preparation and characterization of chitosan-grafted multiwalled carbon nanotubes and their electrochemical properties, Z. G. Wu, W. Feng, Y. Y. Feng, Q. Liu, X. H. Xu, T. Sekino, A. Fujii and M. Ozaki: *Carbon*, 45 (6) (2007) 1212-1218.

Microstructure and crystal phase development of  $\text{Y}_2\text{O}_3$ -stabilized  $\text{ZrO}_2$  polycrystal fabricated by the solid phase mixing and sintering method, H. Ohnishi, T. Fukuhara, T. Kawanami, T. Sekino, Y. Ikuhara and K. Niihara: *J. Ceram. Soc. Jpn.*, 115 (1339) (2007) 210-215.

The preparation and characterization of organic solvent dispersible polyaniline coated titania hybrid nanocomposites, Y. G. Han, T. Kusunose and T. Sekino: Mater. Sci. Forum, 569 (2008) 161-164.

Fabrication and evaluation of the novel elastomer based nanocomposite with pressure sensing function, Y. G. Han, T. Shibata, R. Ramaseshan, T. Sekino and K. Niihara.: Mater. Sci. Forum, 544-545 (2007) 741-744.

Thermal properties and microstructure of zirconia/monazite-type  $\text{LaPO}_4$  composites for powder preparation methods, S. H. Kim, T. Sekino, T. Kusunose and A. T. Hirvonen: Mater. Sci. Forum, 544-545 (2007) 909-912.

Hot-pressed AlN/BN composite with excellent mechanical and thermal properties, T. Kusunose, M. J. Cho, T. Sekino and K. Niihara: Mater. Sci. Forum, 544-545 (2007) 761-764.

Transparent 8 mol%  $\text{Y}_2\text{O}_3$ - $\text{ZrO}_2$ (8Y) Ceramics, K. Tsukuma, I. Yamashita, T. Kusunose: J.Am. Ceram. Soc., 91 (3) (2008) 813-818.

### [ 解説、総説 ]

$\text{LaPO}_4$ 分散YSZ基セラミックスナノ複合材料の創製と力学的・熱的特性、関野 徹・金 成浩・楠瀬尚史、燃料電池、7[1] (2007) 85-92

### [ 著書 ]

「High Tc Superconductors and Related Transition Metal Oxides – Special Contributions in Honor of K. Alex Muller on the Occasion of his 80<sup>th</sup> Birthday (分筆)」, (Annette Bussmann-Holder & Hugo Keller 編集), Springer 安藤 陽一, (2008) 17 – 28

「有機・無機・金属ナノチューブ –非カーボンナノチューブ系の最新技術と応用展開–」(清水敏美、木島剛編集)、関野 徹、フロンティア出版、(2008) 97-105

### [ 特許 ]

「導電性アルミナ質焼結体」関野 徹、福原徹郎、大西宏司、特願 2007-110477

「炭化珪素／窒化硼素複合材料焼結体、その製造方法およびその焼結体を用いた部材」衛藤 俊一、荒堀 忠久、楠瀬 尚史、関野 徹、特願 2008-19256

### [ 国際会議 ]

Transport Anisotropy as a Signature of Electron Nematicity (invited), \*Y. Ando: American Physical Society March Meeting (2008).

Transport Properties and Quantum Phase Transitions in Cuprates (invited), \*Y. Ando: International Workshop on Conductor-Insulator Quantum Phase Transitions (2008).

Why Cuprate Superconductors are So Difficult to Understand: Learning from Transport Properties (invited), \*Y. Ando: International Symposium on Lattice Effects in Cuprate High Temperature Superconductors (LEHTSC2007).

Implication of the Mott-Limit Violation in High-Tc Cuprates (invited), \*Y. Ando: 8th International Conference on Spectroscopies in Novel Superconductors (SNS2007).

Implication of the Mott-Limit Violation in High-Tc Cuprates (invited), \*Y. Ando: Conference on Dynamics in Complex Systems -- DELFS III (2007).

Doping n-type carriers to Y123 system by La substitution for Ba (poster), \*K. Segawa, Y. Ando: International Symposium on Lattice Effects in Cuprate High Temperature Superconductors (2007).

Metal-to-Insulator crossover in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  at very low temperatures and high magnetic fields (invited), \*K. Segawa, X. F. Sun, Y. Ando: 20th International Symposium on Superconductivity (2007).

Doping n-type carriers to Y123 system by La substitution for Ba (poster), \*K. Segawa, Y. Ando: 11th Sanken, 6th Nanotechnology Center and 1st MSTEC International Symposium (2008).

Large Magnetoresistance of Spin Origin in Cuprates and Cobaltates (invited), \*Y. Ando: 11th Sanken, 6th Nanotechnology Center and 1st MSTEC International Symposium (2008).

Sum rule analysis of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  in magnetic field, \*A. Laforge, W. Padilla, K. Burch, Z. Li, A. Schafgans, K. Segawa, Y. Ando, D. Basov: American Physical Society March Meeting (2008).

Universal values for the static and dynamic critical exponents in thin-film and bulk crystalline YBCO, \*C.J. Lobb, S. Li, H. Xu, M.C. Sullivan, K. Segawa, Y. Ando, S.M. Anlage: American Physical Society March Meeting (2008).

Search for proximity effect in the local pairing temperature of  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ , \*C. Parker, A. Pushp, K. K. Gomes, A. Pasupathy, G. Gu, S. Ono, Y. Ando, A. Yazdani: American Physical Society March Meeting (2008).

Hall effect signature of Fermi surface reconstruction in high-Tc superconductors, \*F. F. Balakirev, J. B. Betts, A. Migliori, I. Tsukada, Y. Ando, G. S. Boebinger: American Physical Society March Meeting (2008).

Quantum spin excitations through the metal-to-insulator crossover in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ , \*S. Li, Z. Yamani, H. J. Kang, K. Segawa, Y. Ando, X. Yao, H. A. Mook, P. Dai: American Physical Society March Meeting (2008).

Temperature evolution of local pairing & electron-boson coupling in  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ , \*K. K. Gomes, A. Pasupathy, A. Pushp, C. Parker, G. Gu, S. Ono, Y. Ando, A. Yazdani: American Physical Society March Meeting (2008).

Electronic Origin of the Nanoscale Variation of Pairing Gaps in  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ , \*A. Pasupathy, K. K. Gomes, A. Pushp, C. Parker, G. Gu, S. Ono, Y. Ando, A. Yazdani: American Physical Society March Meeting (2008).

Temperature Evolution of the Electronic States & Multiple Gap Features in  $\text{Bi}_2\text{Sr}_{2-y}\text{La}_y\text{CuO}_6$ , \*A. Pushp, A. Pasupathy, K. K. Gomes, C. Parker, S. Ono, Y. Ando, A. Yazdani: American Physical Society March Meeting (2008).

An infrared study of the pancake vortex state in  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  across the phase diagram, \*A. Schafgans, A. Laforge, S. Dordevic, M. Qazilbash, S. Komiya, Y. Ando, D. Basov: American Physical Society March Meeting (2008).

Scanning Josephson Tunneling Microscopy of Single Crystal  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$  from a Conventional Superconducting Tip, \*H. Kimura, R. Barber, S. Ono, Y. Ando, R. Dynes: American Physical Society March Meeting (2008).

Appearance of Universal Metallic Dispersion in a Doped Mott Insulator, \*H. Lin, S. Sahrakorpi, R. S. Markiewicz, X. J. Zhou, T. Yoshida, W. L. Yang, T. Kakeshita, H. Eisaki, S. Uchida, S. Komiya, Y. Ando, Z.X. Zhao, T. Sasagawa, A. Fujimori, Z. Hussain, Z. X. Shen, A. Bansil: American Physical Society March Meeting (2008).

Nitride Based Ceramic Nanocomposites with Multifunctionality (invited), \*T. Kusunose, T. Sekino, K. Niihara: The Sixteenth (2007) International Offshore and Polar Engineering Conference (ISOPE2007).

Non-Oxide Ceramic Nanocomposites with Multifunctionality (invited), \*T. Kusunose: 2nd International Symposium on SiAlONs and Non-oxides (2007).

Photocatalytic Properties of Titanium Oxide Nanotubes for Environmental and Energy Applications (invited), \*T. Sekino, A. Hayashi, T. Kusunose, S. Seino: International Joint Conference on Knowledge Management for Composite Materials: Symposium on Alternate Energy & Fuel Cell Technology (KMCM2007).

Development and Performance of Organic-Inorganic Nano-hybrid Pressure Sensor Materials (invited), \*T. Sekino, Y. G. Han, K. Kawahara, K. Murata, Y. Hamahashi, Y. Okamoto, H. Nishida, K. Niihara: The 2nd International Symposium on Organic and Inorganic Electronic Materials and Related Nanotechnologies (EM-NANO 2007).

Basics and Application of Ceramic and Polymer based Nanocomposite Materials (invited), \*T. Sekino: HFM Academic Forum 2007 -Educational Seminar on the Nanoscience and Nanotechnology for Advanced Materials-.

Synthesis and Properties of Oxide Ceramic Semiconductors with Thermoelectric Functions, \*T. Sekino, H. Hashimoto, Y. Saijo, T. Kusunose, T. Adachi, M. Sasaki: The Third International Workshop for R&D Clustering among China, Japan, Korea in Eco-Materials Processing (2007).

Characterization of 3YSZ/LaPO<sub>4</sub> Systems to Apply Thermal Barrier Coating, \*S. H. Kim, T. Kusunose, S. W. Lee, T. Sekino: The 7th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology (PacRim7)(2007).

Multifunctionality of Titanium Oxide Nanotube and Its Nanocomposites, \*T. Sekino, A. Hayashi, D. J. Park, S. Itano, T. Nakayama, T. Kusunose, S. Seino: The 7th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology (PacRim7)(2007).

Study of Conductive Elastomer Composites reinforced with Sulfonic Acid Doped Polyaniline Coated Titanium Dioxide (poster), \*Y. G. Han, T. Kusunose, T. Sekino: The 7th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology (PacRim7)(2007).

Synthesis and Characterization of Various Shaped Au nanoparticles with Mixed Surfactant System (poster), \*S. Y. Moon, T. Kusunose, T. Sekino: The 7th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology (PacRim7)(2007).

Design of 3D Nano-Network and Multi-Functions for Zirconia-Based Multi-Phase Nanocomposites Dispersed with CNT and Nanoparticles (invited), \*T. Sekino, X. P. Ye, S. H. Kim, T. Kusunose: The 9nd International Symposium on Eco-materials and Processing Design (ISEPD2008).

The Controlled Synthesis of Various Shape and Size of Gold Nanoparticles in Different Media, \*S. Y. Moon, T. Kusunose, T. Sekino: The 9nd International Symposium on Eco-materials and Processing Design (ISEPD2008).

h-BN Dispersed Silica Based Hybrid Coatings for Corrosion Protection, \*M. J. Cho, S. H. Kim, T. Kusunose, T.

Nakayama, T. Sekino, K. Niihara: The 9nd International Symposium on Eco-materials and Processing Design (ISEPD2008).

The Preparation and Characterization of Organic Solvent Dispersible Polyaniline Coated Titania Hybrid Nanocomposites, \*Y. G. Han, T. Sekino, T. Kusunose: The 9nd International Symposium on Eco-materials and Processing Design (ISEPD2008).

Novel Adsorption and Photocatalytic Properties of Titania Nanotube in Liquid and Gas Phases (poster), \*A. Hayashi, D. J. Park, T. Kusunose, S. Seino, T. Sekino: The 9nd International Symposium on Eco-materials and Processing Design (ISEPD2008).

Development of P/n Oxide Semiconductor Composites Using Self-Organized Phase-Separation Control (poster), \*T. Shimizu, T. Kusunose, T. Sekino: The 9nd International Symposium on Eco-materials and Processing Design (ISEPD2008).

Thermoelectric Properties of Two Types Rare Earth Containing Cobalt Oxide Ceramics (poster), \*H. Hashimoto, T. Kusunose, T. Sekino: The 9nd International Symposium on Eco-materials and Processing Design (ISEPD2008).

#### [ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

安藤 陽一 9th International Conference on Materials and Mechanisms of Superconductivity and High Temperature Superconductors (組織委員)

#### [ 国内学会 ]

日本物理学会	2 件
日本セラミックス協会	10 件
日本粉体粉末冶金協会	3 件

#### [ 取得学位 ]

学士 (工学)	
江藤 数馬	スピントール効果検証にむけた絶縁体 PbS の作製
三棹 貴史	未確認高温超伝導の検証を目指したタンゲステン酸ナトリウムの合成と評価
修士 (工学)	
清水 孝子	金属イオンドープによるSnO <sub>2</sub> -TiO <sub>2</sub> 系材料のスピノーダル相分離構造の設計とその評価
林 明日香	酸化チタンナノチューブにおける吸着および光触媒機能の共生
叶 興平	CNT と金属ナノ粒子分散によるジルコニア基マルチフェーズナノ複合材料の創製と評価

#### [ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)		単位: 千円
若手研究 (S)		
安藤 陽一	モット絶縁体とスピントール絶縁体: 普通でない絶縁体の物理の究明	17,940
基盤研究 (B)		
安藤 陽一	銅酸化物高温超伝導体における電子の自己組織化と輸送現象	4,582

基盤研究 (B)			
関野 徹	環境・エネルギー創製システムを指向した酸化物ナノチューブの高次構造制御と機能共生		1,938
特別研究員奨励費			
Narges Fathy Fahim	電気化学的手法による高配光型TiO <sub>2</sub> ナノチューブアレイの創製と太陽光発電への応用		1,200
[ 受託研究 ]			
楠瀬 尚史	JST・可能性試験	マイクロインプリントモールド用SiC/BN ナノ複合粉末の合成	1,000
[ 奨学寄附金 ]			
関野 徹	イナバゴム(株)		3,000
関野 徹	大塚化学株式会社		600
関野 徹	日本電気硝子株式会社		1,000
関野 徹	(株)ニッカトー		1,000
楠瀬 尚史	日本タングステン(株)		500
楠瀬 尚史	住金セラミックスアンドクウォーツ(株)		1,000
楠瀬 尚史	東ソー株式会社		1,350
[ 共同研究 ]			
安藤 陽一	(財)電力中央研究所	遷移金属酸化物の物性研究を通じた新材料開発	2,000
関野 徹	(株)巴製作所	新規な機能性ナノコンポジットコーティングの研究開発	650
[ その他の競争的研究資金 ]			
関野 徹	NEDO・度産業技術研究助成事業	酸化物ナノチューブの高次機能化ならびに環境調和型システムへの応用に関する研究	845



## エネルギー材料研究分野

教授	谷村 克己
准教授	田中 慎一郎
助教	稲見 栄一
大学院学生	市林 拓
事務補佐員	野澤 幸代
研究支援推進員	布垣 昌伸

### a) 概要

本研究分野では、固体の電子系が励起された際に発生する種々の原子過程（電子励起誘起原子過程）の機構を解明し、原子過程を制御・組織化して新規な高次機能構造を創製する事、を目指している。このような励起状態を発生・制御した固体構造創製の研究は、従来の手法が有していた熱力学的平衡条件の制約を大きく打破し得る、新しい材料科学・物質科学の1つの展開方向である。固体の励起手法として、レーザー光、電子線、量子ビーム、反応性プラズマ、等多彩な励起源を駆使して各励起状態を選択的に発生させ、誘起される原子過程を、固体内の原子の振動周期よりも速いフェムト秒領域で動力的に直接追跡すると共に、走査型トンネル顕微鏡を用いて、原子分解能で構造変化を直接観察する研究を行っている。

更に最近では、励起後の電子系の変化を超高速で直接測定するためのフェムト秒時間分解光電子分光、および、固体の構造変化を  $10^{-13}$ 秒の時間領域で直接捉えるためのフェムト秒時間分解電子線回折分光の開発に力を入れている。主な研究内容は、電子励起による半導体表面上の高次機能ナノ構造創製の基礎過程の研究、フェムト秒2光子光電子分光による半導体表面の超高速キャリア動力学の研究、絶縁性固体に対するフェムト秒時間分解分光法による励起状態の超高速緩和過程の研究、光誘起構造相転移動力学の研究、および応用研究としての反応性プラズマとイオンビーム等を用いた機能性材料表面創製の研究である。

### b) 成果

#### 1 半導体表面における光誘起構造変化現象の研究

##### (1) 化合物半導体 InP 表面におけるトンネル電流励起表面原子ボンド切断機構の研究

レーザーの価電子系励起による InP 表面での表面原子ボンド切断機構に関しては、基本的に昨年度の研究でその機構を解明した。光励起では、価電子帯の正孔と伝導体の電子が同時に生成され、電子-正孔再結合は構造変化の阻害要因として働く。この効果を取り除くとともに、2正孔局機構の直接的証拠を得るべく、STM チップ先端からの電子注入、正孔注入の条件下での表面構造変化を研究した。主な成果は、以下の通りである。

- 1) 試料とチップとのバイアスを変化させ、種々の電荷注入下での表面P原子の空孔生成効率を測定した。試料バイアスが負となる正孔注入条件下では、通常の原子像観察に用いる 1nA 以下のトンネル電流においても、P原子空孔の生成が生ずる。一定電荷量注入下でのP原子空孔の収量は、-1.2V を境（閾値）としてそれ以下のバイアスで増加し、一方電子注入条件下では、+5eV のバイアスでもP原子空孔は生成しない。この結果は、表面原子のボンド切断には、価電子帯に注入された正孔が決定的な役割を果たすことの直接的な証拠である。
- 2) チップからの正孔注入によって発生する欠陥形態は、レーザー光励起の場合と同様なフェルミ準位効果を示し、チップ励起の場合も、光励起による価電子系励起と同様、2正孔局在過程が支配的で

あることが明らかとなった。

これらの結果は、化合物半導体表面における励起誘起構造変化機構に立脚し、その現象を、空間的・量的に制御して、表面ナノ構造創製を実現する重要な基礎となる。

## (2) Si(111)-(2x1)表面における光誘起表面構造変化現象の研究

半導体表面が示す1つの典型的な事象としての光励起に対する敏感な構造的応答（励起誘起構造不安定性）の機構を、より一般的な見地から明らかにする為に、典型的な擬1次元再構成構造を有するSi(111)-(2x1)表面に対する表面構造変化の研究を行っている。その意義は、①表面構造の次元性が励起誘起構造不安定性に与える影響を明らかにする事、②表面電子状態の光学遷移がバルクギャップ中に存在し、結晶電子系の励起と表面状態の励起が明確に区分できる系である事、にある。昨年度の最低エネルギー価電子励起を与える1064 nm励起の場合の構造不安定性の機構解明に引き続き、今年度は、表面光学遷移を赤外フェムト秒レーザーで直接励起して、表面電子状態のみを励起した場合に発生する表面構造変化の研究を行った。その結果、

- 1) 表面電子系の励起によって3配位Siのボンド切断が発生する事、
- 2) ボンド切断効率率は、励起強度に非線形的に依存する事、

が明らかとなった。これらの結果は、表面原子の局所的ボンド切断が、表面正孔の非線形局在によって発生することを示す。得られた結果は、定量的に、2正孔局在機構によって完全に記述される。

## II フェムト秒2光子光電子分光による表面励起動力学の研究

フェムト秒2光子光電子分光の手法を用いて、Si(001)-(2x1)表面、およびSi(111)-(7x7)表面における光励起電子の超高速動力学に関する研究を継続・展開した。その特徴は、フェムト秒オプティカルパラメトリック発振器を250kHzで動作させ、ポンプ光とプローブ光との独立な波長可変化を実現した実験装置を構成している点にある。今年度は、今までの励起電子にたいする動力学的研究のみならず、プローブパルスにTi:Sapphireレーザーの4倍高調波を用い、正孔系の緩和動力学研究に着手した。その成果は、以下の通りである。

### (1) Si結晶におけるX valley内緩和に対する超高速動力学の研究

上記2種のSi表面において、結晶内部の伝導帯底に対応するエネルギー位置に、明瞭な光電子放出ピークを観測し、それが、伝導帯底近傍から表面付近にのみ振幅を有するinverse LEED状態へ、結晶ポテンシャルの表面での変化に起因する効果（surface photoelectric effect）によって遷移が引き起こされて誘起されるものであることを明らかにした。その知見に立脚し、0.6eV程度のexcess energyを有するhotな励起電子がX valley内を緩和する過程を実験的に研究した。その結果、

- 1) 励起後100fsの時間内に伝導帯底まで緩和し、電子温度が2000K程度の準並行分布を形成すること、
- 2) その緩和過程で、電子系に複写場から与えられた約半分のエネルギーがすでに格子系に与えられ、急速なheating効果を誘起すること、
- 3) その後、240fsの時定数で格子系との平衡を達成すること、
- 4) その平衡に至る過程で急速に表面状態へ遷移し、それ以後の拡散を特徴づける電子の空間分布が形成されること、

が明らかとなった。

### (2) Si(001)-(2x1)表面における研究

この表面は、応用的にも最も重要な表面であり、いままでいくつかの研究が展開されているが、結晶内電子系を占有する電子が、どのような動力学を経て表面電子系へ遷移するかに関する直接的な知見は得られておらず、多くの問題が残されていた。結晶電子系の励起に、赤外光、および紫外光のフェムト秒パルスを用い、光学遷移過程を制御しながら、バルク伝導電子および表面状態電子の分布変化を詳細

に追跡した。その結果、

- 1) 平衡状態に達した結晶伝導帯の電子系から表面電子状態への遷移は、伝導体底からフォノンエネルギーだけ異なる表面電子状態へ、遷移速度  $2.5 \times 10^{13} \text{s}^{-1}$  で発生する事、
- 2) 励起後数 ps 後の伝導電子の時間応答は、上記の遷移速度で決まる表面再結合速度と試料内部への拡散によって支配されること、
- 3) フェムト秒パルス励起後数 ps までは、発生した結晶内電子状態に依存する緩和過程と電子温度に著しく依存する表面電子状態への遷移を示すこと、

が明らかとなった。以上の知見は、放出光電子の角度分解および時間分解の双方を駆使することによってはじめて明らかとなった新たな知見である。

### (3) Si(111)-(7x7)表面における研究

最も代表的な再構成表面である Si(111)-(7x7)に対して、系統的なフェムト秒時間領域の時間分解キャリアー動力学的研究を行った。その結果、

- 1) 表面非占有状態における電子占有分布が、光励起後 200 フェムト秒以降では、基本的にフェルミディラック分布によって記述されることを見出し、表面電子系の準フェルミ準位および有効電子温度の時間変化を正確に測定した、
  - 2) 励起後 1ps 以降の表面状態への電子分布は、結晶伝導体からの遷移によって決まり、一方それ以前は、hot carrier からの動的遷移および表面状態間の光学遷移による動的な過程であること、
- が明らかとなった。これらの結果は、半導体表面におけるキャリアー動力学的の支配要因を統一的に理解する上で、極めて重要な知見である。

## III 励起効果を用いた非平衡材料プロセッシングの研究

・荷電粒子照射及びプラズマプロセスを利用した材料改質

粒子線照射・プラズマプロセス複合工程表面直接改質法を用いて、種々の金属材料の表面の高機能セラミック化し、耐超高温性、高熱伝導性、高硬度、耐摩耗性等の高機能性付与を目標とした応用研究を行った。今年度は、反応性プラズマ処理により、Ti 表面層の TiC へのセラミック化に成功するとともに、重水素を吸蔵させた Pd ナノコンポジット材料 Pd/ZrO<sub>2</sub> を作成し、その原子配列解析を行った。これらは、いずれも、量子機能科学研究部門（光・電子材料研究分野）との共同研究である。

### [ 原著論文 ]

Fermi-level dependent morphology in photoinduced structural instability on (110) surfaces of III-V semiconductors, J. Kanasaki, E. Inami, and K. Tanimura, Surf. Sci. 601, 2367-2372 (2007).

Identification of the conduction-band photoemission in time-resolved two-photon photoemission spectroscopy of Si surfaces, T. Ichibayashi and K. Tanimura, Phys. Rev. B 75, 235327-1-6 (2007).

Electronic bond rupture of Si atoms on Si(111)-(2x1) induced by valence excitation, E. Inami and K. Tanimura, Phys. Rev. B 76, 035311-1-11 (2007).

Surface modification of a metal into a thick ceramic layer and a model for analyzing the increased hardness, S. Emura, M. Nunogaki, and Y. Nakata, J. Ceram. Process. Res. 8, 191-194 (2007).

Atomic structure analysis of Pd nanocluster in nanocomposite Pd/ZrO<sub>2</sub> absorbing Deuterium, S. Emura, Y. Arata, Y. Arachi, M. Nunogaki, and A. Ohmura, 高温学会誌、33, 142-156 (2007).

Scanning tunneling microscopy study on hydrogen removal from Si(001)-(2x1):H surface excited with low-energy electron beams, J. Kanasaki, K. Ichihashi, and K. Tanimura, Surf. Sci. 602, 1322-1327 (2008).

#### [ 国際会議 ]

Excitation-Induced Atomic Desorption and Structural Instability of Semiconductor Surfaces (Invited), K. Tanimura, 11<sup>th</sup> International Workshop on Desorption Induced by Electronic Transitions DIET-XI, Berlin, Germany, March 11-15, 2007.

Structural Instabilities on InP(110)-(1x1) Surfaces Induced by Hole-Injection from the STM Tip, E. Inami, J. Tsuruta, and \*J. Kanasaki, 11<sup>th</sup> International Workshop on Desorption Induced by Electronic Transitions (DIET-XI), Berlin, Germany, March 11-15, 2007.

Excitation-Wavelength dependent Ultrafast Carrier Dynamics on Si Surfaces (Oral), \*T. Ichibayashi, K. Tanimura, 11<sup>th</sup> International Workshop on Desorption Induced by Electronic Transitions DIET-XI, Berlin, Germany, March 11-15, 2007.

Hydrogen removal from Si(001)-(2x1):H surface induced by low-energy electron beam excitation, K. Ichihashi, J. Kanasaki, and K. Tanimura, 11<sup>th</sup> International Workshop on Desorption Induced by Electronic Transitions DIET-XI, Berlin, Germany, March 11-15, 2007.

#### [ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

谷村 克己 International Workshop on Desorption Induced by Electronic Transitions (国際組織委員)

#### [ 国内学会 ]

日本物理学会 10 件

#### [ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの) 単位：千円

特別推進研究		
谷村克己	光誘起構造相転移動力学の研究	181,110
基盤研究(A) (2)		
谷村 克己	半導体表面二次元凝縮相における励起物性の研究	2,300
萌芽研究		
谷村克己		1,500

#### [ 受託研究 ]

該当なし

#### [ その他の競争的研究資金 ]

該当なし

# 機能分子科学研究部門

## 概要

本研究部門は精密制御化学研究分野、医薬品化学研究分野、有機物性化学研究分野、励起分子化学研究分野、分子合成化学研究分野、分子材料解析研究分野（平成 16 年度発足）からなり、有機化学に基礎を置いて、有機化合物によってもたらされる種々の機能を様々な観点から追求している。有機化学は有機分子を対象とする学問体系であり、有機分子は生命体における多種多様の機能を担っているのをはじめ、各種機能性材料や医薬品として広く用いられている。これら有機分子の機能は分子や分子集合体の種類・構造と深く関係している。したがって、本研究部門においては有機金属化合物、医薬品用化合物、複合金属錯体、放射線や光によって励起された分子、パイ電子系を含む有機分子などの種々の有機化合物について、それらの設計・合成、合成法の開発、反応性・反応機構の検討などを通して新規触媒反応、医薬品、新規有機合成法などの開発や光・電子機能、分子認識能などの新機能発現を目指して研究を行っている。

## 成果

- ・ DNA 分子糊の開発
- ・ 光応答性ペプチドと *in vitro* セレクションを組み合わせた RNA-リガンド結合の光制御
- ・ アレル特異的 PCR 法を用いた簡便、迅速、安価な SNP 検出法
- ・ DNA リピート配列認識分子の開発
- ・ フシコッカ型ジテルペン配糖体の誘導化による抗癌活性化合物の創製
- ・ 細胞内信号伝達経路に対するリバーシブル・ケモゲノミクス
- ・ タンパク質の内部・外部表面認識型阻害剤の設計と合成
- ・ p-型および n-型半導体の開発と有機エレクトロニクスへの応用
- ・ 刺激応答性や絶縁被覆などの機能を有する分子ワイヤの構築
- ・ DNA のビーム化学
- ・ マルチレーザー多段階光化学
- ・ 二酸化チタン光触媒反応
- ・ タンパク質機能の光化学的制御
- ・ 複数の配位子を構成要素とする不斉触媒の固定化
- ・ イソオキサゾリン環とイソオキサゾール環を有するスピロ型不斉ハイブリッド配位子の創製と応用
- ・ 不斉触媒能を有する球状粒子の合成
- ・ キラルなスピロ型イオン液体の創製

## 精密制御化学研究分野

教授	中谷 和彦
助手	周 大揚、萩原 正規、堂野 主税
博士研究員	He Hanping
大学院学生	林 剛介、劉 キョンイン、宇野 真之介、梅本 詩織、堂浦 智裕、洪 昌峰、 山本 剛史
学部学生	坂井 俊
研究補助員	瀬尾 晶子、五十嵐 雅子
事務補佐員	大浜 美帆

### a) 概要

当分野では、有機合成化学を基盤として、ケミカルバイオロジーとナノテクノロジーを指向した研究を進めている。ケミカルバイオロジーに関しては、核酸特異構造の認識と遺伝子発現制御に焦点を絞り、1) ミスマッチ塩基対特異的な低分子有機リガンドの分子設計と、2) 分子生物学的手法を用いた RNA アプタマー創出の対極的な二つの方向からアプローチしている。一方、C、H、O、N、P の各元素からなる DNA は、遺伝子として重要であるばかりでなく、らせん構造を自発的に形成する極めて特徴的な有機化合物と捉えることが出来る。ナノテクノロジーにおける精密材料としての高度利用を進めるために、核酸の反応性や物性の解明、化学修飾による新規物性の獲得を目指している。

### b) 成果

#### ・シトシンバルジヘアピンプライマーを用いた簡便な遺伝子変異検出法

遺伝子の変異を迅速に検出する手法が、テーラメード医療を支える根幹技術として期待されている。当研究室では、ミスマッチやバルジ構造に特異的に結合する小分子を用いた遺伝子変異検査技術を提案してきた。実用に耐えうる遺伝子変異検査技術としては、簡便な操作、正確な判定、かつ、検査コストが十分に安価であることが望まれる。この要求を満たすために、DNA プローブの化学修飾はいっさい行わないことを基本としている。シトシンバルジサイトをヘアピン構造内に持ち、さらに 3' 末端に一塩基多型認識サイトを含む PCR プライマーを用意し、シトシンバルジにジアミノナフチリジン誘導体が結合して発する特徴的な蛍光を利用して PCR の進行をモニターし、遺伝子変異の有無を見つける方法を検討した。この手法の特徴は、標的 DNA が少量でも PCR を使うことで検出が可能であること、全てを混合して PCR がかけられるというきわめて簡便な手法で遺伝子変異が判定できる点にある。テンプレートをを用いて PCR を行なった結果、3' 末端の一塩基の違いで蛍光の変化に大きな差が観測され、一塩基の違いを認識することに成功した。

#### ・ヒトテロメア繰り返し配列に特異的に結合し構造変化を誘起する有機小分子の開発

テロメアは染色体の 3' 末端に存在する DNA 配列であり、ヒト染色体の場合には TTAGGG 配列が繰り返し、様々なタンパク質が結合して染色体の安定性に関わっている。ヒトテロメア配列を伸長する酵素テロメラーゼは、がん細胞において活性の上昇が認められており、テロメラーゼによるテロメア伸長を阻害する低分子化合物は抗癌剤として注目されている。

当研究室では、GG ミスマッチ配列を特異的に認識し、結合する低分子リガンド「ナフチリジンダイマー」がグアニン塩基に富むヒトテロメア繰り返し配列に高い親和性で結合することを見いだした。さらに親和性、選択性の向上を目指して C3 リンカーで 2 分子のナフチリジンダイマーを共有結合しより連結した分子「ナフチリジンテトラマー」を合成した。ナフチリジンテトラマーはヒトテロメア繰り返し配列に高い親和性で結合し、テロメア繰り返し配列が形成する G-四重鎖構造を不安定化し、強固な分子内ヘアピン様構造を誘導することを円二色性偏光解析、DNA ポリメラーゼを用いた生化学的な手法

により明らかにした。

#### ・ DNA 二本鎖形成を光で可逆的に制御する「光応答性 DNA 分子糊」の開発

DNA のミスマッチ塩基対に特異的に結合するミスマッチ結合リガンド(MBL)は、安定な複合体を形成することにより、ミスマッチ塩基対を含む DNA の二本鎖形成を誘起する、いわば、二本の DNA を貼り合わせる「分子糊」としての機能を持つ。しかしながら MBL による二本鎖構造制御は一本鎖から二本鎖構造への一方方向でのみ進行し、実質的に不可逆的な過程である。外部刺激による可逆的な DNA 二次構造変換を指向し、MBL のリンカー部位を光応答性基であるアゾベンゼンに置換した光応答性の分子糊、NCDA の設計・合成を行った。平面剛直なアゾベンゼン骨格を有する *trans*-NCDA から、折れ曲がり構造を有する *cis*-NCDA に光異性化させることにより、グアニン塩基認識部位であるナフチリジンを結合に有利な位置および配向に変換することができる。すなわちトランス体からシス体への異性化により、不安定なミスマッチ含有 DNA を安定な二本鎖型複合体へと変換が可能であり、紫外・可視光照射を組み合わせることにより可逆的に DNA 二本鎖の安定性を制御することが可能である。実際に NCDA と光を用いた DNA 二本鎖構造制御を評価するため、金基板上に、GG ミスマッチを含む DNA を固定化し、SPR イメージングによる測定を行った。基底状態の *trans*-NCDA 存在下では、有意な SPR 変化は観測されなかったが、360nm 光照射によって NCDA を *cis* 型に変換することにより二本鎖形成に由来すると考えられる SPR シグナルが観測された。さらに、430nm 光照射により一旦生成した二本鎖 DNA の解離が進行することが明らかとなった。NCDA は未修飾の DNA の二本鎖形成を外部刺激である光により可逆的に制御することができる全く新しい機能性分子である。

#### ・新規金属修飾 DNA の合成

機能性を付加した DNA はバイオナノ材料として注目されている。複数種の金属イオンを DNA 側鎖に導入することにより、多種類の金属イオンを、その数や順番をコントロールして並べることが可能になる。金属イオンの配列や金属イオン間の相互作用を制御することで、ユニークな機能の発現が期待され、ナノメートルサイズの機能性分子の次世代の構築原理ができる。この研究の第一歩として、ビピリジンを持つヌクレオシドの合成を行った。さらに一つビピリジン基を有する DNA の合成が成功した。無機銅塩溶液と反応させて、ビピリジン基に一つ銅イオンが取り込まれた DNA の生成することを確認した。

#### [ 原著論文 ]

Detection of L-DNA-Tagged PCR Products by Surface Plasmon Resonance Imaging, Hayashi, G.; Hagihara, M.; Kobori, A.; Nakatani, K. ChemBioChem. 8 (2007) 169-171.

Bidirectional control of gold nanoparticle assembly by turning on and off DNA hybridization with thermally degradable molecular glue, Tao Peng, Chikara Dohno, Kazuhiko Nakatani, ChemBioChem, 8 (2007) 483-485.

Small-Molecule Binding to the Nonquadruplex Form of the Human Telomeric Sequence, Goto, Y.; Hagihara, S.; Hagihara, M.; Nakatani, K. ChemBioChem. 8 (2007) 723-726.

Allele Specific C-Bulge Probes with One Unique Fluorescent Molecule Discriminate the Single Nucleotide Polymorphism in DNA, Takei, F.; Suda, H.; Hagihara, M.; Zhang, J.; Kobori, A.; Nakatani, K. Chem. Eur. J. 13 (2007) 4452-4457.

Exploiting small molecule binding to DNA for the detection of single-nucleotide mismatches and their base environment, Xiaohong Li, Haifeng Song, Kazuhiko Nakatani, Heinz-Bernhard Kraatz, Anal. Chem. 79 (2007) 2552-2555.

The rare crystallographic structure of d(CGCGCG)(2): the natural spermidine molecule bound to the minor

groove of left-handed Z-DNA d(CGCGCG)<sub>2</sub> at 10 degrees C., Hirofumi Ohishi, Yoshitaka Tozuka, Zhou Da-Yang, Toshimasa Ishida, Kazuhiko Nakatani, *Biochem. Biophys. Res. Commun.* 358 (2007) 24-28.

Analysis of mismatched DNA by mismatch binding ligand (MBL)-Sepharose affinity chromatography. Yuki Goto, Hitoshi Suda, Akio Kobori, Kazuhiko Nakatani, *Anal. Bioanal. Chem.* 388 (2007) 1165-1173.

Emission of characteristic fluorescence from the ligand-cytosine complex in U<sub>A</sub>/ACU bulged RNA duplex. Jinhua Zhang, Fumie Takei, Kazuhiko Nakatani, *Bioorg. Med. Chem.* 15 (2007) 4813-4817.

Stepwise functionalization of ribonucleopeptides: optimization of the response of fluorescent ribonucleopeptide sensors for ATP. Tetsuya Hasegawa, Masaki Hagihara, Masatora Fukuda, Takashi Morii, *Nucleosides, Nucleotides, & Nucleic Acids* 26 (2007) 1277-1281.

Photoregulation of a Peptide-RNA Interaction on a Gold Surface, Hayashi, G.; Hagihara, M.; Dohno, C.; Uno, S.; Nakatani, K. *J. Am. Chem. Soc.* 129 (2007) 8678-8679.

Photoswitchable Molecular Glue for DNA, Dohno, C.; Uno, S.; Nakatani, K. *J. Am. Chem. Soc.* 129 (2007) 11898-11899.

Polyamines stabilize left-handed Z-DNA: Using X-ray crystallographic analysis, we have found a new type of polyamine (PA) that stabilizes left-handed Z-DNA, Ohishi, H.; Odoko, M.; Grzeskowiak, K.; Hiyama, Y.; Tsukamoto, K.; Maezaki, N.; Ishida, T.; Tanaka, T.; Okabe, N.; Fukuyama, K.; Zhou, D.-Y.; Nakatani, K. *Biochem. Biophys. Res. Commun.* 366 (2008) 275-280.

The crystallographic study of left-handed Z-DNA d(CGCGCG)<sub>2</sub> and thermine complexes crystallized at various temperatures and at various concentration of cations, Ohishi, H.; Odoko, M.; Zhou, D.-Y.; Tozuka, Y.; Okabe, N.; Nakatani, K.; Ishida, T.; Grzeskowiak, K. *Biochem. Biophys. Res. Commun.* 368 (2008) 382-387.

Ligand-Stabilized Hairpin Structures Interfered with Elongation of Human Telomere  
Hagihara, Masaki; Goto, Yuki; Nakatani, Kazuhiko  
*ChemBioChem*, 9 (2008) 510-513.

#### [ 特許 ]

「核酸と被験物質との結合親和性を測定するための組成物及びその利用」、中谷和彦、張 錦華、出願人 大阪大学、特許出願 2 0 0 7 - 1 9 9 9 7 0

#### [ 国際会議 ]

Mismatch-Binding Ligands as a Molecular Glue for DNA, \*Dohno, C., Peng, T., Nakatani, K., 7th International Meeting on Recognition Studies in Nucleic Acids, Sheffield, UK, Apr1-5, 2007

Photoswitchable Mismatch-Binding Ligands Control DNA Hybridization, Dohno, C., \*Uno, S., Oku, M., Nakatani, K., 7th International Meeting on Recognition Studies in Nucleic Acids, Sheffield, UK, Apr1-5, 2007

Mismatch-Binding Ligands: Chemistry Approach to Genotyping, International Symposium on Advanced Functional Genomics, \*Kazuhiko Nakatani, Kazusa DNA Research Institute, Chiba, Japan, October 11, 2007.

Molecular Glue for DNA, The 13th Korea-Japan Seminar on Organic Chemistry, \*Kazuhiko Nakatani,



Department of Chemistry, KAIST, Daejeon (Korea), October 20-21, 2007.

Reversible regulation of binding between a photoresponsive peptide and its RNA aptamer, \*Hayashi, G., Hagihara, M., Dohno, C., Oku, M., Nakatani, K., 5th International Symposium on Nucleic Acids Chemistry, Tokyo, Japan, Nov20-22, 2007.

Reversible Control of DNA Hybridization by Photoresponsive Ligands, \*Uno, S., Dohno, C., Oku, M., Nakatani, K., 5th International Symposium on Nucleic Acids Chemistry, Tokyo, Japan, Nov20-22, 2007.

Application for the Fluorescent Detection of Single Nucleotide Difference using Cytosine Bulge Hairpin Primers, \*Fumie Takei, Masaki Hagihara, Yoshimi Oka, Kazuhiko Nakatani, 11th Sanken International Symposium, Awaji, Japan, Feb2-4, 2008.

Switching DNA hybridization by a molecular glue for DNA, \*Tsuyoshi Yamamoto, Chikara Dohno, Shin-nosuke Uno, Kazuhiko Nakatani, 11th Sanken International Symposium, Awaji, Japan, Feb2-4, 2008.

Displacement Assay For RNA-ligand Interactions, Using Ligand's Fluorescent Property, \*Shiori Umemoto, Jinhua Zang, Kazuhiko Nakatani, 11th Sanken International Symposium, Awaji, Japan, Feb2-4, 2008.

Molecular Glue for DNA, \*Chikara Dohno, NSF-MEXT US/Japan Young Scientists Symposium on Nanoscale Devices & Systems, Evanston, IL, USA, Mar-11, 2008.

#### [ 国内学会 ]

第 34 回核酸化学シンポジウム	2 件
第 5 回 21 世紀 COE プログラム国際シンポジウム「新産業創造指向インターナノサイエンス」	4 件
日本化学会春季年会	8 件
第 2 回日本ケミカルバイオロジー研究会年会	3 件
第 22 回生体機能関連化学シンポジウム	1 件
第 34 回有機反応懇談会	1 件
2007 年 光化学討論会	1 件
第 9 回 RNA ミーティングシンポジウム	1 件
SORST ジョイントシンポジウム (8)	2 件

#### [ 取得学位 ]

修士 (理学)

劉 キョンイン 新規な G-G ミスマッチ結合分子の合成とそのテロメア配列への結合評価

#### [ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)

単位 : 千円

基盤研究 (S)			
中谷 和彦	ミスマッチ塩基対安定化を基盤とした核酸構造制御による機能発現調節		34,500
基盤研究 (C)			
周 大揚	メタル触媒を活用する新規多環状性ヌクレオチドおよびオリゴライブラリーの創成		2,340
武井 史恵	シトシンバルジプローブを用いる革新的遺伝子-塩基変異の蛍光検出法の開発		1,820
若手研究 (B)			
堂野 主税	光感性ミスマッチ安定化分子の開発		1,800

### [ 受託研究 ]

中谷 和彦	科学技術振興機構 戦略的創造研究	高次構造特異的プローブ開発による高次構造のオンタイム検出	5,900
中谷 和彦	科学技術振興機構 産学共同シーズイノベーション 化事業顕在化ステージ	シトシンバルジ標識アレル特異的PCR による遺伝子-塩基多型の蛍光検出	4,100
中谷 和彦	科学技術振興機構 産学共同シーズイノベーション 化事業顕在化ステージ	創薬標的RNAに結合するドラッグ候補化合物のハイスループットスクリーニング法開発	1,538

### [ 奨学寄附金 ]

中谷 和彦	旭硝子財団		5,000
-------	-------	--	-------

### [ 共同研究 ]

中谷 和彦	協和発酵工業	RNA に作用する低分子薬物の分子設計法の確立	2,618
中谷 和彦	日東化成	DNA 結合性分子の合成	806

### [ その他の競争的研究資金 ]

萩原 正規	ヒューマン・フロンティア ア・サイエンス・プログラ ム若手研究グラント	The biological role of tandem repeats in genomes	\$93,250
-------	---	--	----------

## 医薬品化学研究分野

教授	加藤 修雄
准教授	大神田 淳子
助教	新田 孟
特任研究員	平岡 正光
大学院学生	井上 崇嗣、町田 慎之介、原ノ園 祐、樋口 雄介、牧 俊央、三宅 真弥、 澤田 慎二郎、藤井 康平、丸山 友理子、門田 高明
学部学生	近藤 千尋
事務補佐員	丹野 美鈴

### a) 概要

当研究分野は、医薬品のシード・リード化合物の創製および薬物と薬物受容体との相互作用など医薬品の作用機構解明を研究目的としている。この目的達成のために、薬剤を用いたケミカルゲノミクスによるタンパク質の機能解析と、その結果に基づく創薬を目指し、特に、タンパク質のリン酸化-脱リン酸化過程の制御を主たる研究標的とする。また、タンパク質表面を標的とする阻害剤・変調剤の創製に取り組み、創薬に向けた新手法の提案を目指す。また、生理活性化合物の高効率合成・コンビナトリアル合成手法の開発・生体分子型人工超分子の創製についても研究を展開している。

### b) 成果

#### ・フシコッカジエン合成酵素の同定

分化誘導型新規抗がん剤の原料にもなり得るジテルペン配糖体・フシコクシンの生合成遺伝子を初めて見いだすことに成功した。本酵素は、通常独立して存在するプレニルトランスフェラーゼとジテルペンシクラーゼの2つのドメインを併せ持つ他例のない新規キメラ型酵素である。また、周辺遺伝子配列も明らかにすることで、将来、抗がん剤として期待される化合物を遺伝子工学を駆使して高効率に供給する道を拓いた。

#### ・抗癌活性を有するフシコクシン誘導体の創製

既に 12-デオキシフシコクシン類が HL-60 に対する分化誘導活性を有することを明らかにし、分化誘導を基盤とする新規抗がん剤のリード化合物として ISIR-005 とコードした化合物の創製にも成功している。しかしながら、ISIR-005 は水溶性に乏しく、医薬展開には必ずしも十分な物性を有しているとは言い難い。そこで、物性改善を主たる目的として誘導体合成を展開した結果、活性を損なうことなく、十分な水溶性を示す ISIR-042 の創製に成功した。

#### ・アンカー型geranylgeranyltransferase-I阻害剤の開発

たんぱく質間相互作用は情報伝達等の多様な生体過程において重要な役割を担っており、医薬品開発の観点から常に注目されているが、作用面が広く構造的長に乏しいことから低分子化合物での制御が極めて難しい。昨年につき、我々は細胞のがん化と密接に関わる GGTase-I に対し、アンカー型たんぱく質表面認識阻害剤を論理設計・合成して、その阻害効果を速度論的に分析し、阻害が競合型阻害機構であることを明らかにした。また、構造と機能がともに類似した同族酵素 FTase に対する選択性が 150 倍以上であることも明らかとなり、本手法が、たんぱく質外部表面の位置選択的認識に有効であることを示すことができた。

#### ・14-3-3 たんぱく質ペプチド結合溝におけるchemical ligation

14-3-3 たんぱく質は標的たんぱく質のリン酸化ペプチド配列を認識して特異的に結合し、細胞内信号

伝達系の制御に関わる重要な働きを担う。植物ホルモン様活性を有するジテルペン系フシコクシン(FC)と、植物由来 H<sup>+</sup>-ATPase の C 末端に位置する 14-3-3 結合配列ペンタペプチド QSYpTV は、それぞれ同時に 14-3-3 の両親媒性ペプチド結合溝に結合し、互いの 14-3-3 に対する親和性をおよそ 2 桁高めることが知られている。本研究では、FC と QSYpTV を化学修飾によりエポキシ基とチオール基を導入し、14-3-314-3-3 の存在下での chemical ligation を検討し、たんぱく表面を鋳型とする化学反応の可能性を検証した。その結果、FC に適当な長さのアルキルスパーサーを介してエポキシ基を配置した誘導体は 14-3-3 の存在下で QSYpTC とのエポキシ開環反応が、14-3-3 非存在下に比べて最大で 200%促進されることを見出した。たんぱく質表面認識に有利な分子量と構造を有するマクロ分子を、化学反応により標的たんぱく質表面上で生成させる技術開発につながる事が期待される。

#### ・骨髄異形成症候群に対する治療薬候補化合物の新規合成プロセスの開発

4-カルバモイル-5-ヒドロキシイミダゾール (SM-108) は強い抗がん活性を有し、特に骨髄異形成症候群 (MDS) に対しては Phase II 試験に於いても良好な成績を収めた経緯を持つ。しかし、合成および保存時に青色化合物を生じる問題などから医薬開発が断念された。そこで、着色物質を副生しない合成プロセスの開発と保存条件の検討を行った。その結果、合成プロセス中でベンゼンスルホン酸を使用することで、着色物質を含まず純粋な SM-108 の直接合成に成功するとともに、そのスルホン酸塩が長期間安定に保存できることを明らかにした。

#### [ 原著論文 ]

Farnesyltransferase and geranylgeranyltransferase I inhibitors upregulate RhoB expression by HDAC1 dissociation, HAT association and histone acetylation of the RhoB promoter, F. L. Delarue, J. Adnane, B. Joshi, M. A. Blaskovich, D. Wang, J. H. F. Bizouarn, J. Ohkanda, K. Zhu, A. D. Hamilton, S. Chellappan, and S. M. Sebti, *Oncogene*. 26 (2007) 633-640.

Fusicoccins are biosynthesized by an unusual chimera diterpene synthase in fungi, T. Toyomasu, M. Tsukahara, A. Kaneko, R. Niida, W. Mitsuhashi, T. Dairi, N. Kato, and T. Sassa, *Proc. Nat. Acad. Sci. USA*. 104 (2007) 3084-3088.

Module assembly for protein-surface recognition: Geranylgeranyltransferase I bivalent inhibitors for simultaneous targeting of interior and exterior protein surfaces, S. Machida, K. Usuba, M. A. Blaskovich, A. Yano, K. Harada, S. M. Sebti, N. Kato, and J. Ohkanda, *Chem. Eur. J.* 14 (2008) 1392-1401.

#### [ 解説、総説 ]

たんぱく質表面を標的とする阻害剤の創製、大神田 淳子、日本薬学会構造活性相関部会 SAR News、13 (2007) 2-7.

ペプチドミメティクスを基盤としたプレニルトランスフェラーゼ阻害剤の 論理的設計と抗腫瘍活性、大神田 淳子、日本化学会生体機能関連化学部会 News Letter、21 (2007) 25-28.

#### [ 特許 ]

「4-カルバモイル-5-ヒドロキシイミダゾール誘導体のスルホン酸塩化合物」加藤修雄、樋口雄介、近藤千尋、砂川洵、特願 2007-238653 ; 特願 2008-028268.

「フシコカン合成キメラ型酵素およびその遺伝子」豊増知伸、佐々武史、大利徹、加藤修雄、国際出願 PCT/JP2007/069337.

「膜融合阻害剤」開発邦宏、森修一、大道寺智、三宅真弥、加藤修雄、特願 2008-023196.

[ 国際会議 ]

Design and Evaluation of Bivalent Enzyme Inhibitors for Simultaneous Recognition of Interior and Exterior Protein Surfaces, \*J. Ohkanda, S. Machida, and N. Kato, Gordon Research Conference, Bioorganic Chemistry, New Hampshire, USA, June 10-15, 2007.

An Unusual Chimera Diterpene Synthase Is Responsible for Fusicoccin Biosynthesis, \*T. Toyomasu, M. Tsukahara, A. Kaneko, R. Niida, C. Ikeda, W. Mitsuhashi, T. Dairi, N. Kato, and T. Sassa, 19th International Conference on Plant Growth Substances, Rivera Maya, Cancun, Mexico, July 21-25, 2007.

Bivalent Inhibitors of Type-I Geranylgeranyltransferase for Simultaneous Recognition of Interior and Exterior Protein Surfaces, \*J. Ohkanda, S. Machida, N. Kato, M. A. Blaskovich, S. M. Sebti, and K. Harada, American Chemical Society 234th National Meeting, Boston, USA, August 19-23, 2007.

Fusicoccin Derivatives as Therapeutic Agents Based on Induction of Differentiation, \*Y. Honma, M. Akimoto, T. Sassa, and N. Kato, 19th EORTC-NCI-AACR Symposium on "Molecular Targets and Cancer Therapeutics", San Francisco, USA, October 22-26, 2007.

Synthesis and Evaluation of VIS-Sensitive Azobenzene Derivatives for Controlling Cellular Gene Expressions, \*K. Kaihatsu, S. Sawada, and N. Kato, 11th Sanken International Symposium, Awaji, Japan, February 4-5, 2008.

Synthesis of Green Tea Catechin Derivatives and Evaluation of Their Anti-influenza Virus Activity, \*S. Mori, S. Miyake, K. Kaihatsu, and N. Kato, 11th Sanken International Symposium, Awaji, Japan, February 4-5, 2008.

Dual Inhibitors of Protein Prenyltransferase: Activity-tuning by Target Protein Surfaces, \*S. Machida, N. Kato, and J. Ohkanda, 11th Sanken International Symposium, Awaji, Japan, February 4-5, 2008.

Synthesis and Biological Evaluation of Fusicoccin Derivatives, \*T. Inoue, Y. Maruyama, H. Nitta, J. Ohkanda, and N. Kato, 11th Sanken International Symposium, Awaji, Japan, February 4-5, 2008.

[ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

加藤 修雄 24<sup>th</sup> Conference on Combinatorial Chemistry, Japan (議長)  
加藤 修雄 25<sup>th</sup> Conference on Combinatorial Chemistry, Japan (組織委員)

[ 国内学会 ]

日本化学会第 87 春季年会	6 件
日本農芸化学会 2008 年度大会	3 件
日本化学会西日本大会 2007	2 件
日本薬学会第 128 年会	1 件
第 67 回日本癌学会学術総会	1 件
情報計算法学生物学会 2007 年次大会	1 件
第 10 回生命化学研究会	1 件
第 34 回有機反応懇談会	1 件
第 11 回生体触媒化学シンポジウム	1 件

## [ 取得学位 ]

修士 (理学)		
原ノ園 祐	メタロ- $\beta$ -ラクタマーゼ阻害剤を指向した合成研究	
樋口 雄介	フシコクシンアグリコン誘導体の合成とその生理活性評価	
牧 俊央	14-3-3たんぱく質ペプチド結合溝が誘導するモジュールアセンブリに関する研究	
三宅 真弥	新規茶カテキン誘導体の合成と抗インフルエンザ活性の評価	
博士 (理学)		
平岡 正光	Design and Synthesis of Inhibitors Targeting Autoinducer-2-dependent Quorum Sensing System in <i>Vibrio harveyi</i>	

## [ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)		単位：千円
特定領域研究		
加藤 修雄	ジテルペン配糖体をツールとする細胞内信号伝達経路の解析と制御	2,800
基盤研究 (C)		
大神田 淳子	金属イオンをモレキュラーグルーとする分子集合体のたんぱく質表面認識	1,000
特別研究員奨励費		
井上 崇嗣	14-3-3 タンパク質に対するフォワード/リバース・ケモゲノミクス	900

## [ 受託研究 ]

加藤 修雄	医薬基盤研究所 (保健医療分野における基礎研究推進事業)	ジテルペン配糖体をリードとした分化誘導型新規抗がん剤の開発	34,000
-------	------------------------------	-------------------------------	--------

## [ 奨学寄附金 ]

加藤 修雄	(株)MBR		250
-------	--------	--	-----

## [ その他の競争的研究資金 ]

大神田 淳子	医科学応用研究財団	モレキュラーグルーによる <i>in vivo</i> 生成型分子集合体とたんぱく質表面機能の制御	1,000
大神田 淳子	武田科学振興財団	活性ポケットと周辺外部表面を標的とするプレニル転移酵素 Dual 阻害剤の開発と抗腫瘍活性	2,000

## 有機物性化学研究分野

教授	安蘇 芳雄
助教	家 裕隆
大学院学生	梅本 欽一、遠藤 克、 二谷 真司、廣瀬 智哉、宇都 俊彦、岡部 誠
学部学生	野澤 貴博
事務補佐員	今井 珠沙世

### a) 概要

有機物質の機能を分子のレベルで解明し制御することを基盤として、優れた電子・光機能を有する有機分子の開発と構造物性相関および機能評価と有機エレクトロニクス応用の一貫した研究を行っている。有機エレクトロニクスに適した有機機能分子の開発、および、分子スケールエレクトロニクスを志向したナノスケール $\pi$ 共役分子材料の分子設計と物質合成、それらの物性有機化学と機能有機化学の研究を中心に、1)  $\pi$ 電子共役系の化学修飾による高いキャリア移動度を示す有機半導体材料の開発、および、それらの光機能化物質の開発と有機デバイスへの応用、2) 分子エレクトロニクス素子に適したナノスケール分子材料の開発を目的として、機能化分子ワイヤおよび金属電極接合ユニットの開発と評価を進めている。

### b) 成果

#### ・有機エレクトロニクス材料の開発

**n**型有機電界効果トランジスタ材料の開発を進めている。オリゴチオフエンにフルオロアルキル基を導入することで**n**型特性が発現する事が知られている。そこで、強い電子求引効果とオリゴマーにおける共役平面性保持の観点から、フッ素化およびカルボニル化シクロペンテンを縮環させた各種芳香族系をユニットとするオリゴマーを遷移金属触媒カップリング反応で合成した。物性評価により、期待どおりの高い電気陰性効果と共役鎖の高い平面性に加え、電荷輸送に適した固体状態での分子間相互作用も明らかとなった。これらのオリゴマーの幾つかは高い電子移動度を示し、中でも、ヘキサフルオロシクロペンタチオフエンのホモオリゴマー、ジフルオロメチレン架橋ビチオフエンをユニットとするオリゴマー、ジフルオロジオキソシクロペンタ[*b*]チオフエンを末端ユニットとするオリゴマーは最高レベルの電子移動度を有し、大気下でも安定に動作する**n**型**FET**材料も見いだされている。

塗布薄膜での高効率キャリア移動の達成を目的として、オリゴチオフエンをベンゼン環の**1,3,5**位で連結した分岐型オリゴチオフエンの合成と物性評価を行っている。複数の分岐点によって連結されたオリゴチオフエンは、分岐点の数の増加およびオリゴチオフエン鎖長の伸長による自己会合性の増大が明らかとなり、スピノコートで作製した薄膜電界効果トランジスタは、良好な**p**型特性を示した。また、分岐型オリゴチオフエンの収斂部に[**60**]フラーレンを導入した化合物の薄膜が**ambipolar FET**特性を示したことから、薄膜中で分岐オリゴチオフエンが正孔輸送パスを、フラーレンが電子輸送パスを形成していることが示唆された。さらに、分岐型オリゴチオフエンにアクセプターとしてペリレンビスイミドを連結することで高効率の光誘起分子内電子移動が起こり、光電変換素子材料として機能することを明らかにした。

#### ・分子エレクトロニクス材料の開発

単分子導電性計測に適した分子ワイヤの構築を目指して、 $\beta$ 位をシクロペンテン縮環でブロックし飽和炭素に嵩高い置換基としてビス(*t*-ブチルジフェニルシリル)基、あるいは、スピロ置換型ジオクチルフルオレンを導入したモノマーユニットを設計・合成し、被覆型オリゴチオフエン分子ワイヤの合成を行った。**X**線結晶構造解析から、期待通りの高い平面性と嵩高い置換基による完璧な共役系の被覆が明

らかとなった。酸化状態の電子吸収スペクトル解析から、通常のオリゴチオフェンと異なり、被覆によって $\pi$ ダイマー形成が完全に阻害されることが分かった。*t*-ブチルジフェニルシリル基置換オリゴマーでは両末端 $\alpha$ 位の化学修飾は困難であったが、スピロ置換型フルオレンを導入したオリゴマーでは、両末端チオール官能基の導入に成功している。

オリゴチオフェン分子ワイヤのナノギャップ電極への接合を目的として、溶解性の高いテトラヘキシル置換 **6** 量体オリゴチオフェンを基本骨格として、両末端チオールおよびエチニル置換チオフェン **24** 量体（分子長約 **10 nm**）分子ワイヤの合成を達成した。チオールアンカーを有する化合物を用いて、ナノギャップ金電極による分子ワイヤの導電特性に成功した。

確実な金属電極接合と効率的な電子注入の実現を目的として、各種官能基を有するテトラフェニルメタン骨格の三脚型アンカーを開発し、金属電極上での単分子膜の生成と接合状態を評価した。特に、セレン官能基における特異な接合挙動を明らかにしている。

## [ 原著論文 ]

Synthesis, Structures, and Spectroscopic Properties of Push-Pull Heteroquinoid Compounds, S. Inoue, S. Mikami, K. Takimiya, T. Otsubo: *Heterocycles*, 71 (2) (2007) 253-268.

Electrical Conductance Measurement of Oligothiophene Molecular Wires Using Nano-gap Electrodes Prepared by Electrochemical Plating, N. Hatanaka, M. Endo, S. Okumura, Y. Ie, R. Yamada, Y. Aso, K. Tanaka, H. Tada: *Chem. Lett.*, 36 (2) (2007) 224-225.

Synthesis of Dendritic Oligothiophenes and Their Self-Association Properties by Intermolecular  $\pi$ - $\pi$  Interactions, N. Negishi, Y. Ie, M. Taniguchi, T. Kawai, H. Tada, T. Kaneda, Y. Aso: *Org. Lett.*, 9 (5) (2007) 829-832.

Synthesis of 10-nm Scale Oligothiophene Molecular Wires Bearing Anchor Units at Both Terminal Positions, M. Endou, Y. Ie, T. Kaneda, Y. Aso: *J. Org. Chem.*, 72 (7) (2007) 2659-2661.

Bias Dependence of Tunneling-Electron-Induced Molecular Fluorescence from Porphyrin Films on Noble-Metal Substrates, H. W. Liu, Y. Ie, R. Nishitani, Y. Aso, H. Iwasaki: *Phys. Rev. B*, 75 (11) (2007) 115429-1-5.

Ambipolar Characteristics of Dendritic Oligothiophene/Fullerene Linkage Molecules, N. Negishi, Y. Ie, H. Tada, T. Kaneda, Y. Aso: *Chem. Lett.*, 36 (4) (2007) 544-545.

Electronegative Oligothiophenes for n-Type Semiconductors: Difluoromethylene-Bridged Bithiophene and Its Oligomers, Y. Ie, M. Nitani, M. Ishikawa, K.-i. Nakayama, H. Tada, T. Kaneda, Y. Aso: *Org. Lett.*, 9 (11) (2007) 2115-2118.

Polaron Dynamics in two Types of Long Oligothiophenes Revealed by Q- and X-Band ESR Measurements, K. Kanemoto, K. Furukawa, N. Negishi, Y. Aso, T. Otsubo: *Phys. Rev. B*, 76 (15) (2007) 155205-1-8.

Synthesis, Properties, and Structures of Difluoromethylene-bridged Coplanar p-Terphenyl and Its Aryl-capped Derivatives for Electron-transporting Materials, Y. Ie, M. Nitani, Y. Aso: *Chem. Lett.*, 36 (11) (2007) 1326-1327.

Substrate Effect of STM-Induced Luminescence from Porphyrin Molecules, H. W. Liu, Y. Ie, R. Nishitani, T. Z. Han, Y. Aso, H. Iwasaki: *Thin Solid Films*, 516 (9) (2008) 2727-2730.

Electronegative Oligothiophenes Based on Difluorodioxocyclopentene-Annelated Thiophenes: Synthesis, Properties, and n-Type FET Performances, Y. Ie, Y. Umemoto, M. Okabe, T. Kusunoki, K.-i. Nakayama, Y.-J. Pu, J. Kido, H. Tada, Y. Aso: *Org. Lett.*, 10 (5) (2008) 833-836.



**Electronegative Oligothiophenes Fully Annulated with Hexafluorocyclopentene: Synthesis, Properties, and Intrinsic Electron Mobility, Y. Umemoto, Y. Ie, A. Saeki, S. Seki, S. Tagawa, Y. Aso: *Org. Lett.*, 10 (6) (2008) 1095-1098.**

**Perfluoroalkyl-Annulated Conjugated Systems towards n-Type Organic Semiconductors, Y. Ie, Y. Umemoto, M. Nitani, Y. Aso: *Pure Appl. Chem.*, 80 (3) (2008) 589-597.**

#### [ 解説、総説 ]

カーボンナノチューブ内でイオン性液体が結晶に?!、家 裕隆、化学、62 [7] (2007) 63-64.

#### [ 著書 ]

「ナノカーボンハンドブック (分筆)」(遠藤守信、飯島澄男監修)、“オリゴチオフェン/フラーレンハイブリッドの開発と電子的機能および素子開発”、安蘇芳雄、家 裕隆、エヌ・ティー・エス、(2007) 639-644.

「電子共役系有機材料の創製・機能開発・応用 (分筆)」(檜山爲次郎監修)、“オリゴチオフェンの合成と機能”、安蘇芳雄、家 裕隆、シーエムシー出版、(2008) 198-208

#### [ 特許 ]

「共役系化合物，並びにこれを用いた有機薄膜及び有機薄膜素子」家 裕隆、安蘇芳雄、岡部 誠、上田将人、特願 2007-311381

「含窒素縮合環化合物，含窒素縮合環重合体，有機薄膜及び有機薄膜素子」家 裕隆、二谷真司、安蘇芳雄、上田将人、特願 2008-031972

「分岐型化合物，これを用いた有機薄膜及び有機薄膜素子」家 裕隆、宇都俊彦、安蘇芳雄、上田将人、特願 2008-031973

「重合体，これを用いた有機薄膜及び有機薄膜素子」、辛川 誠、安蘇芳雄、上田将人、特願 2008-032021

#### [ 国際会議 ]

**Fluoroalkyl-Annulated Conjugated Oligomers as n-Type Organic Semiconductors (invited), \*Y. Aso and Y. Ie: 12th International Symposium on Novel Aromatic Compounds, Awaji, Japan, July 22-27, 2007.**

**Thieno[3,2-d]imidazolium-containing Molecular Wire: Switching Behavior of Photoinduced Intramolecular Electron Transfer (poster), \*Y. Ie, T. Kawabata, T. Kaneda, and Y. Aso: 12th International Symposium on Novel Aromatic Compounds, Awaji, Japan, July 22-27, 2007.**

**Synthesis of 10-nm Scale Oligothiophene Molecular Wires Bearing Anchor Units at both Terminal Positions (poster), \*M. Endou, Y. Ie, T. Kaneda, and Y. Aso: 12th International Symposium on Novel Aromatic Compounds, Awaji, Japan, July 22-27, 2007.**

**Synthesis and Properties of Conjugated Oligomers Containing Perfluoroalkyl-bridged Terphenyl (poster), \*M. Nitani, Y. Ie, and Y. Aso: 12th International Symposium on Novel Aromatic Compounds, Awaji, Japan, July 22-27,**

2007.

Synthesis and Properties of Cyclic Conjugated Oligomers having Benzothiophenes for Linkage Unit (poster), \*T. Hirose, Y. Ie, T. Kaneda, and Y. Aso: 12th International Symposium on Novel Aromatic Compounds, Awaji, Japan, July 22-27, 2007.

Synthesis and Electronics Application of Modified Oligothiophenes (invited), Y. Aso: Post-Symposium of ISNA in Himeji/Harima on Functional Aromatic Compounds, Hyogo, Japan, July 30-31, 2007.

Synthesis and Properties of Conjugated Oligomers Containing Perfluoroalkyl-bridged Terphenyl (poster), \*M. Nitani, Y. Ie, and Y. Aso: 11th SANKEN International Symposium 6th Nanotechnology Center International Symposium 1st MSTEC International Symposium – New Advances in Nanoscience & Nanotechnology -, Awaji, Japan, February 4-5, 2008.

Synthesis and Properties of Cyclic Oligothiophenes having Benzothiophenes for Linkage Unit (poster), \*T. Hirose, Y. Ie, and Y. Aso: 11th SANKEN International Symposium 6th Nanotechnology Center International Symposium 1st MSTEC International Symposium – New Advances in Nanoscience & Nanotechnology -, Awaji, Japan, February 4-5, 2008.

Synthesis of 10-nm Scale Oligothiophene Molecular Wires Bearing Anchor Units at both Terminal Positions (poster), \*M. Endou, Y. Ie, T. Kaneda, and Y. Aso: 11th SANKEN International Symposium 6th Nanotechnology Center International Symposium 1st MSTEC International Symposium – New Advances in Nanoscience & Nanotechnology -, Awaji, Japan, February 4-5, 2008.

Electronegative Oligothiophenes Based on Difluorodioxocyclopentene-Annelated Thiophenes: Synthesis, Properties, and n-Type FET Performances (poster), \*Y. Ie, M. Okabe, Y. Umemoto, and Y. Aso: 11th SANKEN International Symposium 6th Nanotechnology Center International Symposium 1st MSTEC International Symposium – New Advances in Nanoscience & Nanotechnology -, Awaji, Japan, February 4-5, 2008.

#### [ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

安蘇 芳雄      12th International Symposium on Novel Aromatic Compounds (組織委員、財務委員長)

#### [ 国内学会 ]

日本化学会	4 件
有機典型元素化学討論会	1 件
有機 $\pi$ 電子系シンポジウム	2 件
構造有機化学討論会	3 件
日本化学会関東支部大会	1 件
高分子討論会	1 件

#### [ 取得学位 ]

修士 (工学)	
二谷 真司	電子受容性置換基で架橋した共役オリゴマーの合成、物性、および FET 評価
廣瀬 智哉	金属電極界面の電子状態制御を指向した各種三脚型アンカーユニットの合成と単分子膜の評価
博士 (工学)	

梅本 欽一 新規なフッ素化シクロペンタチオフェンの合成を基盤とする電子受容性オリゴチオフェンの開発

**[ 科学研究費補助金 ]**

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

特定領域研究

安蘇 芳雄	拡張共役系を基盤とする電子移動系の構築と新機能開拓	1,800
安蘇 芳雄	電子構造に段差を有するナノ共役系の構築と階層制御	1,500
家 裕隆	電極接合多点アンカー部位を導入した被覆型オリゴチオフェン分子ワイヤの創製	2,300

若手研究 (B)

家 裕隆	n 型有機半導体を指向したフルオロアルキル架橋型オリゴチオフェンの創製	1,600
------	-------------------------------------	-------

**[ 受託研究 ]**

安蘇 芳雄	科学技術振興機構 (戦略 被覆型分子ワイヤの構築的創造)	5,070
-------	------------------------------	-------

**[ 奨学寄附金 ]**

安蘇 芳雄	J S R (株)	1,000
-------	-----------	-------

**[ 共同研究 ]**

安蘇 芳雄	住友化学株式会社	有機エレクトロニクス材料の開発	4,070
家 裕隆			
安蘇 芳雄	ダイキン工業	超低反射材料の開発	1,000
家 裕隆			

**[ その他の競争的研究資金 ]**

家 裕隆	(財)新世代研究所	革新的分子設計に基づいた電子輸送性有機半導体材料の開発	1,400
------	-----------	-----------------------------	-------

## 励起分子化学研究分野

教授	真嶋 哲朗
准教授	藤塚 守
助教	藤乗 幸子、立川 貴士
特任教授	杉本 晃
博士研究員	高田 忠雄、中山 公志、田井中 一貴（平成 20 年 1 月 31 日まで）、木村 巧、大関 陽介
外国人招へい研究者	趙 大源（平成 19 年 6 月 25 日から平成 19 年 8 月 23 日まで）
大学院学生	佐守 真悟、小阪田 泰子、内藤 一也、宮本 佳樹、朴 満宰、崔 俊禮、原田 憲、浦崎 宏美、林 春艶、崔 世聡、武田 雄一郎、中谷 武史
学部学生	小寺 遥
事務補佐員	富永 早苗

### a) 概要

本分野は、光および放射線により誘起される励起分子化学と機能分子化学を基盤として、ビーム制御化学や分子・反応場制御化学の手法を用いた新しい「ビーム機能化学」の研究を行っている。ビーム制御化学とは空間的・時間的に制御した多種多様なビームの複合照射によって、求める反応活性種・中間体を逐次的、局所的、選択的に発生させ、かつそれらのエネルギーを制御することによって、反応を制御することである。また、マルチビームの利用によって、新しい反応活性種の発生と、それによる新しい反応・プロセスや複合反応への展開が可能である。分子・反応場制御化学とは、分子設計された反応基質（DNA、タンパク）、超分子、メゾスコピック分子などの分子場や、気体・液体・固体、表面、薄膜、液晶などからなる複合系、多成分系、液体希ガス、極低温などの反応場の立体的・電子的・構造的・化学的性質を利用することによって、反応を制御することである。「ビーム機能化学」の目指す方向は、高次元反応制御、新合成化学、新機能性分子・高機能性材料への展開である。

### b) 成果

#### ・マルチビーム化学

安定分子への第1のビーム（レーザーパルスまたは電子線パルス）照射によって生成させた短寿命活性種を出発分子とし、これの吸収に合わせた波長の第2のレーザーパルスを照射することによる2段階励起ビーム化学、さらに、第2のレーザー反応で生成した短寿命活性種に第3のレーザー励起をすることで起こる3段階励起ビーム化学を調べることができる。このような、複数のビームを同期発振させた多段階励起法によって反応中間体・短寿命活性種を原料とする光化学、短寿命活性種の光励起状態や高励起状態の動的挙動などのマルチビーム化学について研究を行っている。今年度は、オリゴチオフェンの高励起三重項状態についてそのエネルギーレベルを導出すると共に、エネルギーアクセプターを結合したトライアド系でマルチレーザー照射によるエネルギー移動過程を制御することに成功した。さらに、高励起状態の化学に関連して、励起ラジカルカチオンの反応性の解明やS<sub>2</sub>励起ポルフィリン類の電荷分離について検討を行った。さらにオリゴチオフェンオリゴシリレン交互共重合体およびそのモデル系のエネルギーホッピング過程を明らかにした。そのほかにもナフタルジイミドとフェノチアジン結合分子におけるエキシマーおよび電荷分離過程の解明などを行った。

#### ・TiO<sub>2</sub>光触媒反応機構の解明

TiO<sub>2</sub>光触媒反応による種々の有機物分解機構の解明を目的とし、TiO<sub>2</sub>表面で生成した活性酸素種の拡散過程に関する単一分子研究を行った。全反射蛍光顕微鏡を用い、TiO<sub>2</sub>および窒素ドーピングTiO<sub>2</sub>（N-TiO<sub>2</sub>）ナノ粒子への紫外もしくは可視光照射によって生成した一重項酸素およびヒドロキシルラジカルを蛍

光プローブ（テリレンジイミドおよびフルオレセイン誘導体）により単一分子レベルで検出した。 $\text{TiO}_2$  および $\text{N-TiO}_2$ への紫外光照射により、ナノ粒子表面から一重項酸素およびヒドロキシルラジカルが空気中へ拡散することを見出した。一方、可視光照射においては、 $\text{N-TiO}_2$ からのみ一重項酸素が生成することを明らかにした。以上の結果から、 $\text{TiO}_2$ 光触媒反応におけるヒドロキシルラジカルの生成は、主に紫外光による過酸化水素の開裂に起因していると結論した。

#### ・DNAを利用した光電荷分離系の構築

核酸塩基の中で最も酸化電位の低いグアニン（**G**）のみを酸化可能、従って**A-T**塩基対を redox 不活性なスペーサーとして使用でき、さらには可視光励起が可能であるアクリジン光増感剤として用いて**DNA**内光電荷分離を検討した。アクリジンと**G**間にスペーサーとして**A-T**塩基対を配置し、電子と正孔（ホール）を引き離すため**G**間のホール移動では最も速度が速くなると予想される**G**連続配列をホールの通り道として使用し、最終的なホールトラップとして**G**よりもさらに酸化電位の低いフェノチアジンをを用いた。スペーサー**A-T**塩基対の数、また、電荷分離収率を最適化するため光増感剤と**G**間の周囲の環境を変化させた種々の**DNA**を合成し、ナノ秒レーザーフラッシュフォトリスにより、アクリジンとフェノチアジン間の電荷分離状態の生成について評価した。その結果、アクリジンと**G**が隣接する場合は電荷分離状態の生成が観測されないのに対し、スペーサー塩基対を導入することにより可視光による**DNA**内光電荷分離状態の生成に成功した。

#### ・機能性生体分子ナノスケール材料の創製

**DNA**及びタンパクをフレームとしてクロモフォアを配置し、自己集合による規則的な集積と配列特異的かつ導入位置特異的なクロモフォア間の相互作用を検討した。具体的には、架橋型**DNA**と**DNA**タイルをビルディングブロックとして用い、ナノ構造の構築とマイクロメーターまで伸張した制御されたメゾスコピック構造の構築に成功した。また、生体超分子タバコモザイクウィルス（**TMV**）をフレームとして、自己集合により光機能性分子ポルフィリンの規則的な集積を行い、その配置とエネルギー移動を検討した。これらのナノスケールの有用な機能性材料を開発し、超分子集合したときの構造、光物性、及び光応答性の制御から、光機能性材料としての光化学的及び電気化学的特性を検討した。

#### ・光化学反応法による金属ナノ粒子の創製

高分子マトリクス中において光化学的手法を用いて様々な金属ナノ粒子を作成し、形成されたナノ粒子の評価を行った。ポリビニルアルコール中に置いて金イオンと銅イオンをケチルラジカルにより還元した場合、コア・シェル構造の金属ナノ粒子が形成されることを発見した。これに対し、金イオンとニッケルイオンを共存させた系に置いて同様の実験を行った結果、ニッケルイオンは還元されず金ナノ粒子の表面に吸着することがわかった。

### [ 原著論文 ]

Single-Molecule Observation of DNA Charge Transfer, T. Takada, M. Fujitsuka, and T. Majima: Proc. Nat. Acad. Sci. USA, 104 (27) (2007) 11179-11183.

Intermolecular Electron Transfer from Excited Benzophenone Ketyl Radical, M. Sakamoto, X. Cai, S. S. Kim, M. Fujitsuka, and T. Majima: J. Phys. Chem. A, 111 (2) (2007) 223-229.

One-Electron Oxidation of Alcohols by the 1,3,5-Trimethoxybenzene Radical Cation in the Excited State during Two-Color Two-Laser Flash Photolysis, X. Cai, M. Sakamoto, M. Fujitsuka, and T. Majima: J. Phys. Chem. A, 111 (10) (2007) 1788-1791.

Bimolecular Hole Transfer from the Trimethoxybenzene Radical Cation in the Excited State, X. Cai, M. Fujitsuka, and T. Majima: J. Phys. Chem. A, 111 (22) (2007) 4743-4747.

- Intramolecular Triplet Energy Transfer via Higher Triplet Excited State during Stepwise Two-color Two-laser Irradiation, Y. Oseki, M. Fujitsuka, M. Sakamoto, A. Sugimoto, and T. Majima: *J. Phys. Chem. A*, 111 (39) (2007) 9781-9788.
- Electron Transfer from Axial Ligand to  $S_1$ - and  $S_2$ -Excited Phosphoros Tetrphenylporphyrin, M. Fujitsuka, D. W. Cho, S. Tojo, A. Inoue, T. Shiragami, M. Yasuda, and T. Majima: *J. Phys. Chem. A*, 111 (42) (2007) 10574-10579.
- Electron Transfer from  $S_2$  and  $S_1$  States of Pentacoordinated Tetrapyrrole Macrocycles to Pyromellitic Diimide as an Axial Ligand, K. Harada, M. Fujitsuka, A. Sugimoto, and T. Majima: *J. Phys. Chem. A*, 111 (45) (2007) 11430-11436.
- Hole Transfer in DNA and Photosensitized DNA Damage: Importance of Adenine Oxidation, K. Kawai, Y. Osakada, M. Fujitsuka, and T. Majima: *J. Phys. Chem. B*, 111 (9) (2007) 2322-2326.
- Energy Levels of Oligothiophenes in the Higher Excited Triplet States, Y. Oseki, M. Fujitsuka, M. Sakamoto, X. Cai, and T. Majima: *J. Phys. Chem. C*, 111 (2) (2007) 1024-1028.
- Fluorescence Properties of Si-linked Oligothiophenes, M. Fujitsuka, D. W. Cho, J. Ohishita, A. Kunai, and T. Majima: *J. Phys. Chem. C*, 111 (5) (2007) 1993-1998.
- Design of Cyclic Reaction Driven by Two-Color Two-Photon Excitation, M. Sakamoto, S. S. Kim, M. Fujitsuka, and T. Majima: *J. Phys. Chem. C (Lett.)*, 111 (19) (2007) 6917-6919.
- Correction to "Acceleration and Deceleration of Laser Induced Formation of Gold Nanoparticles in a PVA Film", M. Sakamoto, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Langmuir*, 23 (14) (2007) 7886-7886.
- Donor-Acceptor Substituted Tetrakis(phenylethynyl)benzenes as Emissive Molecules during Pulse Radiolysis in Benzene, S. Samori, S. Tojo, M. Fujitsuka, E. L. Spitler, M. M. Haley, and T. Majima: *J. Org. Chem.*, 72 (8) (2007) 2785-2793.
- Relationship between Charge Transfer and Charge Recombination Determines Photocurrent Efficiency through DNA Films, T. Takada, C. Lin, and T. Majima: *Angew. Chem. Int. Ed.*, 46 (35) (2007) 6681-6683.
- Hole transfer rates in A-from DNA/2'-OMeRNA hybrid, K. Kawai, Y. Osakada, A. Sugimoto, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Chem. Eur. J.*, 13 (8) (2007) 2386-2391.
- C-O-bond cleavage of esters with a naphthyl group in the higher triplet excited state during two-color two-laser flash photolysis, X. Cai, M. Sakamoto, M. Yamaji, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Chem. Eur. J.*, 13 (11) (2007) 3143-3149.
- Porphyrin Light-Harvesting System Constructed in the Tobacco Mosaic Virus Scaffold, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Chem. Eur. J.*, 13 (31) (2007) 8660-8666.
- Photochemical Formation of Au/Cu Bimetallic Nanoparticles with Different Shapes and Sizes in a PVA Film, M. Sakamoto, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Adv. Funct. Mater.*, 17 (6) (2007) 857-862.
- Spin-correlated radical pairs in the synthetic hairpin DNA, S. Nakajima, K. Akiyama, K. Kawai, T. Takada, T. Ikoma, T. Majima, and S. Tero-Kubota: *ChemPhysChem*, 8 (4) (2007) 507-509.

Fabrication of Chromophore-Functionalized Gold Nanoparticles-Poly(Vinyl alcohol) Thin Film Nanocomposite: New Coordination Method using the Ni(II)-Nitrilotriacetic acid Complex Formation, M. Sakamoto, T. Tachikawa, Sung Sik Kim, M. Fujitsuka, and T. Majima: *ChemPhysChem*, 8 (11) (2007) 1701-1706.

Errata to "Two-color Two-laser Fabrication of Gold Nanoparticles in a PVA Film", M. Sakamoto, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Chem. Phys. Lett.*, 442 (1-3) (2007) 170.

The C-O bond dissociation of naphthoxymethyl compounds in the higher triplet excited state using two-color two-laser flash photolysis, X. Cai, M. Yamaji, M. Sakamoto, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Chem. Phys. Lett.*, 443 (4-6) (2007) 248-252.

Nanoscale Heterogeneities in Adsorption and Electron Transfer Processes of Perylene Diimide Dye on TiO<sub>2</sub> Nanoparticles Studied by Single-Molecule Fluorescence Spectroscopy, T. Tachikawa, S.-C. Cui, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Chem. Phys. Lett.*, 443 (4-6) (2007) 313-318.

Monitoring G-Quadruplex Structures and G-Quadruplex-ligand Complex by 2-Aminopurine Modified Oligonucleotide, T. Kimura, K. Kawai, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Tetrahedron*, 63 (17) (2007) 3585-3590.

S<sub>2</sub>- and S<sub>1</sub>-States Properties of Zinc Porphyrin Polypeptides, M. Fujitsuka, D. W. Cho, N. Solladie, V. Troiani, H. Qiu, and T. Majima: *J. Photochem. Photobiol. A*, 188 (2-3) (2007) 346-350.

Intermolecular Exciplex Formation and Intramolecular Electron Transfer during Photoirradiation of 1,8-Naphthalimide-linker-phenothiazine Dyads in Methylated Benzenes, D. W. Cho, M. Fujitsuka, U. C. Yoon, and T. Majima: *J. Photochem. Photobiol. A*, 190 (1) (2007) 101-109.

Monitoring of Three Distinct Structures of Restriction Enzyme Complexes Using Characteristic Fluorescence from Site-selectively Incorporated Solvatochromic Probe, K. Nakayama, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Photochem. Photobiol. Sci.*, 6 (2007) 836-841.

Reversible Intramolecular Triplet-Triplet Energy Transfer in Benzophenone-N-Methylphthalimide Dyad Aprotic Polar and Protic Polar Solvents, M. Sakamoto, S. S. Kim, M. Fujitsuka, and T. Majima: *J. Phys. Chem. A*, 112 (7) (2008) 1403-1407.

Charge Separation in Acridine- and Phenothiazine-Modified DNA, K. Kawai, Y. Osakada, M. Fujitsuka, and T. Majima: *J. Phys. Chem. B*, 112 (7) (2008) 2144-2149.

Real-Time Single-Molecule Imaging of the Spatial and Temporal Distribution of Reactive Oxygen Species with Fluorescent Probes: Applications to TiO<sub>2</sub> Photocatalysts, K. Naito, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima: *J. Phys. Chem. C*, 112 (4) (2008) 1048-1059.

Protein Recording Material: Photo-Record/Erasable Protein Array Using a UV-Eliminative Linker, K. Nakayama, T. Tachikawa, and T. Majima: *Langmuir (Letter)*, 24 (5) (2008) 1625-1628.

Diastereochemically Controlled Porphyrin Dimer Formation on a DNA Duplex Scaffold, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima: *J. Org. Chem.*, 73 (3) (2008) 1106-1112.

Three-Dimensional Writing of Copper Nanoparticles in a Polymer Matrix with Two-Colour Two-Laser, M. Sakamoto, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima: *J. Org. Chem.*, 73 (9) (2008) 3551-3558.

Photocatalytic Cleavage of Single TiO<sub>2</sub>/DNA Nanoconjugates, T. Tachikawa, Y. Asanoi, K. Kawai, S. Tojo, A. Sugimoto, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Chem. Eur. J.*, 14 (5) (2008) 1492-1498.

Mechanism of Charge-Separation in DNA via Hole Transfer through Consecutive Adenines, K. Kawai, Y. Osakada, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Chem. Eur. J.*, 14 (12) (2008) 3721-13726.

Conformational regulation of porphyrin dimers on geometric scaffold of duplex DNA, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Tetrahedron*, 64 (8) (2008) 1839-1846.

#### [ 解説、総説 ]

DNA 中の電荷移動速度と情報の関係を明らかにしたい、真嶋哲朗、*化学*、62[1] (2007) 23-24.

DNA 分子化学、真嶋哲朗、日本化学会・第2次先端ウォッチング「生命分子科学の進展」41-45(2007).

Mechanistic Insight into the TiO<sub>2</sub> Photocatalytic Reactions: Design of New Photocatalysts, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima, *J. Phys. Chem. C (Feature Article)*, 111[14] (2007) 5259-5275.

Single-Molecule Detection of Reactive Oxygen Species: Application to Photocatalytic Reactions, T. Tachikawa and T. Majima, *J. Fluores. (Special issue on "Advances in Single Molecule Spectroscopy", invited)*, 17[6] (2007) 727-738.

Photochemical Properties of Porphyrin-attached Tobacco Mosaic Virus, M. Endo, Fujitsuka, and T. Majima, *Photomedicine and Photobiology*, 29 (2007) 19-20.

DNA デバイス—DNA 中で起こる電荷移動を利用する、真嶋哲朗、*化学*、63[1] (2008) 38-40.

DNA 中の電荷移動、高田忠雄・真嶋哲朗、*生産と技術*、60[1] (2008) 55-60.

DNA 内電荷移動とバイオセンサーへの応用、高田忠雄・真嶋哲朗、*BIO INDUSTRY*、25[3] (2008) 61-71.

#### [ 著書 ]

"Photochemistry of Short-lived Species using Multi-beam Irradiation" "Advanced in Photochemistry Vol 29" (ed by D. C. Neckers, W. Jenks, T. Wolff), M. Fujitsuka and T. Majima, John Wiley & Sons, Inc., (2007) 53-109.

"Single-Molecule Fluorescence Imaging Techniques for the Detection of Reactive Oxygen Species", "Modern Research and Educational Topics on Microscopy" (ed by A. Mendez-Vilas and J. Diaz), T. Tachikawa and T. Majima, Formatex, (2007) 651-659.

"DNA Supramolecular Structures for the Creation of Functional Nannomaterials" "Soft Nanomaterials" (ed by H. S. Nalwa, American Scientific Publishers), M. Endo and T. Majima, Valencia, (2008).

「光触媒反応の1分子蛍光イメージング」、「光と界面がおりなす新しい化学の世界—光触媒と光エネルギー変換」(高木克彦ら編)、真嶋哲朗、(株)クバプロ、(2008) 50-58.

#### [ 特許 ]



「DNA 電荷移動を利用した DNA 一分子蛍光測定による一塩基多型の検出法」真嶋哲朗、高田忠雄、川井清彦、藤塚守、特願 2007-6829

「媒体中に金属ナノ粒子を形成する方法」真嶋哲朗、坂本雅典、藤塚守、特願 2007-28166

「修飾金属ナノ粒子およびその製造方法」真嶋哲朗、坂本雅典、藤塚守、特願 2007-095031

## [ 国際会議 ]

Charge Transfer in DNA (invited), T. Majima: 2007 Photochemistry Gordon Research Conference, Bryant University, Smithfield, Rhode Island, USA, July 8-13, 2007.

Mechanistic Insight into the TiO<sub>2</sub> Photocatalytic Reactions (invited), T. Majima: 23th International Conference on Photochemistry, Cologne, Germany, July 29-Aug. 3, 2007.

Rapid Energy Migration along Photofunctional Polymers (poster), M. Fujitsuka and \*T. Majima: 23th International Conference on Photochemistry, Cologne, Germany, July 29-Aug. 3, 2007.

Charge Separation via Rapid Hole Transfer through Adenine-Hopping (poster), T. Takada, K. Kawai, M. Fujitsuka, and \*T. Majima: 23th International Conference on Photochemistry, Cologne, Germany, July 29-Aug. 3, 2007.

One-electron oxidation of organic compounds during TiO<sub>2</sub> photocatalytic reactions (invited), \*T. Tachikawa and T. Majima: Langmuir Symposium 2007 in Osaka University, Suita, Japan, Oct. 9, 2007.

Photochemical synthesis of metal nanoparticles in a PVA film (invited), \*M. Sakamoto and T. Majima: Langmuir Symposium 2007 in Osaka University, Suita, Japan, Oct. 9, 2007.

Development of New TiO<sub>2</sub> Photocatalysts (invited), T. Majima: 7th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology, Shanghai, Nov. 11-14, 2007.

Adsorption and Electron Transfer Processes of Perylene Diimide Dye on TiO<sub>2</sub> Nanoparticles Studied by Single-Molecule (poster), \*S.-C. Cui, T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, T. Majima: 7th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology, Shanghai, Nov. 11-14, 2007.

Possibility of Negative Charge Conduction in Cyclophanes (invited), T. Majima: The Third Taiwan-Japan Bilateral Symposium on Functional Molecules, Janfusen, Taiwan, Nov. 11-14, 2007.

Development of New TiO<sub>2</sub> Photocatalyst: Mechanistic Study of TiO<sub>2</sub> Photocatalytic Reactions (invited), T. Majima: 2007 Korea-Japan Symposium on Frontier Photoscience, Gyeongju, Korea, Nov. 22-25, 2007.

Intramolecular Electron Transfer from Axial Ligands to S<sub>2</sub>-Excited Tetraphenyl Porphyrins (invited), \*M. Fujitsuka and T. Majima: 2007 Korea-Japan Symposium on Frontier Photoscience, Gyeongju, Korea, Nov. 22-25, 2007.

Excited State Properties of Trimethoxybenzene Radical Cation (poster), X. Cai, M. Fujitsuka, and \*T. Majima: 2007 Korea-Japan Symposium on Frontier Photoscience, Gyeongju, Korea, Nov. 22-25, 2007.

Photoinduced Electron Transfer from S<sub>2</sub>-Excited Porphyrins and Phthalocyanines (poster), K. Harada, M. Fujitsuka, and \*T. Majima: 2007 Korea-Japan Symposium on Frontier Photoscience, Gyeongju, Korea, Nov.

22-25, 2007.

Energy Levels of Oligothiophenes in Higher Triplet Excited State (poster), Y. Oseki, M. Fujitsuka, and \*T. Majima: 2007 Korea-Japan Symposium on Frontier Photoscience, Gyeongju, Korea, Nov. 22-25, 2007.

Development of New TiO<sub>2</sub> Photocatalyst: Mechanistic Study of TiO<sub>2</sub> Photocatalytic Reactions (invited), T. Majima: The 9th International Symposium on Eco-materials Processing and Design, Changwon Exhibition Convention Center, Changwon, Korea, Jan. 7-9, 2008.

Photoinduced Charge Separation in Titania Nanotubes (poster), \*T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, T. Sekino, and T. Majima: The 9th International Symposium on Eco-materials Processing and Design, Changwon Exhibition Convention Center, Changwon, Korea, Jan. 7-9, 2008.

Single-Molecule Detection of Airborne Singlet Oxygen (poster), \*K. Naito, T. Tachikawa, S.-C. Cui, A. Sugimoto, M. Fujitsuka, and T. Majima: The 9th International Symposium on Eco-materials Processing and Design, Changwon Exhibition Convention Center, Changwon, Korea, Jan. 7-9, 2008.

Charge Separation in Acridine Modified DNA (poster), \*K. Kawai, M. Fujitsuka, and T. Majima: 11th Sanken International Symposium / 6th nanotechnology center international symposium / 1st MSTEC international symposium, Awaji, Japan, Feb. 4-5, 2008.

Kinetic SNP typing Based on Charge Transfer through DNA (poster), Y. Osakada, \*K. Kawai, M. Fujitsuka, and T. Majima: 11th Sanken International Symposium / 6th nanotechnology center international symposium / 1st MSTEC international symposium, Awaji, Japan, Feb. 4-5, 2008.

Intramolecular Electron Transfer from Axial Ligands to S<sub>2</sub>-Excited Tetraphenyl Porphyrins (poster), M. Fujitsuka and \*T. Majima: 11th Sanken International Symposium / 6th nanotechnology center international symposium / 1st MSTEC international symposium, Awaji, Japan, Feb. 4-5, 2008.

Single-Molecule Detection of Airborne Singlet Oxygen (poster), T. Tachikawa, K. Naito, M. Fujitsuka and \*T. Majima: 11th Sanken International Symposium / 6th nanotechnology center international symposium / 1st MSTEC international symposium, Awaji, Japan, Feb. 4-5, 2008.

Design of Cyclic Reaction Driven by the Two-color Two-photon Excitation (poster), M. Sakamoto, M. Fujitsuka and \*T. Majima: 11th Sanken International Symposium / 6th nanotechnology center international symposium / 1st MSTEC international symposium, Awaji, Japan, Feb. 4-5, 2008.

Molecular Excitation Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials, T. Majima: International Symposium on "New Trend in Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2008", Osaka University, Japan, Feb. 6, 2008.

Electron Transfer from Axial Ligand to S<sub>1</sub>- and S<sub>2</sub>-Excited Phosphoros Tetraphenylporphyrin, \*M. Fujitsuka, D. W. Cho, and T. Majima: International Symposium on "New Trend in Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2008", Osaka University, Japan, Feb. 6, 2008.

Photophysical Properties of 1,8-Naphthalimide-linker-phenothiazine Dyads in Non-polar Solvents, \*D. W. Cho, M. Fujitsuka, and T. Majima: International Symposium on "New Trend in Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2008", Osaka University, Japan, Feb. 6, 2008.

Single Molecule Fluorescence Imaging of TiO<sub>2</sub> Photocatalytic Reactions, \*T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka,

and T. Majima: International Symposium on “New Trend in Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2008”, Osaka University, Japan, Feb. 6, 2008.

Photochemical Formation of Au/Cu Bimetallic Nanoparticles with Different Shapes and Sizes in a PVA Film, \*M. Sakamoto, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima: International Symposium on “New Trend in Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2008”, Osaka University, Japan, Feb. 6, 2008.

Hole Transfer in DNA and Photosensitized DNA Damage: Importance of Adenine Oxidation, \*K. Kawai, Y. Osakada, M. Fujitsuka, and T. Majima: International Symposium on “New Trend in Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2008”, Osaka University, Japan, Feb. 6, 2008.

Single-Molecule Observation of DNA Charge Transfer, \*T. Takada, M. Fujitsuka, and T. Majima: International Symposium on “New Trend in Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2008”, Osaka University, Japan, Feb. 6, 2008.

Porphyrin Light-Harvesting System Constructed in the Tobacco Mosaic Virus Scaffold, \*M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima: International Symposium on “New Trend in Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2008”, Osaka University, Japan, Feb. 6, 2008.

Higher Excited State Chemistry for Light-Energy Conversion (invited), M. Fujitsuka and \*T. Majima: The 3rd CNU-SANKEN Joint Symposium on Advanced Materials Science, Daejeon, Korea, Feb. 27-28, 2008.

DNA Devices Based on Charge Transfer in DNA (invited), T. Majima: The 3rd CNU-SANKEN Joint Symposium on Advanced Materials Science, Daejeon, Korea, Feb. 27-28, 2008.

#### [ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

真嶋 哲朗	2007 KOREA-JAPAN Symposium on Frontier Photoscience (組織委員長)
真嶋 哲朗	Symposium on “Beam-induced Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2007” (組織委員長)
真嶋 哲朗	Langmuir Symposium 2007 in Osaka University (組織委員長)
真嶋 哲朗	The 9 <sup>th</sup> International Symposium on Eco-materials Processing and Design (組織委員)
真嶋 哲朗	International Symposium on “New Trend in Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2008” (組織委員長)
真嶋 哲朗	The 3rd CNU-SANKEN Joint Symposium on Advanced Materials Science (組織委員長)
真嶋 哲朗	Langmuir, American Chemical Society (Senior Editor)

#### [ 国内学会 ]

日本光生物・光医学会	2 件
光化学討論会	11 件
高分子討論会	1 件
日本化学会春年会	10 件

#### [ 取得学位 ]

修士 (工学)	
原田 憲	軸配位子を持つポルフィリン類のS <sub>1</sub> 、S <sub>2</sub> 状態からの電子移動

浦崎 宏美	カルバゾールダイマーカチオン形成を利用したポリペプチドの構造変化
林 春艶	DNA 内電荷移動による光電流発生機構
崔 世聡	二酸化チタン表面におけるペリレンジイミド色素の単一分子蛍光観察
博士 (工学)	
佐守 真悟	レーザーフラッシュフォトリシスおよびパルスラジオリシスによる芳香族化合物ラジカルイオンの生成と反応に関する研究

## [ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)		単位：千円
基盤研究 (S)		
真嶋 哲朗	光機能性DNAのナノサイエンス	10,920
萌芽研究		
真嶋 哲朗	光機能化タバコモザイクウィルス超分子による光電変換デバイスの創製	1,800
基盤研究 (B)		
藤塚 守	フェムト秒マルチレーザーを用いた分子素子の創製	12,740
基盤研究 (C)		
藤乗 幸子	新規ポリ酸修飾酸化チタン光触媒の開発とその多重励起効果	1,100
若手研究 (B)		
立川 貴士	二酸化チタン-DNAナノ高次構造体の構築と光機能評価	2,400
特別研究員奨励費		
田井中 一貴	新規環境応答型蛍光性修飾塩基の開発	1,200
特別研究員奨励費		
大関 陽介	高励起三重項状態からの分子内電荷分離と超高速スイッチ分子デバイスへの応用	900
特別研究員奨励費		
佐守 真悟	高効率発光分子デバイス創成に向けてのラジカルイオンを原料とするビーム反応化学	1,000
特別研究員奨励費		
小阪田 泰子	がん治療への応用を目指した DNA 内電荷分離を介した光増感 DNA 酸化損傷機構の解明	900
特別研究員奨励費		
内藤 一也	単一分子蛍光法を用いた光機能化カーボンナノチューブの評価とバイオセンサーへの応用	900

## [ 受託研究 ]

真嶋 哲朗	IDEC 株式会社、株式会社サタケ	レーザ光を用いたプラスチック種類判別方法の研究	1,690
-------	-------------------	-------------------------	-------

## [ 奨学寄附金 ]

立川 貴士	池谷科学技術振興財団		1,500
-------	------------	--	-------

## [ 共同研究 ]

真嶋 哲朗	トヨタ自動車株式会社	光励起還元法による高比表面積水	5,989
-------	------------	-----------------	-------

真嶋 哲朗	積水化学工業株式会社	素吸蔵合金の研究 酸化チタン光触媒作用による超親水性	999
真嶋 哲朗	松下電器産業株式会社	チタニアナノ構造体を用いた光触媒の高活性化に関する研究	1,732
真嶋 哲朗	三菱化学株式会社	高励起状態からの光化学反応を利用した非線形光応答材料の開発	2,000

## 分子合成化学研究分野

教授	笹井 宏明
准教授	鬼塚 清孝
助教	市原 潤子、Doss Jayaprakash
博士研究員	Gan Bahadur Bajracharya
研究支援推進員	鈴木 薫
大学院学生	辻原 哲也、Rashid Nabisaheb Nadaf、井上 直人、Doss Rajesh、Kazem Ghozati、 板野 雄、亀山 千明、中司 修平、平田 修一、Gabr Randa Kassem Mohamed、 伊藤 則之、桐山 貴美子、田中 薫理、谷垣 勇剛、永野 豊浩
研究生	Mohanta Suman Chandra
学部学生	橋本 慎太郎
事務補佐員	丹野 美鈴、大浜 美帆

### a) 概要

不斉触媒は極微量の使用により医薬品などの原料となる有用な光学活性化化合物の大量供給を可能とする。限りある資源を有効かつ最大限に活かし環境汚染物質の排出を抑制するためには、実用的な高活性不斉触媒の開発が最重要課題の一つとなっている。当研究分野では、新しい触媒的不斉合成法の開発とその反応メカニズムの解明に積極的に取り組み、酵素的な作用機序で働く多機能な不斉触媒の開発に成功している。既存触媒の単純な不斉化とは異なる新しい活性化機構を基盤とする新規反応の開拓的研究である。現在、これら多機能不斉触媒の固定化、強固な骨格に基づく効果的不斉環境を有する新規光学活性配位子ならびに有機分子触媒の設計・創出を重点的に推進している。

### b) 成果

#### ・新規酸-塩基型不斉有機分子触媒の開発

ルイス塩基部位とブレンステッド酸として機能する BINOL が適度なスペーサーを介して同一分子内に共存する新規酸-塩基型不斉有機分子触媒の開発に成功した。BINOL の 3 位に 2-(4-イミダゾリル)フェニル基をルイス塩基として導入した触媒が、トシルアルジミン誘導体とニトロアルケン類を基質とするエナンチオ選択的 aza-Morita-Baylis-Hillman 反応において有用な触媒となることを見出した。

#### ・キラルスピロビスイソキサゾリン-パラジウム錯体触媒による新規不斉酸化的環化反応

独自に開発したキラルスピロビスイソキサゾリン配位子を有するパラジウム二価錯体が、 $\beta, \gamma$ -不飽和カルボン酸ならびに  $\beta, \gamma$ -不飽和アミドの不斉酸化的環化反応において高い触媒活性と中程度のエナンチオ選択性を示し、生理活性物質の合成中間体として有用な  $\gamma$ -ブテノリド類や 2-ピロリノン誘導体の実用的合成に有効であることを明らかにした。

#### ・ハイブリッド型キラルスピロ配位子の効率的調製法の開発

パラジウム触媒によるカップリング反応を機軸としたハイブリッド型キラルスピロイソキサゾールイソキサゾリン配位子の効率的合成法を開発した。イソキサゾール環の 5 位にブromo基を導入した鍵中間体を設計・合成しカップリング反応による変換を可能とすることで、多種多様な新規キラルスピロ型配位子が簡便に得られた。本法を用いた迅速な配位子スクリーニングは、パラジウム二価錯体触媒による不斉ワッカー型環化反応において、低温下でも触媒活性を損なわず高い選択性を示す配位子の開発へと繋がった。

#### ・不斉合成による新規キラルスピロ型配位子の実用的合成

不斉合成を利用した新規キラルスピロビスイソキサゾリン配位子の実用的合成法を開発した。別途調製した光学活性なアルコールとマロン酸ジエステルから常法により鍵中間体となるジオキシムを合成した後、ジアステレオ選択的ダブルニトリルオキシド環化付加反応を行うことで目的とする光学活性スピロビスイソキサゾリン配位子の合成に成功した。

#### ・不斉遷移金属触媒反応を活用した効率的キラルスピロ骨格構築法の開発

分子内ダブル Buchwald-Hartwig 反応を活用したスピロビラクタムの不斉合成法の開発を行った。バルビツル酸から容易に調製できる 2,2-ビス(2-ブロモベンジル)マロナミド誘導体を基質に用い、パラジウム触媒存在下種々の不斉配位子を検討することで、目的とする 3,4-ジヒドロキノリン骨格を有するスピロ化合物のエナンチオ選択的合成に成功した。さらに、生成物の誘導体化による不斉触媒反応への応用に即した化合物群の創製も試み、求電子芳香族ブロモ化、ヒドリド還元など通常の有機合成手法により、スピロビス(1,2,3,4-テトラヒドロキノリン)骨格を有する相間移動触媒へと導いた。

#### ・面不斉シクロペンタジエニル錯体触媒による立体選択的反応の開発

面不斉シクロペンタジエニルルテニウム錯体による不斉触媒反応として、位置選択的なアリル置換反応を検討し、シンナミル誘導体によるインドールの高エナンチオ選択的なアリル化反応の開発に成功した。

#### ・らせん高分子を利用した不斉触媒反応の開発

高分子化合物に特徴的な分子不斉であるらせん構造の不斉合成への応用を目指して、配位部位を側鎖官能基に有するらせん状ポリイソシアニドを精密合成した。このらせん高分子配位子に銅塩を作用させて触媒を調製し、不斉Diels-Alder反応に適用したところ、中程度のエナンチオ選択性を示すことが分かった。

#### ・グリーンケミストリーを指向した有機溶媒を用いない固相系酸化触媒反応の開発

環境に低負荷である無機固体分散剤の粉末上で有機化合物の酸化反応を行う、という独自の環境低負荷型酸化触媒反応を開発し、グリーン度の向上と実用化を目指して展開している。その一つの方法は、有機溶媒も水も用いない酸化反応法で、固体過酸化水素/固体ポリ酸触媒/アパタイト分散剤からなる固体粉末相に、有機基質を染み込ませて行うものである。この方法では、ポリ酸触媒類の活性が、従来の液相系とは大きく異なる。これまで不安定で殆ど利用されていないKeggin型リンモリブデン酸が触媒として利用できた。スルフィドの酸化反応は、この触媒を用い粉体状態で、常温静置で行える。使用した固体触媒相はリサイクル使用できる。固体<sup>31</sup>P NMRを用い、酸化反応中のリンモリブデン酸触媒の挙動をin-situで観察した。その結果、新規のKeggin型パーオキシ種が活性種であると結論した。またこれまで得た知見から、ポリ酸クラスター構造中の活性となる部位を特定し、その構造部位を有する高活性のタングステン酸触媒を見出した。今後、ポリ酸クラスター構造の多様性を生かした高選択的固相系酸化反応を展開する。

### [ 原著論文 ]

Synthesis of Novel Spiro Imidazolium Salts as Chiral Ionic Liquids, M. L. Patil, C. V. L. Rao, S. Takizawa, K. Takenaka, K. Onitsuka, H. Sasai: *Tetrahedron*, 63 (51) (2007) 12702-12711.

Development of New Methods towards Efficient Immobilization of Enantioselective Catalysts, S. Takizawa, M. L. Patil, K. Marubayashi, H. Sasai: *Tetrahedron*, 63 (28) (2007) 6512-6528.

Design and Synthesis of Chiral Hybrid Spiro (isoxazole-isoxazoline) Ligands, P. S. Koranne, T. Tsujihara, M. A. Arai, G. B. Bajracharya, T. Suzuki, K. Onitsuka, H. Sasai: *Tetrahedron: Asymmetry*, 18 (8) (2007) 919-923.

Enantioselective Glyoxylate-ene Reaction using a Novel Spiro Bis(isoxazoline) Ligand in Copper Catalysis, K.

Wakita, G. B. Bajracharya, M. A. Arai, S. Takizawa, T. Suzuki, H. Sasai: *Tetrahedron: Asymmetry*, 18 (3) (2007) 372-376.

Optical Resolution of Tetra Isopropyl-substituted Spiro Bis(isoxazoline) i-Pr-SPRIX, S. Takizawa, J. Yogo, T. Tsujihara, K. Onitsuka, H. Sasai: *J. Organomet. Chem.*, 692 (1-3) (2007) 495-498.

Novel Azalides Derived from Sixteen-membered Macrolides. I. Isolation of the Mobile Dialdehyde and its One-pot Macrocyclization with an Amine, T. Miura, S. Natsume, K. Kanemoto, K. Atsumi, H. Fushimi, H. Sasai, T. Arai, T. Yoshida, K. Ajito: *J. Antibiot.*, 60 (7) (2007) 407-435.

Chiral Dinuclear Vanadium(V) Catalysts for Oxidative Coupling of 2-Naphthols, S. Takizawa, T. Katayama, C. Kameyama, K. Onitsuka, T. Suzuki, T. Yanagida, T. Kawai, H. Sasai: *Chem. Commun.*, (15) (2008) 1810-1812.

Dual Activation in Oxidative Coupling of 2-Naphthols Catalyzed by Chiral Dinuclear Vanadium Complexes, S. Takizawa, T. Katayama, H. Somei, Y. Asano, T. Yoshida, C. Kameyama, D. Rajesh, K. Onitsuka, T. Suzuki, M. Mikami, H. Yamataka, D. Jayaprakash, H. Sasai: *Tetrahedron*, 64 (15) (2008) 3361-3371.

Control of Helical Structure in Random Copolymers of Chiral and Achiral Aryl Isocyanides Prepared with Palladium–Platinum  $\mu$ -Ethyndiyl Complexes, F. Takei, K. Onitsuka, S. Takahashi, K. Terao, T. Sato: *Macromolecules*, 40 (15) (2007) 5245-5254.

Two- and Three-Dimensional Smectic Ordering of Single-Handed Helical Polymers, H. Onouchi, K. Okoshi, T. Kajitani, S. Sakurai, K. Nagai, J. Kumaki, K. Onitsuka, E. Yashima: *J. Am. Chem. Soc.*, 130 (1) (2008) 229-236.

Organoruthenium Dendrimers Possessing Tris(4-ethynylphenyl)amine Bridges, K. Onitsuka, N. Ohara, F. Takei, S. Takahashi: *Organometallics*, 27 (1) (2008) 25-27.

Regio- and Enantioselective O-Allylation of Phenol and Alcohol Catalyzed by Planar-Chiral Cyclopentadienyl-Ruthenium Complex, K. Onitsuka, H. Okuda, H. Sasai: *Angew. Chem. Int. Ed.*, 47 (8) (2008) 1454-1457.

Characteristics of apatites as a disperse phase for solid-phase organic oxidation system, K. Iteya, Y. Sasaki, M. Iwasaki, S. Ito, J. Ichihara: *J. Ceram. Process. Res.*, 8 (2007) 38-42.

Characteristics of apatite solid disperse phase materials for solvent-free reaction, K. Iteya, Y. Sasaki, M. Iwasaki, S. Ito, J. Ichihara: *Material Technology*, 25 (2007) 17-23.

## [ 解説、総説 ]

Bifunctional Organocatalysts for Enantioselective aza-Morita–Baylis–Hillman (aza-MBH) Reactions、滝澤忍、松井嘉津也、笹井宏明、有機合成化学協会誌、65 [11] (2007) 1089-1098.

フッ素アパタイトを利用した環境に優しい無溶媒触媒反応、市原潤子、材料の科学と工学、44 [4] (2007) 157-162.

Recent Development on Chiral Ionic Liquids: Design, Synthesis, and Applications、M. L. Patil、笹井宏明、The Chemical Record、8 [2] (2008) 98-108.



[ 著書 ]

「Asymmetric Phase Transfer Catalysis」(丸岡啓二編集)、笹井宏明、M. L. Patil、Wiley-VCH、(2008) 135-159.

[ 特許 ]

「固相系酸化反応システム」市原潤子、山口俊郎、特願 2007-022073

[ 国際会議 ]

Development of New Catalytic Enantioselective Reactions Promoted by Pd(II)-Spiro Bis(isoxazoline) Complexes (poster), \*G. B. Bajracharya, P. S. Koranne, M. L. Patil, C. V. L. Rao, T. Tsujihara, S. Takizawa, T. Suzuki, H. Sasai: 19th French-Japanese Symposium on Medicinal and Fine Chemistry (FJS-2007), Toyama, Japan, May 13-16, 2007.

Pd(II)-SPRIX-Catalyzed Enantioselective Intramolecular Cyclizations (poster), \*G. B. Bajracharya, M. L. Patil, P. S. Koranne, C. V. L. Rao, T. Tsujihara, T. Suzuki, H. Sasai: 14th IUPAC Symposium on Organometallic Chemistry Directed Towards Organic Synthesis (OMCOS 14), Nara, Japan, August 2-6, 2007.

Development of Dendritic Artificial Enzymes with Catechol Oxidase Activity (poster), D. Jayaprakash, \*R. N. Nadaf, T. Kawase, T. Suzuki, H. Sasai: 12th Asian Chemical Congress, Kuala Lumpur, Malaysia, August 22-25, 2007.

Development of Dendritic Artificial Enzymes with Catechol Oxidase Activity (poster), \*D. Jayaprakash, R. N. Nadaf, T. Kawase, T. Suzuki, H. Sasai: Chirality at the Nanoscale, Barcelona, Spain, September 17-21, 2007.

Development of New Catalytic Enantioselective Reactions Promoted by Pd(II)-Spiro Bis(isoxazoline) Complex (poster), G. B. Bajracharya, P. S. Koranne, M. L. Patil, C. V. L. Rao, T. Tsujihara, S. Takizawa, T. Suzuki, \*H. Sasai: Chirality at the Nanoscale, Barcelona, Spain, September 17-21, 2007.

Development of New Catalytic Enantioselective Reactions Promoted by Pd(II)-Spiro Bis(isoxazoline) Complexes (poster), \*Y. Tanigaki, G. B. Bajracharya, P. S. Koranne, C. V. L. Rao, M. L. Patil, T. Tsujihara, K. Takenaka, S. Takizawa, K. Onitsuka, H. Sasai: Green Sustainable Biological and Chemical Processes, Osaka, Japan, November 15-17, 2007.

Development of Novel Chiral Spiro-type Ligands (poster), \*S. Nakatsuka, T. Nagano, P. S. Koranne, K. Takenaka, S. Takizawa, T. Suzuki, K. Onitsuka, H. Sasai: Green Sustainable Biological and Chemical Processes, Osaka, Japan, November 15-17, 2007.

Development of Dendritic Artificial Enzymes with Catechol Oxidase Activity (poster), \*R. N. Nadaf, D. Jayaprakash, T. Kawase, R. K. M. Gabr, S. Hashimoto, M. Mikami, T. Suzuki, H. Sasai: Green Sustainable Biological and Chemical Processes, Osaka, Japan, November 15-17, 2007.

Development of Dendritic Artificial Enzymes with Catechol Oxidase Activity (poster), \*S. Hashimoto, R. N. Nadaf, D. Jayaprakash, T. Kawase, G. R. K. Mohamed, M. Mikami, T. Suzuki, H. Sasai: 11th Sanken, 6th Nanotechnology Center, 1st MSTE International Symposium, Awaji, Japan, February 4-5, 2008.

Bifunctional Chiral Organocatalysts for the Enantioselective aza-Morita-Baylis-Hillman Reaction, \*H. Sasai: 21st International Congress for Heterocyclic Chemistry, Sydney, Australia, July 15-20, 2007.

Development of Bifunctional Organocatalysts for Enantioselective Aza-Morita-Baylis-Hillman Reaction (invited), \*H. Sasai: First International Conference on Advanced Organic Synthesis Directed toward the Ultimate Efficiency and Practicability, International Conference on Asymmetric Organocatalysis, Otsu, Japan, May 28-29, 2007.

Novel Enantioselective Reactions Promoted by Pd(II)-SPRIX Catalyst (invited), \*H. Sasai: International Chemical Conference (ICCT-2007), Hsinchu, Taipei, December 13-16, 2007.

Dual Activation in Oxidative Coupling of 2-Naphthols Catalyzed by Chiral Dinuclear Vanadium Complexes (invited), \*H. Sasai: Post-symposium of ICCT-2007, Hsinchu, Taipei, December 17, 2007.

Dual Activation Catalysis (invited), \*H. Sasai: Green Sustainable Biological and Chemical Processes, Osaka, Japan, November 15-17, 2007.

Regio- and Enantioselective O-Allylation of Phenol and Alcohol Catalyzed by Planar-Chiral Cyclopentadienyl-Ruthenium Complex (poster), \*K. Onitsuka, H. Okuda, C. Kameyama, H. Sasai: 14th IUPAC Symposium on Organometallic Chemistry Directed Towards Organic Synthesis (OMCOS 14), Nara, Japan, August 2-6, 2007.

Organoruthenium Dendrimers Possessing Tri(4-Ethynylphenyl)Amine Bridges (poster), \*K. Onitsuka, S. Takahashi: 12th IUPAC International Symposium on Macromolecular Complexes, Fukuoka, Japan, August 27-31, 2007.

Development of New Catalytic Asymmetric Reaction Using Helical Polymer (poster), \*Y. Itano, K. Onitsuka, H. Sasai: Green Sustainable Biological and Chemical Processes, Osaka, Japan, November 15-17, 2007.

Asymmetric Catalysis of Planar-Chiral Cyclopentadienyl-Ruthenium Complexes: Regio- and Enantioselective Allylic Substitutions (poster), \*K. Onitsuka, H. Okuda, C. Kameyama, H. Sasai: 11th Sanken, 6th Nanotechnology Center, 1st MSTEC International Symposium, Awaji, Japan, February 4-5, 2008.

Design of Novel Helical Polymer Ligands and Their Application to Asymmetric Diels-Alder Reaction (poster), \*K. Onitsuka, Y. Itano, H. Sasai: 11th Sanken, 6th Nanotechnology Center, 1st MSTEC International Symposium, Awaji, Japan, February 4-5, 2008.

Synthesis of Optically Active Spiro Compounds via Palladium-catalyzed Asymmetric Amidation (poster), \*N. Itoh, K. Takenaka, H. Sasai: Green Sustainable Biological and Chemical Processes, Osaka, Japan, November 15-17, 2007.

Synthesis of Optically Active Spiro Compounds via Palladium-catalyzed Asymmetric Amidation (poster), \*N. Itoh, K. Takenaka, H. Sasai: 11th Sanken, 6th Nanotechnology Center, 1st MSTEC International Symposium, Awaji, Japan, February 4-5, 2008.

[ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

笹井 宏明            14th IUPAC Symposium on Organometallic Chemistry Directed Towards Organic Synthesis (OMCOS 14), (組織委員)

[ 国内学会 ]

日本化学会春季年会	13 件
有機反応懇談会	2 件
有機金属化学討論会	1 件
触媒討論会	1 件
高分子討論会	1 件
有機合成シンポジウム	1 件

### [ 取得学位 ]

修士 (理学)		
板野 雄	側鎖にピリジル基を有するらせん状ポリイソシアニド配位子の開発と不斉触媒反応への応用	
亀山 千明	面性キラリティーを有するシクロペンタジエニルテニウム錯体を触媒としたインドール類の不斉アリル化反応	
中司 修平	ハイブリッド型スピロイソオキサゾールイソオキサゾリン不斉配位子の効率的合成法の開発	
Gabr Randa Kassem Mohamed	Development of Dendritic Artificial Enzymes	

### [ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)		単位: 千円
特定領域研究		
笹井 宏明	相乗的活性化により反応を促進する不斉有機触媒の創製	2,300
鬼塚 清孝	有機金属ハイブリッド共役ポリマーの創製と新機能発現	1,400
鬼塚 清孝	面不斉有機金属錯体を触媒とする高立体選択的反応の開発	2,000
基盤研究 (C)		
市原 潤子	環境に優しい固体分散相を用いる無溶媒型酸化触媒反応システム	800

### [ 受託研究 ]

笹井 宏明	科学技術振興機構 (JST)	スピロ型不斉配位子の創製を基盤とする新規医薬品合成中間体の供給	2,600
-------	----------------	---------------------------------	-------

### [ 奨学寄附金 ]

笹井 宏明	明治製菓株式会社	1,000
笹井 宏明	ダイソー株式会社	600
笹井 宏明	日産化学工業	400
笹井 宏明	ナガセケムテックス	200

### [ その他の競争的研究資金 ]

笹井 宏明	(財) ホソカワ粉体工学 振興財団	機能性ナノ粒子の効率的調製法の開発	1,000
-------	----------------------	-------------------	-------

## 分子材料解析研究分野

教授（兼任） 加藤 修雄  
助教 高井 嘉雄、山口 俊郎、開發 邦宏、朝野 芳織、武井 史恵  
博士研究員 森 修一

### a) 概要

分子材料解析研究分野は、平成 16 年度より新設された。当分野では、分子化学、材料化学、生命化学、環境化学の重要な課題に関する高度な解析手法・分析手法およびそれらの解析理論・分析理論に基礎をおいた先端性の高い分子材料解析化学の研究を行う。すなわち、物質の原子・分子・集合体構造と材料機能発現との相関解析を行い、新規な、あるいは高度な機能を発揮する新素材の創製をめざして、機能性分子材料の分子構造と機能の解析法の開発、機能性分子材料の分子構造と機能の解析の開発、分子材料の原子・分子レベルの基礎的かつ総合的な研究を行う。所属教員は所内研究分野と協力して独自の研究展開を行っているが、同時に、材料解析センターの支援業務にも寄与している。

### b) 成果

#### ・光応答性アンチセンス分子による人工転写バルブの形成と転写反応の制御

染色体 DNA 上におけるバルブ構造形成は、転写反応の開始の引き金として重要で反応ある。我々は、DNA プロモーター配列を認識して可視光に反応して二重鎖をほどく“光応答型アンチセンス分子”を利用して、人工的に転写バルブ構造を構築することを試みた。医薬品化学研究分野との共同研究で、可視光照射のもとトランス体からシス体へ光異性化する新規アゾベンゼンを合成した。これらアゾベンゼンをペプチド核酸(PNA)と呼ばれる核酸アナログに導入した。PNA-アゾベンゼンコンジュゲート(PNA-AZO)に可視光を照射したところ、アゾベンゼンユニットの異性化に伴う構造変化が起こった。現在、PNA-AZO を用いて、二重鎖 DNA 中に人工転写バルブを形成する手法を開発中である。

#### ・新規茶カテキン誘導体を用いたインフルエンザウイルス感染阻害

茶カテキンの主成分であるエピガロカテキンガレート(EGCG)の種々の脂肪酸モノエステル誘導体をリパーゼ触媒トランスエステル化反応により調整した。長鎖アルキルを導入するとその抗インフルエンザ効果が天然型 EGCG に比較して 24 倍向上することがわかった。医薬品化学研究分野との共同研究により、EGCG モノエステルはウイルス感染の初期段階におけるウイルス-細胞間の膜融合を阻害することが明らかになった。この独特の抗インフルエンザ活性は、高病原性鳥インフルエンザなど、タミフル耐性ウイルス株などの阻害に有効であると期待される。

#### ・シトシンバルジヘアピンプライマーを用いた簡便な遺伝子変異検出法

遺伝子の変異を迅速に検出する手法が、テーラメード医療を支える根幹技術として期待されている。当研究室では、ミスマッチやバルジ構造に特異的に結合する小分子を用いた遺伝子変異検査技術を提案してきた。実用に耐えうる遺伝子変異検査技術としては、簡便な操作、正確な判定、かつ、検査コストが十分に安価であることが望まれる。この要求を満たすために、DNA プローブの化学修飾はいっさい行わないことを基本としている。シトシンバルジサイトをヘアピン構造内に持ち、さらに 3' 末端に一塩基多型認識サイトを含む PCR プライマーを用意し、シトシンバルジにジアミノナフチリジン誘導体が結合して発する特徴的な蛍光を利用して PCR の進行をモニターし、遺伝子変異の有無を見つける方法を検討した。この手法の特徴は、標的 DNA が少量でも PCR を使うことで検出が可能であること、全てを混合して PCR がかけられるというきわめて簡便な手法で遺伝子変異が判定できる点にある。テンプレートを用いて PCR を行なった結果、3' 末端の一塩基の違いで蛍光の変化に大きな差が観測され、一塩基の違いを認識することに成功した。

## [ 原著論文 ]

Allele Specific C-Bulge Probes with One Unique Fluorescent Molecule Discriminate the Single Nucleotide Polymorphism in DNA, F. Takei, H. Suda, M. Hagihara, J. Zhang, A. Kobori, and K. Nakatani, *Chem. Eur. J.* 13 (2007) 4452-4457.

Emission of characteristic fluorescence from the ligand-cytosine complex in U<sub>A</sub>/ACU bulged RNA duplex, J. Zhang, F. Takei, and K. Nakatani, *Bioorg. Med. Chem.* 15 (2007) 4813-4817.

Control of Helical Structure in Random Copolymers of Chiral and Achiral Aryl Isocyanides Prepared with Palladium-Platinum  $\mu$ -Ethynediyl Complexes, F. Takei, K. Onitsuka, S. Takahashi, K. Terao, and T. Sato, *Macromolecules* 40 (2007) 5245-5254.

## [ 解説、総説 ]

海外の研究室訪問：オックスフォード大学 フラー研へようこそ！、 開発邦宏、化学（化学同人）、62 [3] (2007) 45-48.

## [ 特許 ]

Silver  $\beta$ -ketocarboxylate, metallic silver manufacturing material thereof, and application of silver thereof, S. Katsuaki, S. Yamaguchi, and M. Hatamura, *PCT Int. Appl.* (2007), WO 2007004437.

「エピガロカテキンガラートのアシル誘導体を利用した抗癌剤」松村和明、開発邦宏、森修一、玄丞杰、特願 2007-239955.

「膜融合阻害剤」開発邦宏、森修一、大道寺智、三宅真弥、加藤修雄、特願 2008-023196.

## [ 国際会議 ]

Synthesis and Evaluation of VIS-Sensitive Azobenzene Derivatives for Controlling Cellular Gene Expressions, \*K. Kaihatsu, S. Sawada, and N. Kato, 11th Sanken International Symposium, Awaji, Japan, February 2-4, 2008.

Synthesis of Green Tea Catechin Derivatives and Evaluation of Their Anti-influenza Virus Activity, \*S. Mori, S. Miyake, K. Kaihatsu, and N. Kato, 11th Sanken International Symposium, Awaji, Japan, February 2-4, 2008.

Application for the Fluorescent Detection of Single Nucleotide Difference using Cytosine Bulge Hairpin Primers, \*F. Takei, M. Hagihara, Y. Oka, and K. Nakatani, 11th Sanken International Symposium, Awaji, Japan, February 2-4, 2008.

## [ 国内学会 ]

日本化学会春季年会	3 件
日本化学会西日本大会	2 件
日本薬学会	1 件
日本バイオマテリアル学会	1 件
生体触媒化学シンポジウム	1 件
バイオオプティクス研究会	1 件

SORST ジョイントシンポジウム	1 件
その他	1 件

### [ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)	単位：千円	
基盤研究 (C)		
武井 史恵	シトシンバルジプロープを用いる革新的遺伝子-塩基変異の蛍光検出法の開発	1,820
若手研究 (B)		
開発 邦宏	光応答性アンチセンス分子による人工転写バルブの形成と転写反応の制御	1,900

### [ 受託研究 ]

開発 邦宏	NEDO 産業技術研究助成	新規茶カテキン誘導体を利用した抗 RNA ウイルス薬の迅速な開発システムの構築	2,2702
-------	---------------	---	--------

### [ 共同研究 ]

開発 邦宏	太陽化学株式会社	電界紡糸技術による食品素材からの高機能部材の開発	1,000
-------	----------	--------------------------	-------

# 知能システム科学研究部門

## 概要

膨大な情報がデジタル化され、ネットワークを通じ世界中を飛び交うようになった今日の高度情報化社会では、知的情報処理は日常生活を含む社会のあらゆる局面で必要不可欠な要素となりつつある。本研究部門は人間の知能を科学し、高度な知識情報処理機能を計算機に付与し広く工学的諸問題の解決や知的活動支援全般へ応用することを目指した、互いに有機的に関連する4研究分野で構成されている。研究内容はオントロジー工学、知識の共有、再利用の研究（知識システム分野）、多角的な情報の利用と多角的な処理の研究（複合知能メディア分野）、人間と計算機との理想的な相互作用の形態を追求したインターフェイスおよびエージェントの研究（知能アーキテクチャ分野）、データマイニング、知識発見、機械学習の研究（高次推論方式分野）など、人間の知的活動の根源に関する諸問題を情報科学／工学の観点から追求している。各研究分野は、それぞれの分野名によって代表される観点から独自性を重視しつつ研究を進めているが、その一方で、互いに連携を保った研究開発も同時に推進している。また、当研究所の他部門との間においても、上記のような目標を追求する過程において得られる成果を研究開発支援ツールとして提供する一方、逆に他部門からは実際の適用課題についての示唆を受けるなどの形で、相互に協調性を図りながら研究を進めている。

## 成果

- ・ ロール理論とその記述開発環境、及びオントロジー分散開発環境の開発
- ・ オントロジー工学に基づく機能的知識の体系化とその実証
- ・ 学習・教授理論オントロジーOMNIBUSの公開と理論・標準化準拠オーサリングシステムの開発
- ・ 協調学習インタラクション分析とメタ認知モデル構成
- ・ タスク指向モバイルサービスナビゲーションのためのサービス利用者行動モデル構築方法論の強化とオントロジーの改良
- ・ 全方位ビジョンセンサの設計と応用
- ・ 知能ロボットのための環境モデリング
- ・ 医用画像解析
- ・ 全方位監視システムと人物行動解析
- ・ 述語の発明機構
- ・ 構成的適応インタフェースへのセンサーの導入
- ・ 適応エージェント
- ・ 適応能力を持ったチュータリングシステムに関する研究
- ・ Webの要約
- ・ 共鳴に基づく人と環境とのインタラクションフレームワークの創出
- ・ 大規模次元ダイナミクスデータからの知識発見に関する研究
- ・ 大規模多頻度共起部分グラフ構造パターン導出基礎原理の探求
- ・ グラフ系列パターン導出基礎原理の探求
- ・ 大規模次元データ類似性データからの知識発見

## 知識システム研究分野

教授	溝口 理一郎
准教授	來村 徳信
助教	笹嶋 宗彦
特任助教	林 雄介、国府 裕子(平成19年8月1日採用)、周 俊(平成19年9月1日採用)
大学院学生	垂見 晋也、磯谷 セイジ、大久保 公則、遠藤 諭、古谷 孝一郎
研究生	孟 帥(平成19年9月1日より)
学部学生	瀬川 翔、廣田 健
事務補佐員	馬野 直美

### a) 概要

情報科学の進展はめざましく、「情報」を越えた「知識」がますますその重要性を増すと考えられている。実社会においては小型化が極限にまで進化しつつあるコンピュータと地球規模に発達したコンピュータネットワークによって「大量情報／知識の知的処理」が一般家庭にまで浸透しつつある。学界における知識処理研究は「考える、判断する、推論する」といった人間固有の知的機能を計算機で実現する「知的機能代行型」の研究から、人間と共生する「知的パートナーとしてのコンピュータ」の研究へと展開している。当分野では学術的に優れた研究成果をあげつつこれらの社会的状況に応えることを目指して、次世代の知識処理システム構築のための新しい基礎理論と基盤技術としての「オントロジー工学」を提唱し、それに関連する幅広い研究を行っている。具体的には、オントロジー基礎論に基づく開発方法論とその環境、知識の体系化に基づく知的設計支援システム、知識の共有・再利用、知的教育・訓練システムとオントロジーに基づくオーサリングシステムに関する研究を行っている。

### b) 成果

#### ・オントロジー構成論

知識工学の基礎理論としてオントロジー構成論を展開している。知識ベースシステムの知的振る舞いは人間の知的振る舞いを模倣したものであり、その源は人間にある。また、それがサービスを提供する対象もまた人間である。それにも関わらず、知識ベースシステムの大多数においては、人間が持つ概念体系の豊かな意味あいが見失われ、人間からみて従来型のソフトウェアと本質的な差異を認めることができないという問題がおこっている。この問題は、知識ベースの共有・再利用の困難さや、人間からみたソフトウェアの振る舞いの「硬さ」といった問題に通じている。これは、人間が知識ベースシステムを「作る」、あるいは「使う」ときのための基礎的理論が確立していないことに原因がある。オントロジーに関する理論は、人間の対象に対する認識の世界とソフトウェアの中に作り出される世界を明確に対応づけながら知識工学的成果を積み重ね、それに基づいて現実の問題に応用するための必要不可欠な基礎理論である。オントロジー構成論に関して当分野では、オントロジー研究の意義、機能と役割、研究すべき課題などを整理した「オントロジー工学序説」「オントロジー研究の基礎と応用」「オントロジー工学基礎論」と題する啓蒙的な論文を公表するなど我が国において先導的立場で研究を行って来た。また、2005年1月にはその時点での学問の到達点を示す意味で「オントロジー工学」を出版した。まず基礎となる理論を確立すべく、人間が認識する概念の成り立ちを独自の観点で分析し、その結果を新しい基礎理論として定式化し公表し、「知識」に関する情報科学的に重要な疑問に解答を与え始めている。さらに、基礎論から実践的研究への展開に向けて、既存の情報基盤技術との連携技術について重点的に検討している。これらの成果は当分野で開発したオントロジー工学研究の基盤ツール「法造」におけるオントロジーエディタ、技術ドキュメントからのオントロジー抽出過程を支援する概念工房、そしてオントロジーサーバーとして実装した。さらに、法造の実用ツールへ向けた強化とセマンティックウェブを指向した分散環境でのオントロジー開発支援システムを開発した。今年度は、オントロジーを視点依



存の形で俯瞰して概念マップを作成するツールを開発し、サステナビリティ知識の組織化において応用を開始した。また、臨床医学オントロジー、遺伝子オントロジーの本格的な構築を開始した。さらに、理論的な側面において、インスタンス管理の観点からロール理論の精緻化、およびオブジェクト、プロセス、イベントのオントロジー的理論の再構築を目指して考察を進めた。

#### ・工学的知識体系化の枠組みの開発とその知識記述・共有における利用

昨今の工業社会において大きな役割を果たしている工学的知識の中で、数値や形状などのデータレベル知識の共有は普及してきたが、機能などの概念レベルの知識は属人的かつ暗黙的になっており、明示化されたとしても有効活用されていないことが多い。そのためには、共通の一貫した視点に基づいて知識を捉え、知識に用いられる概念を統一することが必要である。本研究では、人工物の概念レベルモデルの成り立ちを深く考察し、工学的知識の枠組みを与える概念体系（オントロジー）の構築を目標としている。本年度まででは、「装置」を中心とした観点から人工物を捉える視点を与えるデバイスオントロジーと、機能的知識の語彙を提供する機能概念オントロジーを構築した。本枠組みはある大手製造業企業において生産装置・工程に関する知識共有に実用されており、大きな成果を上げている。さらに、それらのオントロジーを拡張し、企業内セマンティックウェブ環境における技術文書の機能的メタデータ検索や、不具合知識などとの融合を実現してきた。本年度は、機能の上位レベル概念を整理した「機能に関する参照オントロジー」に基づいた既存の機能概念体系との対応付けを実現し、メタデータ検索システムに応用することによって、知識の相互運用性の向上を進めた。また、機能オントロジーの計算機的な意味論のさらなる明確化を目指して、標準化されたオントロジー記述言語 OWL による表現に関する考察と実装を行った。さらに、物質基盤センターと共同で、より高い拡張性・外部連携性・知識外化支援機能を備えた技術知識統合管理プラットフォームを目指して、先進的 XML 技術に基づいた機能的知識外化・共有支援ツール **OntoGear** の実装を進めた。

#### ・学習支援システムの構築方法論

学習支援システムに関する研究領域では、教育という人間の知的活動を部分的に計算機システムに代行させることを目的として、様々な方面から基礎と応用の両面から研究がなされてきている。しかし、残念ながらその知見は散発的で、工学的な方法論の確立には集約していないというのが実状である。このような状況を打開するためには、基礎理論とシステム構築方法論の対応関係を明確にするための枠組みが必要である。その中核となる技術として我々が提唱しているのがオントロジー工学である。オントロジーは、対象に関して人間が持っている専門的知識と、それを埋め込んだソフトウェアの構造や振る舞いととの対応関係を、人間にとって分かり易い形態で明確にするための知識工学の理論である。本研究では、教育タスクのオントロジーを明確にし、それに基づいた人間に親和性の高いオーサリングツール（教育システム構築環境）を開発することを目標とし、これまでに積み重ねられた様々な教育システムを解析し、その構成原理をオントロジーとして明確にする作業を進めている。これまでに、この理論を企業内教育に適用し、**Ontology-Awareness** という概念を提案し、従来疎遠であった学習理論や教授理論までを包含したオントロジーを開発して、教育タスクオントロジーと合わせた包括的なオントロジーに基づいた新しいオーサリング環境を実現している。また、オーサリングタスクオントロジーとそれに基づく革新的なオーサリングシステムのオントロジー、協調学習のためのオーサリングシステム、メタ認知機能のフレームワークの開発を行ってきた。本年度は、オントロジー工学応用の一環として、情報教育教授設計を支援する包括的なオントロジーを構築し、それに基づくマルチエージェント技術を適用して、情報教育授業設計を動的に支援するシステムのプロトタイプを構築した。昨年度までに開発したメタ認知システムの包括モデルに基づいて、論文作成訓練システムの設計を行った。さらに、一般公開している学習理論・教授理論のオントロジーを更新すると共に、それに基づいて理論と標準技術の両方に準拠した学習・教授シナリオ作成支援システムのプロトタイプシステム **SMARTIES** も一般公開した。また、既に開発した協調学習理論オントロジーを利用して実際に協調学習を行う評価実験を行い、協調学習デザインにおけるオントロジーの効果について検討した。

### ・オントロジー工学の適用によるモバイルサービスの利便性向上

携帯電話サービスに代表されるモバイルインターネット環境が普及し、時間や場所を問わずにネットワーク上のさまざまなサービスを享受できるようになった。しかし近年、モバイルサービスの数や種類が増えるに従いユーザが所望のサービスメニューを簡単に見つけられないという問題が起きている。本研究では本分野が長年取り組んできたオントロジー工学の技術をモバイルサービスおよびその利用者の分析とモデル構築に適用し、利用者にとって利便性の高いモバイルサービスの実現を目指している。前年度に終了したモバイルサービス提供企業との共同研究の契約を更新し、サービス利用者行動モデル構築方法論に基づくタスク指向型のモバイルサービス誘導メニューを実規模で試作した。並行してモデル構築の核となるオントロジーの改良を進め、次年度以降のシステム評価実験の準備を行った。

### [ 原著論文 ]

オントロジーを基盤としたメタデータ記述による課題解決力育成を目的とした学習指導案検索支援, 笠井俊信, 山口晴久, 永野和男, 溝口理一郎: 日本教育工学会論文誌, 31 (3) (2007) 337-348.

The Model of Roles within Ontology Development Tool: Hozo, R. Mizoguchi, E. Sunagawa, K. Kozaki and Y. Kitamura: J. of Applied Ontology, 2 (2) (2007) 159-179.

A Semantic Web System for Supporting Teachers Using Ontology Alignment, T. Kasai, H. Yamaguchi, K. Nagano and R. Mizoguchi: Int. J. Metadata, Semantics and Ontologies, 2 (1) (2007) 35-44.

知識成長過程を指向した設計意図知識管理システムの構築, 武内 雅宇, 小路 悠介, 來村 徳信, 林 雄介, 池田 満, 溝口 理一郎: 人工知能学会論文誌, 22 (3) (2007) 263-275.

相互運用性を指向した機能・不具合知識の統合とその概念写像に基づく知識変換, 小路 悠介, 來村 徳信, 加藤 義清, 筒井 良夫, 溝口 理一郎: 人工知能学会論文誌, 22 (1) (2007) 78-92.

発話意図理解と回答誘導による異言語間会話支援ツールの試作, 笹島 宗彦, 井本 和範, 下森 大志, 山中 紀子, 矢島 真人, 福永 幸弘, 正井 康之: 情報処理学会論文誌, 48 (3) (2007) 1262-1273.

機能発揮・製造プロセス知識統合的記述枠組みに基づくナノテク材料設計支援システムの開発, 垂見 晋也, 古崎 晃司, 來村 徳信, 田中 秀和, 溝口 理一郎: 人工知能学会論文誌, 23 (1) (2008) 36-49.

### [ 解説、総説 ]

知的活動支援のためのオントロジー工学的アプローチ, 林雄介、溝口理一郎、ヒューマンインタフェース学会誌・論文誌、9 (4) (2007) 21-26.

### [ 国際会議 ]

Development of a Design Supporting System for Nano-Materials based on a Framework for Integrated Knowledge of Functioning-Manufacturing Process, \*S. Tarumi, K. Kozaki, Y. Kitamura, H. Tanaka and R. Mizoguchi: The 10th IASTED International Conference Intelligent Systems and Control(ISC2007), Cambridge, Massachusetts, USA, Nov. 19-21, 2007.

A Framework for Cooperative Ontology Construction Based on Dependency Management of Modules, \*K. Kozaki, E. Sunagawa, Y. Kitamura and R. Mizoguchi: International Workshop on Emergent Semantics and Ontology Evolution (ESOE2007), Busan, Korea, Nov. 12, 2007.

Towards a Reference Ontology for Functional Knowledge Interoperability, \*Y. Kitamura, S. Takafuji, R. Mizoguchi: ASME International Design Engineering Technical Conferences & Computers and Information in Engineering Conference (ASME2007), Las Vegas, Nevada, USA, Sep. 4-7, 2007.

Towards Interoperability between Functional Taxonomies Using an Ontology-based Mapping, \*M. Ookubo, Y. Koji, M. Sasajima, Y. Kitamura and R. Mizoguchi: The 16th International Conference on Engineering Design (ICED '07), Paris, France, Aug. 28-31, 2007.

Role Representation Model Using OWL and SWRL, \*K. Kozaki, E. Sunagawa, Y. Kitamura and R. Mizoguchi: 2nd Workshop on Roles and Relationships in Object Oriented Programming, Multiagent Systems, and Ontologies, Berlin, July 30-31, 2007.

Distributed and Collaborative Construction of Ontologies Using Hozo, \*K. Kozaki, E. Sunagawa, Y. Kitamura and R. Mizoguchi: Workshop on Social and Collaborative Construction of Structured Knowledge, Banff, Canada, May 8, 2007.

Inside Theory-Aware and Standards-Compliant Authoring System (invited), \*R. Mizoguchi, \*Y. Hayashi and J. Bourdeau: The Fifth International Workshop on Ontologies and Semantic Web for E-Learning (SWEL'07), Marina del Rey, CA, USA, July 9, 2007.

The Unfolding of Learning Theories: Its Application to Effective Design of Collaborative Learning, \*S. Isotani and R. Mizoguchi: The Fifth International Workshop on Ontologies and Semantic Web for E-Learning (SWEL'07), Marina del Rey, CA, USA, July 9, 2007.

Standard-compliant Scenario Building with Theoretical Justification in a Theory-aware Authoring Tool (poster), \*Y. Hayashi, J. Bourdeau and R. Mizoguchi: The 13th International Conference on Artificial Intelligence in Education (AIED 2007), Marina del Rey, CA, USA, July 9-13, 2007.

Using Ontologies for an Effective Design of Collaborative Learning Activities (poster), \*S. Isotani and R. Mizoguchi: The 13th International Conference on Artificial Intelligence in Education (AIED 2007), Marina del Rey, CA, USA, July 9-13, 2007.

Deployment of Ontologies for an Effective Design of Collaborative Learning Scenarios, \*S. Isotani and R. Mizoguchi: 13th International Workshop on Groupware (CRIWG2007), Bariloche, Argentina, Sep. 16-20, 2007.

When the Domain of the Ontology is Education, \*J. Bourdeau, R. Mizoguchi, Y. Hayashi, V. Psyche and R. Nkambou: The 4th Conf. on Intelligent, Interactive Learning Objects Repository Networks (I2LOR'07), Montreal, Canada, Nov. 4-7, 2007.

Towards a Complete Ontology-aware Authoring Tool for Collaborative Learning, \*S. Isotani and R. Mizoguchi: The 15th International Conference on Computers in Education (ICCE2007), Hiroshima, Japan, Nov. 5-9, 2007.

Theory-aware Explanation Support for Standard-compliant Scenario Building, \*Y. Hayashi, J. Bourdeau and R. Mizoguchi: The workshop on Semantic Technology for Learning, Hiroshima, Japan, Nov. 5, 2007.

OOPS: User Modeling Method toward Realization of Task Oriented Mobile Internet Service Navigation (poster), \*M. Sasajima, Y. Kitamura, T. Naganuma, S. Kurakake and R. Mizoguchi: The 6th International Semantic Web Conference (ISWC2007), Busan, Korea, Nov. 11-15, 2007.

OOPS: User Modeling Method for Task Oriented Mobile Internet Services, \*M. Sasajima, Y. Kitamura, T. Naganuma, S. Kurakake and R. Mizoguchi: The 2007 IEEE/WIC/ACM International Conference on Web Intelligence 2007 (WI '07), Silicon Valley, USA, Nov. 2-5, 2007.

[ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

溝口理一郎 Semantic Web Science Association (副会長)  
溝口理一郎 International Artificial Intelligence in Education Society (Executive Committee 委員)  
溝口理一郎 Asia-Pacific Society for Computers in Education (APSCE) (理事)  
溝口理一郎 The 15<sup>th</sup> International Conference on Computers in Education (ICCE2007) (プログラム委員)  
溝口理一郎 The 12<sup>th</sup> Conference of the Spanish Association for Artificial Intelligence and The Workshop on Artificial Intelligence Technology Transfer (CAEPIA - TTIA '07) (プログラム委員)  
溝口理一郎 The 2<sup>nd</sup> European Conference on Technology Enhanced Learning (EC-TEL 2007) (プログラム委員)  
溝口理一郎 The 13<sup>th</sup> International Conference on Artificial Intelligence in Education (AIED2007) (プログラム委員)  
溝口理一郎 The 4<sup>th</sup> European Semantic Web Conference (ESWC2007) (プログラム委員)  
溝口理一郎 The 4<sup>th</sup> International Conference on Knowledge Capture (K-CAP 2007) (プログラム委員)  
溝口理一郎 The 7th IEEE International Conference on Advanced Learning Technologies (ICALT'07) (プログラム委員)  
溝口理一郎 The 2007 IEEE International Conference on Information Reuse and Integration (IEEE IRI-07) (プログラム委員)  
溝口理一郎 The 16<sup>th</sup> International World Wide Web Conference Semantic Web Track (トラックプログラム委員会委員長)  
溝口理一郎 The 4<sup>th</sup> International Conference on Knowledge Capture (K-CAP 2007) (プログラム委員)  
溝口理一郎 The 6<sup>th</sup> international semantic web conference (ISWC2007) (組織委員長)  
溝口理一郎 The 5<sup>th</sup> International Workshop on Applications of Semantic Web Technologies for E-Learning (SWEL'07) (組織委員長)  
溝口理一郎 Workshop on Semantic Technology for Learning (組織委員長)  
溝口理一郎 International Journal of Advanced Engineering Informatics (編集委員)  
溝口理一郎 International Journal of Applied Ontology (編集委員)  
溝口理一郎 Research and Practice in Technology Enhanced Learning (編集委員)  
溝口理一郎 International Journal of Artificial Intelligence in Education (編集委員)  
溝口理一郎 Frontiers in AI and Application (編集委員)  
溝口理一郎 International Journal of Web Engineering and Technology (編集委員)  
溝口理一郎 International Journal of Web Semantics (編集委員)  
溝口理一郎 The 2<sup>nd</sup> Asian Semantic Web Conference (運営委員)  
來村徳信 The 6<sup>th</sup> international semantic web conference (ISWC2007) (プログラム委員)  
來村徳信 The First International Workshop on Semantic Web and Web 2.0 in Architectural, Product and Engineering Design (組織委員)  
林雄介 The 5<sup>th</sup> International Workshop on Applications of Semantic Web Technologies for E-Learning (SWEL'07) (プログラム委員)  
林雄介 The 15<sup>th</sup> International Conference on Computers in Education (ICCE2007) (プログラム委員)

林雄介	Workshop on Semantic Technology for Learning (プログラム委員)	
笹嶋宗彦	The 4 <sup>th</sup> International Conference on Autonomic and Autonomous Systems (ICAS 2008) (プログラム委員)	

[ 国内学会 ]

人工知能学会		12 件
電子情報通信学会		1 件
情報処理学会		1 件
教育システム情報学会		1 件

[ 取得学位 ]

修士 (工学)		
大久保 公則	参照オントロジーを用いた機能語彙体系間マッピングとその応用	

[ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)		単位：千円
基盤研究 (A)		
溝口 理一郎	学習理論・標準化技術 Compliant 知識サーバーの構築	10,400
特定領域研究		
溝口 理一郎	人工物オントロジーに基づく製造業における技術ドキュメントの融合に関する研究	5,200
若手研究 (B)		
笹嶋 宗彦	モバイルサービス改善のための消費者行動モデリングに関する研究	1,100

[ 受託研究 ]

溝口 理一郎	東京大学	医療情報システムのための医療知識基盤データベース研究開発；意味関係モデル設計開発	10,000
--------	------	--	--------

[ 奨学寄附金 ]

溝口 理一郎	(株)ジャストシステム		5,000
溝口 理一郎	(株)ワイ・エム・ピー・インターナショナル		650
溝口 理一郎	(株)ワイ・エム・ピー・インターナショナル		650
溝口 理一郎	(有)テレドリーム		500

[ 共同研究 ]

溝口 理一郎	(株) エヌ・ティ・ティ・ドコモ	モバイルユーザーの実世界コンテンツ理解に向けたオントロジー	3,000
--------	------------------	-------------------------------	-------

溝口 理一郎	(株) ジャストシステム	の研究 オントロジー工学と自然言語処理 を融合した安全・安心物作りのた めの情報共有に関する研究	20,000
溝口 理一郎	出光興産株式会社	ナノ材料に関わる知識基盤システ ムの構築	3,300
溝口 理一郎	(株) トヨタ IT 開発セン ター	クルマにおけるオントロジー技術 に関する研究	1,000

## 複合知能メディア研究分野

教授	八木 康史
准教授	向川 康博
助教	佐川 立昌、槇原 靖
特任研究員	王 君秋、モハマド アルタブ ホサイン、 近藤 一晃、華 春生、間下 以大
大学院学生	青木 伸也、ヴ ハイ、チュン タン ゴ 万波 秀年、阪井 拓郎、鈴木 和哉、杉浦 一成、 東 はるか、赤坂 清隆、辻 顯
学部学生	田川 聖一、グェン ダ タン、田尻 望、村中 慎治
事務補佐員	家村 雅子、安井 紀子、中澤 優子、藤本 真紀子

### a) 概要

本研究分野では、コンピュータビジョンとメディア処理に関する研究をしている。センサデザインやカメラ校正などの基礎技術から、計算機やロボットに高度な視覚機能を与えることを目指した知能システムの開発まで、視覚情報処理に関する幅広いテーマを扱っている。例えば、1台のカメラで周囲360度の近接物体を検出できる複眼全方位センサ、全方位センサの撮像系校正、内視鏡映像による診断支援のための映像解析、物体の反射特性の計測とCGへの応用、広域監視のための歩容認証、知能移動ロボットのための環境モデリングなどの研究をしている。

### b) 成果

#### ・一般照明下における表面下散乱の解析

半透明物体では、表面下散乱と呼ばれる媒質内部における光の散乱が発生する。本研究では、媒質が均一な半透明物体を対象とし、一般照明下で撮影された画像から、表面下散乱を解析する手法を提案する。提案手法では、物体表面をパッチで表現し、パッチ間距離を量子化することで、表面下散乱モデル中の散乱項の値を線形的に求める。さらに、散乱項にダイポール近似モデルを当てはめることで、対象物体の表面下散乱を解析する。実際に撮影したいくつかの半透明物体に対して本手法を用いることで、各表面に入射した照度と観測された放射輝度、対象の形状から、表面下散乱パラメータを推定した。

#### ・医療用内視鏡のための全方位視覚アタッチメントの開発ー視野と照明の評価ー

大腸など人間の臓器内部は、襞などによって複雑な形状をしているため、内視鏡の後方が死角となり、患部を見落とす可能性が指摘されている。本研究では、前方だけでなく、周囲360度の側方ならびに後方観察が可能な全方位消化管内視鏡を提案する。本方式は、通常の消化管内視鏡の先端部に環状凸面鏡の使い捨て型全方位アタッチメントを装着することで、前方だけでなく側後方を同時に観察することができる。人体モデルを用いた実験ならびに内視鏡医による動物実験を行い、本アタッチメントの有用性、安全性を確認した。

#### ・小型複眼全方位センサの校正法

本研究では、小型で軽量の複眼全方位センサの校正法を提案する。小型複眼全方位センサは凸型双曲面鏡、凹型放物面鏡、4つの凸型放物面鏡、カメラから成る。提案する手法では、まず凸型双曲面鏡とカメラの位置を、撮影画像が正しく透視投影画像に変換されるように調整する。次に凹型放物面鏡は、放物面の軸に平行な光線が焦点に向かって反射されるという光学特性を利用し、その焦点の位置にカメラを調整する。最後に凸型放物面鏡は、凹型放物面と軸を平行でカメラのフォーカスが合う位置に調整する。本手法を用いて、各鏡面とカメラを正しい位置に校正することで、鏡間の視差を利用し近接物体

の検出や、透視投影画像変換が可能となる。本手法を用いた校正実験を行い、その有効性と問題点を示した。

#### ・照明の多重化による双方向反射率分布関数の高速計測

物体表面の反射特性を表す双方向反射率分布関数を高速に計測するために、計測装置から機械的な駆動系を排除するなど、さまざまなハードウェアによる工夫がなされてきた。本研究では、さらにソフトウェアの工夫として、複数方向から同時に照明することで計測回数を減らし、より高速な計測を行う。複数方向から同時に照明したとき観測される反射光が重なり合う問題を、2色性反射モデルに基づいて鏡面反射と拡散反射に分離することで解決した。実際に光沢のある硬貨の反射特性を計測する実験を行った結果、計測を約8倍に高速化した。

### [ 原著論文 ]

周波数領域における方向変換モデルを用いた歩容認証, 榎原 靖, 佐川 立昌, 向川 康博, 越後 富夫, 八木 康史: 情報処理学会論文誌 コンピュータビジョンとイメージメディア, 48 (SIG1(CVIM17)) (2007) 78-87.

平行光を用いた反射屈折撮像系におけるミラーの位置姿勢校正, 青木 伸也, 佐川 立昌, 向川 康博, 越後 富夫, 八木 康史: 情報処理学会論文誌 コンピュータビジョンとイメージメディア, 49 (SIG9(CVIM18)) (2007) 115-123.

遠隔監視システムを用いた災害地情報収集のための非等方性全方位視覚系, 近藤一晃, 向川康博, 鈴木俊哉, 八木康史: 日本バーチャルリアリティ学会論文誌, 12 (2) (2007) 137-148.

楕円鏡を用いた双方向反射率分布関数の高速計測, 角野皓平, 向川康博, 八木康史: 電子情報通信学会論文誌 D, J90-D (8) (2007) 1930-1937.

異方性誤差分布を考慮した確率的位置合せ・統合手法, 大澤 奈々穂, 佐川 立昌, 八木 康史: 電子情報通信学会論文誌 D, J90-D (8) (2007) 1868-1877.

反射型液晶を用いた適応的ダイナミックレンジカメラ, 万波 秀年, 佐川 立昌, 向川 康博, 越後 富夫, 八木 康史: 電子情報通信学会論文誌 D, J90-D (8) (2007) 1921-1929.

注視点を考慮した腸管展開画像の適応的表示法, 阪井 拓郎, スチット ポンヌムクン, 佐川 立昌, 越後 富夫, 八木 康史: 電子情報通信学会論文誌 D, J90-D (8) (2007) 2253-2261.

2つの平行光の観測による内部カメラパラメータの高精度なキャリブレーション, 佐川 立昌, 八木 康史: 情報処理学会論文誌 コンピュータビジョンとイメージメディア, 49 (SIG6(CVIM20)) (2008) 89-100.

A diagnosis support system for capsule endoscopy, Y. Yagi, H. Vu, T. Echigo, R. Sagawa, K. Yagi, M. Shiba, K. Higuchi, T. Arakawa: *Inflammopharmacology*, 15 (2) (2007) 78-83.

Adaptive dynamic range camera with reflective liquid crystal, Hidetoshi Mannami, Ryusuke Sagawa, Yasuhiro Mukaigawa, Tomio Echigo, Yasushi Yagi: *Journal of Visual Communication and Image Representation*, 18 (5) (2007) 359-365.

The Great Buddha Project: Digitally Archiving, Restoring, and Analyzing Cultural Heritage Objects, K. Ikeuchi, T. Oishi, J. Takamatsu, R. Sagawa, A. Nakazawa, R. Kurazume, K. Nishino, M. Kamakura and Y. Okamoto:



International Journal of Computer Vision, 75 (1) (2007) 189-208.

Integrating Color and Shape-texture Features for Adaptive Real-time Tracking, Junqiu Wang, Yasushi Yagi: IEEE Trans. On Image Processing, 17 (2) (2008) 235-240.

非平面へのパターン投影のための相互反射の補償, 向川康博, 柿沼孝行, 大田友一: 情報処理学会論文誌 コンピュータビジョンとイメージメディア, 48 (SIG1(CVIM17)) (2007) 98-106.

Analysis of photometric factors based on photometric linearization, Y.Mukaigawa, Y.Ishii, T.Shakunaga: Journal of the Optical Society of America A, 24 (10) (2007) 3326-3334.

## [ 解説、総説 ]

複眼全方位センサ, 佐川立昌, 八木康史, 画像ラボ, 18 [1] (2007) 26-29

歩き方の個性による個人認証-周波数領域における方向変換モデルを用いた歩容認証-, 榎原 靖, 佐川 立昌, 向川 康博, 越後 富夫, 八木 康史, 画像ラボ, 18 [7] (2007) 43-47

狭基線長ステレオのための視差検出フィルタ, 佐川立昌, 八木康史, 画像ラボ, 18 [12] (2007) 53-57

大型有形文化財モデル化の実際, 佐川立昌, 大石岳史, 阪野貴彦, 池内克史, 映像情報メディア学会誌, 61 [11] (2007) 1153-1156

移動ロボットのため非等方性全方位視覚系 -遠隔監視システムを用いた災害地情報収集に向けて-, 近藤一晃, 向川康博, 鈴木俊哉, 八木康史, 画像ラボ, 19 [1] (2008) 40-44

## [ 著書 ]

「人画像処理(分筆)」(情報処理学会編集) 越後 富夫, 岩井 儀雄, 森島 繁生, 鷺見 和彦, 井岡 幹博, 八木 康史, オーム社, (2007) 9-46

## [ 国際会議 ]

Mirror Localization for a Catadioptric Imaging System by Projecting Parallel Lights, Ryusuke Sagawa, Nobuya Aoki, Yasuhiro Mukaigawa, Tomio Echigo, Yasushi Yagi: IEEE International Conference on Robotics and Automation.

Robust and Real-time Rotation Estimation of Compound Omnidirectional Sensor, Trung Ngo Thanh, Hajime Nagahara, Ryusuke Sagawa, Yasuhiro Mukaigawa, Masahiko Yachida, Yasushi Yagi: IEEE International Conference on Robotics and Automation.

High-Speed Measurement of BRDF using an Ellipsoidal Mirror and a Projector, Y.Mukaigawa, K.Sumino, Y.Yagi: Proc. IEEE International Workshop on Projector-Camera Systems (PROCAMS2007).

Development of a Networked Robotic System for Disaster Mitigation -System Description of Multi-robot System and Report of Performance Tests-, Keiji Nagatani, Kazuya Yoshida, Kiyoshi Kiyokawa, Yasushi Yagi, Tadashi Adachi, Hiroaki Saitoh, Toshiya Suzuki, Osamu Takizawa: The 6th International Conference on Field and Service Robotics.

Deformable Registration of Textured Range Images by Using Texture and Shape Features, Ryusuke Sagawa, Nanaho Osawa, Yasushi Yagi: The 6th International Conference on 3-D Digital Imaging and Modeling.

A Sensor for Simultaneously Capturing Texture and Shape by Projecting Structured Infrared Light, Kiyotaka Akasaka, Ryusuke Sagawa, Yasushi Yagi: The 6th International Conference on 3-D Digital Imaging and Modeling.

Contraction Detection in Small Bowel from an Image Sequence of Wireless Capsule Endoscopy (poster), Hai Vu, Tomio Echigo, Ryusuke Sagawa, Keiko Yagi, Masatsugu Shiba, Kazuhide Higuchi, Tetsuo Arakawa, Yasushi Yagi: Medical Image Computing and Computer-Assisted Intervention (MICCAI 2007).

High Dynamic Range Camera using Reflective Liquid Crystal, Hidetoshi Mannami, Ryusuke Sagawa, Yasuhiro Mukaigawa, Tomio Echigo, Yasushi Yagi: IEEE International Conference on Computer Vision.

Mirror Localization for Catadioptric Imaging System by Observing Parallel Light Pairs (poster), Ryusuke Sagawa, Nobuya Aoki, Yasushi Yagi: 8th Asian Conference on Computer Vision.

Multiplexed Illumination for Measuring BRDF using an Ellipsoidal Mirror and a Projector, Y.Mukaigawa, K.Sumino, Y.Yagi: 8th Asian Conference on Computer Vision.

Synchronized Ego-motion Recovery of Two Face-to-face Cameras (poster), J.Cui, Y.Yagi, H.Zha, Y.Mukaigawa and K.Kondo: 8th Asian Conference on Computer Vision.

Gait Identification based on Multi-view Observations using Omnidirectional Camera (poster), K. Sugiura, Y. Makihara, and Y. Yagi: 8th Asian Conf. on Computer Vision.

Discriminative Mean Shift Tracking with Auxiliary Particles (poster), Junqiu Wang, Yasushi Yagi: 8th Asian Conf. on Computer Vision.

Consecutive Tracking and Segmentation Using Adaptive Mean Shift and Graph Cuts, Junqiu Wang, Yasushi Yagi: 2007 IEEE International Conference on Robotics and Biomimetics.

#### [ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

八木康史	Asian Conference on Computer Vision 2007 (ACCV2007) (プログラム委員長)
八木康史	IEEE International Conference on Robotics and Automation 2007 (編集委員)
八木康史	International Conference on Smart homes and health Telmatics 2007 (組織委員)
八木康史	The Korea-Japan Joint Workshop on Frontiers of Computer Vision 2007 (プログラム委員)
八木康史	International Journal of Automation and Computing (編集委員)
八木康史	IEEE International Conference on Computer Vision (プログラム委員)
八木康史	Bentham Science Publishers Ltd. (編集委員)
八木康史	IEEE International Conference on Robotics and Biomimetics 2007 (プログラム委員)
八木康史	ACCV2007 Workshop on Multi-dimensional and Multi-view Image Processing (プログラム委員)
八木康史	IEEE Computer Society Conference on Computer Vision and Pattern Recognition 2008 (プログラム委員)
向川康博	IEEE International Conference on Computer Vision (プログラム委員)
向川康博	The 19th International Conference on Pattern Recognition (技術委員)
向川康博	8th Asian Conference on Computer Vision (領域委員長)

佐川立昌	8th Asian Conference on Computer Vision (技術スタッフ)
佐川立昌	The 6th International Conference on 3-D Digital Imaging and Modeling (プログラム委員)
槇原靖	8th Asian Conference on Computer Vision (技術スタッフ)

[ 国内学会 ]

情報処理学会	13 件
画像センシング技術研究会	3 件
計測自動制御学会	1 件

[ 取得学位 ]

修士 (情報科学)	
鈴木 和哉	一般照明下における表面下散乱の解析
阪井 拓郎	医療用内視鏡のための全方位視覚アタッチメントの開発 ー視野と照明の評価ー

[ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)		単位：千円
基盤研究 (S)		
八木 康史	装着型全方位ステレオ監視システムの提案	25,610
若手研究 (A)		
向川 康博	不均一な双方向性反射率分布関数の完全な計測とその高度利用	4,420

[ 受託研究 ]

八木 康史	松下電器産業株式会社	ウェアラブル環境下におけるスタ ビライズ技術の研究	16,590
-------	------------	------------------------------	--------

[ その他の競争的研究資金 ]

八木 康史	科学技術振興調整費	新映像技術ダイブイントゥザムー ビーの研究	61,829
八木 康史	総務省 戦略的情報通信 研究開発推進制度	遠隔ロボットを用いた災害時マル チメディア情報収集技術に関する 研究開発	390

## 知能アーキテクチャー研究分野

教授	沼尾 正行
准教授	栗原 聡
助教	森山 甲一
特任助教	福井 健一
博士研究員	Roberto Legaspi
大学院学生	中村 和志、河野 稔、清原 良三、山下 長義、太田 晶大、福井 秀徳、 本田 誠一、安場 直史、杉本 知仁、玉置 洋、西川 敬之、佐藤 和宏、長岡 諒
学部学生	赤崎 省悟、掛田 哲宏
事務補佐員	中尾 史江、杉田 寿見子

### a) 概要

パソコンを初めとする情報環境が普及するにつれて、インタフェースの悪さに起因するテクノストレスや、スパムメール、多量データによる情報洪水の問題に社会の関心が集まっている。本研究部門では、これらの原因がコンピュータシステムの柔軟性の欠如にあることを早くから指摘し、その対策として適応能力を持ったコンピュータの開発を提唱してきた。心理実験と高度な機械学習技術の組合せにより、こうした課題の克服を目指している。具体的な研究課題は、以下の通りである。

#### 【研究課題】

1. 構成的適応インタフェース
2. Intelligent Tutoring System
3. 知的ユビキタスセンサーネットワーク

### b) 成果

#### ・構成的適応インタフェース

基本的な研究テーマとして、学習機能を持ったコンピュータの開発を進めており、高効率化のためのアルゴリズム、学習のための背景知識の獲得、ITS (Intelligent Tutoring System) への応用など、数々の新技術を開発し、情報環境の整備を支援してきている。これらは、適応ユーザインタフェースの技術として定着しつつある。これまでの適応ユーザインタフェースは、あらかじめ用意されている反応の中から過去のユーザの振る舞いに適応して、適切な反応を選択するものであった。これだけでも現在の複雑で扱いにくいユーザインタフェース、たとえばナビゲーションシステムなどを相当に改良できる。しかし、人間の知性や創造性を刺激するには、不十分である。そこで適切な反応を選択するだけでなく、新たなコンテンツを構成する手法の研究を行っている。その技術を背景として、極めてユニークな研究テーマとして、感性獲得機構を提案し、ユーザの個性と感情に適応して自動作曲を行うシステムを開発した。

#### ・Intelligent Tutoring System

指導プランに学習過程の指針を持たせることは様々な教育方法にとって有効であり、ITSにおいて重要な課題である。この課題に対して様々な取り組みがなされたが、ITSにとって極めて必要となってくるのは、動的に立てられたプランを自己改善することである。学習者のカテゴリーから得られた知識を利用することが、ITS側からのプランの改善に極めて有用であると仮定している。つまりカテゴリー知識によって効果的なプランが得られる。我々は、学習者のカテゴリーから学習した知識を利用してプランを自己改善するプランナー(CSPM)を提案する。CSPMの学習は、教師なし機械学習と経験から学習するための知識獲得ヒューリスティクスを用いて行われる。記録された教育計画を用いてCSPMの可能性を確かめる実験を行った。

### ・知的ユビキタスセンサーネットワーク

近年のユビキタス各種技術やRFIDなどのタグ技術の発展に伴い、現状においても既に情報過多の問題に直面しているインターネットを中心とする情報空間に対し、実空間からの情報までもが大量に流れ込もうとしている。そうになると、もはや「検索的手法」ではすべての情報を網羅することは困難なものとなり(現状でも既にその状況にある)、これからは「発見的手法」が望まれる。これまでも情報発見手法としてデータマイニング研究など精力的な研究がなされて来ているものの、「情報空間+実空間」という、巨大で複雑かつ動的な世界からの有用な情報抽出技術に対して、これまでの技術がそのまま適用できると断言することは出来ない。

一方、我々は相手と以心伝心や阿吽の呼吸の関係が出来ている時、一体感を感じるなど心地よく感じる。これはお互いがお互いの意図や習慣的な行動を予測できるからであり、対話や五感を通して長い時間をかけた学習によるものである。このようなヒトとヒトでの関係を、ヒトと環境との間においても構築することが出来ると、日常生活がより効率的になり、また小さな異変などを自動的に発見できることからリスク回避のための技術としても有用なものとなる。

このように、これからのユビキタス社会では単に情報空間や実空間からデータを抽出するだけでなく、得られた有用な情報を能動的に人に対して環境側からインタラクションを起こすためのフレームワークを創出することも有用であり、具体的には、(1)環境へのヒトの行動を知覚するセンシング能力の付加、(2)センサーデータマイニングによるヒトの習慣的行動パターンの抽出、並びに抽出結果を用いたヒトの行動予測を行うアルゴリズムの創出、そして(3)予測結果に基づくヒトへのインタラクション能力の環境への付加を行う必要がある。本年度は環境への実験的なセンサーネットワークの設置、ならびにセンサーデータからのセンサー間の位置関係情報の抽出に関して研究を進めた。

### [ 原著論文 ]

構造同値に基づくリンク解析を用いた Web 文書からのキーワード抽出, 山下 長義, 沼尾 正行, 栗原 聡: 情報科学技術レターズ, 6 (2007) 145-148.

フェロモンを介したエージェント協調モデルによるセンサー隣接関係構築法の提案, 玉置 洋, 福井 健一, 沼尾 正行, 栗原 聡: 情報科学技術レターズ, 6 (2007) 153-156.

エージェント選択戦略によるマルチエージェントシステムの効率と構造について, 菅原 俊治, 栗原 聡, 佐藤 進也, 福田 健介, 明石 修, 廣津 登志夫: 電子情報通信学会論文誌 D, J90-D (3) (2007) 847-886.

広域ネットワークに対応したマルチエージェント組織化支援システム, 寺内 敦, 明石 修, 丸山 充, 菅原 俊治, 福田 健介, 廣津 登志夫, 栗原 聡, 小柳 恵一: 人工知能学会論文誌, 22 (5) (2007) 482-492.

大規模エージェントシステムにおける契約ネットプロトコルの効率特性, 菅原 俊治, 福田 健介, 廣津 登志夫, 栗原 聡: 情報科学技術レターズ, 6 (2007) 165-168.

文書ストリームにおける語の バーストと共起ネットワークにおけるクラスタ構造の関係について, 佐藤 進也, 福田 健介, 菅原 俊治, 栗原 聡: 情報処理学会論文誌: データベース, 48 (SIG 14) (2007) 69-81.

ネットワークトポロジの次数情報に着目した, サーバ・クライアント負荷分散方式の提案と評価, 福田 健介, 佐藤 進也, 明石 修, 廣津 登志夫, 栗原 聡, 菅原 俊治: 日本ソフトウェア科学会 コンピュータソフトウェア, 24 (4) (2007) 78-87.

Emergent Intelligence on Network: A survey, Satoshi Kurihara and Takashi Ishikawa: International Transactions on Systems Science and Applications, 3 (1) (2007) 3-10.

携帯端末向けの Java 高速化手法とその評価, 高橋 克英, 清原 良三: 情報処理学会論文誌, 48 (2) (2007) 667-678.

組込みソフトウェア向けバイナリー差分抽出方式, 清原 良三, 三井 聡, 木野 茂徳: 電子情報通信学会論文誌, J90-D (6) (2007) 1375-1382.

#### [ 解説、総説 ]

科学研究費に関する各種データの分析-データマイニングおよび研究者ネットワーク分析に向けて-, 沼尾 正行、学術月報、60 [10] (2007) 38-43

会議報告-IUI2007(2007 International Conference on Intelligent User Interfaces)-, 沼尾 正行, 人工知能学会誌. 22 [3] (2007) 451-452

#### [ 特許 ]

「マルチエージェントシステム, プログラム, コンピュータ読み取り可能な記録媒体」栗原 聡、本田 誠一、特願 2007-311697

「電子ファイルを対象とする情報遷移抽出・可視化装置およびそのプログラムならびにそれを記録した情報記録媒体」栗原 聡、福井 秀徳、特願 2008-040558

#### [ 国際会議 ]

Modelling Affective-based Music Compositional Intelligence with the Aid of ANS Analyses, \*Toshihito Sugimoto, Roberto Legaspi, Akihiro Ota, Koichi Moriyama, Satoshi Kurihara, Masayuki Numao: 27th SGAI International Conference on Artificial Intelligence, UK, Dec 2007.

Brainwave Production Creates Music Automatically (poster), \*Toshihito Sugimoto, Roberto Legaspi, Takayuki Nishikawa, Koichi Moriyama, Satoshi Kurihara, Masayuki Numao: 11th SANKEN and 6th Nanotechnology Center and 1st MSTEC Internatinal Symposium, Japan, Feb 2008.

Extracting Human Behaviors with Infrared Sensor Network, \*Seiichi Honda, Ken-ichi Fukui, Koichi Moriyama, Satoshi Kurihara, Masayuki Numao: 4th International Conference on Networked Sensing Systems, Germany, Jun 2007.

Automatic Acquisition of Sensor-Network Topology Based on Pheromone Communication Model (poster), Hiroshi Tamaki, \*Ken-ichi Fukui, Koichi Moriyama, Satoshi Kurihara, Masayuki Numao: 4th International Conference on Networked Sensing Systems, Germany, Jun 2007.

Acquisition of Sensor-Network Topology Based on Multi-Agent Pheromonal Coordination, \*Hiroshi Tamaki, Ken-ichi Fukui, Masayuki Numao, Satoshi Kurihara: Workshop on Heterogeneous Agent Systems and Complex Networks (held in conjunction with ECCS2007), Germany, Oct 2007.

An Effective Selection of Abstract Plans for Multi-Agent Systems, \*Toshiharu Sugawara, Satoshi Kurihara, Toshio Hirotsu, Kensuke Fukuda, Toshihiro Takada: 27th SGAI International Conference on Artificial Intelligence, UK, Dec 2007.

Generating extensional definitions of concepts from ostensive definitions by using Web, \*Shin-ya Sato, Kensuke Fukuda, Satoshi Kurihara, Toshio Hirotsu, Toshiharu Sugawara: 8th International Conference on Web Information

Systems Engineering, France, Dec 2007.

Performance Variation Due to Interference Among a Large Number of Self-Interested Agents, \*Toshiharu Sugawara, Toshio Hirotsu, Satoshi Kurihara, Kensuke Fukuda: IEEE Congress on Evolutionary Computation, Singapore, Sep 2007.

Case-Based Approach to Selecting Abstract Plans in Multi-Agent Systems, \*Toshiharu Sugawara, Satoshi Kurihara, Toshio Hirotsu, Kensuke Fukuda, Toshihiro Takada: Workshop of the Seventh International Conference on Case-Based Reasoning, UK, Aug 2007.

Multi-agent Coordination Mechanism based on Indirect Interaction (invited), \*Satoshi Kurihara, Kensuke Fukuda, Shinya Sato, Toshiharu Sugawara: International Symposium on Frontiers in Networking with Applications, Canada, May 2007.

Conflict Estimation of Abstract Plans for Multi-Agent Systems, \*Toshiharu Sugawara, Satoshi Kurihara, Toshio Hirotsu, Kensuke Fukuda, Toshihiro Takada: 6th International Joint Conference on Autonomous Agents and Multiagent Systems, USA, May 2007.

Context-Aware Middleware for Mobile Phone Based on Operational Logs, \*Ryozo Kiyohara, Mitsuhiro Matsumoto, Satoshi Mii, Naoki Shimizu, Masayuki Numao, Satoshi Kurihara: IEEE International Conference on Consumer Electronics, USA, Jan 2008.

Obtaining the Topological Map of Sensor Network with Pheromone System (poster), \*Hiroshi Tamaki, Ken-ichi Fukui, Masayuki Numao, Satoshi Kurihara: 11th SANKEN and 6th Nanotechnology Center and 1st MSTEC International Symposium, Japan, Feb 2008.

Reinforcement Learning on a Futures Market Simulator, \*Koichi Moriyama, Mitsuhiro Matsumoto, Ken-ichi Fukui, Satoshi Kurihara, Masayuki Numao: 1st KES Symposium on Agent and Multi-Agent Systems - Technologies and Applications (KES-AMSTA), Poland, May/June 2007.

Utility Based Q-learning to Maintain Cooperation in Prisoner's Dilemma Games, \*Koichi Moriyama: IEEE/WIC/ACM International Conference on Intelligent Agent Technology, USA, Nov 2007.

[ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

沼尾 正行	New Generation Computing (Area Editor)
沼尾 正行	Sixth International Joint Conference on Autonomous Agents and Multi-Agent Systems (AAMAS07) (プログラム委員)
沼尾 正行	The 1 <sup>st</sup> KES Symposium on Agent and Multi-Agent Systems (KES-AMSTA 2007) (プログラム委員)
沼尾 正行	The Ninth ACIS International Conference on Software Engineering, Artificial Intelligence, Networking, and Parallel/Distributed Computing (SNPD2008) (プログラム委員)
栗原 聡	IEEE 7th International Conference on Computer and Information Technology (CIT'07) (プログラム委員)
栗原 聡	The 2007 IEEE International Symposium on Ubisafe Computing (UbiSafe-07) (プログラム委員)
栗原 聡	Workshop on Heterogeneous Agent Systems and Complex Networks in European

	Conference on Complex Systems (ECCS'07) (プログラム委員)
栗原 聡	The 2nd International Workshop on Ubiquitous Application & Security Service (UASS-07) (プログラム委員)
栗原 聡	IEEE International Workshop on Learning in Multi-Agent Systems (LMAS-07) (プログラム委員)
栗原 聡	5th International Workshop on Networked Sensing Systems (INSS2008) (プログラム委員)
栗原 聡	The Second International Workshop on Coordination and Control in Massively Multi-Agent Systems (CCMMS 2008) (プログラム委員)
栗原 聡	The Tenth Pacific Rim International Conference on Artificial Intelligence (PRICAI-08) (プログラム委員)
栗原 聡	2008 Winter Workshop on Economics with Heterogeneous Interacting Agents (WEHIA) (プログラム委員)
栗原 聡	Autonomic and Trusted Computing (ATC-08) (プログラム委員)
栗原 聡	IEEE/WIC/ACM International Conference on Intelligence Agent Technology (IAT'08) (プログラム委員)
栗原 聡	IEEE 8th International Conference on Computer and Information Technology(CIT'08) (プログラム委員)
栗原 聡	The Third Workshop on Emergent Intelligence on Networked Agents (WEIN'08) (プログラム委員長)
栗原 聡	The 9th International Workshop on Multi-Agent-Based Simulation (MABS'08) (プログラム委員)
栗原 聡	The First International Workshop on Contents Creation Activity Support by Networked Sensing (CCASNS) (オーガナイザー)
森山 甲一	The 12th Pacific-Asia Conference on Knowledge Discovery and Data Mining (PAKDD 2008) (現地準備員)

## [ 国内学会 ]

人工知能学会	12 件
情報処理学会	5 件
電子情報通信学会	4 件
日本ソフトウェア科学会	2 件

## [ 取得学位 ]

修士 (情報科学)	
太田 晶大	自動作曲システムにおける協調フィルタリングを用いた楽曲評価値予測
福井 秀徳	ファイルネットワークに基づいた情報遷移の抽出と視覚化
本田 誠一	多ゴールが非同期に発生する環境下における実時間リアクティブプランニング法の研究
松本 光弘	コンテキスト情報を用いた携帯電話の操作予測システム
安場 直史	ナビゲーションシステムにおける即応性と熟考性を兼ね備えたルート探索手法

## [ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)	単位：千円
若手研究 (B)	
森山 甲一	エージェントの学習における適切な効用の導出方法 800



[ 受託研究 ]

沼尾 正行	日本学術振興会	人工知能分野に関する学術振興方 策及び学術動向の調査・研究	14,500
-------	---------	----------------------------------	--------

[ 共同研究 ]

栗原 聡	住友電気工業株式会社	マルチエージェントアプローチに よる安全安心を目指した次世代交 通制御システムおよび情報セキュ リティシステム構築に関する研究	2,970
------	------------	--	-------

[ その他の競争的研究資金 ]

栗原 聡	(財)人工知能研究振興財 団	実環境から人への能動的インタラ クションのためのプランニング手 法に関する研究	500
栗原 聡	総務省	インターユビキタスネットワーク 情報基盤の研究	9,748

## 高次推論方式研究分野

教授	鷺尾 隆
助教	大原 剛三、猪口 明博
大学院学生	Hadiyanto、Nguyen Viet Phuong、城戸 健太郎、桑島 洋、高林 健登、深田 健太、大西 智之
学部学生	Nguyen Ha Hong、Nguyen Vinh Duy
事務補佐員	岡田 拓子

### a) 概要

我々人間はデータを眺めると、頭の中で推論してそこから様々な知識を読み取ることができる。しかし、コンピュータネットワークを通じて入手できる膨大で複雑なデータを、人間の能力ですべて処理することには無理がある。そこで、我々の研究室では、コンピュータによる膨大なデータから知識の読み取りや発見を可能にするための新しい推論方法や技術を研究している。このような技術をデータマイニングないし知識発見という。そして、これらを科学、情報ネットワーク、品質・リスク管理、医療、セキュリティ、マーケティング、金融など、様々な分野のデータ解析に役立てる研究も行っている。今年度は、大規模次元ダイナミクスデータからの知識発見、グラフ構造データからの知識発見、大規模次元類似性データからの知識発見に関する研究について、以下の成果を得た。

### b) 成果

#### ・ 大規模次元ダイナミクスデータからの知識発見に関する研究

コンピュータネットワークとユビキタスセンシング、科学計測技術の発達により、例えば巨大なショッピングモールにおける様々な条件下での品物売れ行き、生体内における数万個の遺伝子の発現相互作用といった、多数事象の同時平行生起情報を膨大な変数の測定データ（大規模次元データ）として収集できるようになった。本研究分野においては、昨年度、このような複雑、大規模な対象の時間的変化ダイナミクスや変数関係をデータから明らかにする手法の研究を開始し、今年度はそれに引き続き研究を深化させた。

多数の平行事象の時系列データから、それらの事象間の生起ダイナミクスをモデリングする手法を提案した。これにより、ショッピングモールの例ではどの店舗グループでいかなる時間帯にいかなる品物グループが売れると、次に他のどの店舗グループでいかなる品物グループが売れやすいかなどに関する規則性を把握できるようになった。

#### ・ グラフ構造データからの知識発見に関する研究

近年、データ発掘に関して多くの研究があるが、多くは通常の関係データベースを念頭においたものである。特に複雑なデータ構造に対しては有効な手法はなく、当研究室では、約 10 年前から、一般の知識や概念はグラフ構造で記述できることに注目し、グラフ構造データからの知識発見を種々の観点から試みている。グラフ構造内の多頻度共起部分構造パターンを完全厳密にすべて求める問題は、数学的に非多項式時間でしか解けない難解なものであることが分かっている難しい問題である。本年は以下に述べる 2 項目について、従来の限界を超える手法の開発に取り組んだ。

##### 1) 大規模多頻度共起部分構造パターン導出基礎原理の探求

従来、グラフ構造データから導出できる多頻度共起部分構造パターンは、大きさが数十頂点程度までが限界であった。本年は、この限界を克服するための基礎原理として、グラフ構造を特徴づけるグラフスペクトルの性質の解析を行った。グラフスペクトルがグラフの構造を反映する仕組みを明らかにし、これを基に高効率に大規模な多頻度共起部分構造パターンを導出できる見通しを得た。

## 2) グラフ系列パターン導出基礎原理の探求

従来のグラフマイニングは、多数のグラフから共通する多頻度共起部分構造パターンを導出する手法の研究に留まっていた。本年度は、新たにグラフの変化系列が与えられた際に、そこに頻出する多頻度共起部分グラフ系列パターンを効率よく導出する手法の基礎原理の検討、開発を行った。それにより、本格的な多頻度共起部分グラフ系列パターンマイニング手法を確立する見通しを得た。

### ・大規模次元データ類似性データからの知識発見

昨年度から、数万変数以上から構成されるデータについて、変数間の相関係数を効率的に高速推定計算する手法の開発を行っている。膨大な変数間の相関係数計算には多くの計算パワーが必要とされるため、その効率化は変数間の因果関係分析のために非常に重要である。昨年度までに、一部の変数間相関係数から他の変数間相関係数を高速推定することで、直接計算よりも遥かに高速な相関係数計算を可能とする手法開発を行った。これに対し、本年度はユークリッド距離行列を取り上げ、一部の事例間のユークリッド距離から他の事例間ユークリッド距離を高速推定することで、直接計算よりも遥かに高速なユークリッド距離計算を可能とする手法開発を行った。

## [ 原著論文 ]

A Classification Method Based on Subspace Clustering and Association Rules, T. Washio, K. Nakanishi and H. Motoda: *New Generation Computing*, 25 (2007) 235-245.

Learning Personal Preference from Viewer's Operations for Browsing and its Application to Baseball Video Retrieval and Summarization, N. Babaguchi, K. Ohara and T. Ogura: *IEEE transactions on Multimedia*, 9 (5) (2007) 1016-1025.

DryadeParent, an Efficient and Robust Closed Attribute Tree Mining Algorithm, A. Termier, M.-C. Rousset, M. Sebag, K. Ohara, T. Washio and H. Motoda: *IEEE transactions on Knowledge and Data Engineering*, 20 (3) (2008) 300-320.

テキスト分析のための OLAP システム, 猪口 明博, 武田 浩一: *情報処理学会論文誌 データベース*, 48 (11) (2007) 58-68.

## [ 解説、総説 ]

データインテンシブコンピューティング その1 離散構造マイニング、鷺尾隆、*人工知能学会誌*, 22 [2] (2007) 263-271.

因果関係モデリングにおけるデータマイニング・グラフマイニング技術の活用、鷺尾隆、*日本化学会情報化学部会誌*, 25 [3] (2007) 76-80.

The Pacific Rim International Conference on Artificial Intelligence (PRICAI 2006)、大原剛三、*人工知能学会誌*, 22 [3] (2007) 353-355.

## [ 著書 ]

「Advanced Engineering Informatics, Vol.21, Special Issue: Applications eligible for data mining」Takashi Washio (Ed.), Elsevier (2007) 241-301.

「New Frontiers in Artificial Intelligence, JSAI 2006 Conference and Workshops, Tokyo, Japan, June 2006,

Revised Selected Papers, LNAI 4384」 T. Washio, K. Satoh, H. Takeda, and A. Inokuchi (Eds.), Springer (2007).

「New Frontiers in Artificial Intelligence, JSAI 2006 Conference and Workshops, Tokyo, Japan, June 2006, Revised Selected Papers, LNAI 4384」 (T. Washio, K. Satoh, H. Takeda, and A. Inokuchi) S. Tsumoto and T. Washio, Springer (2007) 303-304.

「New Frontiers in Artificial Intelligence, JSAI 2006 Conference and Workshops, Tokyo, Japan, June 2006, Revised Selected Papers, LNAI 4384」 (T. Washio, K. Satoh, H. Takeda, and A. Inokuchi) T. Washio, Y. Shinnou, K. Yada, H. Motoda and T. Okada, Springer (2007) 305-316.

「Advances in Knowledge Acquisition and Management, Pacific Rim Knowledge Acquisition Workshop, PKAW 2006, Revised Selected Papers, LNAI 4303」 (A. Hoffmann, B.H. Kang, D. Richards and S. Tsumoto)K. Takabayashi, P. C. Nguyen, K. Ohara, H. Motoda and T. Washio, Springer (2007) 64-74.

「New Frontiers in Artificial Intelligence, JSAI 2003 and JSAI 2004 Conferences and Workshops, LNAI 3609」(A. Sakurai, K. Hashida and K. Nitta) W. Geamsakul, T. Matsuda, T. Yoshida, K. Ohara, H. Motoda, T. Washio, H. Yokoi and K. Takabayashi, Springer (2007) 5-28.

「Computational Discovery of Scientific Knowledge, Introduction, Techniques and Applications in Environmental and Life Sciences, LNAI4660」 (S. Dzeroski and L. Todorovski) T. Washio and H. Motoda, Springer (2007) 98-119.

「Emerging Technologies in Knowledge Discovery and Data Mining, LNAI 4819」 T. Washio, Z. H. Zhou, J. Z. Huang, X. Hu, J. Li, C. Xie, J. He, D. Zou, K. C. Li, M. M. Freire (Eds.), Springer (2007).

「Post Proceedings of JSAI 2007 Conference and Workshops, Miyasaki, Japan, June, 2007: New Frontiers in Artificial Intelligence, LNAI4914」 (K. Satoh, A. Inokuchi, K. Nagao and T. Kawamura) T. Washio and S. Tsumoto, Springer (2008) 245-246.

「機械工学便覧，デザイン編β 1，設計工学」(日本機械学会) 鷺尾隆，日本機械学会 (2007) 202-205

## [ 特許 ]

「多次元データ分析方法，多次元データ分析装置，及びそのプログラム」猪口明博，鷺尾隆，高林健登  
特願 2007-301025

「頻出変化パターン抽出装置」猪口明博，鷺尾隆，特願 2008-044602

## [ 国際会議 ]

DIGDAG, a first algorithm to mine closed frequent embedded sub-DAGs, \*A. Termier, Y. Tamada, K. Numata, S. Imoto, T. Washio and T. Higuchi: MLG Workshop 2007, Mining and Learning with Graphs.

Fast PSD Matrix Estimation by Column Reductions, \*H. Kuwajima and T. Wasiho: The International Workshop on Data-Mining and Statistical Science (DMSS2007).

Large PSD Matrix Estimation from Partial Elements, \*H. Kuwajima and T. Washio: The Seventh IEEE International Conference on Data Mining - Workshop on High Performance Computing.

A Method for Online Analytical Processing of Text Data, \*A. Inokuchi and K. Takeda: The Sixteenth ACM Conference on Information and Knowledge Management.

目的変数が範囲で与えられる回帰問題に対するEM法, \*鹿島 久嗣, 山崎 一孝, 西郷 浩人, 猪口 明博:  
The International Workshop on Data-Mining and Statistical Science (DMSS2007).

[ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

- 鷺尾 隆 The 11th Pacific-Asia Conference on Knowledge Discovery and Data Mining (PAKDD2007) (ワークショップチェア)
- 鷺尾 隆 The 12th Pacific-Asia Conference on Knowledge Discovery and Data Mining (PAKDD2008) (プログラム委員長)
- 鷺尾 隆 Risk Mining Workshop 2007 (RM2007) (プログラム委員長)
- 鷺尾 隆 The 2007 IEEE Congress on Evolutionary Computation (CEC2007) (プログラム委員)
- 鷺尾 隆 New Frontiers in Artificial Intelligence: Proceeding of the 19th Annual Conferences of the Japanese Society for Artificial Intelligence (編集委員)
- 鷺尾 隆 International Conference on Mining and Learning with Graphs (運営委員)
- 鷺尾 隆 IADIS European First International Conference on Data Mining (プログラム委員)
- 鷺尾 隆 The 10th International Conference on Discovery Science (DS2007) (プログラム委員)
- 鷺尾 隆 International Conference on Large-scale Knowledge Resources (ILKR2008) (プログラム委員)
- 鷺尾 隆 The 24th International Conference on Machine Learning (ICML2007) (プログラム委員)
- 鷺尾 隆 The 20th International Conference on Industrial, Engineering & Other Applications of Applied Intelligent Systems (IEA/AIE2007) (プログラム委員)
- 鷺尾 隆 The 6th European Conference on Computational Biology (ECCB) (プログラム委員)
- 鷺尾 隆 The 15th Annual International Conference on Intelligent Systems for Molecular Biology (ISMB) (プログラム委員)
- 鷺尾 隆 The 18th European Conference on Machine Learning (ECML) (プログラム委員)
- 鷺尾 隆 The 11th European Conference on Principles and Practice of Knowledge Discovery in Databases (PKDD2007) (プログラム委員)
- 鷺尾 隆 The 24th International Conference on Mining and Learning 2007 Workshop on the Induction of Process Models(ICML2007) (プログラム委員)
- 鷺尾 隆 The ACM 16th Conference on Information and Knowledge Management (CIKM2007) (プログラム委員)
- 鷺尾 隆 Data Mining and Knowledge Discovery (編集委員)
- 鷺尾 隆 International Workshop on Constraint-Based Mining and Learning (プログラム委員)
- 鷺尾 隆 Mining Graphs and Complex Structures (CGM'07), Workshop of ICDM2007: IEEE International Conference on Data Mining (プログラム委員)
- 鷺尾 隆 International Workshop on Knowledge Discovery from Ubiquitous Data Streams (プログラム委員)
- 鷺尾 隆 The 8th SIAM International Conference on Data Mining (SDM) (プログラム委員)
- 鷺尾 隆 The Fourteenth ACM SIGKDD International Conference on Knowledge Discovery and Data Mining (KDD-2008) (プログラム委員)
- 鷺尾 隆 2008 IEEE/WIC/ACM International Conference on Web Intelligence (WI'08) (プログラム委員長)
- 鷺尾 隆 The Eleventh International Conference on Discovery Science (DS-2008) (プログラム委員)
- 鷺尾 隆 Algorithms for Large-Scale Information Processing in Knowledge Discovery (ALSIP 2008) (プログラム委員)

鷺尾 隆	ACM 17th Conference on Information and Knowledge Management (プログラム委員)
鷺尾 隆	The 10th Pacific Rim International Conference on Artificial Intelligence (PRICAI-08) (プログラム委員)
鷺尾 隆	The 2nd International Conference on Mining and Learning with Graphs (MLG-08) (プログラム委員)
鷺尾 隆	The 10th Pacific Rim International Conference on Artificial Intelligence (PRICAI-08) (ワークショップチェア)
大原 剛三	The 12th Pacific-Asia Conference on Knowledge Discovery and Data Mining (PAKDD2008) (現地実行委員会副委員長)
大原 剛三	The 12th Pacific-Asia Conference on Knowledge Discovery and Data Mining (PAKDD2008) (プログラム委員)
大原 剛三	The 17th Annual International Conference on Inductive Logic Programming (ILP2007) (プログラム委員)
大原 剛三	The 2008 International Symposium on Ubiquitous Multimedia Computing (UMC2008) (プログラム委員)
猪口 明博	The 5th International Workshop on Mining and Learning with Graphs (MLG2007) (プログラム委員)
猪口 明博	IADIS European First International Conference on Data Mining (ECDM2007) (プログラム委員)
猪口 明博	The 12th Pacific-Asia Conference on Knowledge Discovery and Data Mining (PAKDD2008) (出版担当)
猪口 明博	The 2nd International Workshop on Data-Mining and Statistical Science (DMSS2007) (プログラム委員)
猪口 明博	New Frontiers in Artificial Intelligence: Proceeding of the 20th Annual Conferences of the Japanese Society for Artificial Intelligence (編集委員)
猪口 明博	The 12th Pacific-Asia Conference on Knowledge Discovery and Data Mining (PAKDD2008) (プログラム委員)
猪口 明博	IADIS European Second International Conference on Data Mining (ECDM2008) (プログラム委員)

## [ 国内学会 ]

人工知能学会	12 件
情報処理学会	1 件
横幹連合総合シンポジウム	1 件

## [ 取得学位 ]

修士 (工学)	
城戸 健太郎	ユークリッド距離の高速高精度推定と範囲問い合わせ手法に関する研究
桑島 洋	A Study on Fast PSD Estimation by Column Reduction
高林 健登	OLAP システムのための複雑時系列データモデリングに関する研究
深田 健太	画像中の同一対象検索手法に関する研究

## [ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)	単位：千円
基盤研究 (A)	

鷺尾 隆	大規模変数次元データの因果構造マイニング手法開発と遺伝子機能関係知識ベースの作成	15,730	
特定領域研究			
鷺尾 隆	大規模次元観測時系列からのダイナミクス知識体系化と理解支援手法の開発	3,100	
萌芽研究			
鷺尾 隆	数値相関ルール高速完全探索手法の開発と薬品処方規則発見への摘要評価	800	
若手研究 (B)			
大原 剛三	領域知識を制約として用いるグラフマイニング手法の実現	1,700	
<b>[ 奨学寄附金 ]</b>			
鷺尾 隆	米国空軍科学技術局アジア宇宙航空研究開発事務所	5,864	
鷺尾 隆	株式会社京都テクニカ	1,800	
大原 剛三	(財) 大川情報通信基金	1,000	
<b>[ 共同研究 ]</b>			
鷺尾 隆	ダイキン工業株式会社	膨大なデータの分析に有効な分析手法の選出と評価	1,000
鷺尾 隆	株式会社トヨタ I T 開発センター	クルマにおける知的情報処理技術に関する研究	1,000

# 生体応答科学研究部門

## 概要

生体応答科学研究部門は生体触媒科学、高次細胞機能、生体情報制御学の3つの研究分野によって構成されており、物質変換反応、情報受容と制御、エネルギー変換、膜輸送、遺伝子発現制御など生物にとって最も基本的な反応に注目し、いずれの分野の研究も生体膜やタンパク質に重点をおいている。研究対象は各種細菌、酵母、線虫、植物、哺乳動物と多岐にわたっており、生物の普遍的な理解と共に生物の多様性にも目を向けている。各分野は生化学、分子生物学、細胞生物学、生物物理の手法を駆使してそれぞれの分担の研究を進めている。同時に、生物を対象とする当研究所の部門としての特色ある幅広い共同研究が行なわれようとしている。理学研究科（生物科学専攻）、工学研究科（応用生物工学専攻）、薬学研究科（分子薬科学専攻）、及び生命機能研究科から大学院学生を受け入れており、広い視野を持つ研究者の教育を目指している。

## 成果

- ・ 銅アミン酸化酵素による水素引き抜き反応の立体選択性の制御
- ・ NELL1による骨分化誘導に含まれる細胞内シグナルカスケード
- ・ DDSに用いるバイオナノカプセルの糖鎖提示による再標的化
- ・ エマルジョン型のフェムトリットルチャンバーの開発
- ・ 細胞内ATPイメージング用の蛍光タンパク質の開発。
- ・ 膜輸送小胞形成過程の素過程の解明
- ・ ATP合成酵素の制御サブユニットの役割
- ・ F1モーターの結晶構造と1分子計測で観察されるサブステップの関係の解明
- ・ タンパク質の構造変化を $10^5$  frame/secで計測できる超高速レーザー暗視野顕微鏡の開発
- ・ 異物排出蛋白質の細菌情報伝達による発現制御の解明
- ・ オーフエン輸送体の機能解析
- ・ SIP細胞外放出機構とその輸送体の同定



## 生体触媒科学研究分野

教授	谷澤 克行
准教授	黒田 俊一
助教	立松 健司
特任助教	松崎 高志
特任研究員	良元 伸男、小野 和利 (平成 19 年 4 月 1 日－平成 20 年 1 月 31 日)、朴井 伸行 (平成 19 年 4 月 1 日－平成 20 年 2 月 29 日)、松下 葉子、四角 紀子、飯嶋 益巳、藤田 千鶴子
博士研究員	鄭 周姫 (平成 19 年 4 月 1 日－平成 19 年 9 月 30 日)
外国人研究員	Hana Pospisilova (平成 19 年 4 月 1 日－平成 19 年 5 月 31 日)
大学院学生	粕谷 武史、山田 光男、殿井 裕之、三瓶 浩史、中西 将太、長見 篤、新山 真由美、佐々木 康雄、多田 敦朗、野々村 英典、米倉 弘倫、元山 暁仁、松井 ゆかり、中川 乃梨子、池田 優子
事務補佐員	村井 摩由子、大久保 亜依

### a) 概要

当研究分野では、広く生化学、分子生物学、細胞生物学などの立場から、生命現象を担う種々の生体機能分子の構造と機能の相関を分子レベルで解明することを目指して研究を行っている。物質代謝やエネルギー代謝を担う生体触媒“酵素”を対象として、活性部位構造や立体構造、触媒反応機構を明らかにするべく研究を展開している。特に、銅アミン酸化酵素のトパキノン補酵素をはじめとして、最近相次いで発見されているアミノ酸残基由来の新規な共有結合型補酵素（いわゆるペプチド・ビルトイン型補酵素）の構造と触媒機能、タンパク質翻訳後修飾による生合成機構の解明に力を注いでいる。一方では、細胞内情報伝達機構において中心的な役割を果たすプロテインキナーゼ群と相互作用する新規なタンパク質の同定とその構造と機能の解析を通じて、シグナル伝達分子の細胞内ネットワークの解明を目指している。また、生体認識分子を提示したバイオナノカプセルを用いる細胞及び組織特異的な遺伝子導入法やドラッグデリバリー法の開発を行っている。

### b) 成果

#### ・銅アミン酸化酵素による水素引き抜き反応の立体選択性の制御

銅アミン酸化酵素はビルトイン型キノン補酵素の一種、トパキノン (TPQ) と 2 価銅イオンを活性部位に含有し、一級アミン類の酸化的脱アミノ反応を触媒する。本酵素の触媒過程は ping-pong 機構で進行し、前半の還元的半反応においては、基質アミンは TPQ の C-5 位のカルボニル炭素に結合し、基質-TPQ シッフ塩基 (SSB) を形成する。次いで、活性部位の触媒塩基 (保存性 Asp 残基) により基質の  $\alpha$  位炭素から立体特異的にプロトンが引き抜かれ、生成物-シッフ塩基 (PSB) が形成される。基質アミンの  $\alpha$  位炭素には 2 個のプロキラル水素が存在するが、この触媒塩基によるプロトン引き抜きの立体選択性は酵素の起源や基質の種類により異なっている。しかし、X 線結晶解析により立体構造が明らかになった各種生物の酵素の活性部位構造に大きな違いはなく、このプロトン引き抜きの立体選択性の違いが何に起因するのかが明らかではない。我々は、これまでに土壌細菌 *Arthrobacter globiformis* 由来の銅アミン酸化酵素 (AGAO) を用い、本酵素反応における基質アミンの  $\alpha$ -水素の引き抜きに対する立体特異性について検討し、本酵素反応では *pro-S* 水素が立体特異的に引き抜かれることを明らかにした。また、この  $\alpha$ -水素の引き抜きを行う触媒基の Asp298 を Ala 残基に置換した部位特異的変異型酵素を作成し、SSB の立体構造を X 線結晶解析により決定した。その結果、SSB における基質の  $\alpha$  位 *pro-S* 水素原子が Asp298 の方向に位置することが明らかとなり、 $\alpha$ -水素引き抜きの立体特異性と合致していた。さらに、この Asp298→Ala 変異型酵素による反応を解析した結果、触媒塩基が存在しないにもかかわらず、 $\alpha$ -水素の

引き抜きが **99%**以上の立体選択性で *pro-S* 水素特異的に進行することが明らかになった。**SSB** の立体構造を見ると、引き抜かれる *pro-S* 水素が **TPQ**-シッフ塩基平面に対してほぼ垂直に配向しており、 $\sigma$ - $\pi$  電子相互作用が最大化してプロトンが脱離しやすい構造をとっていることが明らかになった。これらの結果から、各種生物起源の銅アミン酸化酵素では、基質アミンの遠位 (**distal**) 部分と酵素との結合様式 (**SSB** のコンフォメーション) により  $\alpha$ -水素引き抜きの立体選択性が決定されると推定された。そこで、引き続きこの仮説の正当性を検証するために、大きな遠位部分をもたない基質であるエチルアミンの2個の  $\alpha$ -水素を立体特異的に重水素標識し、**AGAO** による  $\alpha$ -水素引き抜きの立体選択性を解析した。その結果、フェニルエチルアミンやチラミンなど大きな遠位部分 (ベンゼン環) をもつ基質の反応においては、 $\alpha$ -水素の引き抜きがいずれも **99%**以上の高い立体選択性で *pro-S* 水素特異的に進行するのに対し、エチルアミンでは *pro-S* 水素選択性が **86%**にまで低下していた。また、エチルアミンを用いて得られた **SSB** の **X** 線結晶構造では、**SSB** に相当する部分の電子密度が非常に低く、コンフォメーションが一定ではないことが示唆された。以上の結果より、銅アミン酸化酵素による  $\alpha$ -水素の引き抜きの立体選択性は **SSB** のコンフォメーションにより一義的に決定されるという仮説の正当性が確かめられた。各種生物起源の銅アミン酸化酵素においては、基質アミンの遠位 (**distal**) 部分の結合領域を構成するアミノ酸残基の保存性が低いことや、同じ生物起源の酵素において基質の種類により  $\alpha$ -水素引き抜きの立体選択性が異なることもこの仮説によりうまく説明できる。

#### ・ **NELL1** による骨分化誘導に含まれる細胞内シグナルカスケード

当研究室では既に散発性頭蓋骨縫合線早期癒合症 (**Craniosynostosis, CS**) 患者の癒合部位特異的に **NELL1 mRNA** が過剰発現していることを見出している。**NELL1** タンパク質は全長 **810** アミノ酸で、**EGF** 様ドメイン、**vWV** 因子 **C** ドメイン、**ラミニン G** ドメイン等を有することから、分泌タンパク質であると推定されたが、その機能については不明であった。その後、**NELL1** 遺伝子のトランスジェニックマウスは新生仔期に **CS** 様症状を呈すること、**NELL1** 遺伝子欠失変異マウスは全身の骨基質の発現減少を呈することが明らかにされた。さらに、**NELL1** 遺伝子を発現するアデノウイルスは、骨芽細胞及び生体内において骨誘導を引き起こすことから、**NELL1** は新規骨形成因子であると示唆されていた。しかし、**NELL1** タンパク質を用いての研究は行われておらず、**NELL1** から骨分化に至る細胞内シグナルカスケードに関する知見は乏しかった。そこで、本研究では、ヒト **NELL1** 遺伝子を安定発現する高分泌発現用昆虫細胞 **High Five** を樹立し、アフィニティークロマトグラフィーを用いることで、初めて高純度な **NELL1** タンパク質を調製することに成功した。さらに、この精製 **NELL1** タンパク質を用いて細胞内シグナル伝達経路に関して検討した。まず、**NELL1** タンパク質は、ラット頭頂骨初代培養 (**RFC**) 細胞において、刺激3日後に早期骨分化マーカーである細胞内アルカリフォスファターゼ (**ALP**)、同6日後に中期マーカーであるオステオポンチン (**OPN**)、同9日後に後期マーカーであるオステオカルシン (**OCN**) を誘導生成した。さらに、コラーゲンシートに浸潤させた **NELL1** タンパク質は、頭蓋骨欠損及び大腿骨欠損モデルマウスにおいて、投与4~6週間後に、それぞれ膜内骨化、軟骨内骨化の様式により顕著な骨再生を誘導した。以上から、**NELL1** タンパク質は強力な骨誘導能を有することが確認された。著名な骨形成因子である **BMP** は、各種骨芽細胞の **BMP** 受容体に結合して活性化を行い、**R-Smad** である **Smad1/5/8** をリン酸化し、リン酸化 **R-Smad** と **Co-Smad (Smad4)** の複合体を核移行させ、さらに同 **Smad** 複合体は **SBE** 配列を有する各種プロモーターの転写を活性化する。そこで、**RFC** 及び骨肉腫細胞 (**Saos-2**) を **NELL1** タンパク質で刺激したところ、**30** 分から4時間の間に、陽性対照の **BMP** と異なり、上記の何れの現象も引き起こさなかった。以上から、**NELL1** は **Smad** カスケードに対しては全く影響を及ぼさないことが判明した。**BMP** による骨誘導過程において、**Smad** カスケードの活性化以外に、**MAPK** カスケードの活性化も必要であることが示されている。そこで、**RFC**、**Saos-2**、マウス間葉系未分化細胞 (**C3H10T1/2**) に対して **NELL1** を作用させたところ、**5~15** 分の間で **MAPK** ファミリーに属する **ERK**、**JNK**、**p38** をリン酸化することが判明した。また、**MEK** 及び **JNK** の特異的阻害剤を作用させると **NELL1** による **OPN** の発現誘導が抑制された。さらに、**Ras siRNA** を導入すると、**NELL1** による **ERK**、**JNK** の活性化並びに **OPN** の発現誘導が抑制された。以上から、少なくとも **NELL1** による **OPN** 発現誘導には **ERK** や **JNK** を介したシグナルカスケードが必須であると結論された。**Runx2/Cbfa1** は骨分化過程において中心的な役割を担う転写因子であり、骨誘導の際の骨基質遺伝子の転写に関わるだけでなく、間葉系

未分化細胞から骨芽細胞への分化、軟骨細胞からの肥大、成熟、軟骨内骨化にも深く関与する。*Runx2/Cbfa1* 遺伝子ノックアウトマウスは全身において骨形成不全を呈している。また、最近では **Runx2/Cbfa1** は **ERK** により直接リン酸化を受けることが、その機能発現に必要であると判明している。そこで、**C3H10T1/2** 細胞を **NELL1** 刺激したところ、**Runx2/Cbfa1** はリン酸化を受け、**MEK** 特異的阻害剤や **Ras siRNA** で前処理すると、同リン酸化は著しく抑制された。以上から、**NELL1** は **ERK** を活性化させて **Runx2/Cbfa1** のリン酸化を促進することが明らかになった。

#### ・DDSに用いるバイオナノカプセルの糖鎖提示による再標的化

今までの薬物は、一般的に経口もしくは静脈内投与されることが多く、薬剤の生体内分布は必ずしも患部特異的ではなかった。そのため、患部での薬剤の濃度や保持時間が不足したり、非患部における副作用を引き起こしたりする可能性があった。そこで現在では、患部特異的に薬剤を送達させるキャリア技術、すなわち **Drug Delivery System (DDS)** の開発が急務とされている。2003年、当研究室では **B** 型肝炎ウイルス (**HBV**) のヒト肝臓特異的な標的化能と感染能の中心的役割を担う **HBV** 表面抗原 **L** タンパク質 (**HBsAg L**) を出芽酵母内で直径 **50 nm** のナノカプセルとして過剰発現させ、カプセル内部に様々な薬剤 (化合物、タンパク質、遺伝子等) を封入することで、生体内においてヒト肝臓特異的にピンポイント送達できる **DDS** 用キャリア「バイオナノカプセル (**BNC**)」として使用可能なことを示した。**BNC** は、ウイルス由来の感染性物質を含まず、既に **B** 型肝炎ワクチンとして臨床応用されていて、極めて安全性が高い。**BNC** 表面には、**L** タンパク質の **N** 末端側に含まれるヒト肝臓細胞を特異的に認識する **Pre-S** 領域が提示されている。これまでに、当研究室では **Pre-S** 領域を種々の生体認識分子 (抗体、ホーミングペプチド、サイトカイン等) に置換することにより、**BNC** の感染能を残しつつ、生体内の任意の細胞や組織へ再標的化している。近年、糖鎖が生体認識分子として重要な生命現象に関与することが明らかにされている。そこで、本研究では **BNC** の再標的化における糖鎖の有用性を検討した。まず、**BNC** の **Pre-S** 領域を多くの **Lys** 残基を含む **ZZ** ドメインに遺伝子工学的に置換し、ビオチン及び蛍光色素で化学修飾した。一方、肝臓特異的なアシアロ糖タンパク質受容体のリガンドであるガラクトース (**Gal**) や炎症部位に誘導されるセレクトインのリガンドであるシアリルルイス **X** (**sLex**) の還元末端をビオチン化した後、ニュートラビジンを介して糖鎖と **BNC** を架橋することにより、糖鎖提示型 **BNC** を作製した。**Gal** 提示型 **BNC** は、培養細胞においてヒト肝細胞以外にマウス肝細胞に対しても標的化できた。また、**sLex** 提示型 **BNC** はセレクトインの過剰発現細胞を標的化できた。以上の結果は、**BNC** の再標的化において糖鎖が非常に有用な生体認識分子であることを示している。現在、静脈内投与された **Gal** 提示型 **BNC** が、**RES** (網状血管内皮細胞系) による作用に加えて積極的にマウス肝臓に集積するかどうかを、非侵襲的かつ経時的に生体内の蛍光物質の動態を観察できる *In vivo* イメージング装置により解析している。また、網膜内ぶどう膜炎、関節炎、心筋梗塞等の炎症性疾患を有する実験動物において、静脈内投与された **sLex** 提示型 **BNC** の炎症部位への集積についても同様に解析している。今後、生体由来糖鎖を提示した **BNC** を多種類作製し、生体内での挙動を *In vivo* イメージング装置により解析すれば、様々な細胞や組織への **BNC** 再標的化が達成され、**BNC** の臨床応用が一層促進されると期待される。

#### [ 原著論文 ]

Gene therapy of liver tumors with human liver-specific nanoparticles., Y. Iwasaki, M. Ueda, T. Yamada, A. Kondo, M. Seno, K. Tanizawa, S. Kuroda, M. Sakamoto, and M. Kitajima.: *Cancer Gene Ther.*, 14 (2007) 74-81.

Phosphorylation of Rho-associated kinase (Rho-kinase/ROCK/ROK) substrates by protein kinases A and C., J. H. Kang, Y. Jiang, R. Toita, J. Oishi, K. Kawamura, A. Han, T. Mori, T. Niidome, M. Ishida, K. Tatematsu, K. Tanizawa, and Y. Katayama.: *Biochimie*, 89 (2007) 39-47.

Fasciculation and elongation protein zeta-1 (FEZ1) participates in the polarization of hippocampal neuron by controlling the mitochondrial motility., J. Ikuta, A. Maturana, T. Fujita, T. Okajima, K. Tatematsu, K. Tanizawa, and S. Kuroda.: *Biochem. Biophys. Res. Commun.*, 353 (2007) 127-132.

Characterization of bio-nanocapsule as a transfer vector targeting human hepatocyte carcinoma by disulfide linkage modification., T. Nagaoka, T. Fukuda, S. Yoshida, D. Yu, S. Kuroda, K. Tanizawa, A. Kondo, M. Ueda, H. Yamada, H. Tada, and M. Seno.: *J. Control. Release*, 118 (2007) 348-356.

Axonal guidance protein FEZ1 associates with tubulin and kinesin motor protein to transport mitochondria in neurites of NGF-stimulated PC12 cells., T. Fujita, A. D. Maturana, J. Ikuta, J. Hamada, S. Walchli, T. Suzuki, H. Sawa, M. W. Wooten, T. Okajima, K. Tatematsu, K. Tanizawa, and S. Kuroda.: *Biochem. Biophys. Res. Commun.*, 361 (2007) 605-610.

Trapping of a dopaquinone intermediate in the TPQ cofactor biogenesis in a copper-containing amine oxidase from *Arthrobacter globiformis*., R. H. Moore, M. A. Spies, M. B. Culpepper, T. Murakawa, S. Hirota, T. Okajima, K. Tanizawa, and M. Mure.: *J. Am. Chem. Soc.*, 129 (2007) 11524-11534.

Involvement of MAPK signaling molecules and Runx2 in the NELL1-induced osteoblastic differentiation., N. Bokui, T. Otani, K. Igarashi, J. Kaku, M. Oda, T. Nagaoka, M. Seno, K. Tatematsu, T. Okajima, T. Matsuzaki, K. Ting, K. Tanizawa, and S. Kuroda.: *FEBS Lett.*, 582 (2008) 365-371.

Optimal surface chemistry for peptide immobilization in on-chip phosphorylation analysis., K. Inamori, M. Kyo, K. Matsukawa, Y. Inoue, T. Sonoda, K. Tatematsu, K. Tanizawa, T. Mori, and Y. Katayama.: *Anal. Chem.*, 80 (2008) 643-650.

Bio-nanocapsule conjugated with liposomes for in vivo pinpoint delivery of various materials., J. H. Jung, T. Matsuzaki, K. Tatematsu, T. Okajima, K. Tanizawa, and S. Kuroda: *J. Control. Release*, 126 (2008) 255-264.

A cold-active and thermostable alcohol dehydrogenase of a psychrotolerant from Antarctic seawater, *Flavobacterium frigidimarum* KUC-1., T. Kazuoka, T. Oikawa, I. Muraoka, S. Kuroda, and K. Soda.: *Extremophiles*, 11 (2007) 257-267.

Synergistic effects of Nell-1 and BMP-2 on the osteogenic differentiation of myoblasts., C. M. Cowan, X. Jiang, T. Hsu, C. Soo, B. Zhang, J. Z. Wang, S. Kuroda, B. Wu, Z. Zhang, X. Zhang, and K. Ting.: *J. Bone Miner. Res.*, 22 (2007) 918-930.

The MAP kinase p38 links Shiga toxin dependent signaling and trafficking., S. Wälchli, S. S. Skånland, T. F. Gregers, S.U. Lauvrak, M. L. Torgersen, M. Ying, S. Kuroda, A. Maturana, and K. Sandvig.: *Mol. Biol. Cell*, 19 (2008) 95-104.

#### [ 解説、総説 ]

バイオナノキャリアの開発とがん遺伝子治療への応用、近藤昭彦、黒田俊一、谷澤克行、妹尾昌治、上田政和、*バイオテクノロジージャーナル* 7 (2007) 41-47

バイオナノカプセル、鄭周姫、粕谷武史、谷澤克行、黒田俊一、*日本薬学会誌* 127 (2007) 797-805

#### [ 著書 ]

“Nanoparticle Technology Handbook (Chapter 37: Pinpoint Drug and Gene Delivery)” (M. Hosokawa, K. Nogi, M. Naito, and T. Yokoyama, Eds.), S. Kuroda, Elsevier, Amsterdam, the Netherlands (2007)

ドラッグデリバリーシステム、ナノバイオ辞典（山根恒夫・松永是監修）、山田忠範、黒田俊一、株式会社テクノシステム（東京）（2007） p. 360.

中空バイオナノ粒子、ナノバイオ辞典（山根恒夫・松永是監修）、山田忠範、黒田俊一、株式会社テクノシステム（東京）（2007） pp. 313-315.

ウイルス、ナノバイオ辞典（山根恒夫・松永是監修）、山田忠範、黒田俊一、株式会社テクノシステム（東京）（2007） p. 77.

ゲノム創薬、ナノバイオ辞典（山根恒夫・松永是監修）、立松健司、黒田俊一、株式会社テクノシステム（東京）（2007） pp. 159-161.

情報伝達、ナノバイオ辞典（山根恒夫・松永是監修）、立松健司、黒田俊一、株式会社テクノシステム（東京）（2007） pp. 223-225.

## [ 特許 ]

「タンパク質中空ナノ粒子とそれを用いた物質運搬体、ならびに細胞への物質導入方法」黒田俊一、谷澤克行、妹尾昌治、近藤昭彦、上田政和、日本国特許登録 **408531**

「中空ナノ粒子を形成するタンパク質に疾患治療用の細胞導入物質を融合させた薬剤」黒田俊一、谷澤克行、近藤昭彦、上田政和、妹尾昌治、多田宏子、大韓民国特許登録 **10-0686356**

「肝硬変モデル動物およびその作製方法」黒田俊一、谷澤克行、近藤昭彦、上田政和、妹尾昌治、日本国特許登録 **3964278**

「肝硬変モデル動物およびその作製方法」黒田俊一、谷澤克行、近藤昭彦、上田政和、妹尾昌治、大韓民国特許登録 **10-0676010**

「タンパク質中空ナノ粒子およびそれを用いた薬剤」黒田俊一、谷澤克行、近藤昭彦、上田政和、妹尾昌治、大韓民国特許登録 **10-0674325**

「免疫学的測定用ビオチン化ナノ粒子」平松紳吾、鄭基晩、畠平智子、金森大典、角矢博保、黒田俊一、谷澤克行、特願 **2007-3677**

「ドラッグデリバリーシステムに用いる複合粒子」清水宣明、荻野千秋、黒田俊一、特願 **2007-032765**

「自己リン酸化受容体のアゴニスト、アンタゴニストのスクリーニング方法、遺伝子組換え酵母」立松健司、黒田俊一、良元伸男、四角紀子、上向健司、特願 **2007-92492**

「骨及び軟骨形成タンパク質を含有する医薬品及び医療器具」中村雅典、黒田俊一、角淳一郎、織田光夫、馬谷原光織、剣持幸代、朴井伸行、五十嵐貢一、特願 **2007-286810**

「糖及び糖鎖認識機構を利用する物質送達用及びバイオイメージング用バイオナノカプセル」黒田俊一、三善英知、日詰信吾、特願 **2007-296127**

「炎症部位特異的物質送達用バイオナノカプセル」黒田俊一、田野保雄、大黒伸行、日詰信吾、特願 **2007-296136**

「薬物送達システム」青木浩樹、吉村耕一、堤宏守、照山智恵、松崎益徳、黒田俊一、特願 2007-331948

「免疫学的測定用ビオチン化ナノ粒子」平松紳吾、鄭基晩、畠平智子、金森大典、角矢博保、黒田俊一、谷澤克行、特願 2008-001124

「バイオナノカプセルの効率的な精製方法」黒田俊一、前川圭美、名木田真奈、 国際出願 PCT/JP2007/052414

[ 国際会議 ]

Structural basis for stereospecific proton abstraction of bacterial copper amine oxidase. (poster), \*T. Okajima, T. Murakawa, Y.-C. Chiu, M. Taki, Y. Yamamoto, H. Hayashi, and K. Tanizawa: 2nd International Symposium on Diffraction Structural Biology 2007 (ISDSB2007), Tokyo, Japan, September 10-13, 2007.

A subtilisin-like protease essential for the biogenesis of quinohemoprotein amine dehydrogenase (poster), \*T. Okajima, K. Ono, A. Nagami, M. Niiyama, and K. Tanizawa.: Gordon Research Conference on Protein Cofactors, Radicals and Quinones, Ventura, California, U.S.A., January 20-25, 2008.

Conformational flexibility of the TPQ cofactor in bacterial copper amine oxidase. (poster), \*T. Okajima, S. Nakanishi, T. Murakawa, H. Hayashi, and K. Tanizawa.: Gordon Research Conference on Protein Cofactors, Radicals and Quinones, Ventura, California, U.S.A., January 20-25, 2008.

Hydrogen tunneling in bacterial copper amine oxidase reaction (poster), \*T. Murakawa, T. Okajima, S. Nakanishi, H. Hayashi, and K. Tanizawa: Gordon Research Conference on Protein Cofactors, Radicals and Quinones, Ventura, California, U.S.A., January 20-25, 2008.

Bio-nanocapsule displaying homing peptide, a novel in vivo pinpoint gene and drug delivery system (poster), \*T. MATSUZAKI, H. TONOI, J.H. JUNG, K. TANIZAWA, and S. KURODA: 3rd Annual Meeting of The American Academy of Nanomedicine, University of California at San Diego, San Diego, CA, USA, September 7-9, 2007.

Analysis of HBV entry using yeast-derived HBsAg L particle: Role of putative HBV receptor SCCA1 (poster), \*T. KASUYA, J.H. JUNG, T. MATSUZAKI, M. YAMADA, K. TANIZAWA, and S. KURODA: International Meeting, The Molecular Biology of Hepatitis B Viruses, Roma, Italy, September 16-20, 2007.

Bio-nanocapsule displaying homing peptide, a novel in vivo pinpoint gene and drug delivery system (poster), \*T. MATSUZAKI, H. TONOI, J.H. JUNG, K. TANIZAWA, and S. KURODA: 11th Sanken International Symposium/6th Nanotechnology Center International Symposium/1st MSTEC International Symposium, Awaji Yumebutai International Conference Center, Hyogo, Japan, February 4-5, 2008.

Analysis of HBV entry using yeast-derived HBsAg L particle: Role of putative HBV receptor SCCA1 (poster), \*T. KASUYA, J.H. JUNG, T. MATSUZAKI, M. YAMADA, K. TANIZAWA, and S. KURODA: 11th Sanken International Symposium/6th Nanotechnology Center International Symposium/1st MSTEC International Symposium, Awaji Yumebutai International Conference Center, Hyogo, Japan, February 4-5, 2008.

Response regulator YycF essential for bacterial growth: X-ray crystal structure of the DNA-binding domain and its PhoB-like DNA recognition. (poster), \*A. Tada, T. Okajima, A. Doi, A. Okada, Y. Gotoh, R. Utsumi, and K. Tanizawa.: 11th Sanken International Symposium/6th Nanotechnology Center International Symposium/1st MSTEC International Symposium, Awaji Yumebutai International Conference Center, Hyogo, Japan, February 4-5, 2008.

Development of Ligand Screening System Specific for Cytokine Receptor (invited), \*S. Kuroda: International Bio EXPO 2007, Tokyo BigSight, June 22, 2007.

Bio-nanocapsule for In Vivo Pinpoint Drug and Gene Delivery System (invited), \*S. Kuroda: The 2nd Korea-Japan Workshop on Combinatorial Bioengineering, June 29, 2007, COEX, Seoul, Korea.

[ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

谷澤 克行	Federation of Asian and Oceanian Biochemists and Molecular Biologists (日本代表)
谷澤 克行	The Journal of Biochemistry (編集委員)
谷澤 克行	Journal of Nutritional Science and Vitaminology (編集委員)
黒田 俊一	The Open Veterinary Science Journal (Bentham Science Publishers Ltd.) (編集委員)

[ 国内学会 ]

日本生化学会・日本分子生物学会合同大会 (BMB2007)	15 件
日本生物工学会大会	1 件
日本 DDS 学会	5 件

[ 取得学位 ]

修士 (理学)	
三瓶 浩史	DDS に用いるバイオナノカプセルの糖鎖提示による再標的化
佐々木 康雄	B 型肝炎ウイルス外皮タンパク質の膜融合活性のリポソームを用いた解析
長見 篤	キノヘムプロテイン・アミン脱水素酵素の分子内チオエーテル架橋の形成機構と構造的役割
新山 真由美	キノヘムプロテイン・アミン脱水素酵素におけるキノン補酵素形成機構
修士 (工学)	
中西 将太	銅含有アミン酸化酵素の触媒機構における保存性 Asn 残基の役割
博士 (理学)	
朴井 伸行	NELL1 による骨分化誘導に含まれる細胞内シグナルカスケード

[ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)	単位：千円	
基盤研究 (B)		
谷澤 克行	ペプチド・ビルトイン型キノン補酵素の生合成機構と触媒機能	3,380
特定領域研究(C)(2)		
黒田 俊一	癌特異的ホーミングペプチドを提示する中空バイオナノ粒子によるミサイル療法の開発	6,400

[ 厚生労働科学研究費補助金 (医療機器開発推進研究事業) ]

(分担者として配分されたもの)		
黒田 俊一	ナノサイズリポソームを用いた急性心筋梗塞治療法の開発	4,000

[ 受託研究 ]

谷澤 克行	農業・生物系特定産業技術研究機構・生物系特定産業技術研究支援センター（生物系産業創出のための異分野融合研究支援事業）	酵母由来中空バイオナノ粒子を用いる革新的超高感度バイオセンシング技術の開発（分担課題：センシングに適した中空ナノバイオ粒子の開発）	20,000
谷澤 克行	科学技術振興機構 戦略的創造研究推進事業（CREST）	医療に向けた化学・生物系分子を利用したバイオ素子・システムの創製：中空バイオナノ粒子を用いる遺伝子導入法の開発	7,540
黒田 俊一	科学技術振興機構 地域研究開発資源活用促進プログラム	医薬品の生体内ピンポイントデリバリーを可能にするバイオナノカプセルの開発	115,000

[ 奨学寄附金 ]

谷澤 克行	ビタミンB 研究委員会	250
立松 健司	蛋白質研究奨励会	600
黒田 俊一	株式会社ジェノラック BL	1,000

[ 共同研究 ]

黒田 俊一	株式会社ジェノラック BL	乳酸菌を用いた経口ワクチンの開発に関する研究	1,000
-------	---------------	------------------------	-------



## 高次細胞機能研究分野

教授	野地 博行
准教授	和田 洋
助教	田端 和仁、飯野 亮太
博士研究員	奥野 大地、今村 博臣、上野 博史、Liza Lam、榎 佐和子
特任研究員	中野 雅裕
大学院学生	藤沢 亮、仲田昌義、堀口 淳矢、游 慧娟、谷川原、瑞恵、籠谷 嘉人、中村 真梨子、西川 芳宏
学部学生	新 久美子、東川 浩子、松陰 悠希
技術補佐員	長谷川 理恵、吉海江 国仁、葉山 浩平
事務補佐員	伊達 理沙、仲西 真知子

### a) 概要

本研究分野では、1分子イメージングと1分子操作技術を駆使して生体回転分子モーターである ATP 合成酵素の回転メカニズムを徹底的に理解することを目指している。また、ATP 合成酵素を含む膜タンパク質の機能を1分子計測するための新規計測システムの開発を行っている。さらに、1分子レベルまたは1細胞レベルでの計測と微細加工技術を組み合わせた新しいバイオデバイスの作製を行っている。これらの研究は、ナノバイオロジー、ナノバイオテクノロジー分野に該当する。

### b) 成果

#### ・ F<sub>1</sub>-ATPase の新規反応中間体の同定

生体回転分子モーターである F<sub>1</sub>-ATPase の回転を低温環境下で1分子観察し、ADP の解離は ATP 結合と同じ角度で起こることを明らかにした。また、無機リン酸の解離が 40° の回転を引き起こすことを強く示唆する結果を得た。

#### ・ COPII システムの1分子イメージング

真核細胞において小胞体からの膜小胞形成を担う COPII システムを人工膜上に再構成し、膜小胞形成過程における基質選択の機構を1分子レベルでリアルタイムイメージングすることに成功した。

#### ・ 新規蛍光性 ATP センサーの開発

蛍光タンパク質をベースとし、生きた細胞内の ATP 濃度をリアルタイムでモニターする新規な蛍光性センサーを開発した。

#### ・ フェムトリッター液滴アレイの開発

両親媒性化基板上で水-油混合系により形成され、外部からのアクセスが可能な新規なフェムトリッターチャンバーアレイを開発し、1分子酵素活性測定に成功した。

### [ 原著論文 ]

Temperature-sensitive reaction intermediate of F<sub>1</sub>-ATPase., R. Watanabe, R. Iino, K. Shimabukuro, M. Yoshida, H. Noji: EMBO Reports, 9 (2008) 84-90.

Thermally responsive supramolecular nanomeshes for on/off switching of the rotary motion of F<sub>1</sub>-ATPase at the single-molecule level., S. Yamaguchi, S. Matsumoto, K. Ishizuka, Y. Iko, K.V. Tabata, H.F. Arata, H. Fujita, H. Noji, I. Hamachi: Chemistry, 14 (2008) 1891-1896.

An integrated system for enzymatic cleavage and electrostretching of freely-suspended single DNA molecules, L. Lam, S. Sakakihara, K. Ishizuka, S. Takeuchi, H. Noji: Lab on a Chip, 7 (2007) 1738-1745.

Lipid bilayer microarray for parallel recording of transmembrane ion currents, B. Pioufle, H. Suzuki, K.V. Tabata, H. Noji, S. Takeuchi.: Analytical Chemistry, 80 (2007) 328-332.

Coupling of rotation and catalysis in F(1)-ATPase revealed by single-molecule imaging and manipulation, K. Adachi, K. Oiwa, T. Nishizaka, S. Furuike, H. Noji, H. Itoh, M. Yoshida, K. Jr Kinoshita: Cell, 130 (2007) 309-321.

Visualization of RecA filaments and DNA by fluorescence microscopy, T. Nishinaka, Y. Doi, M. Hashimoto, R. Hara, T. Shibata, Y. Harada, K. Jr Kinoshita, H. Noji, E. Yashima.: Journal of Biochemistry, 141 (2007) 147-156.

Single molecule energetics of F1-ATPase motor, E. Muneyuki, T. Watanabe-Nakayama, T. Suzuki, M. Yoshida, T. Nishizaka, H. Noji.: Biophysical Journal, 92 (2007) 1806-1812.

GPI-anchored receptor clusters transiently recruit Lyn and G $\alpha$  for temporary cluster immobilization and Lyn activation: Single-molecule tracking study 1, K.G.N Suzuki, TK. Fujiwara, F. Sanematsu, R. Iino, M. Edidin, A. Kusumi: Journal of Cell Biology, 177 (2007) 717-730.

#### [ 解説、総説 ]

Highly-sensitive Restriction Enzyme Assay and Analysis: A Review. Lam, L., Iino, R., Tabata, K. V. and Noji H. Analytical and Bioanalytical Chemistry. In press.

超微小反応チャンバーを用いた高感度バイオアッセイ、飯野 亮太、Liza Lam、野地 博行、未来材料、7[22] (2007) 14-20

回転分子モーターのナノサイエンス、特集にあたって、野地 博行、蛋白質 核酸 酵素 52[4] (2007) 297-300

ナノ技術を用いたF<sub>1</sub>-ATPaseの力学エネルギー・化学エネルギーの変換の計測、野地 博行、蛋白質 核酸 酵素 52[4] (2007) 302-308

#### [ 著書 ]

「ナノバイオ計測の実際 (分筆)」、野地 博行、講談社、(2007 年)

「生物物理学ハンドブック (分筆)」、野地 博行、朝倉書店、(2007 年)

「ナノバイオ大辞典 (分筆)」、野地 博行、テクノシステム、(2007 年)

「ナノテクのためのバイオ入門 (分筆)」、野地 博行、共立出版 (2007 年)

#### [ 特許 ]

「アデノシン三リン酸測定のための蛍光標識融合タンパク質」、野地博行、今村博臣、飯野亮太、山田康之、特願 2007-082560

#### [ 国際会議 ]

Single Molecule Studies on F1-ATPase (invited), H. Noji: International Symposium on Hierarchy and Holism

(ISHH), "Bridging across Different Hierarchies in Natural Sciences", Okazaki, Japan, February 23, 2008.

Single Molecule Studies on F1-ATPase (invited), H. Noji: 3rd work shop of the UK-Japan Bionanotechnology Collaboration, Oxford, UK, July 19, 2007.

Single Molecule Studies on F1-ATPase (plenary), H. Noji: Autumn School for PhD students and young researcher (NAMIS) 2007, Tokyo, Japan, November 5, 2007.

Single Molecule Studies on F1-ATPase (invited), H. Noji: The 6th JSPS Forum in France, "Chemical and physical nanobiology for medicine", Strasbourg, France, November 23, 2007.

Chemomechanical coupling of F1-ATPase motor protein (invited), H. Noji: SANKEN WORKSHOP on Nano-Bioscience at Berkeley, Berkeley, USA, March 21-22, 2007.

Highly sensitive measurement of biological reaction in femtoliter chamber array (invited), R. Iino: SANKEN WORKSHOP on Nano-Bioscience at Berkeley, Berkeley, USA, March 21-22, 2007.

Rapid detection of drug efflux from single bacterial cell enclosed in femtoliter chamber array (poster), R. Iino, K. Nishino, M. Nakata, E. Nikaido, Y. Matsumoto, S. Sakakihara, S. Takeuchi, A. Yamaguchi, and H. Noji: Micro Total Analysis Systems 2007, Paris, France, October 7-11, 2007.

ATP-driven Rotation of FoF1-ATP Synthase Reconstituted into Supported Membrane (poster), R. Iino, K. V. Tabata, H. Ueno, R. Hasegawa, and H. Noji: The Joint Biophysical Society 52nd Annual Meeting and 16th International Biophysics Congress, California, USA, 2-6 2008.

Versatile Acrylamide-based Microchambers for Single Molecular Biological Assays and Analysis (poster), L. Lam, S. Sakakihara, K. Ishizuka, S. Takeuchi, and H. Noji: Micro Total Analysis Systems 2007, Paris, France, October 7-11, 2007.

Fluorescence Imaging of Intracellular ATP Using A FRET-based Probe (poster), H. Imamura, K. Saito, K. P. H. Nhat, R. Iino, Y. Yamada, T. Nagai, and H. Noji: The Joint Biophysical Society 52nd Annual Meeting and 16th International Biophysics Congress, California, USA, 2-6 2008.

#### [ 国内学会 ]

日本生物物理学会	11 件
生体エネルギー研究会	4 件
サポータードメンブランワークショップ	2 件

#### [ 取得学位 ]

修士 (工学)	
藤沢 亮	F <sub>1</sub> -ATPaseのトルク発生における基質結合の役割の解明
仲田 昌義	1細胞蛍光イメージングによる異物排出トランスポーター活性測定法の確立

#### [ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

特定領域研究 野地 博行	FoF1-ATP 合成酵素の回転動作機構の解明		49,800
基盤研究A 野地 博行	超微小溶液チャンバーを用いた生体分子 1 分子計測技術の開発		15,600
若手研究B 飯野 亮太	プロトン駆動力で回転する生体分子モーターATP 合成酵素の 1 分子計測		800
特別研究員奨励費 今村 博臣	1 分子計測およびX線結晶構造解析による回転分子モーターV <sub>1</sub> の回転メカニズムの研究		1,100
特別研究員奨励費 上野博史	ATP合成酵素のF <sub>o</sub> モーターの 1 分子回転観察 平面膜による膜電位の制御		1,100
特別研究員奨励費 Liza Lam	1 分子 DNA 検出のためのマイクロデバイス開発		800
<b>[ 受託研究 ]</b>			
今村 博臣	科学技術振興機構	蛍光 ATP プローブを用いた ATP 代謝の解析	3,695
<b>[ 共同研究 ]</b>			
野地 博行	(株)アテクト	食中毒菌の迅速検出デバイスの開発	3,585

## 生体情報制御学研究分野

教授	山口 明人
准教授	村上 聡
助教	西野 邦彦（平成 19 年 6 月 1 日採用）
特任助教	西 晶子
博士研究員	松本 崇、松本 佳巳、平川 秀忠（平成 19 年 4 月 1 日～平成 19 年 2 月 29 日）
大学院学生	小林 直木、橋本 聡文、岩田 歩、大東 穂、久野 悠、二階堂 英司、王 麗媛、 宮田 耕資、尾上 麻実子、坂田 博樹、中濃 知志
学部学生	田中 真奈美
技術員	伊勢 琴子
事務補佐員	西田 真理（平成 19 年 4 月 1 日～平成 19 年 12 月 31 日）、松岡 澄恵（平成 19 年 7 月 6 日採用）

### a) 概要

生物界には、異物排出トランスポーターとよばれる一群の膜輸送体が広く分布していて、細胞レベルにおけるもっとも基本的な生体防御機構となっている。本研究分野では、細菌から動物細胞まで、生体異物排出トランスポーターの構造と機能、発現制御、生理的役割の解析から、新規排出タンパク遺伝子の検索まで幅広く研究を展開している。

私たちの研究室では、細菌の代表的異物排出輸送体 AcrB の結晶構造を世界に先駆けて 2002 年に報告し、さらに昨年には基質結合型結晶構造を報告して、異物の排出と多剤認識の構造的基礎を明らかにした。また、細菌で初めて異物排出輸送体遺伝子のポストゲノム解析を行い、発現制御機構を明らかにしてきた。19 年度はこれらの研究をさらに推し進め、以下の成果を得た。

### b) 成果

#### ・異物排出タンパク結晶構造解析

昨年度、細菌の異物排出タンパク AcrB の基質結合型結晶構造決定に成功し、異物排出の機能的回転輸送機構と、マルチサイト結合が多剤認識の構造的基礎であることを明らかにした。AcrB は膜融合タンパク AcrA および外膜チャネルタンパク TolC と 3 者複合体を形成して排出輸送装置を構成している。これらの結晶構造は個々には解かれているが、3 者複合体の構造はまだ解かれていない。また、AcrA の決定された構造では、AcrB と相互作用すると推定されている部分の構造が欠けている。そこで、19 年度は複合体構造決定へのステップとして、AcrA の AcrB と相互作用すると考えられる領域の構造（単独結晶中では構造不定）を、NMR を用いて構造決定することを試みた。その結果、この部分は一定の構造を取っていないと考えられる結果が得られた。

TetA は最初に発見された異物（薬物）排出タンパクで、AcrAB とは異なり、MFS 型と呼ばれるファミリーに属し、外膜チャネルとは共役していない。また、テトラサイクリン系薬剤に特異的な排出タンパクである。これについても結晶化を試み、安定に大量精製する条件を見いだしたが、まだ結晶化に成功するには至らなかった

#### ・異物排出蛋白質の細菌情報伝達による発現制御の解明

サルモネラのゲノム上には、異物排出蛋白質遺伝子が 9 種類存在し、クローニングにより強制発現させると実際にひとつないしは複数の薬剤・毒物に対してサルモネラは耐性かする。9 種もの多数の異物排出遺伝子を保持するにも関わらず、遺伝子ノックアウトによって薬剤・毒物への感受性が変化するものは AcrB だけである。すなわち、その他の異物排出蛋白質遺伝子は通常の培養条件下では発現していないか発現レベルが極めて低いと考えられる。未知の異物排出蛋白質発現抑制因子の存在が強く示唆

される。近年、細菌細胞はお互いに情報伝達を行っていることが分かってきた。この情報伝達を *quorum sensing* と呼ぶ。サルモネラが生息している自然界は、実験室でサルモネラのみを培養する時とは状況が大きく異なる。すなわち、宿主や土壌中においてサルモネラは様々な他菌種と遭遇し、互いに情報伝達を行っている可能性が考えられる。

本年度は、異種細菌間情報伝達に注目し解析した結果、以下の様な成果を得た。まず、腸内環境シグナル(細菌代謝物、胆汁酸)によるサルモネラ異物排出トランスポーター発現制御機構の検証を行った。9種類の異物排出トランスポーターについて、大腸菌代謝物によるそれぞれの転写量変化を、レポーターアッセイ( $\beta$ -galactosidase assay)を用いて調べた。この結果、サルモネラ異物排出トランスポーター8種類が誘導されていることが明らかになった。次に、大腸菌代謝物中に存在するサルモネラ異物排出トランスポーター誘導シグナルとしてインドールを同定した。インドールはサルモネラにおいて最も強力に機能している *acrAB* を含む4種類の異物排出トランスポーターを誘導していることが明らかになった。そして、インドールによるサルモネラ *acrAB* の誘導機構について検証したところ、サルモネラ特異的レギュレーターである *RamA* が関与していることが明らかになった。*RamA* を介した *acrAB* 誘導は、大腸菌代謝物や胆汁酸によっても見られた。次に、インドールおよび胆汁酸による *RamA* を介した *acrAB* 誘導機構の詳細について検討したところ、インドールによって *RamA* は誘導されるが、胆汁酸によっては誘導されないことが明らかになった。このことより、サルモネラは環境に存在する *acrAB* 誘導シグナルに対して、*RamA* を過剰発現させるか活性化させるかして感知し、何らかの未知の因子に影響を与えた結果、*acrAB* 誘導を引き起こすことが示唆された。

*AcrAB* の特徴は、発現量が他の異物排出トランスポーターに比べ非常に多いことと、排出する物質の物性、構造等が多種多様に渡ることである。このことから、サルモネラにおける *AcrAB* の機能は生理的基質を保持して、ある種の限定された細菌生理機能に寄与していると考えられるよりは、生育阻害物質の排出や、基質になり得る構造を持った細菌間情報伝達物質として機能する代謝物の排出にあると考える方が妥当であろう。このことから、腸内において、*AcrAB* が誘導されてくることを示す本研究の結果は、サルモネラが腸内に到達した際に、腸内に存在する異物や情報伝達物質、例えば、細菌代謝物や胆汁酸等を、*AcrAB* を用いて排出することを示唆するものであると考えられる。

大腸菌において *acrAB* 誘導シグナルの感知には、少なくとも3種類のアクチベーター、*MarA*、*SoxS*、*Rob* が関与している。これら3種類の *AcrAB* 誘導機構であるが、*MarA* および *SoxS* は過剰発現により *AcrAB* を誘導するのに対し、*Rob* はシグナル物質との結合による活性化により *AcrAB* を誘導することが言われている。一方、サルモネラ *RamA* は、*acrAB* 誘導シグナル物質に応じて、過剰発現と活性化という二つの機構によって *acrAB* を誘導することが本研究より明らかになった。また、インドールによって制御される遺伝子を DNA マイクロアレイ解析により検証したところ、*RamA* はインドールによって顕著に誘導されることが明らかになった。このことから、*RamA* は大腸菌における3種類のレギュレーター *MarA*、*SoxS*、および、*Rob* の機能を併せ持ったレギュレーターであるということ、および、インドールや胆汁酸による刺激を感知するレセプターの役割を持つということが示唆される。

サルモネラは腸において定着した後、宿主内へと侵入する。本研究で使用したサルモネラ(ネズミチフス菌)は、宿主内に侵入した後、M細胞を介してマクロファージに貪食され、その中で増殖し、マクロファージと共に血液に移行し、菌血症を起こすことが知られている。この過程において、サルモネラはマクロファージ内や血液環境中といった、さまざまな環境に適応しなければならない。血液環境中には細菌感染防御因子である補体や抗菌ペプチドが存在している。血液環境におけるサルモネラ適応にも異物排出トランスポーターが必要であることや、抗菌ペプチドの一種であるポリミキシンはサルモネラ *acrAB* 誘導を *RamA* 依存的に行うことが、当研究室における解析の結果明らかになっている。これらのことから、サルモネラが宿主内に侵入した後でも、異物排出トランスポーターは誘導され、宿主内環境適応に寄与していることが示唆される。また、宿主細胞内においても、*RamA* および *AcrAB* が機能していることが示唆されることから、サルモネラの感染現象において、*RamA* および *AcrAB* が何らかの機能を担っているのではないかと考えられる。

以上、本研究では、腸内環境シグナルにより、サルモネラ異物排出トランスポーター、特に最も強力に機能している *AcrAB* が誘導されること、および、その誘導にはサルモネラ特異的レギュレーターである *RamA* が関与していることを明らかにした。本研究は、サルモネラにおいて最も強力に機能している

AcrAB の発現制御メカニズムの解明に大きな知見を与えたのみならず、宿主内環境適応におけるサルモネラ異物排出トランスポーターの役割を解明する研究の基盤になることが期待される。

#### ・オーファン輸送体の機能解析

我々は、オーファン輸送体である ABCA5 の脳における発現を解析することで、ABCA5 が神経細胞、特にアドレナリン作動性神経に強く発現していることを明らかにした。さらにアドレナリンを放出している副腎髄質の細胞においても ABCA5 が強く発現していたことから、ABCA5 がアドレナリンの放出に係わっている可能性が考えられた。しかし、我々が作成した ABCA5 のノックアウトマウスにおいて血中のアドレナリン量に有意な変化は見られなかった。これらの細胞において ABCA5 はすべて細胞内顆粒に発現しているため、細胞膜からの物質の放出には直接関与していないと考えている。

#### ・S1P 細胞外放出機構とその輸送体の同定

我々は昨年度までに S1P の血小板からの放出に輸送体が関与することを見いだした。本年度は血小板以外でも赤血球においても S1P が合成され、細胞外へ放出されることを新たに見出した。赤血球からの S1P の放出は血小板のように刺激を必要とせず、合成されたものから順次細胞外へ放出されることが分かった。最近、この赤血球から放出されて、血液中に一定濃度存在する S1P が、リンパ球などの血液中への移行に必須であることが明らかになってきた。このことは赤血球からの S1P の放出輸送体を明らかにできれば、その阻害剤が新しい免疫抑制剤となる可能性がある。そこでより詳細に S1P 輸送体の酵素化学的性質を知るために、赤血球の反転膜小胞を用いた S1P の輸送活性の測定系の開発を進め、S1P が ATP 存在下で時間依存的に小胞内へ輸送されることを観察できる系を確立することに成功した。この系を用いて酵素の性質や、様々な阻害剤などを検討した結果、これまでに ABCA 型の輸送体が関与している可能性を示す結果が得られた。これは、セミインタクトの細胞を用いた系で血小板によって得られた結果と同じ結果であり、輸送の活性化などに違いがあるが、血小板と赤血球では類似の輸送体を使って細胞外へ S1P が放出されていると考えている。

#### [ 原著論文 ]

New Technique of Manipulating a Protein Crystal Using Adhesive Material, T. Kitatani, S. Sugiyama, H. Matsumura, H. Adachi, H. Y. Yoshikawa, S. Maki, S. Murakami, T. Inoue, Y. Mori and K. Takano: Applied Physics Express, 1 (3) (2008) 037002-1-3.

The AraC-family regulator GadX enhances multidrug resistance of Escherichia coli by activating expression of the mdtEF multidrug efflux genes, K. Nishino, Y. Senda and A. Yamaguchi: Journal of Infection and chemotherapy, 14 (1) (2008) 23-29.

Identification of a spermidine excretion protein complex (MdtJI) in Escherichia coli, K. Higashi, H. Ishigure, R. Demizu, T. Uemura, K. Nishino, A. Yamaguchi, K. Kashiwagi and K. Igarashi: Journal of Bacteriology, 190 (2) (2008) 872-878.

Tissue specific expression of the splice variants of the mouse vacuolar proton-translocating ATPase a4 subunit, S. Kawasaki-Nishi, A. Yamaguchi, M. Forgac and T. Nishi: Biochemical and Biophysical Research Communications, 364 (4) (2007) 1032-1036.

Regulation of multidrug efflux systems involved in multidrug and metal resistance of Salmonella enterica serovar Typhimurium, K. Nishino, E. Nikaido and A. Yamaguchi: Journal of Bacteriology, 189 (24) (2007) 9066-9075.

## [ 解説、総説 ]

多剤排出トランスポーターの結晶構造解析により明らかになった機能的回転メカニズム、村上聡、生物物理、47 [5] (2007) 309-316

多剤排出トランスポーターの構造と機能、村上聡、表面科学、28 [4] (2007) 184-191

異物排出タンパクのメカニズム、山口明人、感染・炎症・免疫、37 [2] (2007) 106-115

大腸菌の異物排出トランスポーターAcrBの構造と異物認識機構、村上聡、山口明人、生化学、79 [6] (2007) 542-549

多剤排出トランスポーターの構造と機能 結晶構造から明らかになった機能的回転メカニズム、村上聡、蛋白質核酸酵素、52 [5] (2007) 406-414

薬剤耐性と病原性発現における異物排出トランスポーターの役割、西野邦彦、日本臨床 新感染症学 上巻、65 [2] (2007) 407-414

タンパク質光結晶化技術、安達宏昭、森勇介、佐々木孝友、高野和文、井上豪、松村浩由、村上聡、光学、36 [1] (2007) 10-14

## [ 特許 ]

「オートインデューサー-2受容体のモデュレーター」加藤修雄、平岡正光、大神田淳子、河野富一、山口明人、平田隆弘、西野邦彦、恵比須繁之、Bonnie L. Bassler、特願 2007-056450

## [ 国際会議 ]

Phenotypic analysis of multidrug efflux pumps - not just for multidrug resistance (invited), \*K. Nishino: Florence Conference on Phenotype MicroArray Analysis of Microorganisms (19-21 Mar. 2008, Florence, Italy).

Roles of multidrug efflux pumps in antimicrobial peptide resistance of *Salmonella enterica*, \*T. Nakano, K. Nishino and A Yamaguchi: Florence Conference on Phenotype MicroArray Analysis of Microorganisms (19-21 Mar. 2008, Florence, Italy).

Regulatory network of AcrAB multidrug efflux pump in *Salmonella* and its role in response to metabolites, \*E. Nikaido, K. Nishino and A Yamaguchi: Florence Conference on Phenotype MicroArray Analysis of Microorganisms (19-21 Mar. 2008, Florence, Italy).

Structure and mechanism of bacterial multi-drug efflux systems, \*S Murakami: Gordon Research Conferences (NEW ANTIBACTERIAL DISCOVERY & DEVELOPMENT)(9-14 Mar. 2008, Il Ciocco Hotel and Resort Lucca (Barga), Italy).

Physiological functions of bacterial multidrug efflux pumps (invited), \*K. Nishino and A Yamaguchi: The 3rd CNU-SANKEN Joint Symposium on Advanced Materials Science (27-28 Feb. 2008, Chungnam National University, Korea).

Multidrug recognition and pumping by bacterial multidrug efflux transporter - A structural view (invited), \*S Murakami: Katzir Workshop on The Unbearable Complexity of Life(10-13 Feb. 2008, Tel Aviv University, Israel).



Structural Basis of Bacterial Multidrug Export, \*A Yamaguchi: 11<sup>th</sup> Sanken International Symposium/6th nanotechnology center international symposium/1st MSTEC international symposium(4-5 Feb. 2008, Hyogo).

Analysis of the S1P transporter in MEG-01 cell line (poster), \*Y. Hisano: 11<sup>th</sup> Sanken International Symposium/6th nanotechnology center international symposium/1st MSTEC international symposium(4-5 Feb. 2008, Hyogo).

Analysis of the expression site and the physiological role of mouse ABCA5 (poster), \*M. Ohigashi: 11<sup>th</sup> Sanken International Symposium/6th nanotechnology center international symposium/1st MSTEC international symposium(4-5 Feb. 2008, Hyogo).

Regulatory network of AcrAB multidrug efflux pump in Salmonella and its role in response to metabolites (poster), \*E. Nikaido: 11<sup>th</sup> Sanken International Symposium/6th nanotechnology center international symposium/1st MSTEC international symposium(4-5 Feb. 2008, Hyogo).

Structure and mechanism of bacterial multi-drug efflux systems (invited), \*S Murakami: International Symposium on Recent Trends in Macromolecular Structure and Function(7-11 Jan. 2008, Chennai, India).

Roles of indole signaling and intercellular signal transduction on type III secretion system-dependent pathogenicity in EHEC, \*H. Hirakawa, T. Kodama, T. Honda and A Yamaguchi: 3<sup>rd</sup> ASM Conference on Cell-Cell Communication in Bacteria (7-10 Oct. 2007, Texas, USA).

Visualization of Escherichia coli AcrAB-TolC efflux pump activity using ultra small chambers (poster), \*Yoshimi Matsumoto, K. Nishino, R. Iino, S. Sakakihara, M. Nakata, H. Nojii and A Yamaguchi: 47<sup>th</sup> Interscience Conference on Antimicrobial Agents and Chemotherapy (Sep. 17-20, 2007, McCormick Place, Illinois USA).

Novel Aspects of Mechanisms of Antibacterial Resistance Revealed by Crystal Structure (invited), \*A Yamaguchi: 47<sup>th</sup> Interscience Conference on Antimicrobial Agents and Chemotherapy (Sep. 17-20, 2007, McCormick Place, Illinois USA).

Regulatory network of multidrug transporters reveals their physiological role in Salmonella virulence, \*K. Nishino, E. Nikaido, H. Sakata, T. Nakano, M. Tanaka and A Yamaguchi: 7<sup>th</sup> The Awaji International Forum on Infection and Immunity (Sep. 1-5, 2007, Awaji Yumebutai International Conference Center).

Regulatory network of multidrug transporters reveals their physiological role in Salmonella virulence (poster), \*K. Nishino, E. Nikaido, H. Sakata, T. Nakano, M. Tanaka and A Yamaguchi: 7<sup>th</sup> The Awaji International Forum on Infection and Immunity (Sep. 1-5, 2007, Awaji Yumebutai International Conference Center).

Regulation mechanisms of the acrAB multidrug efflux pump in Salmonella enterica in response to bacterial metabolites (poster), \*E. Nikaido, K. Nishino and A Yamaguchi: 7<sup>th</sup> The Awaji International Forum on Infection and Immunity (Sep. 1-5, 2007, Awaji Yumebutai International Conference Center).

Structure and mechanism of bacterial multi-drug efflux transporter, \*S Murakami: 24<sup>th</sup> European Crystallographic Meeting(22-27 Aug. 2007, Marrakech, Morocco).

Structure and mechanism of AcrAB bacterial multi-drug efflux pump, \*S Murakami: Seminar(21 Aug. 2007, Imperial College London, London, England).

Structure and mechanism of AcrAB bacterial multi-drug efflux pump (invited), \*S Murakami: AstraZeneca Membran Protein Day(Seminar) (20 Aug. 2007, Alderlay Park, Macclesfield, UK).

Session1 Multi-Protein complex, Structural studies of multi-drug efflux transporter (invited), \*S Murakami: 9<sup>th</sup> International Conference on Biology and Synchrotron Radiation (13-17 Aug. 2007, Manchester, England).

Crystal structures of a bacterial multidrug transporter reveal a functionally rotating mechanism (invited), \*S Murakami: 32<sup>nd</sup> FEBS Congress, Molecular Machines (7-12 July 2007, Vienna, Austria).

Structure and mechanism of AcrAB bacterial multi-drug efflux pump, \*S Murakami: Seminar (25 May 2007, Scripps Inst., SanDiego).

Structure and mechanism of AcrAB bacterial multi-drug efflux pump, \*S Murakami: Seminar (24 May 2007, TakedaSD, SanDiego).

Structure and mechanism of AcrAB bacterial multi-drug efflux pump, \*S Murakami: Seminar (23 May 2007, Mpex Pharmaceuticals, Inc., SanDiego).

Structure and mechanism of AcrAB bacterial multi-drug efflux pump, \*S Murakami: Seminar (21-22 May 2007, UCSF, USA).

Single Cell Measurement of Bacterial Drug Efflux in Femtoliter Chamber Array (poster), \*K. Nishino, R. Iino, M. Nakata, Y. Matsumoto, E. Nikaido, S. Sakakihara, S. Takeuchi, A Yamaguchi and H. Noji: American Society of Microbiology, 107th General Meeting, (May 21-25, 2007, Metro Toronto Convention Center, Toronto, Canada).

Metabolites of Escherichia coli Induce the Expression of Multidrug Efflux Pumps in Salmonella enterica (poster), \*E. Nikaido, K. Nishino and A Yamaguchi: American Society of Microbiology, 107th General Meeting, (May 21-25, 2007, Metro Toronto Convention Center, Toronto, Canada).

#### [ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

山口 明人            Journal of Bacteriology (編集委員)

#### [ 国内学会 ]

日本薬学会 第128年会	8件
第81回日本細菌学会総会	10件
千里ライフサイエンスセミナー	1件
GPCR シンポジウムー膜タンパク質結晶構造解析のフロンティアー	1件
第45回生物物理学会年会	1件
第30回日本分子生物学会年会・第80回日本生化学会大会 合同大会	14件
第29回生体膜と薬物の相互作用シンポジウム	4件
日本生体エネルギー研究会 第33回討論会	2件
第11回 SPring-8 シンポジウム	1件
第12回分生研シンポジウム 膜輸送体の構造生物学	1件
第19回微生物シンポジウム	4件
日本ヒトプロテオーム機構 第5回大会	1件

第4回21世紀大腸菌研究会	1件
第6回国際バイオフィォーラム	1件
第55回日本化学療法学会総会	2件

### [ 取得学位 ]

学士 (薬学)	
田中 真奈美	宿主環境下におけるサルモネラ異物排出トランスポーターの役割
修士 (薬学)	
王 麗媛	大腸菌バイオフィルム形成機構に關与する新規遺伝子産物に關する研究
二階堂 英司	環境シグナルによるサルモネラ異物排出トランスポーター発現制御機構の解析
宮田 耕資	マウス ABCA6 の肝臓での発現と細胞内局在
尾上 麻実子	ABCA7 ノックアウトマウスの作製と解析
博士 (薬学)	
小林 直木	輸送体を介したスフィンゴシン 1 リン酸の細胞外放出機構
橋本 聡文	ほ乳類新規 RND 型膜蛋白質による細胞内コレステロールの制御

### [ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)		単位：千円
基盤研究 (S)		
山口 明人	異物排出トランスポーターの構造・機能・制御と生理的役割	18,000
基盤研究 (A)		
村上 聡	RND 型トランスポーターの結晶構造に基づく機能解析	7,200
若手研究 (S)		
西野 邦彦	オーファン輸送体による多剤耐性菌機構の解明と新規治療薬開発	12,700
特定領域研究		
西野 邦彦	細菌ゲノム生存戦略のレジストーム研究	4,700
若手研究 (B)		
西 晶子	アイソフォームによる V-ATPase の細胞内環境形成への新たな役割の解明	1,800
特別研究員奨励費		
大東 穂	情報伝達物質輸送系の同定を目指した ABCA 輸送体の機能解析	900

### [ 受託研究 ]

山口 明人	科学技術振興機構 CREST	異物排出トランスポーターの構造 機能解析と多剤耐性機構の解明	3,023
村上 聡	文部科学省 ターゲットタンパク研究 プログラム	多剤耐性化の克服を目指した薬剤 排出トランスポート・マシーナリ ーの構造生物学	23,307
村上 聡	科学技術振興機構 CREST	タンパク質完全結晶創成	8,500
村上 聡	科学技術振興機構 戦略的国際科学技術協力 推進事業・英国	多剤排出トランスポーターの結晶 構造に基づく、多剤排出メカニズ ムの解明	3,546
山口 明人	新興・再興感染症研究拠	細菌の病原性と多剤排出蛋白質発	300

	点形成プログラム	現制御の網羅的、系統的解析と創薬の新戦略	
山口 明人	医薬基盤研究所 保健医療分野における基礎研究推進事業	多剤耐性菌感染症を克服する新規治療薬の開発	75,385
西野 邦彦	農業・食品産業技術総合研究機構 動物衛生研究所	大腸菌の薬剤耐性獲得に関する分子制御機構解明	3,300
西野 邦彦	科学技術振興機構 戦略的創造研究推進事業 さきがけ	異物排出トランスポーターによる細胞機能制御の解明	7,000

# 量子ビーム科学研究部門

## 概要

量子ビームとは量子力学的な現象を物質や材料に誘起する全ての種類の放射線ビームの総称である。量子ビームには、レーザー、X線、放射光、 $\gamma$ 線や自由電子レーザーなどの光量子ビームと、電子線、陽電子線、ミュオンビームやイオンビームなどの荷電粒子ビーム、ならびに中性子ビーム等多くの種類がある。量子ビーム科学は放射線科学から発展して来た研究領域であるが、近年著しく発展しつつある新しい高輝度・高品質の量子ビームの発生・制御・計測の研究と、この新しい量子ビームが物質中で引き起こす基礎過程の研究、ならびにこの量子ビーム誘起現象の正確な理解に基づいた物質科学への応用に関する研究を行う。

量子ビーム科学研究部門は、量子ビーム発生科学研究分野と量子ビーム物質科学研究分野より構成される。量子ビーム発生科学研究分野では量子ビーム発生の主要な装置である加速器に関する研究とそれに基づいた新しい量子ビームの発生や制御ならびに計測の研究を行い、量子ビーム物質科学研究分野では量子ビーム誘起現象を解明する基礎研究と、その物質科学への応用、すなわち新しい機能性材料や極限材料等の物質創製と応用に関する基礎研究を行う。両者は量子ビームの発生とその物質科学への応用という観点で密接な関係を持ち研究を進める。さらに当部門は加速器・量子ビーム実験室との密接な協力のもとに国立研究所等とは視点の異なる大学の特徴を活かした先端的な研究を行う。また、近年、新しい種類の高輝度・高品質ビームの発生や物質科学へのビーム応用が行える多くの加速器が国内外で開発・建設されているが、これらの新しい加速器を開発するための共同研究や加速器からのビームを利用した研究も積極的に進めていくとともに、高機能材料開発の面でも多くの研究機関・企業と共同研究を行っている。

## 成果

- ・ Lバンド電子ライナックのSHBシステム用108MHz空洞2台を製作した。昨年度に製作した216 MHz空洞1台を加えて3台の高性能RF空洞を用いてSHBシステムを更新した結果、単バンチビームと多バンチビームの安定性が格段に向上した。
- ・ フィードフォワード法によりクライストロンの出力RFパワーの振幅と位相のパルス内での変動をそれぞれ0.89%と0.3°に低減してエネルギー幅の小さい多バンチビームを発生することに成功した。
- ・ 遠赤外FELの再立ち上げを行い、波長70  $\mu\text{m}$ でFELパワーが飽和に達する高出力運転に始めて成功した。
- ・ エネルギーと時間から構成される位相空間での電子分布を直接測定できる装置を開発した。
- ・ SASE用高性能ウイグラーの開発研究の一環として、永久磁石ブロック80個の磁化軸誤差を系統的に測定した。
- ・ 代表的な高分子材料の放射線化学反応を初めて初期過程から系統的に明らかにした。
- ・ フェムト秒電子線パルスとフェムト秒レーザーを同期させた新規のパルスラジオリシスを用いて、サブピコ秒の時間領域で初めて放射線化学反応を直接観測するのに成功した。
- ・ マイクロ波技術を用い、高分子および低分子材料中における電荷キャリアの移動度を電極レスで測定するシステムを開発し、キャリアダイナミクスを解明した。
- ・ 半導体の超微細加工の主反応である高感度レジストの光・放射線反応機構を解明し、ナノ構造体中での不均一反応を可視化することに成功した。
- ・ 新規材料である $\sigma$ 共役系 $\pi$ 共役系高分子の物性解明と量子ビームによる高機能化を行った。

## 量子ビーム発生科学研究分野

教授	磯山 悟朗
准教授	加藤 龍好
助教	池田 稔治、柏木 茂
大学院学生	森尾 豊

### a) 概要

粒子加速器は基礎科学から産業まで広く利用されている。当研究分野は、高輝度電子ビームや光、陽電子ビームなど量子ビームの発生という観点から加速器をとらえて研究している。加速器は人工物であるが、極限性能を追求すると非線形性や集団運動などの興味有る物理の基本問題が現れる。新しい量子ビームは人が見る事の出来る世界を広げるので基礎研究から応用まで広い範囲の利用が期待できる。具体的には、電子線形加速器による高エネルギー・高輝度電子ビームの発生とそれに伴う電子ビームのダイナミクスの研究や、線形加速器からの電子ビームを用いて赤外からミリ波までの自由電子レーザー（FEL）の実用化へ向けての開発研究、X線レーザーを実現する有力な手法と期待されている SASE（Self-Amplified Spontaneous Emission）の赤外領域での基礎研究を行っている。

### b) 成果

#### ・Lバンド電子ライナックの性能向上

3 台の RF 加速空洞よりなるサブハーモニックバンチャー（SHB）システムを使用する単バンチモードと多バンチモード運転では、朝にライナックを立ち上げてからビームが安定して実験を開始するまで 4 時間以上の暖機運転が必要である。また、運転中突然ビームの状態が変わることもある。これらの問題は、SHB 空洞がステンレスと銅のクラッド板で製作されている事と、熱の発生部分と水で冷却する場所が離れていることが原因である。単バンチモードと多バンチモードの高安定化を目指し、3 台の SHB 空洞を更新する計画を昨年開始した。SHB 空洞の温度を安定化するため、熱伝導が良い無垢の無酸素銅を採用すると共に主要部分を効率的に水冷できるようにした。即ち、無酸素銅で出来た内導体と外導体にビーム軸方向に直径 5 mm の長穴を開けて、温度安定度が 0.01 度の冷却水を流すことにより効率的で高安定な水冷システムを実現した。その第 1 段階として、216 MHz 4 分の 1 波長 RF 空洞 1 台の設計・製作を行った。本年度は、引き続き 108 MHz の SHB 空洞を 2 台製作した。従来の SHB 空洞を昨年製作した 218 MHz の SHB 空洞と合わせて 3 台の新しい SHB 空洞に交換した。立ち上げ調整は問題なく終了して、共同利用に使用している。朝の立ち上げ後、従来に比べて極めて短い時間で実験を行えるようになった。

FEL で使用する多バンチモードでは、エネルギーの揃った長パルスの電子ビームを加速する必要がある。その為にはライナックに供給するパルス RF パワーの振幅と位相は、パルス幅 8  $\mu$ s にあたり一定である必要がある。そのために RF パワー源であるクライストロンに印加する高電圧パルスの頂上平坦部変動を 0.1% に低減したが、クライストロンの出力 RF パワーは振幅で 10.5 %、位相で 5 度以上にパルス平坦部で変動する。この振幅と位相変動は、電子ビームのエネルギーに影響を与え、多バンチモードでエネルギーがそろった電子ビームの加速を不可能にしている。この問題を解決するためにフィードフォワード法による振幅と位相の安定化の研究を行っている。クライストロン出力の RF パルス平坦部の時間幅約 7.6  $\mu$ s に対して、補正制御なしの状態では位相変動 13°、振幅変動 18% であったものが、制御後に位相変動 0.3°、振幅変動 0.89% にまで補正することができた。位相・振幅変動が電子ビーム加速に与える効果を確認するため、変動された RF パルスを用いて実際にビームを加速し、エネルギースペクトルを測定した。時間幅 5  $\mu$ s の範囲で、振幅・位相制御無しの場合は 6.9% のエネルギー変化があったものを、振幅・位相制御する事で 0.45% までビームエネルギー変化を補正することができた。

クライストロンモジュレータの運転モードの切替えや、ビームプロファイルモニターを使用する時に

は、ライナックの運転周期を決めるカイズワークス社のプリセットスケーラモジュール (KN-140) をオペレータが手動で操作することにより、RF パルスやビームの繰返しを変更している。誤操作による事故を防ぐために、USB インターフェースを用いて計算機に接続することが可能なプリセットスケーラを開発した。この装置を計算機制御システムに組み込むために制御用ソフトウェアを改造した。装置の動作試験と計算機からの個別制御試験は完了して、日常的に使用するための制御系総合試験を待っている。

#### ・電子ビームの高輝度化と特性評価

Lバンド電子ライナックの加速エネルギーと時間よりなる縦方向位相空間上で電子ビームの分布を直接測定することが出来る位相空間モニターの開発研究を進めている。偏向磁石で運動量分散を生じた電子ビームがエアロジェルと呼ばれる屈折率が空気よりわずかに大きい物質中を通過するときのチェレンコフ光をストリークカメラで計測する。ストリーク軸を運動量分散方向と直交する方向にとると、ストリークカメラの表示画面上で電子ビームの位相空間分布が再現される。屈折率  $n=1.050$  を持つ疎水性シリカ・エアロジェルを使用するとビーム軸に対し円錐状に放射されるチェレンコフ光の放射角は電子エネルギー10 MeV 以上ではほぼ一定の値 17.75 度になる。大気側にミラーを設置してこの大きな発散角を持つチェレンコフ光全体を集光することは困難であるため、発生するチェレンコフ光の一部だけを集光ミラーで切り出す。厚さ 1.5 mm のエアロジェルを製作し、サポートを兼ねた金属反射鏡に密着させ、チェレンコフ光の最上部が鉛直上方に取出せるように、これをビーム軸に対して 55.8 度傾ける。エアロジェル中で放射された光は、金属反射鏡で反射された後にもう一度エアロジェル中を通過して真空中に取出される。この様な装置を製作して FEL ビームラインに取り付けた。電子ビームの位相空間分布を測定する準備が整った。

#### ・遠赤外自由電子レーザーの開発研究

我々は、阪大産研 Lバンド電子ライナックを用いて 1989 年から遠赤外領域の FEL の開発研究を行っている。1994 年に波長 32~40  $\mu\text{m}$  で最初の FEL 発振に成功して以来、FEL の発振波長を長波長領域に拡大する研究を行い、1998 年には波長 150  $\mu\text{m}$  での FEL 発振に成功した。この波長は RF ライナックを用いた FEL としては当時世界最長の発振波長であった。しかし、阪大産研の Lバンド電子ライナックは FEL 用に設計された加速器ではないため、高出力 FEL に必要な長い電子線パルスが発生することが出来なかった。また約 30 年前に建設された加速器であり運転状態の安定性や再現性が悪く、FEL は利用研究に供することが出来る水準に達していなかった。そこで、FEL の実験を一時中断した。2002 年に Lバンド電子ライナックを大規模に改修する予算が認められて、運転状態の安定性と再現性を向上するための改造を行った。その際、FEL の高出力化を目指して長い電子線パルスが発生できるような機能を加速器の電源系に付加した。加速 RF パルスの位相・振幅をフィードフォワード法により一定になるよう制御し、FEL 発振に用いるエネルギー分散の小さいマルチバンチ電子ビームを生成した。2007 年 8 月に、FEL の再立ち上げを行い、波長 70  $\mu\text{m}$  で FEL の出力飽和を達成した。現在、電子ビームエネルギーやウイグラー磁場を変化させ、発振波長 70-110  $\mu\text{m}$  で FEL 発振実験を行っている。

#### ・SASE用高性能ウイグラーの開発研究

SASE や FEL 用高精度ウイグラーを実現するための基礎となる永久磁石素材の特性測定と評価の研究を行っている。我々が使用する永久磁石材料は、ネオジ鉄ボロン化合物である。粉末の材料物質を磁場中で圧縮・整形した後に、高温炉で焼結して、目的の寸法に機械加工をする。次に再度磁場中に入れて着磁して永久磁石が完成する。磁場強度や、磁化軸、磁化の一様性など永久磁石の主要な特性は、最後の着磁ではなく、最初に行う磁場中での圧縮・整形で決まる。我々は、素材ブロックから磁石の切り出し方を工夫する事により、磁化軸に角度誤差が無く強度の揃った磁石を製作するための基礎研究を行っている。この方法を調べるためには着磁した磁石材料の表面磁場強度の分布を測定する必要がある。我々は試験磁石ブロック 80 個の磁化軸方向と表面磁場を測定した。磁化軸方向に関しては方位角 0 度方向に磁化軸が傾いており、傾きの大きさは 0.2 度を中心に分布していることが分かった。今後も引続き高品質永久磁石ブロック製作の研究を行っている。

## [ 原著論文 ]

Study of Compton Backscattering Between Relativistic Electron Beam and SASE Light, S. Kashiwagi, R. Kuroda: *Int. J. Mod. Phys. B*, 21 (2007) 481-487.

Improvements in time resolution and signal-to-noise ratio in a compact pico-second pulse radiolysis system, Hiroyuki Nagai, Masaaki Kawaguchi, Kazuyuki Sakaue, Keita Komiya, Tomoaki Nomoto, Yoshio Kamiya, Yoshimasa Hama, Masakazu Washio, Kiminori Ushida, Shigeru Kashiwagi and Ryunosuke Kuroda: *Nucl. Instrum and Methods B*, 265 (2007) 82-86.

Involvement of Histamine Released From Mast Cells in Acute Radiation Dermatitis in Mice, Saiko Moriyasu, Kouichi Yamamoto, Naoko Kureyama, Keita Okamura, Toshiji Ikeda, Atsushi Yamatodani: *Journal of Pharmacological Sciences*, 104 (2007) 187-190.

Electrical insulating property of ceramic coating materials in radiation and high-temperature environment, Teruya Tanaka, Rei Nagayasu, Akihiko Sawada, Toshiji Ikeda, Fuminobu Sato, Akihiro Suzuki, Takeo Muroga, Toshiyuki Iida: *Journal of Nuclear Materials*, 367-370 (2007) 1155-1159.

## [ 解説、総説 ]

「液体 Li ブランケット用セラミック被覆材料の照射下電気絶縁特性」、田中照也、室賀健夫、四竈樹男、土屋文、鳴井實、西谷健夫、飯田敏行、佐藤文信、池田稔治、鈴木晶大、*プラズマ・核融合学会誌*、第 83 巻第 4 号 (2007) 391-396.

## [ 国際会議 ]

Control system based on PCs and PLCs for the L-band linac at Osaka University (poster), Ryukou Kato, Shigeru Kashiwagi, Tamotsu Yamamoto, Shoji Suemine, \*Goro Isoyama: *Asian Particle Accelerator Conference 2007*, Indore, INDIA, January 29 - February 2, 2007.

New Timing System for the L-band Linear Accelerator at Osaka University (poster), S. Kashiwagi, \*G. Isoyama, R. Kato, S. Suemine, T. Asaka, Y. Kawashima: *Asian Particle Accelerator Conference 2007*, Indore, INDIA, January 29 - February 2, 2007.

Development of compact EUV source based on laser Compton scattering (poster), \*S. Kashiwagi, R. Kato, J. Yang, A. Masuda, T. Nomoto, T. Gowa, K. Sakaue, M. Washio, R. Kuroda, J. Urakawa: *2007 Particle Accelerator Conference*, New Mexico, USA, June 25-29, 2007.

Development of Photocathode RF Gun and Laser System for Multi-collision Laser Compton Scattering (poster), \*R. Kuroda, H. Toyokawa, M. Yasumoto, N. Sei, H. Ogawa, M. Koike, K. Yamada, T. Nakajyo, F. Sakai, T. Yanagida, T. Gowa, A. Masuda, R. Moriyama, Y. Kamiya, K. Sakaue, M. Washio, S. Kashiwagi: *2007 Particle Accelerator Conference*, New Mexico, USA, June 25-29, 2007.

Improvement of Soft X-ray Generation System Based on Laser Compton Scattering (poster), \*T. Gowa, A. Masuda, R. Moriyama, K. Sakaue, Y. Kamiya, M. Washio, S. Kashiwagi, Ushida, H. Hayano, J. Urakawa: *2007 Particle Accelerator Conference*, New Mexico, USA, June 25-29, 2007.

RE-COMMISSIONING OF THE FAR-INFRARED FREE ELECTRON LASER FOR STABLE AND HIGH POWER OPERATION AFTER THE RENEWAL OF THE L-BAND LINAC AT ISIR, OSAKA UNIVERSITY,



\*R. Kato, S. Kashiwagi, T. Igo, Y. Morio, G. Isoyama: 29th International Free Electron Laser Conference, Novosibirsk, Russia, August 26 - 31, 2007.

DEVELOPMENT OF THE LONGITUDINAL PHASE-SPACE MONITOR FOR THE L-BAND ELECTRON LINAC AT ISIR, OSAKA UNIVERSITY (poster), \*R. Kato, S. Kashiwagi, T. Igo, Y. Morio, G. Isoyama: 29th International Free Electron Laser Conference, Novosibirsk, Russia, August 26 - 31, 2007.

DEVELOPMENT OF A PRECISE TIMING SYSTEM FOR THE ISIR L-BAND LINAC AT OSAKA UNIVERSITY (poster), Shigeru Kashiwagi, Goro Isoyama, \*Ryukou Kato, Shoji Suemine: 29th International Free Electron Laser Conference, Novosibirsk, Russia, August 26 - 31, 2007.

Re-Commissioning and High Power Operation of the Free Electron Laser in the Far-Infrared Region at ISIR, Osaka University (poster), \*Goro Isoyama, Ryukou Kato, Shigeru Kashiwagi, Tetsuya Igo, Yutaka Morio: 11th SANKEN International Symposium, 6th Nanotechnology Center International Symposium, 1st MSTEC International Symposium, Awaji, Japan, February 4-5, 2008.

Longitudinal Phase-Space Measurements of the High-Brightness Electron Beam at ISIR, Osaka University (poster), Ryukou Kato, Shigeru Kashiwagi, Tetsuya Igo, Yutaka Morio, \*Goro Isoyama: 11th SANKEN International Symposium, 6th Nanotechnology Center International Symposium, 1st MSTEC International Symposium, Awaji, Japan, February 4-5, 2008.

X-Ray Microbeam Measurement with Radiophotoluminescent Glass for Singlecell Irradiation (poster), \*Sato,F. ,Kuchimaru,T. ,Ikeda,T. ,Shimizu,K. ,Kato,Y. ,Yamamoto,T. & Iida,T.: 15th International Conference on Solid State Dosimetry July 8-13,2007 Delft, The Netherlands.

#### [ 国内学会 ]

日本加速器学会	10 件
日本放射光学会	3 件
日本物理学会	3 件
日本放射線安全管理学会	4 件
日本氷雪学会	2 件

#### [ 取得学位 ]

#### [ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)	単位：千円	
基盤研究 (C)		
加藤 龍好	高輝度電子ビームの縦方向位相空間分布測定手法の開発	800

## 量子ビーム物質科学研究分野

教授	田川 精一
准教授	関 修平 (平成 19 年 9 月 30 日まで)
助教	小林 一雄、佐伯 昭紀
特任助教	山本 洋揮(平成 20 年 1 月 16 日より)
特任教授	堀江 一之
共同研究員	古川 喜久夫
大学院学生	小泉 美子、山本 洋揮、山上 隆平、夏田 健一郎、 廣瀬 亮、福山 雄大、田中 将史、土方 勇人
学部学生	大崎 真市
事務補佐員	小嶋 薫

### a) 概要

量子ビーム物質科学研究分野では放射線化学初期過程や照射効果における線質効果の研究、機能性高分子、マイクロエレクトロニクス用高分子、生体分子に対する光・放射線反応についての研究、及びこれら高分子材料応用のための物性研究を行っている。現在の研究の中心は、**1)** ピコ秒・サブピコ秒パルスラジオリシスの開発と放射線化学初期過程の解明、**2)** 非炭素骨格を持つ高分子や $\sigma\cdot\pi$ 共役高分子等の高機能性高分子の設計・合成や、量子ビームを用いた電子構造解析・物性評価、放射線誘起反応の研究 **3)** 半導体プロセス中で使用される高分子材料であるレジスト材料の反応解明・制御 **4)** イオンビーム照射効果の基礎過程、**5)** マイクロ波技術を用いた有機材料の電極レス伝導度測定、**6)** 生体における放射線損傷過程の解明として、**DNA** のホール移動過程や切断過程等である。

### b) 成果

#### 1) 放射線化学初期過程の解明

放射線化学初期過程は、放射線と物質の相互作用の出発点であり、放射線化学反応全体を知る上で重要である。昨年度、**CCD**カメラ・高安定フェムト秒白色光・ダブルパルス法を用いた高精度過渡吸収スペクトル測定システムを開発し、従来の性能を**2**桁近く向上させることに成功した。これを用い、有機凝縮相中におけるラジカル、励起状態、電子などの生成に伴う過渡吸収分光を行った。特に、放射線照射直後に生成するテトラヒドロフラン (**THF**) 中の溶媒和電子および溶媒和前電子の反応性を研究した。溶質としてビフェニルを用い、後者への電子移動をビフェニルアニオンラジカルの過渡吸収を測定することによってそのダイナミクスおよび収量を検討した。その結果、溶媒和前電子が高効率でビフェニルと反応することが判明し、また、ビフェニルをより高濃度で存在させると、**THF**ラジカルカチオン由来の活性種とジェミネートイオン再結合する様子が始めて観測された。

また、芳香族系高分子は放射線に対する高いエッチング耐性を示し、多くのレジストにおいてベース樹脂として利用されており、このような芳香族系高分子の放射線誘起反応機構を理解することは、次世代ナノリソグラフィ用レジストの開発指針を得るために重要であると考えられる。本研究ではポリスチレン等の芳香族分子をモデル化合物としてとらえ、ナノ・ピコ・サブピコ秒パルスラジオリシス法、低温マトリクス法により、これらの芳香族分子の放射線誘起反応を解明した。また分子科学的にも重要であるラジカルカチオン種に着目し、このダイナミクスの解明を行った。

#### 2) 主鎖共役高分子についての研究

飽和高分子ながら分子内に広がった共役系を有すると考えられるポリシラン・ポリゲルマンは、1次元らせん骨格構造をとると考えられ、このらせんの「巻き」を制御することにより、主鎖共役系がダイナミックに変化することを明らかにした。光伝導性や高分子反応等の物理的特性・物理化学反応過程が大きく変化し、高分子骨格のマイクロ構造と物性の間の強い相関を示すとともに、各種機能を有するシリ

コン・ゲルマニウム骨格高分子の設計指針の確立と1次元量子細線としての可能性を指摘した。また、 $\pi$ 共役分子の代表的な一つであるフルオレンオリゴマーの1電子酸化・還元状態の光学特性をパルスラジオリシスによって検討した。アニオンラジカルは主鎖上に電荷を非局在化し、高い平面性を示すことを実験的に、また理論計算でも明らかにした。

### 3) 化学増幅型レジストの反応機構

次世代電子線・EUV用レジストとして開発が進められている化学増幅型レジストの放射線反応過程をピコ秒パルスラジオリシス法を用いて、酸発生機構におけるレジストのラジカルカチオンと酸のカウンターアニオンの空間分布を測定することに成功した。その結果を基に、次世代リソグラフィにおいて最も重要な問題の一つと考えられるラインエッジラフネスへの影響を考察した。

### 4) イオンビーム照射効果の基礎過程

荷電粒子ビームの全く新しい応用形態として、これらビームによる高密度エネルギー付与・励起を利用し、新しいナノスケール素子の形成手法を提案した。特に高分子中にイオンビームが入射した際、飛跡に沿ってトラック構造と呼ばれる非常に高密度の反応中間体集合が形成され、ここでの特殊な物理化学反応から、トラック外部には全く影響を与えずに元の形質を維持したまま、非常に微細な空間領域にのみ新しい微細構造体を形成すると同時に、極めて高度にサイズ・構造制御されたナノ構造集合体の形成に成功した。

### 5) マイクロ波による電極レス伝導度測定

電極レスで有機半導体材料のナノスケール電気伝導度を測定できる時間分解マイクロ波伝導度測定 (TRMC) を用い、超分子ナノチューブ、 $\pi$ 共役高分子の電気・光学物性を研究した。超分子ナノチューブではチューブ長軸方向に沿った非等方的伝導度を測定することに成功し、アクセプター分子でラミネートされたナノチューブでは、その超分子構造が有する高い伝導特性を実証することができた。またアクセプター分子を結合させた分子の割合を変えることで光電気特性をさらに向上させることに成功し、高度に設計された構造体の機能性を実証した。ポリフィリン-フラーレン共結晶では、非常に高い電子移動を実証し、有機結晶材料の高機能性を示した。

### 6) 放射線照射による遺伝子損傷の研究

放射線照射による遺伝子損傷の鍵となる初期過程として、グアニンカチオンラジカル( $G^+$ )の脱プロトン過程に注目した。種々の配列のオリゴヌクレオチド(ODN)で調べた結果、二重鎖ODNで生成するグアニンカチオンラジカルのスペクトルはfreeの $G^+$ とは明らかに異なり、この差は( $G^+-C$ ) によると結論することができる。また隣接の配列を変えて調べたところGが連続した配列に顕著に現れ、400-450 nm における吸収ピークはG < GG < GGG の順に長波長シフトしていることが確かめられた。それに対して $G^+$  の脱プロトン化後生成する $G(-H^+)$  のスペクトルは、freeの $G(-H^+)$ と一致し、また配列によるはっきりした差が見られなかった。これらの結果より、GGG全体に非局在化しているのに対して、脱プロトン化後の $G(-H^+)$ は特定のGのみに局在していることが示唆された。さらに脱プロトン化に対する配列依存性についても調べ、この速度が配列により変化することが確かめられた。

## [ 原著論文 ]

Formation of isolated ultrafine optical nanofibers by single particle nanofabrication technique, K. Maehashi, H. Ozaki, Y. Ohno, K. Inoue, K. Matsumoto, S. Seki, and S. Tagawa: Appl. Phys. Lett., 90 (2) (2007) 23103-23106.

Effects of Porphyrin Substituents on Film Structure and Photoelectrochemical Properties of Porphyrin/Fullerene Composite Clusters Electrophoretically Deposited on Nanostructured SnO<sub>2</sub> Electrodes, H. Imahori, M. Ueda, S. Kang, H. Hayashi, S. Hayashi, H. Kaji, S. Seki, A. Saeki, S. Tagawa, T. Umeyama, Y. Matano, K. Yoshida, S. Isoda, M. Shiro, N. V. Tkachenko, H. Lemmetyinen: Chem. Eur. J., 13 (36) (2007) 10182-10193.

Electric Field Enhancement of Nano Gap of Silver Prisms, K. Yamaguchi, T. Inoue, M. Fujii, M. Haraguchi, T. Okamoto, M. Fukui, S. Seki, \*S. Tagawa: *Chin. Phys. Lett.*, 24 (10) (2007) 2934-2937.

Molecular Engineering of Coaxial Donor-Acceptor Heterojunction by Coassembly of Two Different Hexabenzocoronenes: Graphitic Nanotubes with Enhanced Photoconductive Properties, Y. Yamamoto, T. Fukushima, A. Saeki, S. Seki, S. Tagawa, N. Ishii, T. Aida: *J. Am. Chem. Soc.*, 129 (30) (2007) 9276-9277.

Exposure dose dependence on line edge roughness of a latent image in electron/extreme ultraviolet lithographies studied by Monte Carlo technique, A. Saeki, T. Kozawa, S. Tagawa, H. B. Cao, H. Deng, M. J. Leeson: *J. Micro/Nanolith. MEMS MOEMS*, 6 (2007).

Dynamics of photogenerated charge carrier and morphology dependence in polythiophene films studied by in situ time-resolved microwave conductivity and transient absorption spectroscopy, A. Saeki, S. Seki, Y. Koizumi, S. Tagawa: *J. Photochem. Photobiol. A*, 186 (2) (2007) 158-165.

Formation of isolated ultrafine optical nanofibers by single particle nanofabrication technique, S. Seki, S. Tsukuda, S. Tagawa, M. Sugimoto, A. Watanabe, T. Miyashita: *J. Photopolym. Sci. Technol.*, 20 (1) (2007) 125-128.

Resist removal by using wet ozone, H. Horibe, M. Yamamoto, T. Ichikawa, T. Kamimura, S. Tagawa: *J. Photopolym. Sci. Technol.*, 20 (2) (2007) 315-318.

Sensitization Distance and Acid Generation Efficiency in a Model System of Chemically Amplified Electron Beam Resist with Methacrylate Backbone Polymer, T. Kozawa, S. Tagawa, T. Kai, T. Shimokawa: *J. Photopolym. Sci. Technol.*, 20 (4) (2007) 577-583.

Reactivity between Biphenyl and Precursor of Solvated Electrons in Tetrahydrofuran Measured by Picosecond Pulse Radiolysis in Near-Ultraviolet, Visible, and Infrared, A. Saeki, T. Kozawa, Y. Ohnishi, S. Tagawa: *J. Phys. Chem. A*, 111 (7) (2007) 1229-1235.

Possibility of reverse Monte Carlo modelling for hydrogenated amorphous Si deposited on reactive ion etched Si substrate, T. Kawahara, Y. Matsui, S. Tagawa, T. Kawai, H. Matsumura: *J. Phys. Condens. Matter*, 19 (33) (2007) 335211-335200.

Analysis of swelling process of protein by positron annihilation lifetime spectroscopy and differential scanning calorimetry, Y. Akiyama, Y. Shibahara, S. Takeda, Y. Izumi, Y. Honda, S. Tagawa, S. Nishijima: *J. Polym. Sci. B*, 45 (15) (2007) 2031-2037.

Dissolution characteristics and reaction kinetics of molecular resists for extreme-ultraviolet lithography, M. Toriumi, J. J. Santillan, T. Itani, T. Kozawa, S. Tagawa: *J. Vac. Sci. Technol. B*, 25 (6) (2007) 2486-2489.

Image contrast slope and line edge roughness of chemically amplified resists for postoptical lithography, T. Kozawa, S. Tagawa, J. J. Santillan, M. Toriumi, T. Itani: *J. Vac. Sci. Technol. B*, 25 (6) (2007) 2295-2300.

Stroboscopic Picosecond Pulse Radiolysis Using Near-Ultraviolet-Enhanced Femtosecond Continuum Generated by CaF<sub>2</sub>, A. Saeki, T. Kozawa, K. Okamoto, S. Tagawa: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 46 (1) (2007) 407-411.

Dependence of Absorption Coefficient and Acid Generation Efficiency on Acid Generator Concentration in Chemically Amplified Resist for Extreme Ultraviolet Resists, R. Hirose, T. Kozawa, S. Tagawa, T. Kai, T. Shimokawa: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 46 (40) (2007) L979-L981.

Theoretical Study on Relationship between Acid Generation Efficiency and Acid Generator Concentration in Chemically Amplified Extreme Ultraviolet Resists, T. Kozawa, S. Tagawa, M. Shell: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 46 (47) (2007) L1143-L1145.

Point Spread Function for the Calculation of Acid Distribution in Chemically Amplified Resists Used for Electron-Beam Lithography, T. Kozawa, S. Tagawa: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 46 (48) (2007) L1200-L1202.

Scanning Tunneling Microscopy Profiling of Steep Ridges Using Metal-Coated Carbon Nanotube Tip, Y. Murata, M. Kishida, K. Motoyoshi, T. Kimura, S. Honda, K. Okamoto, Y. Matsui, S. Tagawa, M. Katayama: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 46 (12) (2007) 8005-8007.

Polymer-Structure Dependence of Acid Generation in Chemically Amplified Extreme Ultraviolet Resists, H. Yamamoto, T. Kozawa, S. Tagawa, H. B. Cao, H. Deng, M. J. Leeson: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 46 (7) (2007) L142-L144.

Single-Component Chemically Amplified Resist Based on Dehalogenation of Polymer, H. Yamamoto, T. Kozawa, S. Tagawa, K. Ohmori, M. Sato, H. Komano: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 46 (26) (2007) L648-L650.

Study of Acid-Base Equilibrium in Chemically Amplified Resist, K. Natsuda, T. Kozawa, A. Saeki, K. Okamoto, S. Tagawa, K. Ohmori, M. Sato, H. Komano: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 46 (11) (2007) 7285-7289.

Effect of Acid Diffusion and Polymer Structure on Line Edge Roughness, H. Yamamoto, T. Kozawa, A. Saeki, K. Okamoto, S. Tagawa, K. Ohmori, M. Sato, H. Komano: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 46 (10) (2007) 6187-6190.

Optoelectronic properties and nanostructure formation of sigma-conjugated polymers, S. Seki, S. Tagawa: *Polym. J.*, 39 (4) (2007) 277-293.

Study of annihilation processes of positrons in polystyrene-related polymers, Y. Honda, T. Shimada, M. Tashiro, N. Kimura, Y. Yoshida, G. Isoyama, S. Tagawa: *Radiat. Phys. Chem.*, 76 (2) (2007) 169-171.

Subpicosecond pulse radiolysis in liquid methyl-substituted benzene derivatives, K. Okamoto, T. Kozawa, A. Saeki, Y. Yoshida, S. Tagawa: *Radiat. Phys. Chem.*, 76 (5) (2007) 818-826.

Ion beam induced nano-space reactions and nano-wire formation in polymers by high energy sub mu m heavy ion beams, S. Tagawa, S. Tsukuda, S. Seki, M. Sugimoto, T. Sato, M. Oikawa, T. Sakai: *Surf. Coat Tech*, 201 (19) (2007) 8495-8498.

Nanowires with controlled sizes formed by single ion track reactions in polymers, S. Tsukuda, S. Seki, M. Sugimoto, S. Tagawa: *Surf. Coat Tech*, 201 (19) (2007) 8526-8530.

Cross-linked silicon based polymer nano-wire formation by high energy charged particles, S. Seki, S. Tsukuda, S. Tagawa, M. Sugimoto: *Surf. Coat Tech*, 201 (19) (2007) 8486-8489.

In vitro preparation of iron-substituted human manganese superoxide dismutase: Possible toxic properties for mitochondria, F. Yamakura, K. Kobayashi, S. Furukawa, Y. Suzuki: *Free Radical Biology and Medicine*, 43 (3) (2007) 423-430.

[ 国際会議 ]

Electric Field Enhancement of Nano Gap of Silver Prisms (poster), K. Yamaguchi, T. Inoue, M. Fujii, M. Haraguchi, T. Okamoto, S. Seki, \*S. Tagawa: Asian and Pacific Symposium on Radiation Chemistry.

High Precision Measurement of Higher Diffraction-order Contamination in Monochromatized Soft X-ray by using a Compact Transmission-Grafting Spectrometer (poster), K. Fukui, T. Sakai, T. Hatsui, N. Kosugi, Y. Hamamura, K. Okamoto, Y. Matsui, T. Kozawa, S. Seki, \*S. Tagawa: International Conference on Vacuum Ultraviolet Radiation Physics.

Effect of Fluorine Atom on Acid Generation in Chemically Amplified EUV Resists (poster), \*H. Yamamoto, T. Kozawa, S. Tagawa, H. Yukawa, M. Sato, H. Komano: EUVL Symposium.

Single-Component Chemically Amplified Resist Based on Dehalogenation of Polymer (poster), \*H. Yamamoto, T. Kozawa, S. Tagawa, K. Ohmori, M. Sato, H. Komano: SPIE.

Development and Performance of Quasi-Free Standing Transmission-Grating for Soft X-ray Emission Spectrometer (poster), H. Takai, \*K. Okamoto, M. Matsui, T. Kozawa, S. Seki, S. Tagawa, Y. Hamamura, N. Kosugi: International Conference on Vacuum Ultraviolet Radiation Physics.

Pulse Radiolysis of Polystyrene and Derivatives (poster), \*K. Okamoto, M. Tanaka, S. Seki, T. Kozawa, S. Tagawa: International Congress of Radiation Research.

Dependence of Absorption Coefficient and Acid Generation Efficiency on Acid Generator Concentration in Chemically Amplified EUV Resist (poster), R. Hirose, \*T. Kozawa, S. Tagawa, T. Kai, T. Shimokawa: Microprocess and Nanotechnology Conference.

Effect of Fluorine Atom on Acid Generation in Chemically Amplified EUV Resists (poster), \*H. Yamamoto, T. Kozawa, S. Tagawa, H. Yukawa, M. Sato, J. Onodera: Microprocess and Nanotechnology Conference.

Study on the Reaction of Acid Generators with Epithermal Electrons (poster), K. Natsuda, T. Kozawa, A. Saeki, S. Tagawa, T. Kai, T. Shimokawa: Microprocess and Nanotechnology Conference.

Polymer nanowire formation along single particle tracks (poster): International Congress of Radiation Research.

Study on Dynamics of Radical Ions of Polystyrenes by Pulse Radiolysis (poster), \*K. Okamoto, M. Tanaka, T. Kozawa, S. Seki, S. Tagawa: International Congress of Radiation Research.

Dynamics of Chemical Intermediates in CARs of Post-optical Lithographies (poster), \*A. Saeki: EUVL Symposium.

Pico- and subpico-second pulse radiolysis based on L-band linac with femtosecond white light continuum (poster), \*A. Saeki, T. Kozawa, S. Tagawa: ASR symposium.

[ 国内学会 ]

応用物理学会

12 件

日本原子力学会	2 件
日本放射線化学会	10 件
日本化学会	2 件
高分子学会	2 件
放射線影響学会	2 件

## [ 取得学位 ]

修士 (工学)		
廣瀬 亮	化学増幅型 EUV レジストの吸光係数と酸発生效率の分子構造依存	
博士 (工学)		
小泉 美子	分子設計された共役分子の電荷キャリアおよび構造ダイナミクス	
山本 洋揮	薄膜中の放射線誘起反応に基づいた次世代リソグラフィ用レジストの設計	

## [ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)		単位：千円
基盤研究 (S)		
田川 精一	フェムト秒パルスラジオリシス法によるナノ時空間反応プロセスの解明	19,600
若手研究 (A)		
関 修平	一つの粒子が引き起こす化学反応を用いたナノ構造体の形成と特性	3,300
特定領域		
関 修平	マイクロ波による共役ポリマー分子鎖の 1 次元伝導特性の電極レス評価	1,400
基盤研究(C)		
小林 一雄	酸化ストレスをセンサーとする鉄イオウクラスターを持つ転写因子の制御機構の解明	2,200
特別研究員奨励費		
山本 洋揮	ナノビーム誘起反応機構に基づいた新規微細加工プロセスの創製	900
小泉 美子	共役高分子 1 分子鎖の本質的伝導特性の非接触定量評価	900
山上 隆平	非接触測定法による DNA 単一分子鎖の本質的伝導特性の評価	900

## [ 受託研究 ]

田川 精一	JST CREST	極微細加工用レジスト研究とプロセスシミュレーターの開発	26,910
田川 精一	技術研究組合超先端電子技術開発機構	化学増幅レジストの反応機構の研究	1,000
関 修平	株式会社 原子力安全システム研究所	マイクロ波検出技術を用いた高分子材料への放射線照射による経年劣化過程の解明	2,683
田川 精一	インテル	化学増幅型 EUV レジスト中で生成される酸のナノスケール分布形状	13,962

[ 共同研究 ]

田川 精一	三菱瓦斯化学株式会社	ArF フォトレジストに関する基礎研究	500
田川 精一	半導体先端テクノロジーズ	EUV レジストに関する研究	500
田川 精一	松下電器産業	EUV リソグラフィ用レジスト材料の溶解特性	1,000



# 新産業創成研究部門

## 概要

本研究部門は、平成 18 年度 10 月に設置され、新産業予測研究分野・新産業創造システム研究分野・知的財産研究分野の 3 つの研究分野で構成されている。本部門は、産研の持つ産業界との密接な連携の伝統を生かし、21 世紀の科学技術・産業技術の発展を先導する先端的应用研究に取り組み、成果の社会への還元に関する目標を達成するための具体的方策として「研究成果を新産業の創成に結びつける研究」を行っていく研究部門で、3 つの研究分野の研究内容は以下の通りである。

- ・ 新産業予測研究分野：今後進めるべき研究方向に密接に関連する未来社会の産業予測に関する研究を行う。
- ・ 新産業創造システム研究分野：大学の基礎研究を効率よく迅速かつ確実に新産業に結びつける基本的システムの構築に関する研究を行う。
- ・ 知的財産研究分野：大学の独創的な基礎研究から効率よく知的財産を創出し新しい潜在ニーズに繋がる知財戦略に関する研究を行う。

新産業創成研究部門では、大学の研究成果の社会還元の進展、迅速な企業化、製品化により持続的な経済発展や国民生活の向上が期待できる研究の更なる展開を図る研究を行っていく予定である。

## 成果

- ・ 資本金で分類した日本企業の成長ダイナミクス
- ・ 知財マップの開発
- ・ 新規知財創出および知財分析方法論の実証的研究
- ・ ナノテクノロジー特許に関する調査研究
- ・ 熱電発電材料に関する受託調査研究

## 新産業予測研究分野

教授（兼任） 吉田 博  
特任助教 中沢 誠  
事務補佐員 浅田 美香、伊藤 僚子

### a) 概要

21世紀を迎えた現在、日本の産業構造は、これまでのマテリアルやデバイスといったハードウェアを中心とした「工業化社会」から、システムやソフトウェアを中心とした「知識社会」へと大きく変化しつつある。この知識社会においては、工業化社会におけるようなプロセス・イノベーション（“いかに安く作るか”）ではなく、プロダクト・イノベーション（“何を作るか”）が求められており、そこでは産業構造の変化に対応した新たな戦略が必要となる。そこで我々は、既存産業の「分析」に基づいて、未来社会における新産業を「予測」（社会が求める基礎研究のシーズ予測も含む）するためのシステムの構築を目指している。

### b) 成果

#### ・資本金で分類した日本企業の成長ダイナミクス

我々は2005年から2006年における日本企業のサイズ分布と成長率を調べた。日本の商法の下では、企業は資本金に応じて大・中・小会社の三つのグループに分けられる。売上高上位の企業の網羅的なリストを解析することで、それぞれのグループにおける売上高成長率に比べ、利益成長率には顕著な差が見られ、さらに利益成長率は小・中・大会社の順に増加することがわかった。この結果は、資本金による分類が企業の成長性を論じる際の重要な指標となり得ることを示している。

#### ・知財マップの開発

技術（シーズ）と市場（ニーズ）とを可視化する手法が確立すれば、新産業を予測するための強力なツールとなり得る。そこで我々は、出願・公開された特許明細書（あるいは／及び学術論文）等の文献から当該技術の特徴をよく表現するキーワードを抽出し、当該キーワードと文献とを同一の二次元平面上の所定の位置にマッピングする、「知財マップ」の開発を進めている。今年度は、知財マップ作成ソフトウェアの初期版を完成させた。

### [ 国内学会 ]

日本物理学会	1件
産学連携学会	1件

## 新産業創造システム研究分野

特任教授 千田 一貫

### a) 概要

本研究分野は、新しい研究部門として2006年10月に設置された新産業創成(新産業予測・新産業創造システム・知的財産管理)について研究する3つの研究分野の1つである。産業界との密接な連携をはかり、21世紀の科学技術・産業技術の発展を先導する先端的研究の成果を新産業の創成に結びつける研究を行う。

特に、大学の社会的役割としてその要請に応えるべく、大学の基礎研究を効率よく迅速、かつ、確実に新産業に結びつける基本的なシステムの構築に関する研究を行う。

### b) 成果

新産業創造のシステム構築の一環として、以下の研究会を開催した。

1. 未来の治療薬の概念創成を議論する研究会
2. 新しいライフサイエンスの研究・ビジネス・産業の将来を語る会
3. 技術・知財戦略マネジメント研究会
4. 産学連携サイエンス・ビジネスクラブ

産業界との事例研究を行うために、具体的な研究体制を構築した。

(株)アテクト社から奨学寄付金 600 万円を受け入れ、ライフサイエンス領域での新産業創造システムの共同研究等に取り組んだ。実務事例として、同研究所の高次細胞構造研究分野の野地博行教授と新産業創造物質基盤技術研究センターの齋藤敬 特任准教授に協力をあおいだ。

## 知的財産研究分野

特任教授 清水 裕一

### a) 概要

材料・情報・生体分野を融合した新しい科学技術分野における大学の独創的な基礎研究から生まれる多岐に亘る知見から効率よく知的財産を創出することが求められている。本研究分野では、研究開発における知的財産の創出、知的財産の分析・評価を効率的に行う方法やプロセス等について、世界に先駆けて新しい潜在ニーズに繋がる知財戦略の研究を行う。

### b) 成果

#### ・ 知財創出および分析評価の研究

知財戦略工学研究会を開催し、知的財産である科学技術概念を効率よく正確に特許として創出する工学的手法、既存の特許の内容を詳細に分析し評価することを可能にする手法およびその応用分野の確立に向けた研究を行った。これらの研究は、新産業創造物質基盤技術研究センターのヒューマンインターフェース研究グループと共同で行った。

#### ・ ナノテクノロジー特許の調査研究

大学におけるナノテクノロジーに関する知的財産の創出と産業界での活用を目的に、国際的なナノテクノロジー特許の出願状況と内容の調査分析研究を行った。

#### ・ 熱電発電材料に関する調査研究

熱電発電素子の実用化に適した材料の研究開発状況について調査研究を行った。この調査研究は、独立行政法人新エネルギー・産業技術総合開発機構の研究開発技術シーズ育成調査委託事業の一環として行われた。

### [ 受託研究 ]

清水 裕一	(株) アセット・ウィツ	熱電素子およびその実装技術に関する調査・研究	単位：千円 1,000
-------	--------------	------------------------	----------------

## 〔附 2〕 各附属研究施設の組織と活動

# 産業科学ナノテクノロジーセンター

センター長 菅沼 克昭  
事務補佐員 林 真代

## 概要

産業科学ナノテクノロジーセンターは、幅広い領域のナノテクノロジーにフォーカスし、10年のミッションを持ったセンターである。基本は、原子・分子を積み上げ材料を創成するボトムアップ・ナノテクノロジー、材料を極限まで削りナノデバイスを作製するトップダウン・ナノテクノロジー、ナノスケールのデバイス・プロセスを評価・解析するテクノロジー、さらに積極的な産業応用を目指し総合的にナノテクノロジーを推進することを目的とした研究センターである。

①原子・分子の配列をナノスケールで直接的に制御しながら、物質・材料・デバイスの構築を行うナノマテリアル・デバイス研究部門、②量子ビームと総称される電子線やX線、レーザー、陽電子ビームなどを用いてナノファブ리케이션やナノ空間・フェムト秒に至る極短時間領域での反応解析、ナノテクノロジーに必要な不可欠な高輝度・高安定の新しい量子ビームの開発研究、ビームプロセスの基礎となるビームナノプロセスに関する研究を行うナノ量子ビーム研究部門、③産業界にとって有用であり、また将来の新産業の創出に利すると考えられるナノテクノロジーに関する科学技術を産業応用するための中核となる研究を行うナノテクノロジー産業応用研究部門、そして、④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部門があり、全体で16の研究分野から構成されている。

附属実験室は、加速器量子ビーム実験室、電子顕微鏡室、電子プロセス実験室、ナノ加工室、オープンラボラトリーがあり、阪大複合機能ナノファウンダリが設置されている。

2007年は、10年間のミッションの半ばを過ぎた折り返しにあり、前半で達成された多くの成果に基づき後半のナノテクノロジー総まとめへ向かう、新たな始動の年となった。

# ナノマテリアル・デバイス研究部門

## 概要

本部門は、ナノレベルで機能が調和し、巧みな情報変換・伝達を行い、自らが判断する知能を有する“人工生体情報ナノマテリアル”の創成を研究目的としている。また、有機、無機、金属といった従来の枠組みにとらわれず、個々の物質の持つ機能を最大限に利用する方法を確立する。量子効果が支配的となるナノスケールでの物質の性質を評価すること、エネルギー・情報変換、伝達機構を明らかにすること、ナノテクノロジーの1つである原子・分子層制御人工格子形成技術などのボトムアップ技術を駆使し、空間的、エネルギーレベル的に最適な配置・組み合わせを考慮した原子・分子配列を有する材料創製を目指す。一方で、単一分子の物性計測を可能とする合成・測定技術を開発し、単一・少数分子系の新規物理化学現象を開拓する。分子スケールエレクトロニクスを見据えて、単一分子機能が発現する自己組織的デバイス構築に必要な要素技術の確立を行う。さらに、単一分子を超えた機能を有する人工DNA、人工タンパク、人工光合成分子、ナノ粒子などの超分子の設計と合成を行い、多機能性、複合性、複合機能性を持つ分子システムの構築を行う。これら超分子の集合化・組織化を行い、人工細胞や固体素子など均一溶液系を超えた形の機能発現を行う。また、タンパク質を中心とする生体素子やその集合体をナノバイオデバイスと位置付け、それらのナノ構造と機能の解析を行う。さらに、ナノバイオデバイスを用いる超高感度バイオセンサーの開発や分子モーターを含むナノマシンの創製に関する研究などを行う。

## 成果

- ・ 原子・分子層制御結晶成長による生体情報材料人工格子の制御形成
- ・ ナノスケール構造と物性相関の評価
- ・ 新規ボトムアップ材料形成装置の開発とナノスケール界面制御
- ・ 新規ナノ加工技術の開発とボトムアップ/トップダウン融合
- ・ 学習・判断機能をもつ脳型メモリ素子の創成
- ・ 分子自己集積現象を利用したデバイス形成の研究
- ・ 分子デバイスのための分子/電極界面設計
- ・ ナノトランスファープリンティングによるトップコンタクトナノ電極の形成
- ・ 絶縁体基板を用いる静電気力顕微鏡の開発
- ・ 時間分解静電気力検出の方法論の開発
- ・ 点接触電流画像化原子間力顕微鏡による分子界面とネットワークの電気特性計測
- ・ 周波数検出原子間力顕微鏡による分子認識の画像化
- ・ DNA ナノブロックを利用した DNA 分子センサーの開発
- ・ 光増感 DNA 損傷機構の解明
- ・ 多機能不斉金属ナノ触媒の開発
- ・ 機能性球状粒子の効率的合成法の開発と機能評価
- ・ 銅含有アミン酸化酵素の触媒反応中間状態の構造解析
- ・ MFS 型大腸菌異物排出トランスポーターの大量精製と結晶化

## 人工生体情報ナノマテリアル分野

教授 田中 秀和（平成 20 年 1 月着任）  
事務補佐員 永井 由美、池田 恵

### a) 概要

トップダウンナノテクノロジー（超微細ナノ加工技術）とボトムアップナノテクノロジー（超薄膜・ヘテロ接合・人工格子結晶成長）とを融合する技術的方法論を確立し、ナノレベルでの機能調和、巧みな情報交換・伝達を行い、自らが判断する知能を有する“人工生体情報ナノマテリアル”の創製を目指しています。とくに、機能性酸化物を中心として、ナノポジショニングコントロールされたヘテロ人工構造を形成し、光・電界・磁界・温度の外場情報を検出し、界面を通じて情報変換や学習を模した情報伝達を行い、電子スピンなどにより記憶し室温動作する 3 次元多機能集積型ナノシステムへの展開を図っています。今年度の主な研究課題としては、①トップダウン・ボトムアップ融合による機能性酸化物ナノ構造の形成、②室温動作デバイスに向けた環境調和高温磁性半導体スピネル Fe 系酸化物薄膜の物性評価、③強誘電体/強磁性体ヘテロ接合による強磁性電界効果トランジスタ作製、が挙げられる。

### b) 成果

#### ・トップダウン・ボトムアップ融合による機能性酸化物ナノ構造の形成

機能性酸化物に対するナノ微細化加工技術の発展は、量子サイズ効果などのナノ物性の興味に加え、素子作製および高集積化に直結する重要な課題である。しかし、酸化物材料・素子においてフォトリソグラフィなどにより  $1\mu\text{m}$ ~ $200\mu\text{m}$  程度のサイズでプロトタイプ素子が作製されているのが現状であり、集積化、高効率化、新動作原理発見などを実現するにはナノ加工技術手法の開発が非常に重要となってくる。これまでに、サブ  $50\text{nm}$  級の微細加工を実現する酸化物 AFM ナノリソグラフィを開発してきたが、今年度は、大面積に一括してナノ構造を形成するために、酸化物ナノインプリント・リソグラフィ法の開発を行った。

ナノインプリント法は Si など半導体微細加工において、超高分解能、大量・大面積、低コスト一括ナノ構造生産の期待が寄せられている方法である。この方法が遷移金属酸化物薄膜形成に応用できれば、応用上および多面的な物性測定への適用範囲が非常に広がる。

金属酸化物薄膜に対しては Mo をリフトオフ用のナノマスクとして用いるインプリントリソグラフィ法 (Mo ナノマスクリフトオフインプリント法) を提案し研究を進めた。例として高温強磁性酸化物  $(\text{Fe,Mn})_3\text{O}_4$  薄膜のナノ構造体形成に対し以下のようなプロセスを行った。①  $\text{Al}_2\text{O}_3(0001)$  単結晶基板 ( $2\text{cm}\times 2\text{cm}$ ) 上に塗布した PMMA 膜に石英モールドによりドットパターンを形成後、この上にスパッタリング法により Mo 薄膜を積層する。②続いてアセトン中超音波洗浄により、PMMA 層を除去し Mo ドットナノマスクを形成する。③その後、PLD 法により、基板温度  $360^\circ\text{C}$ 、酸素ガス圧  $10^{-4}\text{Pa}$  において金属酸化物薄膜 ( $(\text{Fe,Mn})_3\text{O}_4$ ) を積層し、その後  $\text{H}_2\text{O}_2$  によって、Mo 層からのリフトオフにより、酸化物ナノドットを形成する。

このようなナノ加工方法により、 $100\text{nm}$  径程度のエピタキシャル成長した  $(\text{Fe,Mn})_3\text{O}_4$  ナノドットアレイを大面積で得ることに成功した。

#### ・室温動作デバイスに向けた環境調和高温磁性半導体スピネル Fe 系酸化物薄膜の物性評価

スピネル構造を持つ鉄酸化物は非常に高い強磁性転移温度をもつ絶縁性フェリ磁性体であり、フェライト磁石など多様な用途に使用されている。但し一般に非常に電気伝導性が低いためスピントロニクス応用には適さない。この中でマグネタイト ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ) だけは例外的に高い伝導度を持ち、 $T_c$  は約  $860\text{K}$  と非常に高く、バンド計算、スピン偏極光電子分光などからほぼ完全にスピン偏極していると考えられており、スピントロニクス応用に適した物性を持つ。しかし、キャリア変調という半導体的性質を活用するには、



その多大なキャリア濃度 ( $\sim 10^{22}/\text{cm}^3$ ) のために不可能であり、また容易に酸化され特性が劣化し誘電体ゲート層との積層が困難であることから機能調和ヘテロ接合に適さない欠点があった。

そこで、室温を遥かに超える強磁性転移温度を持ち、自由なキャリア濃度制御が可能な強相関電子系強磁性半導体材料として新物質 $\text{Fe}_{3-x}\text{MO}_4$  ( $M = \text{Zn}, \text{Mn}$ ) 固溶体を提案し、レーザアブレーション法により作製した。

$\text{Fe}_{3-x}\text{Zn}_x\text{O}_4$  薄膜の室温での移動度、キャリア濃度、抵抗率のZn濃度依存性および、 $x=0.5$  における異常Hall効果測定を行い、キャリアスピンの室温で偏極していることを確かめた ( $T_C$ は 400K以上である。)。電気伝導度はZn濃度 $x$ が増加するに従い低下する。Hall係数の高磁場部から算出したキャリア濃度・移動度からその主原因はZnの置換に伴うキャリア濃度の減少 ( $10^{22}/\text{cm}^3(x=0)$ から $\sim 10^{21}/\text{cm}^3(x=0.5)$ ) であり、移動度は低下しないことが分かった。更にSPRING-8に於ける硬X線光電子分光測およびX線吸収分光測定による内殻電子・スピン状態評価から置換元素は 2 価でA サイトに置換され、Bサイトの $\text{Fe}^{2+}$ の比を減少させることが示された。これらの結果は $\text{Fe}_{3-x}\text{Zn}_x\text{O}_4$ 固溶系が、強相関電子系の強磁性半導体であり、キャリア濃度の系統的な制御がスピン偏極伝導機構を保持したまま可能な系であることを示している。

このような新機能物質 $(\text{Fe,Zn})_3\text{O}_4$ は、優れた資源保護・環境調和性、低温薄膜成長などの多くのメリットがあり、室温以上で巨大な外場応答性を示すデバイス材料として期待できる優れた材料であることを見出した。

#### ・強誘電体/強磁性体ヘテロ接合による強磁性電界効果トランジスタ作製

$\text{Fe}_{3-x}\text{Zn}_x\text{O}_4$  薄膜における系統的なキャリア濃度コントロール、400K以上の高温キャリアスピン偏極、耐酸化性向上は、高温動作多機能酸化物スピントロニクスデバイスの形成を可能とする。代表的適用例として、高温強磁性半導体  $\text{Fe}_{3-x}\text{Zn}_x\text{O}_4(x=0.5)$  をチャネル層、強誘電体 $\text{Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$  をゲート層としたボトムゲート型強誘電体電界効果トランジスタ構造を作製した。磁性を評価する為にチャネル層へ適用した磁気Kerr効果測定によると、室温に於いて強誘電ゲート層の極性を反転させることにより強磁性層のヒステリシスが、大きく変調されることを確認した。この結果は伝導と磁性がカップルしていることを示唆しており、スピネルフェライトは、プロセス適合性も含めて高温で動作する電界・光応答スピントロニクスデバイスの良い候補であることを実証した。

#### [ 原著論文 ]

Electronic structures of  $\text{Fe}_{3-x}\text{M}_x\text{O}_4$  ( $M=\text{Mn,Zn}$ ) spinel oxide thin films investigated by x-ray photoemission spectroscopy and x-ray magnetic circular dichroism, J. Takaobushi, M. Ishikawa, S. Ueda, E. Ikenaga, J.-J. Kim, M. Kobata, Y. Takeda, Y. Saitoh, M. Yabashi, Y. Nishino, D. Miwa, K. Tamasaku, T. Ishikawa, I. Satoh, H. Tanaka, K. Kobayashi, T. Kawai: Phys. Rev. B, 76 (2007) 205108.

Interface Effect on Metal-Insulator Transition of Strained Vanadium Dioxide Ultrathin Films, K. Nagashima, T. Yanagida, H. Tanaka, and T. Kawai: J. Appl. Phys., 101 (2007) 026103.

Thickness Dependence of Structure and Magnetization of  $\text{BiFeO}_3$  Films on  $(\text{LaAlO}_3)_{0.3}(\text{Sr}_2\text{AlTaO}_6)_{0.7}$  (001) Substrate, D.S. Rana, K. Takahashi, K.R. Mavani, I. Kawayama, H. Murakami, M. Tonouchi, T. Yanagida, H. Tanaka and T. Kawai: Phys. Rev. B, 75 (2007) 060405.

Functional lipid vesicles based on artificial electric-taster sensor, H.S. Jung, H. Tanaka, H.Y. Lee, T. Kawai: Molecular Crystals and Liquid Crystals, 463 (2007) 553-561.

Control of Magnesium Oxide Nanowire Morphologies by Ambient Temperature, K. Nagashima, T. Yanagida, H. Tanaka, and T. Kawai: Appl. Phys. Lett., 90 (2007) 233103.

Epitaxial growth of MgO nanowires by pulsed laser deposition, K. Nagashima, T. Yanagida, H. Tanaka, and T. Kawai: J. Appl. Phys., 101 (2007) 124304.

Effect of ablated particle flux on MgO nanowire growth by pulsed laser deposition, A. Marcu, T. Yanagida, K. Nagashima, H. Tanaka, and T. Kawai: *J. Appl. Phys.*, **102** (2007) 016102.

Magnetic and electric properties of Fe-doped ITO thin films, T. Ohno, T. Kawahara, M. Murasugi, H. Tanaka, T. Kawai, S. Kohiki: *J. Magnetism and Magnetic Materials*, **310** (2007) E717-E719.

Transport properties of  $ZnFe_2O_4$ -delta thin films, A. Marcu, T. Yanagida, K. Nagashima, H. Tanaka and T. Kawai: *J. Appl. Phys.*, **102** (2007) 023713.

Mechanism of catalyst diffusion on magnesium oxide nanowire growth, T. Yanagida, K. Nagashima, H. Tanaka, T. Kawai: *Appl. Phys. Lett.*, **91** (2007) 061502.

Epitaxial transition metal oxide nanostructures fabricated by a combination of AFM lithography and molybdenum lift-off, N. Suzuki, H. Tanaka, T. Kawai: *Advanced Materials*, **20** (2008) 909-913.

機能発揮・製造プロセス知識統合的記述枠組みに基づくナノテク材料設計支援システムの開発, 垂見 晋也, 古崎 晃司, 來村 徳信, 田中 秀和, 溝口 理一郎: *人工知能学会論文誌*, **23** (1) (2008) 36-49.

#### [ 解説、総説 ]

機能性遷移金属酸化物薄膜の極限ナノ加工, 田中 秀和, 神吉 輝夫, 鷹尾伏 純一, 川合 知二, *J. Vac. Soc. Jpn.*, **51** [1] (2008) 37-43

強相関酸化物ヘテロ構造によるスピニエレクトロニクス素子, 田中 秀和, 神吉 輝夫, 鷹尾伏 純一, 川合 知二, *機能材料*, **28** [3] (2008) 54-62

#### [ 特許 ]

「不揮発性光メモリ、光情報の記憶方法、及び光情報の読出方法」川合知二、田中秀和、朴影根、李惠よん、神吉輝夫、特許 **3972096**

「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、特許 **4004205**

「パターンニング方法、積層体、並びにアレイ基板および電子デバイス」川合知二、田中秀和、鈴木直毅、特開 **2008-053473**

「Tunneling Magnetoresistance Device Semiconductor Junction Device Magnetic Memory and Semiconductor Light-Emitting Device」田中秀和、川合知二、国際特許 **US7309903 B2** (USA)

「Field-Effect Transistor」田中秀和、神吉輝夫、朴影根、川合知二、特許第 **10-0731960** (韓国)

#### [ 国際会議 ]

Construction of Ferromagnetic Oxides Nano-Channel Structures Toward Nano area-FET devices by AFM Lithography (invited), \*H. Tanaka, T. Kawai: 2007 Materials Research Society Spring Meeting, San Francisco, USA, April 9-14, 2007.

Electronic structure of spinel  $\text{Fe}_{3-x}\text{Zn}_x\text{O}_4$  thin films towards a novel application for semiconductor oxide nano spintronics, \*H. Tanaka, J. Takaobushi, N. Suzuki, T. Kawai, S. Ueda, K. Kobayashi, J.-J. Kim, M. Kobata, E. Ikenaga, M. Yabashi Y. Nishino, D. Miwa, K. Tamasaku, T. Ishikawa: The 14th International Workshop on Oxide Electronics, Jeju island, Korea, October 7-10, 2007.

Nanowire Heterostructures of Transition Metal Oxides (poster), \*T. Yanagida, K. Nagashima, A. Marcu, H. Tanaka and T. Kawai: The 14th International Workshop on Oxide Electronics, Jeju island, Korea, October 7-10, 2007.

Large-area nano patterning of transition metal oxide films by the nanoimprint lithography based Mo lift-off technique (poster), \*N. Suzuki, S. Yamanaka, H. Tanaka, B. K. Lee, H. Y. Lee and T. Kawai: The 14th International Workshop on Oxide Electronics, Jeju island, Korea, October 7-10, 2007.

Electric Field Modulation of Magnetism in Spinel Ferrite Field Effect Transistor at Room Temperature (poster), \*J. Takaobushi, H. Tanaka, T. Kawai: 1st Global COE International Symposium Electronic Devices Innovation (EDIS 2008), Osaka, Japan, January 21-22, 2008.

Fabrication of  $\text{Fe}_{3-x}\text{Mn}_x\text{O}_4$  nanostructure using Mo nanomask AFM lithography (poster), \*K. goto, H. Tanaka, T. Kawai: 1st Global COE International Symposium Electronic Devices Innovation (EDIS 2008), Osaka, Japan, January 21-22, 2008.

High throughput fabrication of the integrated  $\text{Fe}_{3-x}\text{M}_x\text{O}_4$  (M=Mn and Zn) nano array structures in large area by Nanoimprint lithography with Mo lift-off technique and their magnetic properties (poster), \*S. Yamanaka, N. Suzuki, B. K. Lee, H. Y. Lee, H. Tanaka, T. Kawai: 1st Global COE International Symposium Electronic Devices Innovation (EDIS 2008), Osaka, Japan, January 21-22, 2008.

Significance of 3D Epitaxy on Heterostructured Oxide Nanowires (poster), \*K. Oka, T. Yanagida, K. Nagashima, H. Tanaka, and T. Kawai: 1st Global COE International Symposium Electronic Devices Innovation (EDIS 2008), Osaka, Japan, January 21-22, 2008.

Crucial role of heterointerface on MgO/titanate core-shell nanowires (poster), \*K. Nagashima, T. Yanagida, K. Oka, H. Tanaka, S. Seki, A. Saeki, S. Tagawa and T. Kawai: 1st Global COE International Symposium Electronic Devices Innovation (EDIS 2008), Osaka, Japan, January 21-22, 2008.

High Temperature Spintronic Oxide:  $(\text{Fe,Zn})_3\text{O}_4$  Their Electronic Structure and Application for Field Effect Device (invited), \*H. Tanaka and T. Kawai: 3rd Indo-Japan Conference on Ferroics and Multiferroics, Kolkata, India, February 3-6, 2008.

Fabrication of  $(\text{Fe,Mn})_3\text{O}_4$  nanostructure using Mo nanomask AFM lithography (poster), \*K. goto, H. Tanaka, T. Kawai: 11th Sanken, 6th Nanotechnology Center and 1st MSTEC International Symposium New Advances in Nanoscience & Nanotechnology, Hyogo, Japan, February 4-5, 2008.

High throughput fabrication of the integrated  $\text{Fe}_{3-x}\text{M}_x\text{O}_4$  (M=Mn and Zn) nano array structures in large area by Nanoimprint lithography with Mo lift-off technique and their magnetic properties (poster), \*S. Yamanaka, N. Suzuki, B. K. Lee, H. Y. Lee, H. Tanaka, T. Kawai: 11th Sanken, 6th Nanotechnology Center and 1st MSTEC International Symposium New Advances in Nanoscience & Nanotechnology, Hyogo, Japan, February 4-5, 2008.

Crucial role of Heterointerface on Transport Properties of In-situ Formed MgO/titanate Core-shell Nanowires (poster), \*K. Oka, K. Nagashima, T. Yanagida, H. Tanaka, T. Kawai, S. Seki, A. Saeki and S. Tagawa: 11th Sanken,

6th Nanotechnology Center and 1st MSTE International Symposium New Advances in Nanoscience & Nanotechnology, Hyogo, Japan, February 4-5, 2008.

Transport Nature of Low Temperature Grown NiO Thin Films (poster), \*K. Oka, T. Yanagida, K. Nagashima, H. Tanaka, and T. Kawai: 11th Sanken, 6th Nanotechnology Center and 1st MSTE International Symposium New Advances in Nanoscience & Nanotechnology, Hyogo, Japan, February 4-5, 2008.

In-situ Formation of MgO/NiO Heterostructured Oxide Nanowires (poster), \*K. Oka, T. Yanagida, K. Nagashima, H. Tanaka and T. Kawai: 11th Sanken, 6th Nanotechnology Center and 1st MSTE International Symposium New Advances in Nanoscience & Nanotechnology, Hyogo, Japan, February 4-5, 2008.

Effect of Heterointerface on Transport Properties of In-situ Formed MgO/titanate Core-shell Nanowires (poster), \*K. Oka, K. Nagashima, T. Yanagida, H. Tanaka and T. Kawai: 15th International Colloquim on Scanning Probe Microscopy (ICPM15), Shizuoka, Japan, December 6-8, 2007.

Role of Three-Dimensional Epitaxy on MgO/NiO Heterostructured Oxide Nanowire Formation (poster), \*K. Oka, K. Nagashima, T. Yanagida, H. Tanaka and T. Kawai: 15th International Colloquim on Scanning Probe Microscopy (ICPM15), Shizuoka, Japan, December 6-8, 2007.

Nature of Transport Properties in Low Temperature Grown NiO Films (poster), \*K. Oka, K. Nagashima, T. Yanagida, H. Tanaka and T. Kawai: 15th International Colloquim on Scanning Probe Microscopy (ICPM15), Shizuoka, Japan, December 6-8, 2007.

Development of a Design Supporting System for Nano-Materials based on a Framework for Integrated Knowledge of Functioning-Manufacturing Process, \*S. Tarumi, K. Kozaki, Y. Kitamura, H. Tanaka and R. Mizoguchi: The 10th IASTED International Conference Intelligent Systems and Control(ISC2007),Cambridge, Massachusetts, USA, November 19-21, 2007.

#### [ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

田中 秀和 The IEEE Nanotechnology Materials and Device Conference (NMDC 2008) (サブコミッティ)  
田中 秀和 4th Handai Nano science and Nanotechnology International Symposium ( Organizing Committee. Chair)

#### [ 国内学会 ]

日本真空協会	1 件
日本物理学会	1 件
応用物理学会	1 件

#### [ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの) 単位：千円  
萌芽研究  
田中 秀和 ナノ粒子溶液輸送法による 3次元エピタキシー技術の開発 1,300

#### [ 受託研究 ]

田中 秀和	(財) 高輝度光科学研究センター、 (独) 物質・材料研究機構	3次元化学状態解析硬 X線 光電子分光装置	1,712
-------	------------------------------------	--------------------------	-------

[ 奨学寄附金 ]

田中 秀和	(財) 御器谷科学技術財団		820
田中 秀和	(財) 関西エネルギー・リサイクル科学研究振興財団		80

## 単分子素子集積デバイス分野

教授（兼任）	川合 知二
准教授	松本 卓也
特任助教	李 奉局
事務補佐員	野木 由美子

### a) 概要

次世代の新しいエレクトロニクス of 担い手として、分子スケールデバイスが注目されている。分子の機能を引き出すには、分子を組織化することが必要である。プログラム自己組織化の考え方に基づく分子構造体の形成や、生体分子の機能解析や検出のための多機能性電気化学型ナノバイオセンサーシステムの開発を行っている。さらに絶縁体基板上に構築した分子回路の電気特性を計測するための、新しい走査プローブ顕微鏡測定手法の開発を行っている。また、ボトムアップ手法とトップダウン技術が融合した自己組織化配線法やプローブ生体分子のナノアレイ化手法を開発し、ナノ分子デバイスや生体分子センサーの要素技術開発をおこなっている。

### b) 成果

#### ・金—セレン界面の電子状態の解明

自己組織化膜の発見以来、**Au-S** 結合が金属—分子接合として広く用いられてきた。しかし、我々のグループは、光電子分光測定により、**Au-S** 結合より **Au-Se** 結合の方が、分子デバイスに適した電極—分子界面であることを見出し、電極—分子界面が分子デバイスの電気伝導性を支配するため、**Au-Se** 界面の詳細な構造と電子状態を調べる必要がある。そこで、本年度は、**Au-Se** 界面の構造と電子状態を走査トンネル顕微鏡(**STM**)と電子状態計算を用いて調べた。高分解能 **STM** 観察の結果、金(111)上におけるベンゼンセレンレート単分子膜の吸着構造が  $2\sqrt{7} \times \sqrt{3}$  herringbone 構造であることを明らかにした。**STM** 観察で得られた吸着構造は、第一原理計算で計算された最適化構造と一致した。さらに、第一原理計算による **Au**-ベンゼンセレンレート界面の電子状態計算の結果、フェルミ準位近傍がベンゼンセレンール孤立分子の **HOMO** により形成されることを明らかにし、**Au-Se** 結合により形成される金属—分子界面では、電子移動、あるいは電子輸送が容易であることが示唆された。

#### ・微細加工 MCBJ の開発

ナノスケール分子エレクトロニクスの実現には、ナノデバイスを創るプロセス技術の開発とともに、素子となる単分子の電気特性を明らかにしなければならない。これまで幾つかの方法により、単分子、あるいは少数分子の電気特性が測定されてきたが、既存の計測技術では電極—分子—電極接合を長時間安定に保持することが困難であった。この接合系の不安定性を解消すれば、信頼性のある単分子計測を行うことができ、詳細な物性を調べていくことができる。そこで、本年度は、安定性の高い単分子計測技術の開発を行った。測定には、機械的破断接合(**MCBJ**)を用いた。従来の **MCBJ** では、量子伝導が得られる金の単原子接点を室温で **10m** 秒程度しか保持できなかったが、微細加工で作製したナノ金属細線を用いることで、金の単原子接点を **100** 秒以上保持することに成功した。我々は、この微細加工 **MCBJ** を用いて、様々な単分子の電気伝導測定を行いデバイス機能の探索を行うとともに、電気特性による電極—分子界面の評価や、単分子の非弾性トンネル分光を行っている。

#### ・絶縁体上ナノ物質の電荷計測

電子デバイスは絶縁体基板上に構築される。ナノスケール分子デバイスの動作状態を画像化すること

を目的に、絶縁体基板上的吸着分子やナノ構造における局所電荷観察手法の開発を行った。これまで、表面吸着分子の電荷計測は数多く報告されているが、全て導体基板上的測定である。微小な吸着分子の電荷を検出するためには電場変調が必要であるので、導体基板を用いてケルビンフォース顕微鏡を基礎とした測定が行われてきた。絶縁体基板上では、電場変調がかからず、静電ポテンシャルも決まらないので、測定そのものが無意味であると考えられてきた。しかし、厚い絶縁体基板上に吸着した小分子の電荷状態の観測が可能であることを、計算と実験の両面から証明した。絶縁体基板の裏側に電極を密着して配置した。対抗電極までの距離が基板の厚みより充分遠ければ、試料表面の静電ポテンシャルは、ほぼ裏側電極の値と同じになる。この表面に接地された先鋭な探針を接近させたときの表面電位の様子を、有限要素法を用いて解析した。その結果、試料-表面間距離がわずか5 nmまで接近しても、裏側電極の10%程度の電位が探針直下の表面上に残り、吸着分子に対して十分な電場変調をかけられることを見出した。完全な絶縁体であるマイカ基板、サファイア基板上に吸着したDNA、金微粒子、水、RNAポリマーゼについて実験を行い、 $0.01e$  ( $10^{-20}$  F) レベルの電荷および分極の観測が可能であることを明らかにした。

#### ・ $Mn_{12}$ 核錯体アレーの電気伝導

DNAをテンプレートとして、色素分子<sup>4)</sup>、金属錯体、微粒子<sup>5)</sup>など分子エレクトロニクスの構成要素の配列をおこなっている。 $Mn_{12}$ 核錯体はマンガン3価と4価の混合原子価状態をとる。このような系では、電子の授受が可能であるので、適切なナノスケールの分子配置により電気伝導性が期待できる。 $Mn_{12}$ 核錯体にアニリンを導入し、DNAのリン酸基とイオン結合を形成することで、DNA鎖に沿った $Mn_{12}$ 核錯体分子アレーを形成した。この分子アレーを基板上に展開し、その上から、これまでに開発した傾斜蒸着法により約50nmの間隙を有するトップコンタクト電極を作製した。10 Kから室温までの電気特性を調べると、3つの温度領域に分かれたアレニウスプロットに一致することがわかった。とくに、150 K以下の低温では、電流値はほぼ一定となり、トンネリングが伝導の主たるメカニズムであると考えられる。この結果から、低温における伝導では、各 $Mn_{12}$ 核錯体の酸化還元準位が良くそろっていて、ミスアライメントによる熱励起過程は殆ど起こらない系を実現できたことがわかった。

#### [ 原著論文 ]

Anchoring Gold Nanoparticles Onto a Mica Surface by Oxygen Plasma Ashing for Sequential Nanocomponent Assembly, A. Takagi, K. Ojima, E. Mikamo, T. Matsumoto and T. Kawai: Appl. Phys. Lett., 90 (4) (2007) 043122-1-04312-3.

Refinement of Conditions of Point-contact Current Imaging Atomic Force Microscopy for Molecular-Scale Conduction Measurements, T. Yajima, H. Tanaka, T. Matsumoto, Y. Otsuka, Y. Sugawara and T. Ogawa: Nanotechnology, 18 (9) (2007) 095501 (5pp).

Tunnelling Charge Injection into a Pentacene Layer Using Dynamic-Mode Scanning Force Microscopy, T. Kusaka, K. Ojima, T. Matsumoto and T. Kawai: Nanotechnology, 18 (9) (2007) 095503 (5pp).

Discrete Dihedral-Angle Modulation in Porphyrin Wheels Adsorbed on Cu(100) Observed by Scanning Tunneling Microscopy, A. Takagi, T. Hori, X. Peng, N. Aratani, T. Matsumoto, A. Osuka and T. Kawai: Surface Sci., 601 (10) (2007) 2178-2181.

Control of the Electrode-Molecule Interface for Molecular Devices, K. Yokota, M. Taniguchi and T. Kawai: J. Am. Chem. Soc., 129 (18) (2007) 5818-5819.

Electronic States of The DNA Polynucleotides Poly(dG)poly(dC) in The Presence of Iodine, M. Furukawa, Hiroyuki S. Kato, M. Taniguchi, T. Kawai, T. Hatsui, N. Kosugi, T. Yoshida, M. Aida and M. Kawai: Phys. Rev. B, 75 (4) (2007) 045119-045127.

Synthesis of Dendritic Oligothiophenes and Their Self-Association Properties by Intermolecular - Interactions, N. Negishi, Y. Ie, M. Taniguchi, T. Kawai, H. Tada, T. Kaneda and Y Aso: *Org. Lett.*, 9 (5) (2007) 829-832.

Infrared Spectroscopy on poly(dG)-Poly(dC) DNA at Low Hydration, H. Abdurakhman, K. Tajiri, H. Yokoi, N. Kuroda, H. Matsui, T. Yanagimachi, M. Taniguchi, T. Kawai and N. Toyota: *J. Phys. Soc. Jpn.*, 76 (2) (2007) 024009-024014.

Synthesis of Nanometer-Scale Porphyrin Wheels of Variable Size, T. Hori, X. Peng, N. Aratani, A. Takagi, T. Matsumoto, T. Kawai, Z. S. Yoon, M.-C. Yoon, J. Yang, D. Kim, and A. Osuka: *Chem. Eur. J.*, 14 (2) (2008) 582-595.

#### [ 解説、総説 ]

「表面物性工学ハンドブック第2版」(小間篤、青野正和、石橋幸治、塚田捷、常行真司、長谷川修司、八木克道、吉信淳 共編) 松本卓也、観察例3-DNA、第6章SPM、第2節STM、第3項、(2007) 292-293

「表面物性工学ハンドブック第2版」(小間篤、青野正和、石橋幸治、塚田捷、常行真司、長谷川修司、八木克道、吉信淳 共編松本卓也、) 分子マニピュレーション、第19章 SPM マニピュレーション、第2節、(2007) 769-772

「ナノ学会会報」谷口正輝、川合知二、自己組織化配線法を用いたナノ分子デバイスの開発、6 [1]、(2007) 23-28

#### [ 特許 ]

「Probe device」, Takuya Matsumoto, Yasuhisa Naitoh, Tomoji Kawai,  
登録番号 US 7,250,602 B2 登録日 : Jul. 31, 2007

「核酸を用いた微細構造制御法の微粒子担特触媒への応用」, 前田 泰、藤谷 忠博、香山 正憲、松本 卓也、高木 昭彦 : 特願 2007-296175 出願日 2007年11月15日

#### [ 国際会議 ]

Hopping Conduction Through Macromolecules (invited), \*T. Matsumoto: The Nanoelectronics and Dynamics of DNA, Hawaii, U.S.A. Aug 26-28, 2007.

Self-organized interconnect method for molecular devices, \*M. Taniguchi, J. Terao, T. Kawai: Electron transport through a linked molecule in nano-scale, Tokyo, Japan, Aug 18-20, 2007.

Interface and Grain Boundary in Organic Nanoelectronics (invited), \*T. Matsumoto: Printed Electronics ASIA07, Tokyo, Japan Sep 10-11, 2007.

Surface Potential and Capacitance Images of Biological Molecules on Insulating Substrates (poster), \*T. Matsumoto, F. Yamada, E. Mikamo-Sato, A. Takagi, T. Kawai: 10th International Non-Contact AFM 2007, Antalya, Turkey, Sep16-20, 2007.

Molecule Recognition Imaging by Frequency Shift Detection in Liquid, \*T. Matsumoto, T. Kawahara, H. Hokonohara, T. Kawai: 10th International Non-Contact AFM 2007, Antalya, Turkey, Sep16-20, 2007.



Nanoscale Hopping Conduction Through Cytochrome c and Mn12-complex (invited), \*T. Matsumoto: Seminar at physics department of Genova University, Genova, Italy, Sep 24, 2007.

Surface Potential and Capacitance Images of Biological Molecules on Insulating Substrates, \*T. Matsumoto, F. Yamada, E. Mikamo-Satoh, A. Takagi, T. Kawai: 15th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM15), Atagawa, Japan, Dec. 6- 8, 2007.

Inelastic tunneling spectroscopy of single molecule using nanofabricated mechanically controllable break-junction (invited), M. Taniguchi, M. Tsutsui, K. Shoji, T. Kawai: CREST Symposium on Theories and Simulations for Charge Migration and Chemical Reactions at Nano-Scale Interfaces, Tsukuba, Japan, Jan 29-31, 2008.

[ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

松本 卓也 表面科学とナノテクノロジーに関する国際会議 (ISSS-5) プログラム委員  
松本 卓也 e-Journal of Surface Science and Nanotechnology Editorial Board

[ 国内学会 ]

応用物理学会	18 件
日本物理学会	7 件
分子構造総合討論会	3 件
日本化学会	3 件
その他	6 件

[ 取得学位 ]

博士 (理学)	
山田 郁彦	DNA を用いた微粒子及び分子複合体のナノスケール電気・磁気物性に関する研究
修士 (基礎工学)	
川口 英幸	両極性有機 FET における絶縁膜の効果

[ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)	単位：千円
若手研究 (B)	
谷口 正輝	分子デバイス配線法の開発 500
特定領域研究	
谷口 正輝	分子-電極接合の界面制御技術の開発 2,100

[ 受託研究 ]

谷口 正輝	独立行政法人科学技術振興機構 自己組織化配線法による超高集積分子デバイスの創製 3,198
-------	---

[ 共同研究 ]

谷口 正輝	松下電器産業	被覆共役分子を用いた新規機能性材料の開発	2,250
-------	--------	----------------------	-------

[ その他の競争的研究資金 ]

松本 卓也	日本板硝子材料工学助成会	<b>Mn12</b> 核錯体ナノアレーの室温磁気抵抗効果	1,450
-------	--------------	-------------------------------	-------

松本 卓也	池谷科学技術振興財団	<b>DNA</b> 自己組織化ナノ分子アレーを用いた室温磁気抵抗デバイス	1,500
-------	------------	---------------------------------------	-------

松本 卓也	電子回路基板技術振興財団	ナノトランスファーによるトップコンタクト電極回路の形成と特性評価	1,000
-------	--------------	----------------------------------	-------

谷口 正輝	信越化学工業株式会社	ポリマー <b>FET</b> の開発	2,000
-------	------------	---------------------	-------

## 超分子プロセス研究分野

教授（兼任） 真嶋 哲朗  
准教授 川井 清彦  
助教 滝澤 忍、辛川 誠

### a) 概要

当研究分野では、光・電子機能、分子認識、触媒作用、高次構造、機能集積などの機能性分子の機能解明に基づいて、機能性有機分子、高分子、生体分子などの設計・合成・集合化・組織化を達成し、高機能分子材料の創製、その機能発現機構や作用機構の解明、あるいは高機能分子、多機能分子や分子材料の創製のプロセス開発など産業応用化を目指して研究を行っている。特に、**DNA** が配列情報をもとに様々な構造を構築可能であることおよび **DNA** 内を電荷が移動可能であることを利用した、**DNA** 中における高効率光電荷分離系の構築に関して検討しており、同時に **DNA** 内電荷移動速度を利用した **DNA** 情報の読み出しを行っている。

また、少量のキラル触媒から大量の光学活性化化合物を合成できる触媒的不斉合成は、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。

また、塗布薄膜での高いキャリア輸送の実現を目指して、強い  $\pi$  スタック分子間相互作用を誘起する分岐骨格を有するポリチオフェンの開発と移動度の評価、および、有機エレクトロニクスへの応用を推進している。

### b) 成果

#### ・ DNA を利用した光電荷分離系の構築

**DNA** は、グアニン (**G**)、アデニン (**A**)、チミン (**T**)、シトシン (**C**) の塩基の配列順序という形で我々の遺伝情報を運ぶ分子である。**G** は **C** と、**A** は **T** とそれぞれ塩基対を形成し、配列情報に応じて通常の 2 本鎖構造に留まらず、様々な 2 次元、3 次元のナノ構造の形成に利用することができる。**DNA** が導線として働けば、ナノテクノロジーの進展に大きく寄与すると期待され、これまでに様々なフィールドの研究者によって **DNA** 内の電荷移動に関する研究が行われてきた。特に、**DNA** を電荷の通り道として利用することにより達成される **DNA** 中における光電荷分離は、**DNA** ナノエレクトロニクス、一塩基多型や相補鎖 **DNA** 検出の観点から注目されているが、電荷分離収率が低く、また励起に近紫外光を必要としたため、実用化には至っていない。これまで **DNA** 内で長寿命電荷分離が観測された光増感剤は、主に 2 番目に酸化電位の低い **A** の酸化に基づいて長寿命電荷分離を生じ、光増感剤と隣接する **A** のコンタクトイオンペア内の速い逆電子移動が電荷分離収率の低い原因となっていた。そこで我々は、酸化される塩基と光増感剤の間に **redox** 不活性なスペーサー塩基対を配置することにより、コンタクトイオンペアの形成を妨げ、電荷分離収率を向上できるのではと考えた。本年度は、核酸塩基の中で最も酸化電位の低いグアニン (**G**) のみを酸化可能、従って **A-T** 塩基対を **redox** 不活性なスペーサーとして使用でき、さらには可視光励起が可能であるアクリジンを用いて **DNA** 内光電荷分離を検討した。

アクリジンと **G** 間にスペーサーとして **A-T** 塩基対を配置し、電子と正孔 (ホール) を引き離すため **G** 間のホール移動では最も速度が速くなると予想される **G** 連続配列をホールの通り道として使用し、最終的なホールトラップとして **G** よりもさらに酸化電位の低いフェノチアジンをを用いた。スペーサー **A-T** 塩基対の数、また、電荷分離収率を最適化するため光増感剤と **G** 間の周囲の環境を変化させた種々の **DNA** を合成し、ナノ秒レーザーフラッシュフォトリススにより、アクリジンとフェノチアジン間の電荷分離状態の生成について評価した。その結果、アクリジンと **G** が隣接する場合は電荷分離状態の生成が観測

されないのに対し、スパーサー塩基対を導入することにより可視光による DNA 内光電荷分離状態の生成に成功した。

#### ・二重活性化能を有する光学活性二核バナジウム触媒の開発

2-ナフトール類の不斉ホモカップリング反応に有効な二重活性化機構を有する触媒の開発に成功した。*R* 体のジホルミルピナフトール誘導体とアミノ酸である *tert*-(*S*)-ロイシンから導かれるジイミン体に酸化硫酸バナジウムを添加することで 4 価錯体は得られる。本錯体は、空気雰囲気下、容易に 5 価に酸化されることを明らかとした。そしてオキシ三塩化バナジウムを用いる 5 価錯体の新規な調製法を確立した。これら錯体は、2-ナフトール類の不斉ホモカップリング反応に有効な既存バナジウム錯体と比べ高活性な触媒である。

#### ・分岐型ポリチオフェンによる有機エレクトロニクス材料の開発研究

高分子半導体を使った有機 **Field-effect transistor (FET)** において、従来のポリチオフェン薄膜で見られる  $\pi$  共役分子のスタック構造と分岐鎖を有した新規化合物のスタック構造の違いを検証し、構造物性相関解明に関する研究を行っている。すでに分岐骨格を有するオリゴチオフェンが 3 次元的な  $\pi$  共役系に由来する強い相互作用を示すことが知られており、我々は新たに分岐構造を有する高分子化合物を合成し、分子量分析、紫外可視吸光、蛍光スペクトル分析を行い、分岐鎖が物性に与える影響を検討した。分岐ポリチオフェンは、主鎖の一部であるフェニル基(分岐部)を介してメタ位で側鎖と結合させた。分岐部から伸びる側鎖はフェニル末端を持つオリゴチオフェンとし、長さは 2、4、8 量体とした。重合は分岐部を含む側鎖とチオフェン 4 量体との **Stille coupling** 反応により行い、分子量 3000~12000 程度の化合物を得た。得られた高分子化合物のうち、側鎖が 4 以上のものについては HPLC 分析において排除限界近傍にピークが確認され、化合物本来の分子量領域と考えられる 8000~10000 前後よりも高分子量体として検出された。これは、オリゴチオフェンで見られた分子間相互作用に起因する超分子化ではないかと考えられる。吸収、蛍光スペクトル分析においてはそれら超分子量体の影響は見られず、主鎖および側鎖に由来するピークが確認された。さらにこの化合物を用いた有機 FET 素子を作製・評価したところ P 型有機半導体として機能することが確認された。この有機半導体特性の更なる高機能化を目指し、新規高分子骨格の構築・合成、素子作製について、現在、検討している。

#### [ 原著論文 ]

Single-Molecule Observation of DNA Charge Transfer, T. Takada, M. Fujitsuka, and T. Majima: Proc. Nat. Acad. Sci. USA, 104 (27) (2007) 11179-11183.

Intermolecular Electron Transfer from Excited Benzophenone Ketyl Radical, M. Sakamoto, X. Cai, S. S. Kim, M. Fujitsuka, and T. Majima: J. Phys. Chem. A, 111 (2) (2007) 223-229.

One-Electron Oxidation of Alcohols by the 1,3,5-Trimethoxybenzene Radical Cation in the Excited State during Two-Color Two-Laser Flash Photolysis, X. Cai, M. Sakamoto, M. Fujitsuka, and T. Majima: J. Phys. Chem. A, 111 (10) (2007) 1788-1791.

Bimolecular Hole Transfer from the Trimethoxybenzene Radical Cation in the Excited State, X. Cai, M. Fujitsuka, and T. Majima: J. Phys. Chem. A, 111 (22) (2007) 4743-4747.

Intramolecular Triplet Energy Transfer via Higher Triplet Excited State during Stepwise Two-color Two-laser Irradiation, Y. Oseki, M. Fujitsuka, M. Sakamoto, A. Sugimoto, and T. Majima: J. Phys. Chem. A, 111 (39) (2007) 9781-9788.

Electron Transfer from Axial Ligand to  $S_1$ - and  $S_2$ -Excited Phosphorus Tetraphenylporphyrin, M. Fujitsuka, D. W. Cho, S. Tojo, A. Inoue, T. Shiragami, M. Yasuda, and T. Majima: J. Phys. Chem. A, 111 (42) (2007) 10574-10579.

Electron Transfer from  $S_2$  and  $S_1$  States of Pentacoordinated Tetrapyrrole Macrocycles to Pyromellitic Diimide as an Axial Ligand, K. Harada, M. Fujitsuka, A. Sugimoto, and T. Majima: *J. Phys. Chem. A*, 111 (45) (2007) 11430-11436.

Hole Transfer in DNA and Photosensitized DNA Damage: Importance of Adenine Oxidation, K. Kawai, Y. Osakada, M. Fujitsuka, and T. Majima: *J. Phys. Chem. B*, 111 (9) (2007) 2322-2326.

Energy Levels of Oligothiophenes in the Higher Excited Triplet States, Y. Oseki, M. Fujitsuka, M. Sakamoto, X. Cai, and T. Majima: *J. Phys. Chem. C*, 111 (2) (2007) 1024-1028.

Fluorescence Properties of Si-linked Oligothiophenes, M. Fujitsuka, D. W. Cho, J. Ohishita, A. Kunai, and T. Majima: *J. Phys. Chem. C*, 111 (5) (2007) 1993-1998.

Design of Cyclic Reaction Driven by Two-Color Two-Photon Excitation, M. Sakamoto, S. S. Kim, M. Fujitsuka, and T. Majima: *J. Phys. Chem. C (Lett.)*, 111 (19) (2007) 6917-6919.

Correction to "Acceleration and Deceleration of Laser Induced Formation of Gold Nanoparticles in a PVA Film", M. Sakamoto, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Langmuir*, 23 (14) (2007) 7886-7886.

Donor-Acceptor Substituted Tetrakis(phenylethynyl)benzenes as Emissive Molecules during Pulse Radiolysis in Benzene, S. Samori, S. Tojo, M. Fujitsuka, E. L. Spitler, M. M. Haley, and T. Majima: *J. Org. Chem.*, 72 (8) (2007) 2785-2793.

Relationship between Charge Transfer and Charge Recombination Determines Photocurrent Efficiency through DNA Films, T. Takada, C. Lin, and T. Majima: *Angew. Chem. Int. Ed.*, 46 (35) (2007) 6681-6683.

Hole transfer rates in A-from DNA/2'-OMeRNA hybrid, K. Kawai, Y. Osakada, A. Sugimoto, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Chem. Eur. J.*, 13 (8) (2007) 2386-2391.

C-O-bond cleavage of esters with a naphthyl group in the higher triplet excited state during two-color two-laser flash photolysis, X. Cai, M. Sakamoto, M. Yamaji, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Chem. Eur. J.*, 13 (11) (2007) 3143-3149.

Porphyrin Light-Harvesting System Constructed in the Tobacco Mosaic Virus Scaffold, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Chem. Eur. J.*, 13 (31) (2007) 8660-8666.

Photochemical Formation of Au/Cu Bimetallic Nanoparticles with Different Shapes and Sizes in a PVA Film, M. Sakamoto, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Adv. Funct. Mater.*, 17 (6) (2007) 857-862.

Spin-correlated radical pairs in the synthetic hairpin DNA, S. Nakajima, K. Akiyama, K. Kawai, T. Takada, T. Ikoma, T. Majima, and S. Tero-Kubota: *ChemPhysChem*, 8 (4) (2007) 507-509.

Fabrication of Chromophore-Functionalized Gold Nanoparticles-Poly(Vinyl alcohol) Thin Film Nanocomposite: New Coordination Method using the Ni(II)-Nitrilotriacetic acid Complex Formation, M. Sakamoto, T. Tachikawa, Sung Sik Kim, M. Fujitsuka, and T. Majima: *ChemPhysChem*, 8 (11) (2007) 1701-1706.

Errata to "Two-color Two-laser Fabrication of Gold Nanoparticles in a PVA Film", M. Sakamoto, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Chem. Phys. Lett.*, 442 (1-3) (2007) 170.

The C-O bond dissociation of naphthoxymethyl compounds in the higher triplet excited state using two-color two-laser flash photolysis, X. Cai, M. Yamaji, M. Sakamoto, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Chem. Phys. Lett.*, 443 (4-6) (2007) 248-252.

Nanoscale Heterogeneities in Adsorption and Electron Transfer Processes of Perylene Diimide Dye on TiO<sub>2</sub> Nanoparticles Studied by Single-Molecule Fluorescence Spectroscopy, T. Tachikawa, S.-C. Cui, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Chem. Phys. Lett.*, 443 (4-6) (2007) 313-318.

Monitoring G-Quadruplex Structures and G-Quadruplex-ligand Complex by 2-Aminopurine Modified Oligonucleotide, T. Kimura, K. Kawai, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Tetrahedron*, 63 (17) (2007) 3585-3590.

S<sub>2</sub>- and S<sub>1</sub>-States Properties of Zinc Porphyrin Polypeptides, M. Fujitsuka, D. W. Cho, N. Solladie, V. Troiani, H. Qiu, and T. Majima: *J. Photochem. Photobiol. A*, 188 (2-3) (2007) 346-350.

Intermolecular Exciplex Formation and Intramolecular Electron Transfer during Photoirradiation of 1,8-Naphthalimide-linker-phenothiazine Dyads in Methylated Benzenes, D. W. Cho, M. Fujitsuka, U. C. Yoon, and T. Majima: *J. Photochem. Photobiol. A*, 190 (1) (2007) 101-109.

Monitoring of Three Distinct Structures of Restriction Enzyme Complexes Using Characteristic Fluorescence from Site-selectively Incorporated Solvatochromic Probe, K. Nakayama, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Photochem. Photobiol. Sci.*, 6 (2007) 836-841.

Reversible Intramolecular Triplet-Triplet Energy Transfer in Benzophenone-N-Methylphthalimide Dyad Aprotic Polar and Protic Polar Solvents, M. Sakamoto, S. S. Kim, M. Fujitsuka, and T. Majima: *J. Phys. Chem. A*, 112 (7) (2008) 1403-1407.

Charge Separation in Acridine- and Phenothiazine-Modified DNA, K. Kawai, Y. Osakada, M. Fujitsuka, and T. Majima: *J. Phys. Chem. B*, 112 (7) (2008) 2144-2149.

Real-Time Single-Molecule Imaging of the Spatial and Temporal Distribution of Reactive Oxygen Species with Fluorescent Probes: Applications to TiO<sub>2</sub> Photocatalysts, K. Naito, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima: *J. Phys. Chem. C*, 112 (4) (2008) 1048-1059.

Protein Recording Material: Photo-Record/Erasable Protein Array Using a UV-Eliminative Linker, K. Nakayama, T. Tachikawa, and T. Majima: *Langmuir (Letter)*, 24 (5) (2008) 1625-1628.

Diastereochemically Controlled Porphyrin Dimer Formation on a DNA Duplex Scaffold, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima: *J. Org. Chem.*, 73 (3) (2008) 1106-1112.

Three-Dimensional Writing of Copper Nanoparticles in a Polymer Matrix with Two-Colour Two-Laser, M. Sakamoto, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima: *J. Org. Chem.*, 73 (9) (2008) 3551-3558.

Photocatalytic Cleavage of Single TiO<sub>2</sub>/DNA Nanoconjugates, T. Tachikawa, Y. Asanoi, K. Kawai, S. Tojo, A. Sugimoto, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Chem. Eur. J.*, 14 (5) (2008) 1492-1498.

Mechanism of Charge-Separation in DNA via Hole Transfer through Consecutive Adenines, K. Kawai, Y. Osakada, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Chem. Eur. J.*, 14 (12) (2008) 3721-3726.

Conformational regulation of porphyrin dimers on geometric scaffold of duplex DNA, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Tetrahedron*, 64 (8) (2008) 1839-1846.

Organic Light Emitting Diode Application of Fluorescent Cellulose as a Natural Polymer, M. Karakawa, M. Chikamatsu, C. Nakamoto, Y. Maeda, S. Kubota, K. Yase: *Macromol. Chem. Phys.*, 208 (2007) 2000-2006.

Organic Memory Device Based on Carbazole-Substituted Cellulose, M. Karakawa, M. Chikamatsu, Y. Yoshida, R. Azumi, K. Yase, C. Nakamoto: *Macromol. Rapid Commun.*, 28 (2007) 1479-1484.

#### [ 解説、総説 ]

DNA 中の電荷移動速度と情報の関係を明らかにしたい、真嶋哲朗、*化学*、62 [1] (2007) 23-24.

DNA 分子化学、真嶋哲朗、日本化学会・第2次先端ウォッチング「生命分子科学の進展」41-45(2007).

Mechanistic Insight into the TiO<sub>2</sub> Photocatalytic Reactions: Design of New Photocatalysts, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima, *J. Phys. Chem. C (Feature Article)*, 111 [14] (2007) 5259-5275.

Single-Molecule Detection of Reactive Oxygen Species: Application to Photocatalytic Reactions, T. Tachikawa and T. Majima, *J. Fluores. (Special issue on "Advances in Single Molecule Spectroscopy", invited)*, 17 [6] (2007) 727-738.

Photochemical Properties of Porphyrin-attached Tobacco Mosaic Virus, M. Endo, Fujitsuka, and T. Majima, *Photomedicine and Photobiology*, 29 (2007) 19-20.

DNA デバイス—DNA 中で起こる電荷移動を利用する、真嶋哲朗、*化学*、63 [1] (2008) 38-40.

DNA 中の電荷移動、高田忠雄・真嶋哲朗、*生産と技術*、60 [1] (2008) 55-60.

DNA 内電荷移動とバイオセンサーへの応用、高田忠雄・真嶋哲朗、*BIO INDUSTRY*、25 [3] (2008) 61-71.

Bifunctional organocatalysts for enantioselective aza-Morita-Baylis-Hillman (aza-MBH) Reactions, S. Takizawa, K. Matsui, H. Sasai, *J. Synth. Org. Chem. Jpn.*, 65 [11] (2007) 1089-1098.

#### [ 著書 ]

"Photochemistry of Short-lived Species using Multi-beam Irradiation" "Advanced in Photochemistry Vol 29" (ed by D. C. Neckers, W. Jenks, T. Wolff), M. Fujitsuka and T. Majima, John Wiley & Sons, Inc., (2007) 53-109.

"Single-Molecule Fluorescence Imaging Techniques for the Detection of Reactive Oxygen Species", "Modern Research and Educational Topics on Microscopy" (ed by A. Mendez-Vilas and J. Diaz), T. Tachikawa and T. Majima, Formatex, (2007) 651-659.

"DNA Supramolecular Structures for the Creation of Functional Nanomaterials" "Soft Nanomaterials" (ed by H. S. Nalwa, American Scientific Publishers), M. Endo and T. Majima, Valencia, (2008).

「光触媒反応の1分子蛍光イメージング」、「光と界面がおりなす新しい化学の世界—光触媒と光エネルギー変換」(高木克彦ら編)、真嶋哲朗、(株)クバプロ、(2008) 50-58.

## [ 特許 ]

「DNA 電荷移動を利用した DNA 一分子蛍光測定による一塩基多型の検出法」真嶋哲朗、高田忠雄、川井清彦、藤塚守、特願 2007-6829

「媒体中に金属ナノ粒子を形成する方法」真嶋哲朗、坂本雅典、藤塚守、特願 2007-28166

「修飾金属ナノ粒子およびその製造方法」真嶋哲朗、坂本雅典、藤塚守、特願 2007-095031

「重合体、これを用いた有機薄膜および有機薄膜素子」安蘇芳雄、辛川誠、上田将人 特願 2008-032021

## [ 国際会議 ]

Charge Transfer in DNA (invited), T. Majima: 2007 Photochemistry Gordon Research Conference, Bryant University, Smithfield, Rhode Island, USA, July 8-13, 2007.

Mechanistic Insight into the  $\text{TiO}_2$  Photocatalytic Reactions (invited), T. Majima: 23th International Conference on Photochemistry, Cologne, Germany, July 29-Aug. 3, 2007.

Rapid Energy Migration along Photofunctional Polymers (poster), M. Fujitsuka and \*T. Majima: 23th International Conference on Photochemistry, Cologne, Germany, July 29-Aug. 3, 2007.

Charge Separation via Rapid Hole Transfer through Adenine-Hopping (poster), T. Takada, K. Kawai, M. Fujitsuka, and \*T. Majima: 23th International Conference on Photochemistry, Cologne, Germany, July 29-Aug. 3, 2007.

One-electron oxidation of organic compounds during  $\text{TiO}_2$  photocatalytic reactions (invited), \*T. Tachikawa and T. Majima: Langmuir Symposium 2007 in Osaka University, Suita, Japan, Oct. 9, 2007.

Photochemical synthesis of metal nanoparticles in a PVA film (invited), \*M. Sakamoto and T. Majima: Langmuir Symposium 2007 in Osaka University, Suita, Japan, Oct. 9, 2007.

Development of New  $\text{TiO}_2$  Photocatalysts (invited), T. Majima: 7th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology, Shanghai, Nov. 11-14, 2007.

Adsorption and Electron Transfer Processes of Perylene Diimide Dye on  $\text{TiO}_2$  Nanoparticles Studied by Single-Molecule (poster), \*S.-C. Cui, T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, T. Majima: 7th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology, Shanghai, Nov. 11-14, 2007.

Possibility of Negative Charge Conduction in Cyclophanes (invited), T. Majima: The Third Taiwan-Japan Bilateral Symposium on Functional Molecules, Janfusen, Taiwan, Nov. 11-14, 2007.

Development of New  $\text{TiO}_2$  Photocatalyst: Mechanistic Study of  $\text{TiO}_2$  Photocatalytic Reactions (invited), T. Majima: 2007 Korea-Japan Symposium on Frontier Photoscience, Gyeongju, Korea, Nov. 22-25, 2007.

Intramolecular Electron Transfer from Axial Ligands to  $\text{S}_2$ -Excited Tetraphenyl Porphyrins (invited), \*M. Fujitsuka and T. Majima: 2007 Korea-Japan Symposium on Frontier Photoscience, Gyeongju, Korea, Nov. 22-25, 2007.

Excited State Properties of Trimethoxybenzene Radical Cation (poster), X. Cai, M. Fujitsuka, and \*T. Majima:



2007 Korea-Japan Symposium on Frontier Photoscience, Gyeongju, Korea, Nov. 22-25, 2007.

Photoinduced Electron Transfer from  $S_2$ -Excited Porphyrins and Phthalocyanines (poster), K. Harada, M. Fujitsuka, and \*T. Majima: 2007 Korea-Japan Symposium on Frontier Photoscience, Gyeongju, Korea, Nov. 22-25, 2007.

Energy Levels of Oligothiophenes in Higher Triplet Excited State (poster), Y. Oseki, M. Fujitsuka, and \*T. Majima: 2007 Korea-Japan Symposium on Frontier Photoscience, Gyeongju, Korea, Nov. 22-25, 2007.

Development of New  $TiO_2$  Photocatalyst: Mechanistic Study of  $TiO_2$  Photocatalytic Reactions (invited), T. Majima: The 9th International Symposium on Eco-materials Processing and Design, Changwon Exhibition Convention Center, Changwon, Korea, Jan. 7-9, 2008.

Photoinduced Charge Separation in Titania Nanotubes (poster), \*T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, T. Sekino, and T. Majima: The 9th International Symposium on Eco-materials Processing and Design, Changwon Exhibition Convention Center, Changwon, Korea, Jan. 7-9, 2008.

Single-Molecule Detection of Airborne Singlet Oxygen (poster), \*K. Naito, T. Tachikawa, S.-C. Cui, A. Sugimoto, M. Fujitsuka, and T. Majima: The 9th International Symposium on Eco-materials Processing and Design, Changwon Exhibition Convention Center, Changwon, Korea, Jan. 7-9, 2008.

Charge Separation in Acridine Modified DNA (poster), \*K. Kawai, M. Fujitsuka, and T. Majima: 11th Sanken International Symposium / 6th nanotechnology center international symposium / 1st MSTEC international symposium, Awaji, Japan, Feb. 4-5, 2008.

Kinetic SNP typing Based on Charge Transfer through DNA (poster), Y. Osakada, \*K. Kawai, M. Fujitsuka, and T. Majima: 11th Sanken International Symposium / 6th nanotechnology center international symposium / 1st MSTEC international symposium, Awaji, Japan, Feb. 4-5, 2008.

Intramolecular Electron Transfer from Axial Ligands to  $S_2$ -Excited Tetraphenyl Porphyrins (poster), M. Fujitsuka and \*T. Majima: 11th Sanken International Symposium / 6th nanotechnology center international symposium / 1st MSTEC international symposium, Awaji, Japan, Feb. 4-5, 2008.

Single-Molecule Detection of Airborne Singlet Oxygen (poster), T. Tachikawa, K. Naito, M. Fujitsuka and \*T. Majima: 11th Sanken International Symposium / 6th nanotechnology center international symposium / 1st MSTEC international symposium, Awaji, Japan, Feb. 4-5, 2008.

Design of Cyclic Reaction Driven by the Two-color Two-photon Excitation (poster), M. Sakamoto, M. Fujitsuka and \*T. Majima: 11th Sanken International Symposium / 6th nanotechnology center international symposium / 1st MSTEC international symposium, Awaji, Japan, Feb. 4-5, 2008.

Molecular Excitation Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials, T. Majima: International Symposium on "New Trend in Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2008", Osaka University, Japan, Feb. 6, 2008.

Electron Transfer from Axial Ligand to  $S_1$ - and  $S_2$ -Excited Phosphoros Tetraphenylporphyrin, \*M. Fujitsuka, D. W. Cho, and T. Majima: International Symposium on "New Trend in Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2008", Osaka University, Japan, Feb. 6, 2008.

Photophysical Properties of 1,8-Naphthalimide-linker-phenothiazine Dyads in Non-polar Solvents, \*D. W. Cho,

M. Fujitsuka, and T. Majima: International Symposium on “New Trend in Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2008”, Osaka University, Japan, Feb. 6, 2008.

Single Molecule Fluorescence Imaging of TiO<sub>2</sub> Photocatalytic Reactions, \*T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima: International Symposium on “New Trend in Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2008”, Osaka University, Japan, Feb. 6, 2008.

Photochemical Formation of Au/Cu Bimetallic Nanoparticles with Different Shapes and Sizes in a PVA Film, \*M. Sakamoto, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima: International Symposium on “New Trend in Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2008”, Osaka University, Japan, Feb. 6, 2008.

Hole Transfer in DNA and Photosensitized DNA Damage: Importance of Adenine Oxidation, \*K. Kawai, Y. Osakada, M. Fujitsuka, and T. Majima: International Symposium on “New Trend in Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2008”, Osaka University, Japan, Feb. 6, 2008.

Single-Molecule Observation of DNA Charge Transfer, \*T. Takada, M. Fujitsuka, and T. Majima: International Symposium on “New Trend in Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2008”, Osaka University, Japan, Feb. 6, 2008.

Porphyrin Light-Harvesting System Constructed in the Tobacco Mosaic Virus Scaffold, \*M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima: International Symposium on “New Trend in Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2008”, Osaka University, Japan, Feb. 6, 2008.

Higher Excited State Chemistry for Light-Energy Conversion (invited), M. Fujitsuka and \*T. Majima: The 3rd CNU-SANKEN Joint Symposium on Advanced Materials Science, Daejeon, Korea, Feb. 27-28, 2008.

DNA Devices Based on Charge Transfer in DNA (invited), T. Majima: The 3rd CNU-SANKEN Joint Symposium on Advanced Materials Science, Daejeon, Korea, Feb. 27-28, 2008.

#### [ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

真嶋 哲朗	2007 KOREA-JAPAN Symposium on Frontier Photoscience (組織委員長)
真嶋 哲朗	Symposium on “Beam-induced Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2007 (組織委員長)
真嶋 哲朗	Langmuir Symposium 2007 in Osaka University (組織委員長)
真嶋 哲朗	The 9 <sup>th</sup> International Symposium on Eco-materials Processing and Design (組織委員)
真嶋 哲朗	International Symposium on “New Trend in Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2008” (組織委員長)
真嶋 哲朗	The 3rd CNU-SANKEN Joint Symposium on Advanced Materials Science (組織委員長)
真嶋 哲朗	Langmuir, American Chemical Society (Senior Editor)

#### [ 国内学会 ]

日本光生物・光医学会	2 件
光化学討論会	11 件
高分子討論会	1 件
日本化学会春年会	10 件
第 34 回有機反応懇談会	1 件

第 92 回有機合成シンポジウム  
日本化学会第 88 春季年会

1 件  
5 件

### [ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの) 単位：千円

基盤研究 (S)			
真嶋 哲朗	光機能性 DNA のナノサイエンス		10,920
萌芽研究			
真嶋 哲朗	光機能化タバコモザイクウイルス超分子による光電変換デバイスの創製		1,800
若手研究			
川井 清彦	DNA ナノ光電荷分離システムの構築		1,100

### [ 受託研究 ]

真嶋 哲朗	IDEC 株式会社、 株式会社サタケ	レーザ光を用いたプラスチック種類判別方法の研究	1,690
-------	-----------------------	-------------------------	-------

### [ 共同研究 ]

真嶋 哲朗	トヨタ自動車株式会社	光励起還元法による高比表面積水素吸蔵合金の研究	5,989
真嶋 哲朗	積水化学工業株式会社	酸化チタン光触媒作用による超親水性	999
真嶋 哲朗	松下電器産業株式会社	チタニアナノ構造体を用いた光触媒の高活性化に関する研究	1,732
真嶋 哲朗	三菱化学株式会社	高励起状態からの光化学反応を利用した非線形光応答材料の開発	2,000

## ナノバイオデバイス分野

教授（兼任） 谷澤 克行  
准教授 岡島 俊英  
助教 中島 良介

### a) 概要

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、新規有用酵素の作製、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、ナノマシンの創製などを目指している。

### b) 成果

#### ・銅含有アミン酸化酵素の触媒反応中間状態の構造解析

銅含有アミン酸化酵素は、種々の第一級アミン類の酸化脱アミノ反応を触媒する酵素であり、ヒトをはじめとする多くの動物、植物、および微生物などに広く存在している。本酵素は約 70 kDa のサブユニットからなるホモダイマー構造をとり、活性中心には 2 価銅イオンとポリペプチド鎖に共有結合した酸化還元補酵素、2,4,5-トリヒドロキシフェニルアラニルキノン (TPQ) を含有する。本酵素の触媒過程は、TPQ が基質アミンによって還元されアルデヒドが遊離する還元的半反応と TPQ が再酸化されてアンモニアと過酸化水素が生じる酸化的半反応に大きく分けられる。これまでの研究から、TPQ は温度や pH などの結晶化の条件を変えることにより、様々な立体配置をとることが判明している。さらに、嫌気的条件下において野生型酵素結晶を基質でソーキングすると、生成した還元型 TPQ が直接銅イオンへ配位した構造 (Copper-on 型) に変化することなどから、触媒過程においては TPQ のコンフォメーションが適切に制御されることが重要であると考えられている。TPQ の N 末端側に隣接する Asn 残基は、各種生物由来の本酵素で完全に保存されている。この Asn 残基が TPQ のコンフォメーションの制御に関与し、触媒活性に対して重要な影響を与えていると考えられているが、その分子機構の詳細は明らかではない。そこで、土壌細菌 *Arthrobacter globiformis* 由来のアミン酸化酵素 (AGAO) の保存性 Asn381 を、側鎖の体積や電荷などの観点から Ala、Asp、または Gln に置換し、それら変異型酵素の X 線結晶構造解析や反応速度論的解析を行うことにより、Asn381 の触媒機構における役割を検討した。

2-フェニルエチルアミンを基質として定常状態速度論的解析を行った結果、いずれの変異型酵素も野生型酵素に比べ触媒活性がかなり低下しており、Asn381 が触媒に必須な残基ではないものの、重要な役割を担うことが裏付けられた。嫌気条件下で基質を加え還元的半反応における TPQ のスペクトル変化を調べたところ、どの変異型酵素も野生型酵素に比べ TPQ のセミキノンラジカルの生成量が顕著に減少していた。Stopped flow 装置を用いた前定常状態の吸収スペクトルの変化から、還元的半反応において N381D では野生型と同様のスペクトル変化を示したが、N381A、N381Q では野生型と大きく異なり、それぞれ還元型 TPQ と基質シッフ塩基の蓄積が示唆された。すなわち、これらの変異が還元的半反応の反応速度定数に影響し、反応過程における分子種の存在比率が野生型とはかなり異なっていることを意味している。各変異型酵素の X 線結晶構造を野生型酵素と比較すると、Ala 変異型酵素 (N381A) では TPQ が 180° 回転した反応性のないコンフォメーション (Flipped form) が混在していることが明らかとなった。

一方、Asp あるいは Gln 変異型酵素 (N381D、N381Q) においては、変異導入残基以外に活性中心付近に大きな構造変化は認められなかった。TPQ が反応性を持つコンフォメーションとなるためには、381 番残基の側鎖にある程度のかさ高さが必要であることが分かった。嫌気基質ソーキングによって、還元的半反応を結晶中で行かせたところ、TPQ が還元型もしくはセミキノンラジカル型で存在する野生型酵素の結晶と異なり、N381A では Flipped form の還元型 TPQ のコンフォメーションが見られ、N381D では野生型と同様の Copper-on 型のセミキノンラジカルが形成していたが、N381Q の結晶中ではシッフ塩

基反応中間体が主要な TPQ の分子種として蓄積していることが判明した。これらの知見から、反応中間体のコンフォメーションの制御に対しても 381 番残基は大きな影響を与えていることが分かった。

以上より、Asn381 への変異導入は還元型半反応における速度定数に著しい影響を与え、Asn381 は側鎖の立体的大きさと電子的性質により、触媒過程における TPQ のコンフォメーションを適切にコントロールする役割を担っていると考えられた。

#### ・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。

2002 年に大腸菌の持つ 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、2006 年には基質結合型 AcrB 結晶の構造解析にも成功した。そして異物排出の機能的回転輸送機構と、マルチサイト結合が多剤認識の構造的基礎であることを明らかにした。

TetA は最初に発見された異物（薬物）排出タンパクで、AcrAB とは異なり、MFS 型と呼ばれるファミリーに属し、外膜チャネルとは共役していない。また、テトラサイクリン系薬剤に特異的な排出タンパクである。これについても結晶化を試み、安定に大量精製する条件を見いだしたが、まだ結晶化に成功するには至らなかった。

#### [ 原著論文 ]

Fasciculation and elongation protein zeta-1 (FEZ1) participates in the polarization of hippocampal neuron by controlling the mitochondrial motility., J. Ikuta, A. Maturana, T. Fujita, T. Okajima, K. Tatematsu, K. Tanizawa, and S. Kuroda.: *Biochem. Biophys. Res. Commun.*, 353 (2007) 127-132.

Axonal guidance protein FEZ1 associates with tubulin and kinesin motor protein to transport mitochondria in neurites of NGF-stimulated PC12 cells., T. Fujita, A. D. Maturana, J. Ikuta, J. Hamada, S. Walchli, T. Suzuki, H. Sawa, M. W. Wooten, T. Okajima, K. Tatematsu, K. Tanizawa, and S. Kuroda.: *Biochem. Biophys. Res. Commun.*, 361 (2007) 605-610.

Trapping of a dopaquinone intermediate in the TPQ cofactor biogenesis in a copper-containing amine oxidase from *Arthrobacter globiformis*., R. H. Moore, M. A. Spies, M. B. Culpepper, T. Murakawa, S. Hirota, T. Okajima, K. Tanizawa, and M. Mure.: *J. Am. Chem. Soc.*, 129 (2007) 11524-11534.

Involvement of MAPK signaling molecules and Runx2 in the NELL1-induced osteoblastic differentiation., N. Bokui, T. Otani, K. Igarashi, J. Kaku, M. Oda, T. Nagaoka, M. Seno, K. Tatematsu, T. Okajima, T. Matsuzaki, K. Ting, K. Tanizawa, and S. Kuroda.: *FEBS Lett.*, 582 (2008) 365-371.

Bio-nanocapsule conjugated with liposomes for in vivo pinpoint delivery of various materials., J. H. Jung, T. Matsuzaki, K. Tatematsu, T. Okajima, K. Tanizawa, and S. Kuroda: *J. Control. Release*, 126 (2008) 255-264.

#### [ 解説、総説 ]

バイオナノキャリアの開発とがん遺伝子治療への応用、近藤昭彦、黒田俊一、谷澤克行、妹尾昌治、上田政和、*バイオテクノロジージャーナル*、7 (2007) 41-47

バイオナノカプセル、鄭周姫、粕谷武司、谷澤克行、黒田俊一、*日本薬学会誌*、127 (2007) 797-805

## [ 特許 ]

「免疫学的測定用ビオチン化ナノ粒子」平松伸吾、鄭 基晩、畠平智子、金森大典、角矢博保、黒田俊一、谷澤克行、特願 2007-3677

## [ 国際会議 ]

Structural basis for stereospecific proton abstraction of bacterial copper amine oxidase. (poster), \*T. Okajima, T. Murakawa, Y.-C. Chiu, M. Taki, Y. Yamamoto, H. Hayashi, and K. Tanizawa: 2nd International Symposium on Diffraction Structural Biology 2007 (ISDSB2007), Tokyo, Japan, September 10-13, 2007.

A subtilisin-like protease essential for the biogenesis of quinoxinamine dehydrogenase (poster), \*T. Okajima, K. Ono, A. Nagami, M. Niiyama, and K. Tanizawa.: Gordon Research Conference on Protein Cofactors, Radicals and Quinones, Ventura, California, U.S.A., January 20-25, 2008.

Conformational flexibility of the TPQ cofactor in bacterial copper amine oxidase. (poster), \*T. Okajima, S. Nakanishi, T. Murakawa, H. Hayashi, and K. Tanizawa.: Gordon Research Conference on Protein Cofactors, Radicals and Quinones, Ventura, California, U.S.A., January 20-25, 2008.

Hydrogen tunneling in bacterial copper amine oxidase reaction (poster), \*T. Murakawa, T. Okajima, S. Nakanishi, H. Hayashi, and K. Tanizawa: Gordon Research Conference on Protein Cofactors, Radicals and Quinones, Ventura, California, U.S.A., January 20-25, 2008.

Response regulator YycF essential for bacterial growth: X-ray crystal structure of the DNA-binding domain and its PhoB-like DNA recognition. (poster), \*A. Tada, T. Okajima, A. Doi, A. Okada, Y. Gotoh, R. Utsumi, and K. Tanizawa.: 11th Sanken International Symposium/6th Nanotechnology Center International Symposium/1st MSTEC International Symposium, Awaji Yumebutai International Conference Center, Hyogo, Japan, February 4-5, 2008.

## [ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

谷澤 克行      Federation of Asian and Oceanian Biochemists and Molecular Biologists (日本代表)

## [ 国内学会 ]

日本生化学会・日本分子生物学会合同大会 (BMB2007)	18 件
日本結晶学会	1 件
日本農芸化学会	1 件
第 11 回 SPring-8 シンポジウム	1 件

## [ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)	単位：千円
基盤研究 (B)	
谷澤 克行      ペプチド・ビルトイン型キノン補酵素の生合成機構と触媒機能	3,380
岡島 俊英      プロトン・電子移動を伴うビルトイン型キノン補酵素依存性酵素の精密反応機構	3,900

若手研究 (B)			
中島 良介	テトラサイクリン排出タンパク質の結晶化		1,560

[ 受託研究 ]

谷澤 克行	科学技術振興機構 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	7,540
谷澤 克行	農業・生物系特定産業技術研究機構・生物系特定産業技術研究支援センター (生物系産業創出のための異分野融合研究支援事業)	酵母由来中空バイオナノ粒子を用いる革新的超高感度バイオセンシング技術の開発	20,000
岡島 俊英	農業・生物系特定産業技術研究機構・生物系特定産業技術研究支援センター (生物系産業創出のための異分野融合研究支援事業)	情報伝達阻害剤の作用機構解析と細菌情報ネットワークの立体構造解析	7,000

[ その他の競争的研究資金 ]

谷澤 克行	ビタミン B 研究委員会	ビルトイン型キノン補酵素の生合成機構と触媒機能に関する研究	250
-------	--------------	-------------------------------	-----

## ナノシステム設計分野

客員教授 西谷 龍介（平成 19 年 4 月 1 日～平成 19 年 6 月 30 日）

### a) 概要

ナノメートルスケール科学では、ナノスケールの物性解析が必須である。ナノスケールの構造と電子状態、光学特性などを関連させて理解することが、ナノテクノロジーの基礎となる。本分野では、分子エレクトロニクス、分子発光素子の開発をめざし、特に金属表面での有機分子の電子状態、光学特性を解析するために、走査トンネル顕微鏡を用いたナノスケール発光スペクトル測定装置の開発、解析を進めた。本研究は、岩崎研究室および安蘇研究室と共同して行われた。

### b) 成果

走査トンネル顕微鏡を用いたポルフィリンの分子発光を研究した。走査トンネル顕微鏡の探針、基板の 2 電極が、金属、非金属を含む種々の組み合わせの場合につき調べ、基板の貴金属のプラズモン誘起電磁場による増強に加え、ナノスケールトンネルギャップのキャビティ効果による増強があることを、実験、理論の両面から解明した。

### [ 原著論文 ]

Bias Dependence of Tunneling-Electron-Induced Molecular Fluorescence from Porphyrin Films on Noble-Metal Substrates, H. Liu, Y. Ie, R. Nishitani, Y. Aso and H. Iwasaki, *Phys. Rev. B*, 75 (2007) pp. 115429-1 -115429-5.

STM Tip-Enhanced Photoluminescence from Porphyrin Film, R. Nishitani, H. Liu, A. Kasuya, H. Miyahira, T. Kawahara and H. IWASAKI, *Surf. Sci.*, 601 (2007) pp. 3601-3604.

Study on Enhancement of Tunneling-Induced Fluorescence from Porphyrin Film by Substrate Plasmon, R. Nishitani, H. Liu, A. Kasuya, H. Iwasaki, *J. Phys.*, 61 (2007) pp. 879.

### [ 国際会議 ]

Cavity Effect on Molecular Fluorescence of a Porphyrin Film Induced by Tunneling electrons, H. Liu, Y. Ie, Y. Aso, K. Sudoh, H. Iwasaki, R. Nishitani, *ChinaNano2007*, Beijing 2007.6.4-7.

Cavity effect in STM junction on the tunneling-induced molecular fluorescence, R. Nishitani, H. Liu, H. Iwasaki, *Korea-Japan Joint Forum (KJF) 2007 on Organic Materials for Electronics and Photonics*, Seoul, Korea, Sep 27-29, 2007.

Cavity effect in STM junction on the tunneling-induced molecular fluorescence, R. Nishitani, H. Liu, H. Iwasaki, *9th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures (ACSIN-9)*, Tokyo, Japan, Nov 11-15, 2007.



## ナノシステム設計分野

客員准教授 田口 光正（平成 19 年 7 月 1 日～平成 19 年 9 月 30 日）

### a) 概要

ダイオキシンやペンタクロロフェノールに代表されるハロゲン化有機化合物は、残留性および急性毒性の観点から水生動物に対し悪影響を与える化学物質群のひとつとして挙げられる。放射線照射法は排水中に比較的均一に酸化性および還元性の活性種を発生することが出来るが、微量のハロゲン化有機化合物を含む排水への直接照射による処理は効率的ではない。我々は排水からハロゲン化有機化合物を抽出・濃縮した後に、放射線照射を行う新規処理プロセスの開発を目指している。この抽出剤に化学的・熱的に安定であるイオン液体(RTILs)を用いた。RTILsは、イオン対のみで構成されており、分子構造の置換や構成しているカチオンとアニオンの組み合わせなどの分子設計により、様々な機能（粘度や溶解性、極性）付与と発現の制御が可能である。さらに、ハロゲン化有機化合物を効果的に還元分解する、溶媒和電子を安定化させることが期待される。本研究では、 $\gamma$ 線およびパルス電子照射法を用いて、RTILs中のハロゲン化有機化合物の分解挙動を調べた。

### b) 成果

#### ・イオン液体中クロロフェノールの放射線分解反応

ハロゲン化有機化合物としてo-クロロフェノール(CP)を、カチオンとアニオンを系統的に変えたRTILsに溶解し試料とした。阪大産研ライナックでは電子線パルスラジオリシスを行い、原子力機構高崎研では $\gamma$ 線照射とHPLC分析を行った。アニオンをTFSIとして、カチオンを系統的に変化させたDEMMA-TFSI, TMPA-TFSI, BMI-TFSI、カチオンをDEMMAとしてアニオンを系統的に変化させたDEMMA-TFSI, DEMMA-BF<sub>4</sub>, DEMMA-TSACにCPをそれぞれ溶解して放射線分解実験を行った。その結果、DEMMA-TFSIでは、溶媒和電子が生成し高収率でCPを分解しフェノールを生成したことが明らかにした。BMI-TFSIとDEMMA-TSACでは溶媒和電子は観測されず、CPの分解とフェノール生成は非常に小さかった。DEMMA-TFSI中にDEMMA-TSACを添加してパルスラジオリシスを行った結果、溶媒和電子はカチオンだけでなく、化学構造によってはアニオンに捕捉されることも明らかにした。DEMMA-BF<sub>4</sub>など粘度が大きなイオン液体では溶媒和電子の寿命が大きくなり、反応確率が大きくなって、CPの分解とフェノールの生成が大きくなることも明らかにした。

## ナノシステム設計分野

客員教授 香山 正憲（平成 19 年 10 月 1 日～平成 19 年 12 月 31 日）

### a) 概要

金属微粒子と有機分子の相互作用について、第一原理計算と実験観察の連携の可能性について、議論を行った。金属表面と分子との相互作用と、金属ナノ粒子の効果、分子種の構造や特性の効果、ナノ粒子／分子複合体の生む物性について検討した。これらを探るための実験と第一原理計算について議論を行った。

### b) 成果

金属表面と分子との相互作用として、van der Waals 相互作用、極性分子との間の鏡像力による相互作用、電子移動を伴う強い軌道混成などが考えられる。これらの相互作用と、金属ナノ粒子の効果、分子種の構造や特性の効果が、金属ナノ粒子／分子複合体の物性に与える効果について検討した。実験と理論計算により、これらを解明する計画について議論を行った。

## ナノシステム設計分野

客員教授 西久保 忠臣（平成 20 年 1 月 1 日～平成 20 年 3 月 31 日）

### a) 概要

極端紫外光(EUV)は 22nm 以降の半導体デバイスへの利用が有望視されているが、現存するレジスト材料では、デバイス作製に必要なパターン線幅の粗さの要求値を満たすことは非常に困難である。その解決策として低分子レジスト材料が注目されている。そこで近年新規に開発された多環状性ポリフェノール化合物“NORIA”についての研究を行った。

### b) 成果

Noria レジストの特性評価を 75 keV 電子線露光装置により行った。結果、添加剤やバーク条件の最適化によって 70 nm 以下のパターン形成に成功した。また、エッチング耐性についても評価を行い、現行のポリヒドロキシスチレン系のレジストと同程度の耐性を持つことが明らかとなった。

# ナノ量子ビーム研究部門

## 概要

本研究部門は、量子ビームナノファブリケーション、ナノ量子ビーム開発、ナノビームプロセス、極限ナノ加工（学内兼任）、超高速ナノ構造（客員）の分野から成り、量子ビーム科学研究部門、加速器量子ビーム実験室と協力しながら研究を行っている。量子ビームは、ナノサイエンス・ナノテクノロジーの進展に重要な役割を果たすことが期待されている。そこで、電子線加速器からの短パルス電子線や陽電子ビーム、イオンビームおよび電子線露光機等のファブリケーション関連機器を駆使して、量子ビームによるナノサイエンス・ナノテクノロジーの総合的な展開を図っている。その特徴は、量子ビーム時間空間反応解析をはじめとした極限ナノ空間反応解析、陽電子ビームを利用したナノ構造解析、量子ビームによるプロセス開発にあり、トップダウン方式による極限ナノファブリケーションの実現や、新しいナノ量子ビーム科学の創出を目標としている。これらの研究を支えるために、量子ビームの高度化、測定手法の開発、支援機器の整備を分野間および部門間で協力しながら行っている。また、より成果を挙げるために、他大学、研究機関、民間企業との共同研究や国際的な共同研究も積極的に行っている。

## 成果

- ・ レーザーRFフォトカソードSバンドライナックの開発
- ・ フェムト秒超短パルス電子源の開発
- ・ 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
- ・ 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
- ・ ナノ空間内の反応機構の解明
- ・ イオン液体の放射線化学
- ・ Lバンド電子加速器の高性能化とナノ量子ビームの研究
- ・ 高強度低速陽電子ビームの生成
- ・ AMOC法を用いた高分子内陽電子消滅過程に関する研究
- ・ 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
- ・ 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
- ・ 量子ビーム誘起反応を利用した単一分子物性の評価
- ・ 極限ナノビームプロセスの研究
- ・ レジストプロセスのモデリング化

## 量子ビームナノファブリケーション分野

教授	吉田 陽一
准教授	楊 金峰
特任助手	近藤 孝文
大学院生	菅 晃一、廣瀬 正佳、浅野 晃、田中 治輝、加嶋 宏章
学部学生	野村 仁彦、井澤 晋也
事務補佐員	寺下 美絵

### a) 概要

極短電子線パルスを用いたフェムト秒・アト秒の時間分解能を持つパルスラジオリシスシステムを開発している。そこで得られる活性種濃度の時間変化を時間空間反応解析により空間分布に変換し、量子ビーム誘起初期過程の本質を明らかにする。次世代リソグラフィでは、加工の微細化のために、より短波長の光 EUV を用いる。これまで用いられてきた光の波長では、レジスト材料の局所的な分子の励起状態から反応が始まっていた。しかし、EUV では、レジスト材料の励起状態に加えて、イオン化プロセスが重要となる。イオン化されると、電子は分子から離れて運動し、新たな励起も引き起こす。これら微細加工の精度を決めるナノ空間におけるイオン化後の反応機構の解明を行っている。

平成 19 年度は、フェムト秒の時間分解能を目指して、試料中での光と電子の速度差による時間分解能の劣化を解決する等価速度分光法パルスラジオリシス測定システムの開発を行い、ライナックでのエネルギー変調と磁気パルス圧縮との組み合わせにより、最も重要である電子線パルスの回転に成功した。空気中でのチェレンコフ光をストリークカメラにイメージングすることにより、電子線パルスの進行方向に対する回転角度の測定に成功した。また、フォトカソード RF 電子銃ライナックの直線ビームポートを利用した簡便なピコ秒パルスラジオリシスシステムを構築し、実験も開始した。ピコ秒時間領域でのイオン液体中の溶媒和電子や非極性溶媒の励起状態などの測定を行った。さらに、サブフェムト秒・アト秒パルスラジオリシスの開発のために、低エミッタンス化やアト秒電子パルスの発生方法を検討するうちに、アト秒電子線パルスが物質中で集団励起効果を発現する新しい可能性を見出した。今年度、その理論的な検討を、電子バンチの面と物質の両面から開始した。

### b) 成果

#### ・等価速度分光法フェムト秒パルスラジオリシスの研究－電子バンチ回転－

電子線が物質中に誘起する現象の初期過程を明らかにするために、フェムト秒 ( $10^{-15}$ 秒) の時間分解能を持ったパルスラジオリシスを開発している。電子線パルスラジオリシスでは、電子線が活性種を生成し、遅延時間をもった分析光により時間分解分光測定を行う。ジェミネート再結合や水和電子などの準安定構造の形成は、とても速い時間領域の現象である。これを研究するためにフェムト秒の時間分解能を実現するには、多くの問題を解決しなければならないが、特に電子線と光の試料中での速度差による時間分解能劣化が問題となる。ストロボスコピック法では、時間 $t=0s$ で電子線と光パルスは同時に入射するが、物質中では電子はほぼ光速を保つが、光速は試料の屈折率だけ遅くなる。この速度差により同時に入射しても、試料中で時間遅延が生じる。この問題を解決するために、我々は「等価速度分光法」を考案し、電子線の分析光方向に対する速度成分と試料中での分析光の速度が等しくなるように配置する。試料の屈折率が $n$ のとき、電子線と分析光の間の入射角 $\theta$ は、 $\theta = \arccos(1/n)$ と表される。さらに、試料中で分析光パルスと電子線パルスが重なるように電子線パルスの波面を回転する必要がある。また、電子線パルス波面の回転角度も測定する必要がある。電子パルス波面を回転するために、我々は線形加速管のRF位相をパルス圧縮の条件から変化させて、縦方向位相空間内でのバンチの傾きを小さくすることにより、パルス圧縮の条件に対してエネルギー変調した。これにより通過するパスが変わるために、電子バンチ内での電子線パルスの波面が回転する。回転角度の測定には、電子線パルスは空気中でチェ

レンコフ光を発生し、サンプル位置でのチェレンコフパルス光像をフェムト秒ストリークカメラ (FESCA-200;浜松ホトニクス) に転送した。ストリークカメラ像上での傾きの測定により、電子線パルスの回転角度を評価した。

測定結果により、パルス幅が小さく、傾きもない。加速管 RF の位相を変化させるにつれて、パルスの回転角度は大きくなり、67度まで回転することができた。しかし、パルス幅方向には大きく広がってしまった。加速管での高周波位相を変化させることにより、電子バンチを回転させることができた。ストリークカメラにより電子線パルス回転角度の測定に成功した。また、電子バンチを回転させたとき、パルスラジオリシスによる水和電子の立ち上がり時間を測定し、電子線パルスの回転によるパルスラジオリシス時間分解能の向上を確認した。

#### ・パルスラジオリシスによるイオン液体中の溶媒和電子の研究

イオン液体(Ionic Liquids : IL) は、塩でありながら 100 °C 以下で液体の状態で存在する物質のことである。イオン液体は熱安定性(難燃性、不揮発性)を持ち、水や有機物と層分離し、電位窓が広く電気伝導性が高いなど、溶媒として優れた特性を持っている。このため、二次電池の電解質等の電気化学的デバイスや、グリーンケミストリー (環境に優しい反応溶媒) として、多くの注目を集めている。我々は放射線を用いた有害物質の分解処理や放射性廃棄物の再処理プロセスにおける環境調和型反応溶媒としてイオン液体を用いることに着目している。特に放射線照射によって生成する溶媒和電子( $e_{sol}^-$ )は強い還元性を持つ物質であり、その生成過程や反応性を研究することは放射線化学初期過程の研究において非常に重要である。そのため本研究では、N,N-Diethyl-N-methyl-N-(2-methoxyethyl) ammonium bis(trifluoromethane sulfonyl) imide (DEMMA-TFSI)等の粘度及びカチオンとアニオンの組み合わせがそれぞれ違う 6 種類のILに注目し、パルスラジオリシス法を用いてIL中の $e_{sol}^-$ の光吸収スペクトルや生成過程、反応特性の解明を行った。

本実験では試料としてDEMMA-TFSI、DEMMA-BF<sub>4</sub>、TMPA-TFSI、PP13-TFSI、P13-TFSI、P14-TFSIの6種類のイオン液体を用いた。6種類のイオン液体は粘度が56-233 mPa·s(20-25 °C)である。電子捕捉剤としてピレン、ピフェニルを用い、濃度は0-30 mMとした。IL中の $e_{sol}^-$ のスペクトルと減衰挙動の観測及び電子捕捉剤との反応の測定は、ナノ秒パルスラジオリシス(電子ビームのエネルギー: 28 MeV、パルス幅: 8 ns、分析光源: Xeフラッシュランプ、時間分解能 8ns)を用いた。IL中の $e_{sol}^-$ の生成挙動と電子捕捉剤との反応の測定には、ピコ秒パルスラジオリシス<sup>2)</sup>(フォトカソードRF電子銃ライナック: 32 MeV、5 ps、分析光源: Nd:YLFレーザー、時間分解能 15ps)を用いた。

ナノ秒パルスラジオリシスにより、6種類のイオン液体全てにおいて、波長 1100 nmに吸収スペクトルピークを持つブロードな光吸収スペクトルが測定された。Figure8 に示すように、この吸収は電子捕捉剤としてピレン(Py)を添加することにより減少し、同時に波長 480 nmにおいてピレンアニオンラジカル(Py<sup>-</sup>)の光吸収が生成する。このことは、 $e_{sol}^-$ とPyが反応しPy<sup>-</sup>が生成することを示し、このことから波長 1100 nmに吸収スペクトルピークを持つ光吸収が $e_{sol}^-$ によるものであることがわかる。

波長1100 nmにおけるナノ秒の時間領域の $e_{sol}^-$ の減衰挙動が測定され、Pyを添加することで減衰の速度定数が増加した。これから、減衰の速度定数のフィッティングにより $e_{sol}^-$ とPyの反応の速度定数を算出したところ、 $1.5-3.5 \times 10^8 \text{ s}^{-1} \text{ M}^{-1}$ であった。Pyと $e_{sol}^-$ の反応は拡散律速反応であると考えられるが、拡散律速反応による速度定数の理論値 $k_{diff}=8RT/3\eta$ よりも実験値は約一桁大きくなった。このことはイオン液体中では溶媒和電子が特異な反応場を作る可能性を示唆している。さらに別の可能性としてイオン液体は分子量が大きいいため、構造にばらつきが大きく隙間ができやすくなるため、溶質が動きやすくなることも考えられる。

また、電子線パルス照射直後(8ns)での溶媒和電子の光吸収がPyの添加により減少、これは溶媒和する前の電子(ドライ電子: $e_{dry}^-$ )がPyと反応することによるものであり、その反応性は $C_{37}$ 値で表される。 $C_{37}$ 値とは電子捕捉剤を添加した時、 $e_{dry}^-$ の37%が捕捉剤に捕捉されずに溶媒和する時の捕捉剤の濃度のことである。各イオン液体の $C_{37}$ 値は0.063-0.076 Mであった。この値は水やアルコール中における $C_{37}$ 値よりも低く、ことからイオン液体中ではドライ電子の反応性が非常に高いことがわかった。 $e_{sol}^-$ とPy<sup>-</sup>の吸収係数変化の関係からPy<sup>-</sup>のモル吸光係数 $\epsilon=5.0 \times 10^4 \text{ M}^{-1} \text{ cm}^{-1}$ を用いて、 $e_{sol}^-$ の $\epsilon$ を求めることができ、さらに $e_{sol}^-$ の $\epsilon$ から $e_{sol}^-$ のG値が求まる。各イオン液体の波長1100nmにおける $e_{sol}^-$ の $\epsilon$ は約 $1.5-2.3 \times 10^4 \text{ M}^{-1} \text{ cm}^{-1}$

であり、8nsにおける $e_{sol}^-$ のG値は0.8-2.8 個/100eVであった。

ピコ秒パルスラジオリシスにより、初めてイオン液体中の溶媒和電子の生成過程を測定した。DEMMA-TFSI中で $e_{sol}^-$ の生成時間は約26 psであった。さらにピレン、ビフェニルを添加し $e_{dry}^-$ との反応の速度定数を求めるところ、ピレンとの速度定数が $7.9 \times 10^{11} \text{ s}^{-1} \text{ M}^{-1}$ 、ビフェニルとの速度定数が $3.8 \times 10^{11} \text{ s}^{-1} \text{ M}^{-1}$ であった。また、15 psにおける $e_{sol}^-$ のG値は1.2 個/100eVであった。溶媒和電子の生成時にG値が水のG値の4分の1程度しかないことから、ジェミネートイオン再結合の大部分が $e_{dry}^-$ の状態の段階で起きていることがわかった。

#### ・非極性液体中のジェミネートイオン再結合の研究

パルスラジオリシスは量子ビーム誘起現象を直接的に測定する手法である。パルスラジオリシスにより、放射線誘起化学過程におけるイオン化、電子の熱化過程、ジェミネートイオン再結合などの放射線化学初期過程の解明は、放射線利用にとって非常に重要である。本研究では、ピコ秒パルスラジオリシスを用いて、非極性液体（直鎖ドデカン）中のジェミネートイオン再結合の研究を行い、シミュレーションにより熱化電子の初期分布や捕捉剤を添加したときの電子との反応を調べた。

パルスラジオリシスでは、フォトカソードRF電子銃ライナックから発生したピコ秒電子パルスを用いた。電子線をドデカンに照射すると、イオン化によりカチオンラジカルと電子が生成し、その後熱化した電子がカチオンとジェミネートイオン再結合して励起状態を生成する。また電子捕捉剤を加えることにより、電子を捕捉剤と反応させ、ジェミネートイオン再結合の反応を抑制することができる。例えば、ドデカンの場合、捕捉剤を加えると、励起状態（600 nm 付近）の生成が抑制されカチオンラジカル（800 nm 付近）の吸収が主に見える。本研究では、524 nm におけるドデカンの過渡吸収時間挙動を観測し、電子捕捉剤に0.1 M  $\text{ClCH}_2\text{-CH}_2\text{-CH}_2\text{Cl}$ を加えたときのカチオンラジカルの減衰を測定した。また、実験結果とシミュレーションを比較し、20 ps 以降では結果はよく一致することがわかった。今後の課題として、フェムト秒パルスラジオリシスを開発し、20 ps 以下の時間領域でのジェミネートイオン再結合の反応を解明する。

#### [ 原著論文 ]

Bunch Length Measurement using Spectral Width of Monochromatic Synchrotron Radiation, A. Ogata, T. Kondoh, J. Yang, A. Yoshida, Y. Yoshida: Nucl. Instrum. Method A, 578 (2007) 348-350.

LWFA of Atto-Second Bunches for Pulse Radiolysis, A. Ogata, T. Kondoh, J. Yang, A. Yoshida, Y. Yoshida: Int. J. Modern. Phys., 21 (3) (2007) 447-458.

Subpicosecond pulse radiolysis in liquid methyl-substituted benzene derivatives, K. Okamoto, T. Kozawa, A. Saeki, Y. Yoshida, S. Tagawa: Radiat. Phys. Chem., 76 (2007) 818-826.

Electron photodetachment from iodide in ionic liquids through charge-transfer-to-solvated band excitation, R. Katoh, Y. Yoshida, Y. Katsumura, K. Takahashi: J. Phys. Chem. B, 111 (2007) 4770-4774.

#### [ 国際会議 ]

Femtosecond Electron Beam Dynamics in Photocathode Accelerator (poster), J. Yang, K. Kan, T. Kondoh, Y. Yoshida, S. Tagawa: Particle Accelerator Conference 2007.

Dynamic Optical Modulation of the Electron Beam for the High Performance Intensity Modulated Radiation Therapy (poster), T. Kondoh, H. Kashima, J. Yang, Y. Yoshida: Particle Accelerator Conference 2007.

Simulation Study on Attosecond Electron Bunch Generation (poster), K. Kan, T. Kondoh, J. Yang, Y. Yoshida: Particle Accelerator Conference 2007.

Attosecond and Femtosecond Pulse Radiolysis by using Laser Photocathode rf Gun Linac (invited), Y. Yoshida, J. Yang, T. Kondoh: 7th International Symposium on Advanced Science Research – Charged Particle and Photon Interactions with Matter.

Picosecond and Femtosecond Pulse Radiolysis Study on Solvated Electrons in Ionic Liquids (poster), J. Yang, T. Kondoh, R. Nagaishi, Y. Yoshida: 7th International Symposium on Advanced Science Research – Charged Particle and Photon Interactions with Matter.

Reactions of Solvated Electrons in Ionic Liquid Diethylmethyl (2-methoxy) ammonium - Bis (trifluoromethanesulfonyl) imide (poster), A. Asano, T. Kondoh, J. Yang, R. Nagaishi, K. Takahashi, Y. Yoshida: 7th International Symposium on Advanced Science Research – Charged Particle and Photon Interactions with Matter.

Dynamic Optical Modulation of Electron Beam on a Photocathode RF Gun toward the Intensity Modulated Radiation Therapy (IMRT) (poster), T. Kondoh, H. Kashima, J. Yang, Y. Yoshida, S. Tagawa: 7th International Symposium on Advanced Science Research – Charged Particle and Photon Interactions with Matter.

Looking for Dielectron: Reactions of Electrons in Ionic Liquid (poster), K. Takahashi, Y. Hiejima, R. Katoh, Y. Yoshida, Y. Katsumura: 7th International Symposium on Advanced Science Research – Charged Particle and Photon Interactions with Matter.

Decomposition of Halogenated Organic Chemicals in Room Temperature Ionic Liquids by Ionizing Radiation (poster), A. Kimura, M. Taguchi, T. Kondoh, J. Yang, Y. Yoshida, K. Hirota: 7th International Symposium on Advanced Science Research – Charged Particle and Photon Interactions with Matter.

Photocathode based Femtosecond Electron Source (poster), J. Yang, K. Kan, T. Kondoh, K. Norizawa, Y. Yoshida, K. Tanimura: 11<sup>th</sup> SANKEN International Symposium 2007 / SANKEN Nanotechnology Symposium / SANKEN MSTEC Symposium.

The Study of Optical Modulation of Electron Beam on a Photocathode RF Gun for Intensity Modulated Radiation Therapy (IMRT) (poster), T. Kondoh, H. Kashima, J. Yang, K. Kan, Y. Yoshida, S. Tagawa: 11<sup>th</sup> SANKEN International Symposium 2007 / SANKEN Nanotechnology Symposium / SANKEN MSTEC Symposium.

Collective Phenomena Induced by Attosecond Electron Bunches (poster), A. Ogata, T. Kondoh, J. Yang, Y. Yoshida: 11<sup>th</sup> SANKEN International Symposium 2007 / SANKEN Nanotechnology Symposium / SANKEN MSTEC Symposium.

Pulse Radiolysis Study of MgSO<sub>4</sub> · 7H<sub>2</sub>O Single Crystal (poster), K. Norizawa, T. Kondoh, J. Yang, Y. Yoshida: 11<sup>th</sup> SANKEN International Symposium 2007 / SANKEN Nanotechnology Symposium / SANKEN MSTEC Symposium.

[ 解説、総説 ]

Advanced Electron Beam Techniques, Y. Hirotsu and Y. Yoshida, 日本中性子科学会誌「波紋」, Vol.17, No.1 (2007) 75-80.

物理から和音を見れば、小方厚、日本物理学会誌、Vol. 62, No. 5, (2007) 371-373.



[ 著書 ]

音律と音階の科学, 小方厚, BLUE BACKS 講談社, ISBN978-4-06-257567-6, 2007

[ 国内学会 ]

「先端加速器」シンポジウム	1 件
日本放射線化学会	6 件
日本加速器学会	5 件
日本原子力学会	4 件
高周波電子銃研究会	4 件
第 2 回高崎量子応用研究シンポジウム	1 件

[ 取得学位 ]

修士 (工学)

浅野 晃 イオン液体中の放射線化学反応の研究

[ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)

単位: 千円

基盤研究 (A)

吉田陽一 サブフェムト秒・アト秒パルスラジオリシス等価速度分光法の研究 13,130

基盤研究 (C)

楊金峰 重イオンビームパルスラジオリシスによる高密度励起効果の研究 2,340

[ 共同研究 ]

楊 金峰	高エネルギー加速器研究機構	フォトカソードフェムト秒超短パルス電子源の開発	1,800
吉田 陽一	日本原子力研究開発機構 東海研究所	ナノストラクチャー内放射線誘起反応高時間分解測定	
	日本原子力研究開発機構 東海研究所	パルスラジオリシス法を用いたイオン液体の研究	
	日本原子力研究開発機構 高崎研究所	イオンビームによる超微細構造体の形成	
	日本原子力研究開発機構 高崎研究所	イオンパルスラジオリシス法による中間活性種の挙動の解明	
	放射線医学総合研究所	粒子線がん治療のためのビーム制御に関する研究	

## ナノ量子ビーム開発分野

教授（兼任） 磯山 悟朗  
准教授 誉田 義英  
助教 木村 徳雄

### a) 概要

本研究分野は、極限ナノ加工を実現するために必要な量子ビームの開発研究および新しいナノ計測手法の開発と利用法の研究を行うことを目的としている。具体的には、電子ライナックを利用した陽電子ビームの生成と材料科学への応用を行っている。陽電子は、物質内の空孔や自由体積に対し検出効率が高く、ナノスケールでの空孔サイズや分布を調べるための有効な手法と考えられている。特に低速陽電子ビームは、高分子などの薄膜に対してもこれらの情報を得ることができるので、その利用価値は高い。陽電子あるいは陽電子と電子が結合して束縛状態を形成しているポジトロニウムと物質との相互作用に関する理解を深め、高分子薄膜内の自由体積や表面・界面の評価を行い、これを新しい材料開発に役立てていこうとしている。このような研究を行うためには、高品質な陽電子ビームが必要であるため、これを可能とする電子ライナックを用いた大強度低速陽電子ビームの発生法の開発、及び陽電子ビームの利用法の開発研究を行っている。更に、これらの研究を進める実験装置を有する加速器量子ビーム実験室の管理・運営にも寄与している。

### b) 成果

#### ・Sバンドライナックの立ち上げ

Sバンドライナックには現在2種類あるが、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。電源の移設（一分更新）以降、安定に運転できずにきていた。この主たる原因は電源の安定化回路に入り込むノイズであったため、これまで特にアース系を中心に結線の変更等を行ってきたが、なかなか改善しなかった。このため、前年度末に矩形パルス形成回路およびサイラトロン放電回路を含むモジュレーター筐体全体を更新することにした。本年度はこの組み立て作業を行った。また、クライストロンタンクの高圧パネルシール部から油漏れも生じてきたため、クライストロンタンクの発注も行った。今後このクライストロンタンクの更新及び動作確認を行っていく予定である。

#### ・角相関を用いた AMOC の検討

我々は親水基が多く存在する高分子電解質膜（Nafion-117等）に対し、 $\gamma$ 線照射や熱負荷を与え、その性能変化の様子を陽電子消滅法を用いて調べてきている。これまでの結果から、 $\sigma$ -Psの寿命より消滅 $\gamma$ 線のドップラー拡がりに、より大きな差が現れることがわかってきた。ドップラー拡がりは消滅相手電子の運動量に関係しているが、陽電子の自由消滅と $\sigma$ -Psの消滅とに大きな差がない限り、この変化が陽電子の自由消滅を反映しているのか、 $\sigma$ -Psの消滅を反映しているのか不明である。そこで、これらを区別するために陽電子寿命と消滅 $\gamma$ 線光電ピークのドップラー拡がり測定を同時に行なうAMOC（Age-MOMentum Correlation）法を用いて測定を行っている。通常AMOC法ではゲルマニウム半導体検出器によるドップラー拡がり測定が行われているが、分解能の点で角相関法に劣るため、角相関法をAMOC法に取り入れることを検討した。角相関を用いる場合は計数効率が大幅に落ちるため、ライナックを用いて生成される陽電子ビームのような、高強度な線源が必要となる。

角相関測定では4インチ程度のBaF<sub>2</sub>とBGOのシンチレーターを設置し、位置検出型のフォトマルと組み合わせ、時間情報、角度情報を同時に取ることをもくろんでいる。そこで問題となるのはBaF<sub>2</sub>の厚さの設定と、角度分解能の評価である。本来、半導体検出器を用いたドップラー拡がり測定における分解能の算出には、いくつかの要素が入り込んでくるため、評価するのは単純ではないが、ここではADC

の分解能からくる影響だけを考察し、角相関の場合と比較することにした。角相関においてはフォトマルを用いて位置を算出する際の光の強度分布が重要となるが、ルミネッセンスを引き起こす媒体としては低エネルギー電子が最も大きく寄与するであろうことから、これを推察するための手段として、低エネルギー電子の分布で代用することにした。

数値計算による検討の結果、厚さ1インチ程度のBaF<sub>2</sub>を用い、1 m以上サンプルから話すことで、ドップラー測定に比べよい分解能で計測できると推察された。この手法では計数効率が大幅に落ちるため、計測系の最適配置を行う必要があること、高強度線源の利用が望まれる。

#### ・陽電子を用いた固体高分子形燃料電池の劣化解析

燃料電池用電解質膜のプロトン伝導率を低下させている原因の1つと考えられている、過酸化水素を介した高分子鎖の破壊の可能性については、これまでフェントン試験等で調べられてきているが、この試験法では鉄イオンの影響も入り副次的な影響も避けられない。そこで電解質膜としてのNafion-117に対し、 $\gamma$ 線を照射することでラジカルを作り出し、これがプロトン伝導に与える影響を陽電子消滅法により調べることにした。陽電子の消滅過程では大きく分けて陽電子が電子と直接消滅する場合と、陽電子と電子の束縛状態である $o$ -Psを形成してから消滅する場合があるが、前年度行ったAMOC法を用いた測定から、Nafion-117では陽電子はほとんど電子とそのまま消滅しており、 $o$ -Psを形成してから消滅している割合は少ないことがわかっている。このことは消滅 $\gamma$ 線の光電ピーク形状を表すSパラメータを評価し、その変化を解釈するには好都合である。そこで本年度はSパラメータを更に詳しく調べるために、消滅 $\gamma$ 線の同時測定法(CDB法)も用いて解析を試みた。CDB法では光電ピーク形状をよりエネルギーの高い部分までS/Nのよい状態で評価でき、光電ピークのドップラー拡がり調べのために有効である

プロトン伝導率は交流4端子法によるインピーダンス測定から求めた。また、陽電子消滅関連パラメータ測定に関しては、陽電子源にNa-22を用い、線源を試料で挟み、陽電子寿命、消滅 $\gamma$ 線の光電ピーク形状等を測定した。0.1 kGyから1000 kGyまで $\gamma$ 線照射した試料に対する $o$ -Psの寿命、生成量の違いを調べた結果、吸収線量が違っても大きな変化は見られなかったため、 $\gamma$ 線照射した試料でも陽電子の消滅はほとんど陽電子と電子とが直接消滅していることがわかった。従って、光電ピーク形状の違いは、主として陽電子が直接消滅する相手電子の運動量の違いを反映していると考えられる。一方、吸収線量とプロトン伝導率との関係を調べると、吸収線量が最も少ないときにプロトン伝導率が最も小さく、線量の増大に伴いプロトン伝導率も増大する傾向が見られた。プロトン伝導率とSパラメータの相関からは、吸収線量が最も少ない試料でSパラメータが最も高くなり、吸収線量の増大にあわせSパラメータが減少していくのがわかった。このことは、陽電子消滅法により、プロトン伝導に寄与しているのは何なのか、どこなのかを調べることができることを意味している。吸収線量の異なる試料に対するCDB法を用いて得られた消滅 $\gamma$ 線光電ピークとPTFEの光電ピークの比は、511 keVでは1より小さく、512 keVにかけて1より大きくなり、更に515 keVに至るまで緩やかな減少を示した。これはNafion-117では512 keV付近のエネルギーを持つ消滅 $\gamma$ 線がより多く放出されていることを意味し、これはスルホ基に関係する酸素原子の影響だと考えている。今後、照射に伴う形状変化を詳細に調べ、スルホ基近傍の状態変化を解明する予定である。

本研究は工学研究科の西嶋研究室との共同研究で行った。

#### ・陽電子寿命測定法による解離型電子捕捉反応の研究

一電子付加によるハロゲン化アルキルの炭素—ハロゲン(C-X)結合の還元的解離は解離型電子移動反応の一番簡単な反応系である。このような還元的解離反応は電子線レジスト材料中でも起こり、機構的解明が重要である。近年、この反応の反応動力学が理論計算によって求められ、反応が極短時間(10<sup>-13</sup> s)に完結することが報告されている。しかし、このような極短時間の実時計測は現段階では非常に難しい。

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にイオン化が起こり、電子と陽イオンを生成する。熱化したポジトロンがこの二次電子を捕捉することによってポジトロニウム(Ps)生成する。このPsの生成過程は、電子と陽イオンの再結合やハロゲン化アルキルによる電子捕捉反応と競争的に起こる。本研究ではPsの

生成時間が数ピコ秒 ( $10^{-12}$  s) であることから、再結合や電子捕捉反応と競争的に起こるPsの生成量を測定することによって、二次電子の電子捕捉剤に対する反応性を調べることを目的としている。

#### [ 原著論文 ]

Study of annihilation processes of positrons in polystyrene-related polymers, Y. Honda, T. Shimada, M. Tashiro, N. Kimura, Y. Yoshida, G. Isoyama and S. Tagawa, *Radiat. Phys. Chem.* 76(2007) 169-171.

Analysis of Swelling Process of Protein by Positron Annihilation Lifetime Spectroscopy and Differential Scanning Calorimetry, Y. Akiyama, Y. Shibahara, S. Takeda, Y. Izumi, Y. Honda, S. Tagawa, S. Nishijima, *J. Polym. Sci. Part B: Polym. Phys.* 45(2007)2031-2037.

Analysis of Thermal Degradation Process of Nafion-117 with Age-momentum Correlation Method, Y. Shibahara, Y. Akiyama, H. Miyauchi, Y. Izumi, S. Nishijima, Y. Honda, N. Kimura, S. Tagawa, G. Isoyama, *J. Polym. Sci. Part B: Polym. Phys.* 46(2008)1-7.

Direct Evidence of Positronium Trapping in the Cavity of Crown Ether, Y. Shibahara, Y. Honda, Y. Akiyama, Y. Izumi, S. Tagawa, S. Nishijima, *Chem. Phys. Lett.* 450(2008)350-354.

#### [ 国際会議 ]

Study on Polymer Electrolyte Membrane for Fuel Cell by Using AMOC Technique, Y. Honda, Y. Shibahara, Y. Akiyama, N. Kimura, G. Isoyama, S. Tagawa, S. Takeda, Y. Izumi, S. Nishijima, *Phys. Stat. Solidi (C)* 4(2007)3735-3738.

The investigation of Swollen Process in Gelatin Gel by Using Positron Annihilation Spectroscopy, Y. Akiyama, Y. Shibahara, S. Takeda, Y. Izumi, Y. Honda, S. Nishijima, *Phys. Stat. Solidi (C)* 4(2007)3920-3923.

Structural Analysis of Macrocyclic Polyether with Positron Annihilation Measurement, Y. Shibahara, Y. Akiyama, Y. Izumi, Y. Honda, S. Tagawa, S. Nishijima, *The 17<sup>th</sup> Iketani Conference: The Doyama Symposium (Tokyo, 2007)*.

Study on Hydrocarbon Based Electrolyte Membrane by Using Positron Annihilation Technique, H. Miyauchi, Y. Shibahara, Y. Akiyama, Y. Izumi, S. Nishijima, Y. Honda, N. Kimura, G. Isoyama, S. Tagawa, *The 17<sup>th</sup> Iketani Conference: The Doyama Symposium (Tokyo, 2007)*

Analysis of Radiation Induced Degradation in a Polymer Electrolyte Membrane with Positron, Y. Honda, N. Kimura, P. K. Pujari, G. Isoyama, S. Tagawa, H. Miyauchi, Y. Shibahara, Y. Akiyama, Y. Izumi, S. Nishijima, *11<sup>th</sup> SANKEN International Symposium/ 6<sup>th</sup> Nanotechnology Center International Symposium/ 1<sup>st</sup> MSTEC International Symposium, Awaji, Feb. 4-5, 2008.*

Study on Polymer Electrolyte Membrane with Positron Annihilation Spectroscopy, Y. Honda, N. Kimura, G. Isoyama, S. Tagawa, H. Miyauchi, Y. Shibahara, Y. Akiyama, Y. Izumi, S. Nishijima, *3<sup>rd</sup> CNU-SANKEN Joint Symposium on Advanced Materials Science, Daejeon, Korea, Feb. 27-28, 2008.*

**[ 国内学会 ]**

電気化学会	2 件
日本原子力学会	2 件
アイソトープ・放射線研究発表会	1 件

**[ 科学研究費補助金 ]**

(代表者として配分されたもの)	単位：千円
基盤研究 (C) 陽電子による高分子電解質膜の性能評価 菅田 義英	<b>3,640</b>

## ナノビームプロセス分野

教授（兼任） 田川 精一  
准教授 古澤 孝弘  
特任助教 岡本 一将

### a) 概要

ナノビームプロセス分野は電子、イオン、光子等の集束性に優れた量子ビームを用いたナノテクノロジープロセスの研究・開発を行っている。トップダウン型ナノテクノロジーの代表であるリソグラフィは現在 100 nm 以下の加工が可能なレベルに到達しているが、本研究分野では、さらなる高解像化を目指すため、極限ナノビームプロセスの追求と、その展開を目的に研究を行っている。ナノビームが微小空間内で引き起こす現象は物理・化学的に興味深いだけでなく、今後のトップダウン型ナノテクノロジーの進展のため、解明されなければならない必須項目である。さらに、ナノテクノロジーの発展のためにはトップダウン型ナノテクノロジーとボトムアップ型ナノテクノロジーの融合が必要不可欠であり、本研究分野では両者の融合を念頭に極限ナノビームプロセスの展開を目指した研究を進めている。

### b) 成果

#### ・化学増幅型レジストの反応機構

次世代電子ビーム・X線用レジストとして開発が進められている化学増幅型レジストの放射線反応過程を、パルスラジオリシス法および電子ビーム露光後の分光分析により調べ、ポリスチレン誘導体をはじめとする反応中間体のダイナミクス、酸発生機構における酸発生効率および高分子マトリクス中でのプロトン移動の高分子構造依存性を明らかにした。

#### ・微細加工材料のナノ空間内での量子ビーム誘起反応種の三次元ダイナミクスの研究

電子線リソグラフィはトップダウン型ナノテクノロジーにおいてもっとも解像度が高い加工システムである。微細加工材料においてパターン形成に利用される短寿命中間活性種のナノ空間内での三次元空間分布とその経時変化を解明することにより、微細加工材料の限界解像度と反応機構が密接に関係していることを明らかにした。

#### ・レジスト薄膜中のポリマーおよび酸発生剤のナノ分布

微細化の進んでいる半導体加工用レジスト材料の加工誤差の制御は分子サイズまで要求が高まってきている。このため、ポリマー中の酸発生剤(PAG)分布、またポリマー自身の薄膜状態における配向など解明し、これらの制御を可能にしなければならない。本研究は薄膜の深さ方向での密度分布を測定し、薄膜状態におけるポリマーと PAG のナノ分布を調べることを目的とし、X線反射率測定による測定を行った。

### [ 原著論文 ]

Dissolution characteristics and reaction kinetics of molecular resists for extreme-ultraviolet lithography, M. Toriumi, J. J. Santillan, T. Itani, T. Kozawa, S. Tagawa: J. Vac. Sci. Technol. B, 25 (6) (2007) 2486-2489.

Image contrast slope and line edge roughness of chemically amplified resists for postoptical lithography, T. Kozawa, S. Tagawa, J. J. Santillan, M. Toriumi, T. Itani: J. Vac. Sci. Technol. B, 25 (6) (2007) 2295-2300.

Stroboscopic Picosecond Pulse Radiolysis Using Near-Ultraviolet-Enhanced Femtosecond Continuum Generated by CaF<sub>2</sub>, A. Saeki, T. Kozawa, K. Okamoto, S. Tagawa: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 46 (1) (2007) 407-411.

Dependence of Absorption Coefficient and Acid Generation Efficiency on Acid Generator Concentration in Chemically Amplified Resist for Extreme Ultraviolet Resists, R. Hirose, T. Kozawa, S. Tagawa, T. Kai, T. Shimokawa: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 46 (40) (2007) L979-L981.

Exposure dose dependence on line edge roughness of a latent image in electron/extreme ultraviolet lithographies studied by Monte Carlo technique, A. Saeki, T. Kozawa, S. Tagawa, H. B. Cao, H. Deng, M. J. Leeson: *J. Micro/Nanolith. MEMS MOEMS*, 6 (2007).

Theoretical Study on Relationship between Acid Generation Efficiency and Acid Generator Concentration in Chemically Amplified Extreme Ultraviolet Resists, T. Kozawa, S. Tagawa, M. Shell: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 46 (47) (2007) L1143-L1145.

Point Spread Function for the Calculation of Acid Distribution in Chemically Amplified Resists Used for Electron-Beam Lithography, T. Kozawa, S. Tagawa: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 46 (48) (2007) L1200-L1202.

Scanning Tunneling Microscopy Profiling of Steep Ridges Using Metal-Coated Carbon Nanotube Tip, Y. Murata, M. Kishida, K. Motoyoshi, T. Kimura, S. Honda, K. Okamoto, Y. Matsui, S. Tagawa, M. Katayama: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 46 (12) (2007) 8005-8007.

Sensitization Distance and Acid Generation Efficiency in a Model System of Chemically Amplified Electron Beam Resist with Methacrylate Backbone Polymer, T. Kozawa, S. Tagawa, T. Kai, T. Shimokawa: *J. Photopolym. Sci. Technol.*, 20 (4) (2007) 577-583.

Reactivity between Biphenyl and Precursor of Solvated Electrons in Tetrahydrofuran Measured by Picosecond Pulse Radiolysis in Near-Ultraviolet, Visible, and Infrared, A. Saeki, T. Kozawa, Y. Ohnishi, S. Tagawa: *J. Phys. Chem. A*, 111 (7) (2007) 1229-1235.

Polymer-Structure Dependence of Acid Generation in Chemically Amplified Extreme Ultraviolet Resists, H. Yamamoto, T. Kozawa, S. Tagawa, H. B. Cao, H. Deng, M. J. Leeson: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 46 (7) (2007) L142-L144.

Single-Component Chemically Amplified Resist Based on Dehalogenation of Polymer, H. Yamamoto, T. Kozawa, S. Tagawa, K. Ohmori, M. Sato, H. Komano: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 46 (26) (2007) L648-L650.

Study of Acid-Base Equilibrium in Chemically Amplified Resist, K. Natsuda, T. Kozawa, A. Saeki, K. Okamoto, S. Tagawa, K. Ohmori, M. Sato, H. Komano: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 46 (11) (2007) 7285-7289.

Effect of Acid Diffusion and Polymer Structure on Line Edge Roughness, H. Yamamoto, T. Kozawa, A. Saeki, K. Okamoto, S. Tagawa, K. Ohmori, M. Sato, H. Komano: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 46 (10) (2007) 6187-6190.

Subpicosecond pulse radiolysis in liquid methyl-substituted benzene derivatives, K. Okamoto, T. Kozawa, A. Saeki, Y. Yoshida, S. Tagawa: *Radiat. Phys. Chem.*, 76 (5) (2007) 818-826.

[ 国際会議 ]

Dynamics of PHS radical cation (poster), K. Okamoto, T. Kozawa, S. Tagawa: SPIE.

High Precision Measurement of Higher Diffraction-order Contamination in Monochromatized Soft X-ray by using a Compact Transmission-Grafting Spectrometer (poster), K. Fukui, T. Sakai, T. Hatsui, N. Kosugi, Y. Hamamura, K. Okamoto, Y. Matsui, T. Kozawa, S. Seki, S. Tagawa: International Conference on Vacuum Ultraviolet Radiation Physics.

Effect of Fluorine Atom on Acid Generation in Chemically Amplified EUV Resists (poster), H. Yamamoto, T. Kozawa, S. Tagawa, H. Yukawa, M. Sato, H. Komano: EUVL Symposium.

Single-Component Chemically Amplified Resist Based on Dehalogenation of Polymer (poster), H. Yamamoto, T. Kozawa, S. Tagawa, K. Ohmori, M. Sato, H. Komano: SPIE.

Development and Performance of Quasi-Free Standing Transmission-Grating for Soft X-ray Emission Spectrometer (poster), H. Takai, K. Okamoto, M. Matsui, T. Kozawa, S. Seki, S. Tagawa, Y. Hamamura, N. Kosugi: International Conference on Vacuum Ultraviolet Radiation Physics.

Pulse Radiolysis of Polystyrene and Derivatives (invited), K. Okamoto, M. Tanaka, S. Seki, T. Kozawa, S. Tagawa: International Congress of Radiation Research.

Dependence of Absorption Coefficient and Acid Generation Efficiency on Acid Generator Concentration in Chemically Amplified EUV Resist (poster), R. Hirose, T. Kozawa, S. Tagawa, T. Kai, T. Shimokawa: Microprocess and Nanotechnology Conference.

Effect of Fluorine Atom on Acid Generation in Chemically Amplified EUV Resists (poster), H. Yamamoto, T. Kozawa, S. Tagawa, H. Yukawa, M. Sato, J. Onodera: Microprocess and Nanotechnology Conference.

Study on the Reaction of Acid Generators with Epithermal Electrons (poster), K. Natsuda, T. Kozawa, A. Saeki, S. Tagawa, T. Kai, T. Shimokawa: Microprocess and Nanotechnology Conference.

Pico- and Subpico-second Pulse Radiolysis Based on L-band Linc with Femtosecond White Light Continuum (invited), A. Saeki, T. Kozawa, S. Tagawa: ASR symposium.

Study on Dynamics of Radical Ions of Polystyrenes by Pulse Radiolysis (invited), K. Okamoto, M. Tanaka, T. Kozawa, S. Seki, S. Tagawa: International Congress of Radiation Research.

Dependence of Acid Generation Efficiency on Acid Molecular Structure and Concentration of Acid Generator in Chemically Amplified EUV Resist (poster), R. Hirose, T. Kozawa, S. Tagawa, T. Kai, T. Shimokawa: SPIE.

Acid-Base Equilibrium in Chemically Amplified Resist, K. Natsuda, T. Kozawa, K. Okamoto, S. Tagawa: SPIE.

Monte Carlo Simulation on Line Edge Roughness after Development in Chemically Amplified Resist of Post-optical Lithography, A. Saeki, T. Kozawa, S. Tagawa, H. B. Cao, H. Deng, M. J. Leeson: SPIE.

Reactivity of Pre-solvated Electrons in Tetrahydrofuran Studied by Picosecond Pulse Radiolysis in near-UV to IR (poster), A. Saeki, T. Kozawa, S. Tagawa: Trombay Symposium of Radiation and Photochemistry 2008.

Development of Single Component Chemically Amplified Resist Based on Dehalogenation of Polymer (poster), H. Yamamoto, T. Kozawa, S. Tagawa, K. Ohmori, M. Sato, H. Komano: 11th Sanken International Symposium 6th nanotechnology center international symposium 1st MSTEC international symposium.



Line Edge Roughness in Chemically Amplified Resist of Electron Beam Lithography (poster), A. Saeki, T. Kozawa, S. Tagawa, H. B. Cao: 11th Sanken International Symposium 6th nanotechnology center international symposium 1st MSTEC international symposium.

Study on the Reaction of Acid Generators with Precursor of Solvated Electrons in Tetrahydrofuran (poster), K. Natsuda, T. Kozawa, A. Saeki, S. Tagawa, T. Kai, T. Shimokawa: The International Global COE symposium on Global Education and Bio-Environmental Chemistry (GCOEBEC).

[ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

古澤 孝弘 20th Microprocess and Nanotechnology Conference (論文委員)  
古澤 孝弘 2007 International Extreme Ultraviolet Lithography (EUVL) Symposium (論文委員)

[ 国内学会 ]

日本放射線化学会	5 件
日本化学会	2 件
日本原子力学会	1 件
日本応用物理学界	9 件
高分子学会	1 件

[ 取得学位 ]

博士 (工学)  
岡本 一将 芳香族分子の放射線化学初期過程及びカチオン種のダイナミクスに関する研究

[ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)		単位：千円
基盤研究(S)		
田川 精一	フェムト秒パルスラジオリシス法によるナノ時空間反応プロセスの解明ーナノスケール量子ビーム利用の新展開ー	25,610
基盤研究(B)		
古澤 孝弘	極端紫外光による超微細加工実現へ向けた学術基盤確立のためのナノ空間反応研究	7,410
若手研究(B)		
岡本 一将	レジスト材料のナノサイズゆらぎ制御のための分子ダイナミクスと反応機構の解明	1,200

[ 受託研究 ]

田川 精一	JST CREST	極微細加工用レジスト研究とプロセスシミュレーターの開発	26,910
田川 精一	Intel Corp.	化学増幅型 EUV レジスト中で生成される酸のナノスケール分布形状	13,962
田川 精一	技術研究組合超先端電子技術開発機構(ASET)	化学増幅レジストの反応機構の研究	1,000

[ 共同研究 ]

田川 精一	三菱瓦斯化学株式会社	ArF フォトレジストに関する基礎研究	500
田川 精一	半導体先端テクノロジーズ(SELETE)	EUV レジストに関する研究	500
田川 精一	松下電器産業	EUVリソグラフィ用レジスト材料の溶解特性	1,000

## 超高速ナノ構造分野

外国人研究員 Ivo Frébort (平成 19 年 4 月 3 日～平成 19 年 5 月 14 日)

### a) 概要

植物ホルモンの一種、サイトカイニンは、細胞分裂、芽の伸長、葉の成長促進作用などの多彩な生理作用を有するが、植物体内での生合成及び分解経路に関してはほとんど未解明に残されている。そこで、アデニンデアミナーゼや AMP デアミナーゼ等のサイトカイニン代謝に関与する酵素の構造や触媒機構を解明するため、酵母やシロイヌナズナ等のモデル植物由来のアデニンデアミナーゼ、AMP デアミナーゼを大腸菌で高発現させ、均一に精製するとともに、X線結晶解析を行い、これら酵素の立体構造を明らかにする。また、サイトカイニン基質との相互作用を各種分光学的方法により解析し、触媒機構を考察する。

### b) 成果

酵母 *Saccharomyces cerevisiae* 及び *Schizosaccharomyces pombe* に由来するアデニンデアミナーゼと、シロイヌナズナ *Arabidopsis thaliana* に由来するアデノシンデアミナーゼを遺伝子組換え大腸菌から初めて均一に精製することに成功した。これらの酵素の分子的性質を検討したところ、よく研究されている動物のアデニンデアミナーゼと類似した性質を示したが、触媒活性は非常に低かった。酵母と植物由来の両酵素の最も良い基質は、それぞれアデニンとアデノシンであった。興味深いことに、これらの基質以外に、植物ホルモンの一種であるサイトカイニンとして知られる  $N^6$ -置換アデニン誘導体や、癌治療の医薬や化粧品の素材としても用いられているその類縁体も良好な基質として作用した。さらに、ヒトのアデノシンデアミナーゼもこれらの基質に作用することが明らかになった。

一方、酵母由来アデニンデアミナーゼと植物由来のアデノシンデアミナーゼの結晶化を開始した。3種類の酵素とも微小な結晶が予備的段階で生成した。これらの微小な結晶をさらに成長させるため、結晶化条件を検討したところ、X線結晶解析に適した結晶が得られた。

## 超高速ナノ構造分野

外国人研究員 Patrick Henry TOY（平成 19 年 5 月 16 日～平成 19 年 6 月 28 日）

### a) 概要

天然酵素のような高エナンチオ選択性と優れた反応効率を兼ね備えた「超酵素」の創出を目標に、反応基質と結合する「認識の場」として酵素類似の多点制御機構により反応を促進する低分子（多機能不斉触媒）を、触媒効率を向上させるための「反応の場」として、球状ナノ粒子（多機能 dendrimer、ミセルポリマーおよび金属クラスター）の活用を計画した。二種類の「場」を融合させ 1 つの分子の中に構築することにより、それぞれの機能を増強する超酵素の創製を検討している。

### b) 成果

#### ・不斉触媒の固定化に対する新機軸

種々の反応に高いエナンチオ選択性を示す BINOL を、界面活性モノマーの形成する球状ミセル表層上へと固定化することで、不斉触媒能を有する球状ナノ粒子の効率的構築法の開発に成功した。さらに、金と硫黄の親和力を利用した金属クラスター担持触媒の調製にも成功した。得られたナノ粒子状配位子とチタンとの錯体は、アルデヒド類の不斉アルキル化や不斉マイケル付加に有効であることを見出した。

## 超高速ナノ構造分野

外国人研究員    Ayyappanpillai Ajayaghosh    (平成 19 年 6 月 29 日～平成 19 年 7 月 31 日)

### a) 概要

ゲルやナノワイヤの形成が期待できる高い自己集合能を付与した共役オリゴマー化合物の分子設計と合成手法、および、電子物性と応用を検討した。

### b) 成果

#### ・自己集合能を有する共役系化合物の創製と新機能開拓

有機エレクトロニクス材料として優秀な機能を有するオリゴチオフェンにゲルやナノワイヤの形成能を付与することができれば、新規なナノ電子材料の開拓が可能となる。オリゴチオフェンにこうしたナノ構造体の生成が期待できる高い自己集合能を付与するための分子設計と合成手法を検討した。さらに、これらの組織体の階層構造と光・電子物性を研究し、電子機能材料としての応用を探索した。

また、以下の二つの講演会を開催した。

平成 19 年 7 月 4 日 「Molecular Self-assemblies as Scaffolds for Excitation Energy Transfer」

平成 19 年 7 月 10 日 「Squaraine Dyes: Versatile Chromophores for the Design of Cation Probes and Nanoarchitectures」

## 超高速ナノ構造分野

外国人研究員 鄭 絳宇（平成 19 年 8 月 1 日～平成 19 年 8 月 31 日）

### a) 概要

我々の身の回りで起こる様々なイベントを常時記録しておき、必要に応じて記録したイベントを再確認するためには、ライフログシステムが有効である。そこで、装着型の全方位カメラシステムを用いて日常のイベントを記録し、映像を時空間的に要約することで、効率よく閲覧するための手法を開発する。

### b) 成果

まず、ライフログを記録するための視覚系として、装着型の全方位カメラシステムの基本デザインについて検討を行った。さらに、記録した映像を、時間・空間・イベントという観点で整理し、効率よく閲覧するための映像要約手法を明らかにした。映像を、背景、近接物体、動物体に切り分けることで、時空間的に要約し、複数のイベントを同時に確認することが可能となる。また、重要なイベントは様々な視点から記録しておき、他人の視点から見た視覚情報も共有することで、より大域的な情報の把握が可能となる。

## 超高速ナノ構造分野

客員准教授 Pradeep K. Pujari (平成 19 年 9 月 3 日～平成 19 年 12 月 3 日)

### a) 概要

**P.K.Pujari** 博士は現在インドのバーバー原子力研究所の研究員で、**2007 年 9 月**から**3 ヶ月**間、客員准教授として当該分野に滞在した。博士の専門は陽電子による材料解析で、これまでラジオアイソトープ (**RI**) の陽電子源を用い、主に高分子に関する研究に従事されてきた。最近では **RI** ベースの低速陽電子ビーム発生装置の開発も手がけられており、陽電子を用いた研究を精力的に行っている。今回の滞在の目的はナノ量子ビーム開発分野と協力し、低速陽電子ビームラインの整備に参加するとともに、固体高分子電解質膜の陽電子による性能評価に関する研究を遂行することであった。博士らのグループが陽電子を用いて固体高分子電解質膜に対し行った研究は先駆的なものであり、研究協力を行うことは双方に有意義であると予想された。博士の産研滞在中には陽電子に関する解析にとどまることなく、**FTIR** や **ESR** のデータ処理に関しても積極的に関与され、特に電解質膜の  $\gamma$  線照射による性能変化を **ESR** 法を用いて評価する仕事では指導的役割を果たされた。これらの仕事は平成 19 年度 11 月京都大学原子炉実験所で行われた、「陽電子による先端材料評価」と題する研究会で報告された。一方、ポーラスマテリアルの微小空間内での水の氷結現象を陽電子を用いて研究した結果について、産研でも講演会が開催され実りのある討論が行われた。

## 超高速ナノ構造分野

外国人研究員

Hossain, Akther Kashem Mohammad (平成 19 年 12 月 4 日～平成 20 年 1 月 31 日)

### a) 概要

ペロブスカイト型構造を有する鉄酸化物 $\text{Pb}(\text{Fe},\text{Ta})_{0.5}\text{O}_3$  and  $\text{Ba}(\text{Fe},\text{Ta})_{0.5}\text{O}_3$ は鉄Bサイト間の二重交換相互作用に伴う強磁性及び強誘電性を示す興味深い物質である。しかしながら、その強磁性及び強誘電性の相互関係及び物理起源についてはほとんど未解明であるのが現状である。そこで、上記ペロブスカイト型鉄酸化物を、固相反応法により合成しその磁性・誘電率を測定し、その強磁性・強誘電特性及びそのカップリング性について検討した。

### b) 成果

ペロブスカイト型構造を有する鉄酸化物 $\text{Pb}(\text{Fe},\text{Ta})_{0.5}\text{O}_3$  and  $\text{Ba}(\text{Fe},\text{Ta})_{0.5}\text{O}_3$ は鉄Bサイト間の二重交換相互作用に伴う強磁性及び強誘電性を固相反応法により合成しその磁性・誘電率を測定し、その強磁性・強誘電特性及びそのカップリング性について検討し種々の知見を得た。



## 超高速ナノ構造分野

外国人研究員 長山（平成20年2月1日～平成20年3月31日）

### a) 概要

現代社会では欠くことのできない電子機器において、半導体デバイスはその根幹をなしている。とりわけ極薄絶縁膜／半導体界面ならびに極薄誘電体膜の性質は、デバイス特性に多大な影響を及ぼし、これらの物性研究は、基礎ならびに応用の両面において非常に重要である。そこで、液晶ディスプレイ等の駆動用薄膜トランジスターに用いられる絶縁膜の形成とその特性評価を行った。

### b) 成果

32×40 cm<sup>2</sup>のサイズのTFT基板用の硝酸酸化装置を用いて、多結晶シリコン薄膜の酸化を行い、MOS（金属－酸化物－半導体）構造を形成した。SiO<sub>2</sub>膜厚は～1nmであり、膜厚分布は±5%と良好であった。X線光電子スペクトル（XPS）では、Siのピークから、SiO<sub>2</sub>薄膜中やSiO<sub>2</sub>-Si界面に欠陥が極めて少なく、良好な特性を持つSiO<sub>2</sub>膜が形成されたことが示された。また、多結晶シリコン薄膜基板と同時に硝酸酸化したp-Si(100)モニタウェーハを用いて、<Al/SiO<sub>2</sub>/Si(100)>ダイオード構造の電気特性を測定した。水素雰囲気中でアニールすることにより、電流－電圧特性は、最高性能とされている熱酸化膜を超える絶縁性を示した。電気容量－電圧特性で、界面準位の低減が観測されたことから、Si-SiO<sub>2</sub>界面にあるSiのダングリングボンドがH原子により終端され、硝酸酸化膜の絶縁性が向上したことが分かった。

### [ 原著論文 ]

S. Mizushima, S. Imai, Asuha, M. Tanaka, and H. Kobayashi, Nitric acid method for fabrication of gate oxides in TFT, Appl. Surf. Sci. 254, 3685-3689 (2008).

### [ 国際会議 ]

H. Kobayashi, Asuha, T. matsumoto and M. Takahashi, Nitric Acid Oxidation of Si and SiC for the Low Temperature Fabrication of MOS Structure, Interntional Seminar on Semiconductor Surface Passivation 2007.

T. Matsumoto, Asuha, Y.-L. Liu, S. Imai, S. Mizushima, M. Takahshi, and H. Kobayashi, Nitric Acid Oxidation of Si (NAOS) and Defect Passivation Etch-Less Cleaning (DPEL) Method to Improve Si Devices, 3rd Handai Nano Symposium.

# ナノテクノロジー産業応用研究部門

## 概要

本分野は、環境調和ナノマテリアル分野（菅沼研）、計算機ナノマテリアルデザイン分野（兼吉田（博）研）、ナノバイオ知能システム分野（兼溝口研）、ナノテクノロジープロパテント分野（学内兼任）、ナノテクノロジートランスファー分野（外国人客員）の4分野から構成され、産業界にとって有用であり、また将来の新産業の創成に利すると考えられるナノテクノロジーに関する科学技術や知的所有権を産業応用するための中核となる研究を行っている。それぞれの名称通りに、ナノテクノロジーを用いた環境調和ナノマテリアル、高効率エネルギー変換ナノマテリアル、ナノマテリアルデザインソフト技術、ナノバイオ知能システム技術、超高密度記録演算素子技術の産業応用研究と技術移転および、知的所有権の戦略的研究と実施を行っている。具体的な個々の成果は、以下に要約される。ただし、ナノテクノロジープロパテント分野及びナノテクノロジートランスファー分野は、それぞれの記述をご覧ください。

## 成果

- ・ 高温鉛フリーはんだの基本設計の確立と実用化評価
- ・ 低温鉛フリーはんだの酸化メカニズム解明と耐湿性改善技術開発
- ・ 導電性接着剤実装技術の高信頼化と評価技術開発
- ・ Printed Electronics 技術の開拓と、これにマッチした金属ナノ粒子インクの開発
- ・ オントロロジー工学に基づく材料設計支援システムの開発
- ・ ナノテクノロジーオントロロジーに基づくコンテンツ管理システムの開発
- ・ 機能と性質に関するオントロロジー的考察に基づくナノテクノロジーオントロロジーの洗練
- ・ 臨床医療オントロロジー構築ためのオントロロジー構築システムの開発
- ・ オントロロジーに基づくライフサイエンス分野のデータベース高度化
- ・ 半導体ナノストロニクスのマテリアルデザイン
- ・ 希薄磁性半導体のスピノダル分解によるナノ構造の生成
- ・ LDA-SIC 法の MACHIKANEYAMA への実装
- ・ SiO<sub>2</sub>ベース希薄磁性半導体の設計
- ・ 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
- ・ ダイナミックスを利用した半導体材料における超伝導マテリアルデザイン
- ・ 半導体中の不純物制御のためのマテリアルデザイン

## 環境調和ナノマテリアル分野

教授	菅沼 克昭
助教	井上 雅博、金 権鉄（平成 19 年 10 月 16 日採用）
博士研究員	金 道燮、酒 金婷、金 善植、村井 啓一
技術補佐員	畑村 真理子、樋口 博雄、加賀美 宗子、濱崎 恭子
大学院学生	隈元 聖史、出田 吾郎、蔵本 雅史、和久田 大介、金 声俊、Alongheng、姜 玫
事務補佐員	井手 こずえ、松下 美佐

### a) 概要

無機・有機・金属などの異相界面ナノ構造制御技術を駆使し、電子機器分野を主とした鉛フリーはんだ技術、導電性接着剤技術、ナノ粒子インクを用いた粒子 Printed Electronics 技術など環境調和したファインな配線接続技術開発とこれらを支える新たな学際領域開拓、複合化技術を用いた金属基・金属間化合物基複合材料開発などを通し、産業界へ積極的な寄与を行っている。

### b) 成果

#### ・高温鉛はんだ代替技術開発

携帯電話などの携帯機器は、エレクトロニクスの最先端の集積化技術を実現するものだが、その微細接合部制御が、新たなエレクトロニクス機器開発の最重要課題になっている。材料は、低温実装と高温はんだ代替を担う導電性接着剤が注目を集めている。本研究では、半導体の内部接続には欠かせない高温鉛はんだの代替技術開発のため、ナノレベルの組織・機能解析および制御に基づく基礎技術開発し、協力企業・大学連合との連携で、新産業技術として高温鉛はんだ代替技術の世界デファクト形成を目指している。

#### ・Printed Electronicsのための常温焼結用Agナノ粒子ペーストの開発

ナノテクノロジーの粋を集めた、ナノ粒子インクとインクジェット印刷が、新しいエレクトロニクス機器造りの世界を開こうとしている。それが、Printed Electronicsである。金属ナノ粒子ペーストの中で最も有望なAgペーストの場合、現状では、150℃程度の焼結処理が必要であり、基材に不良が起こる可能性が高いため、低温焼結技術が望まれている。今年度は、常温で溶剤の蒸発と共に焼結が進行する凝集ナノ粒子ペースト（Ag）を開発した。常温乾燥後TEM観察した結果、Agナノ粒子の常温焼結過程が確認できた。

#### ・超フレキシブル配線を用いたソフトヒューマンインターフェースの開発

本研究室では、エラストマー系導電性接着剤を応用することで 100%以上の引張歪を与えても断線しない超フレキシブル配線を開発した。その配線技術を応用して、ヒューマノイドロボットおよび関連機器のための伸縮可能な触覚センサシートを開発するとともに、静電気の効果を利用した新規の接触センサの開発に成功した。さらに、これらのセンサシステムを自己組織化ネットワークシステムに接続することで、フェールセーフな情報処理システムの実証に成功した。

### [ 原著論文 ]

A super-flexible sensor system for humanoid robots and related applications, M. Inoue, Y. Kawahito, Y. Tada, T. Hondo, T. Kawasaki, K. Suganuma, H. Ishiguro: エレクトロニクス実装学会誌, 11 (2) (2008) 136-140.

Structures and purification of boron nitride nanotubes synthesized from boron-based powders with iron particles, N. Koi, T. Oku, M. Inoue, K. Suganuma: J. Materials Science, 43 (8) (2008) 2955-2961.

Effects of Ag and Cu addition on microstructural properties and oxidation resistance of Sn-Zn eutectic alloy, J.E. Lee, K.S. Kim, M. Inoue, J. Jiang, K. Suganuma: *J. Alloys and Compounds*, 454 (1-2) (2008) 310-320.

A study on solder electromigration in Cu/In/Cu flip-chip joint system, K. Yamanaka, Y. Tsukada, K. Suganuma: *エレクトロニクス実装学会誌*, 11 (1) (2008) 60-65.

Thermal stability of poly(vinylidene fluoride) films pre-annealed at various temperatures, M. Inoue, Y. Tada, K. Suganuma, H. Ishiguro: *Polymer Degradation and Stability*, 92 (10) (2007) 1833-1840.

The dependence on thermal history of the electrical properties of an epoxy-based isotropic conductive adhesive, M. Inoue, K. Suganuma: *J. Electronic Materials*, 36 (6) (2008) 669-675.

Development of an electronic packaging technique using conductive adhesives for novel human-machine interfaces, M. Inoue, H. Sasaki, K. Suganuma, T. Kawasaki, T. Rokuhara, T. Miyashita, H. Ishiguro: *Advances in Technology of Materials and Materials Processing Journal*, 9 (1) (2007) 49-54.

Novel method for room temperature sintering of Ag nanoparticle paste in air, D. Wakuda, M. Hatamura, K. Suganuma: *Chemical Physics Letters*, 441 (4-6) (2008) 305-308.

Formation and atomic structure of boron nitride nanotubes with a cup-stacked structure, T. Oku, N. Koi, K. Suganuma, R.V. Belosludov, Y. Kawazoe: *Solid State Communications*, 143 (6-7) (2007) 331-336.

Formation and atomic structures of boron nitride nanotubes with cup-stacked and Fe nanowire encapsulated structures, T. Oku, N. Koi, I. Narita, K. Suganuma: *Materials Transactions*, 48 (4) (2007) 722-729.

Thermal properties and phase stability of Zn-Sn and Zn-In alloys as high temperature lead-free solder, J.E. Lee, K.S. Kim, K. Suganuma, M. Inoue, G. Izuta: *Materials Transactions*, 48 (3) (2007) 584-593.

Process development and application of noble metal nanoparticle related materials by total eco-design, Y. Hayashi, D. Ishikawa, H. Takizawa, M. Inoue, K. Suganuma, K. Niihara: *粉体および粉末冶金*, 54 (3) (2007) 186-193.

#### [ 解説、総説 ]

導電性接着剤の新たな方向～はんだ代替、更に Printed Electronics へ～、菅沼 克昭、日本接着学会誌、43 [5] (2007) 220-224

Development of High Temperature Lead-Free Solder and Their Reliability Evaluation, J.E. Lee, K.S. Kim, K. Suganuma, Y.G. Jung, *Trends in Metals & Materials Engineering*, 20 [3] (2007) 30-39

#### [ 著書 ]

「インクジェットプリンターの応用と材料 II (分筆)」、第 17 章 インクジェット技術による金属ナノ粒子インク配線、菅沼 克昭、和久田 大介、金 権銖、シーエムシー出版、(2007) 209-218

「鉛フリーはんだ技術・材料 ハンドブック (編著)」、菅沼 克昭、工業調査会、(2007)

#### [ 特許 ]

「金属ナノ粒子の焼結方法およびその焼結方法を用いた基板上に配線を形成する方法」菅沼 克昭、和久田 大介、畑村 真理子、特開 2008-72052

「はんだ合金およびはんだ付方法」出田 吾朗、平岡 功治、菅沼 克昭、特開 2007-275921

「ゴム材料およびゴム材料の製造方法」菅沼 克昭、井上 雅博、石黒 浩、河崎 俊実、六波羅 哲雄、宮下 敬宏、特開 2007-173226

## [ 国際会議 ]

Interfacial Reactions of Die Attached AlN-DBC Module Using Zn-Sn High Temperature Solders (poster), S.J. Kim, K.S. Kim, D.S. Kim and K. Suganuma: 137th TMS Annual Meeting & Exhibition, New Orleans, LA, USA, Mar.9-Mar.13, 2008.

Degradation of Ag-Epoxy Conductive Adhesive/Sn Interface in Humid Atmosphere (invited), S.S. Kim, K.S. Kim and K. Suganuma: 137th TMS Annual Meeting & Exhibition, New Orleans, LA, USA, Mar.9-Mar.13 ,2008.

Room Temperature Sintering of Ag Nanoparticle Paste and its Mechanism (poster), D. Wakuda, M. Hatamura and K. Suganuma: MRS Fall Meeting, Boston, MA, USA, Nov. 26-30,2007.

Zn-Sn and Zn-In high temperature lead-free solders (poster), K. Suganuma, S.J. Kim, J.E. Lee, K.S. Kim,: 40th International Symposium on Microelectronics (IMAPS2007), McEnergy Convention Center, San Jose, California USA, Nov. 11-15 ,2007.

Impact property evaluation of Ag-epoxy conductive adhesive joint (poster), D.S. Kim, M. Kang, K.S. Kim, S.S. Kim, S.J. Kim, K. Suganuma: 40th International Symposium on Microelectronics (IMAPS2007), McEnergy Convention Center, San Jose, California USA, Nov. 11-15 ,2007.

Design and synthesis of mesoporous nano-silver-based die attach material for high power electronics (poster), K. Suganuma, J. Jiu, D.S. Kim, K.S. Kim: 40th International Symposium on Microelectronics (IMAPS2007), McEnergy Convention Center, San Jose, California USA, Nov. 11-15 ,2007.

Ink-jet printing of Nano Materials and Process for Electronics Applications (poster), K. Suganuma, D. Wakuda, M. Hatamura, K.S. Kim,: 9th International IEEE CPMT Symposium on High Density Design, Packaging and Microsystem Integration (HDP' 07), Shanghai, China, Jun. 26-28 ,2007.

A super-flexible sensor system for humanoid robots and related applications, M. Inoue, Y. Kawahito, Y. Tada, T. Hondo, T. Kawasaki, K. Suganuma, H. Ishiguro,: International Conference on Electronics Packaging (ICEP) 2007, Tokyo, Japan, April, 2007.

Temperature dependence of electrical resistivity of isotropic conductive adhesive composed of an epoxy-based binder (invited), M. Inoue, H. Muta, S. Yamanaka, K. Suganuma: 9th International IEEE CPMT Symposium on High Density Design, Packaging and Microsystem Integration (HDP' 07), Shanghai, China, Jun. 26-28 ,2007.

A Flexible and Stretchable Tactile Sensor Utilizing Static Electricity, Y. Tada, M. Inoue, T. Kawasaki, Y. Kawahito, H. Ishiguro, K. Suganuma: the 2007 IEEE/RSJ International Conference on Intelligent Robots and Systems.

## [ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

菅沼 克昭	TMS Annual Meeting (組織委員)	
菅沼 克昭	Electronic Components and Technology Conference (ECTC) (組織委員)	

[ 国内学会 ]

エレクトロニクス実装学会		4 件
日本金属学会		2 件

[ 取得学位 ]

修士 (工学)		
Alongheng	Sn-Ag-Cu 系鉛フリーはんだ付けにおける実装雰囲気の影響	
博士 (工学)		

[ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの) 単位：千円

基盤研究 (A)		
菅沼 克昭	独立分散合金ナノ粒子の合成とナノペースト配線技術の 基盤形成	5,720

[ 受託研究 ]

菅沼 克昭	NEDO	高温はんだ代替技術開発	112,018
菅沼 克昭	日本電気(株)	導電性接着剤接続技術	1,050
菅沼 克昭	新機能素子研究開発協会	SiC デバイス実装に対応可能な ハイブリッド銀ペーストの開発	14,700

[ 奨学寄附金 ]

菅沼 克昭	トッパン・フォームズ(株)	3,000
菅沼 克昭	奥野製薬工業(株)	2,000
菅沼 克昭	(株)エア・リキード・ラボラトリーズ	1,500
菅沼 克昭	東レエンジニアリング(株)	1,000
菅沼 克昭	日本油脂(株)	900
菅沼 克昭	バンドー化学(株)	500
菅沼 克昭	宇部日東化成(株)	450

[ 共同研究 ]

菅沼 克昭	三菱化学(株)	6,562
菅沼 克昭	三菱電機(株)	6,000
菅沼 克昭	帝人(株)	1,200

## 計算機ナノマテリアルデザイン分野

教授（兼任）	吉田 博
准教授	白井 光雲
助教	佐藤 和則
博士研究員	Dinh Van An、濱田 幾太郎、柳澤 将
大学院学生	木崎 栄年、豊田 雅之、福島 鉄也、林田 英樹、豊田 健治、出倉 春彦、 原田 邦彦、江藤 基比古、中野 洋輔、山口 宏信、魚住 昭文、實宝 秀幸、 石定 惇、藤井 将
学部学生	寺谷 祐樹、富永 隆介
事務補佐員	浅田 美香、伊藤 僚子

### a) 概要

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。

### b) 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。特に今年度の成果は、以下の拡充を行ったことである。フォノン計算で従来のfrozen-phonon計算はゾーン中心のフォノンだけを計算していたが、これをゾーン全体の計算が可能になるようにした。そのためにはある大きさのスーパーセルを必要とする。スーパーセルの中で実空間での力定数を求め、それにより $q$ 依存の入った動力学行列を構築することで実現している。この方法は不純物によるフォノン状態の変化を調べるとき特に有効で、不純物の同定、及び制御にとって強力な道具となる。

具体的応用として、

#### ・二十面体ベースの半導体ホウ素系材料における超伝導マテリアルデザイン

ホウ素系物質は二十面体構造を持った半導体で非常に多くの結晶多形がある。この系は高圧下での超伝導転移で注目されている。この中で $\alpha$ 相は高い超伝導が期待されているが、良い結晶ができていない。良い結晶を作るための作製方法として高圧を利用することを提案する。また十分な電導性を持たせるための有効なドーピング法として、ドーピング不純物の選択とともに、やはり高圧を利用する物質合成プロセスをデザインする。

#### ・赤外光励起シミュレーション

半導体プロセスでは微細化が進むにつれ拡散制御に関する要請がますます厳しいものとなり、従来の温度による制御では限界が見えてくる。このような制限を取り除くために、不純物が固有振動を持つことを利用し、それに同調した赤外線レーザーで励起しその種のみを拡散促進させることを試みている。分子動力学シミュレーションにより、この方法の有効である実験条件を割り出した。それには強力な強

度の放射光が必要である。Spring-8の赤外ビームラインを活用して、この実証実験を進めている。

#### ・Si中のCu不純物のゲッターリングのデザイン

Si中のCuは非常に高速の拡散を行うことが知られており、その不純物拡散を抑制することがデバイスプロセスに求められている。しかしその安定位置など基本的な物性は未だに議論されている。従来ほとんどの人が、その安定位置として格子置換位置を否定しているが、形成エネルギーなどから、置換位置は格子間位置と同じくらいの安定性を持つことを示した。このことは最近、幾つかの実験でも示されてきている。どのような条件で、置換位置のCuができるかについて、さらに研究を進めている。

#### ・Si中の格子空孔による弾性定数のソフト化

引き上げ法によって作製されたSi単結晶中では、格子空孔の多く含んだ部分がある。格子空孔は従来定量的な測定がなかったが、最近、超音波測定で低温ではソフト化されることが示され、それが原子空孔の定量化に供される可能性が大きい。しかし原子空孔が入ったときの音速あるいは弾性定数のソフト化の機構は分かっておらず、電子相関の研究者まで席卷して議論が巻き起こっている。これがおきているためには低エネルギーの何か励起が必要で、これを分子動力学シミュレーションにより研究した。その結果、従来報告されていなかった低エネルギーの励起がフォノンスペクトルに現れることを示した。これと弾性定数のソフト化の関係を調べている。

#### ・希薄磁性半導体への同時ドーピングを用いた磁性不純物の高濃度添加法のデザイン

希薄磁性半導体は一般に溶解度ギャップを持つことが実験的にも理論的にも指摘されており、そのため熱平衡状態では相分離を起こす。均一な希薄磁性半導体は、非平衡結晶成長法により作成可能とされているが、実際にはナノスケールでのスピノダル分解が、実験条件の微妙な変化に敏感に反応して進行するため、再現性のよく希薄磁性半導体を作成するのは困難である。昨年度は、希薄磁性半導体におけるスピノダル分解を積極的に利用し、超常磁性のブロッキング現象を制御することで、希薄磁性半導体の磁性をコントロールするマテリアルデザインを行った。本年度は、それとは逆にスピノダル分解を抑制することで高濃度に遷移金属不純物を添加し高いキュリー温度を実現する方法をデザインした。

スピノダル分解の有無については混合エネルギー $\Delta E$ の第一原理計算により評価した。例えば、GaMnNの場合、 $\Delta E = TE(\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{N}) - [x \times TE(\text{MnN}) + (1-x) \times TE(\text{GaN})]$ と計算され、TEは全エネルギーである。TE(GaMnN)の計算にはKKR-CPAを用い、MACHIKANNEYAMA2002コードを用いて計算を実行した。我々の最近の計算によると一般に希薄磁性半導体は相分離する傾向があり、その傾向はワイドギャップ希薄磁性半導体では特に大きいことがわかっており、実験事実をよく再現した。

同時ドーピング法はワイドギャップ半導体の単極性をのりこえて価電子制御を行うテクニックである。例えばGaNのp型ドーピングは非常に難しいが、アクセプターであるMgとドナーであるSiまたはOを2:1の割合で同時添加すると、固溶度の上昇、活性化率の上昇、移動度の改善が期待できることが第一原理計算によりデザインされており実験により実証されている。我々はこの方法を希薄磁性半導体に応用した。希薄磁性半導体では磁性不純物が母体半導体にホールを導入するため同時添加する不純物はドナー不純物ということになり、GaMnAsやGaMnNの場合はOまたはSiが候補となる。計算する混合エネルギーは例えばn型のGaNの場合、 $\Delta E = TE(\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{N}_{1-y}\text{O}_y) - [x \times TE(\text{MnN}_{1-y}\text{O}_y) + (1-x) \times TE(\text{GaN}_{1-y}\text{O}_y)]$ となる。 $y=0$ の場合混合エネルギーは正で、 $x$ に関して上に凸の曲線であるが、 $y$ の値を大きくしていくと $x$ の小さい領域に混合エネルギーが負の領域が出てきて、その濃度領域ではスピノダル分解は起こらず均一に固溶することがわかった。さらに $y$ を大きくしていくと混合エネルギーは全濃度領域で負で下に凸の関数となる。このように希薄磁性半導体でも高濃度ドーピングに同時ドーピング法が有効であることが第一原理計算により示唆された。

#### ・高いキュリー温度を持つ新しいハーフホイスラー合金のデザイン

半導体スピントロニクスデバイスのためのスピン偏極源として、ハーフメタリック物質の探索は依然として重要な課題である。特に、室温に置いても高いスピン偏極度を保つために、高いキュリー温度をもったハーフメタリック物質が必要とされている。de GrootらによるNiMnSbの提案をはじめとして、



ハーフホイスラー合金が有力な候補として注目を集めてきているが、我々は第一原理計算とモンテカルロシミュレーションを用いて、**NiMnZ** (**Z = Si, P, Ge, As**)の電子状態とキュリー温度を評価した。

計算には、ウルトラソフト擬ポテンシャル法 (**STATE-Senri Code**) を用い **GGA** により安定な格子定数を評価した後、**KKR-CPA 法(MACHIKANEYAMA2002)**を用いて磁性原子間の交換相互作用を計算した。キュリー温度は平均場近似(**MFA**)、乱雑位相近似(**RPA**)とモンテカルロシミュレーション(**MCS**)により評価した。**NiMnP, NiMnAs, NiMnGe, MiMnSi** において **T<sub>c</sub>=715, 840, 875, 1050 K** が得られ、これらの物質が、半導体スピントロニクススピン偏極源材料として有望な材料計であることが示された。

#### ・ 3d-4d遷移金属不純物の同時添加による希薄磁性半導体の材料設計

1種類以上の**3d**遷移金属不純物を添加した希薄磁性半導体は半導体スピントロニクスの材料としてこれまで精力的に研究されてきている。我々は、**3d**遷移金属のほかに**4d**遷移金属を同時添加した希薄磁性半導体の磁性を議論し材料設計を行った。**4d**遷移金属を半導体に有限濃度添加すると、母体半導体のギャップ中に磁氣的に偏極していない不純物バンドが形成される。そこに磁気モーメントをもった**3d**遷移金属を同時添加すると、**4d**不純物バンドが磁氣的に偏極し強磁性的な相互作用を**3d**遷移金属不純物間に誘起する可能性がある。類似のメカニズムはダブルペロブスカイト (**Sr<sub>2</sub>FeMoO<sub>6</sub>**等)の磁性を説明するために提案されたが (**Z. Fang, K. Terakura, J. Kanamori PRB 63 (2001) 180407**)、この機構が希薄磁性半導体においても有効かどうかを**KKR-CPA**を用いた第一原理計算により検証した。

**GaN**を母体とし、**3d**遷移金属不純物として**Fe**を含む系について、**4d**遷移金属の同時添加の効果を調べた。強磁性状態と常磁性状態のエネルギー差から強磁性状態の安定性を調べた。**GaN**中での**Fe**間の強い反強磁性相互作用は、一般に**4d**遷移金属の添加により弱まり強磁性が安定化される方向に向かう。しかし、**Fe**間の超交換相互作用は非常に強いため、結果的に強磁性状態が安定となったのは**Nb**と**Mo**添加の時だけであった。計算には局所近似を用いたが、この近似では超交換相互作用が過大評価されることがわかっている。この効果を補正するために**LDA-SIC**を用いた計算や、磁気特性の精密評価のため、磁氣的交換相互作用と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の必要性が指摘された。

#### [ 原著論文 ]

Theory of ferromagnetic semiconductors, H. Katayama-Yoshida, K. Sato, T. Fukushima, M. Toyoda, H. Kizaki, V. A. Dinh and P. H. Dederichs: Phys. Stat Solidi a, 204 (2007) 15-32.

First-principles study on the ferromagnetism and Curie temperature of Mn-doped AlX and InX (X = N, P, As and Sb), K. Sato, P. H. Dederichs and H. Katayama-Yoshida: J. Phys. Soc. Jpn., 76 (2007) 24717 (12pp).

Computational nano-materials design for high-*T<sub>c</sub>* ferromagnetism in wide-gap magnetic semiconductors, H. Katayama-Yoshida, K. Sato, T. Fukushima, M. Toyoda, H. Kizaki, V. A. Dinh and P. H. Dederichs: J. Magn. Magn. Mater., 310 (2007) 2070-2077.

Ab initio materials design for transparent conducting oxide based new functional materials, H. Katayama-Yoshida, K. Sato, H. Kizaki, H. Funashima, I. Hamada, T. Fukushima, V. A. Dinh, M. Toyoda: Appl. Phys. A, 89 (2007) 19-27.

Super-paramagnetic blocking phenomena and room-temperature ferromagnetism in wide band-gap dilute magnetic semiconductor (Ga, Mn)N, K. Sato, T. Fukushima and H. Katayama-Yoshida: Jpn. J. Appl. Phys., 46 (2007) L682-L684.

Ferromagnetism and spinodal decomposition in dilute magnetic nitride semiconductors, K. Sato, T. Fukushima, H. Katayama-Yoshida: J. Phys. Condens. Matter, 19 (2007) 365121 (8pp).

Dilute magnetic semiconductors based on half-Heusler alloys, T. Fukushima, K. Sato, H. Katayama-Yoshida and P. H. Dederichs: *J. Phys. Soc. Jpn.*, 76 (2007) 94713-1-5.

Computational nano-materials design for colossal thermoelectric-cooling power by adiabatic spin-entropy expansion in nano-superstructures, H. Katayama-Yoshida, T. Fukushima, V. A. Dinh and K. Sato: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 46 (2007) L777-L779.

Trends of exchange interactions in dilute magnetic semiconductors, B. Belhadji, L. Bergqvist, R. Zeller, P. H. Dederichs, K. Sato and H. Katayama-Yoshida: *J. Phys. Condens. Matter*, 19 (2007) 436227 (12pp).

First-principles study of the superexchange interaction in (Ga, Mn)V (V = N, P, As and Sb), Y. H. Chang, C. H. Park, K. Sato and H. Katayama-Yoshida: *Phys. Rev. B*, 76 (2007) 125211 (7pp).

Design of colossal solubility of magnetic impurities for semiconductor spintronics by the co-doping method, K. Sato and H. Katayama-Yoshida: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 46 (2007) L1120-L1122.

Atom relaxation of H in silicon, K. Shirai, H. Dekura and H. Katayama-Yoshida: *J. Phys.: Conference Series*, 92 (2007) 012147-012150.

On the elastic softening due to a vacancy in Si, J. Ishisada, K. Shirai, H. Dekura and H. Katayama-Yoshida: *J. Phys.: Conference Series*, 92 (2007) 012063-012066.

Control of Impurity Diffusion in Silicon by IR Laser Excitation, K. Shirai, H. Yamaguchi and H. Katayama-Yoshida: *J. Phys. Condens. Matter*, 19 (2007) 365207 (7pp).

Valence Control of  $\alpha$ -rhombohedral Boron by Electronic Doping, H. Dekura, K. Shirai and H. Katayama-Yoshida: *J. Phys. Condens. Matter*, 19 (2007) 365241 (8pp).

Control of impurity diffusion by IR excitations, K. Shirai, H. Yamaguchi and H. Katayama-Yoshida: *Physica B*, 401-402 (2007) 682-685.

Valence control and metallization of boron by electronic doping, H. Dekura, K. Shirai and H. Katayama-Yoshida: *Physica B*, 401-402 (2007) 702-705.

Diffusion of TM impurities in silicon, K. Matsukawa, K. Shirai, H. Yamaguchi and H. Katayama-Yoshida: *Physica B*, 401-402 (2007) 151-154.

Effective Exchange interactions in CuAlO<sub>2</sub>-based dilute magnetic semiconductors by first-principles calculations, H. Kizaki, K. Sato and H. Katayama-Yoshida: *Physica B*, 401 (2007) 462-464.

New high- $T_c$  half-Heusler ferromagnets NiMnZ (Z = Si, P, Ge, As), V. A. Dinh, K. Sato and H. Katayama-Yoshida: *J. Phys. Soc. Jpn.*, 77 (2008) 14705-1-6.

#### [ 著書 ]

“Magnetism in Semiconducting Oxides” (Ed. N. G. Hong) Chap. 1 ‘Computational materials design of ZnO-based semiconductor spintronics’, K. Sato, M. Toyoda, T. Fukushima, V. A. Dinh, H. Kizaki and H. Katayama-Yoshida, Transworld research network, (2007) 1-21

## [ 特許 ]

「強磁性 III-V 族系化合物及びその強磁性特性の調整方法」吉田博、佐藤和則、特許第 3989182 号

「強磁性 II-VI 族系化合物及びその強磁性特性の調整方法」吉田博、佐藤和則、特許第 3998425 号

“Magnetoresistive Random-Access Memory Device”, H. Yoshida, K. Sato, US patent US 7, 164, 180 B2

“Circular Polarization Spin Semiconductor Laser Using Magnetic Semiconductor and Laser Beam Generating Method”, H. Yoshida, K. Sato, US patent US 7,254,150 B2

「II-VI 族または III-V 族系単結晶強磁性化合物及びその強磁性特性の調整方法」吉田博、佐藤和則、中国特許第 02 805828.3 号

「強磁性 IV 族系半導体、強磁性 III-V 族系化合物半導体、または強磁性 II-VI 族系化合物半導体とその強磁性特性の調整方法」吉田博、佐藤和則、韓国特許第 10-0703154 号

「強磁性 GaN 系混晶化合物およびその強磁性特性の調整方法」吉田博、佐藤和則、特許第 3938284 号

「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、特許第 3953238 号

## [ 国際会議 ]

Ab initio Materials Design for Room Temperature Ferromagnetism in Diluted Magnetic Semiconductors (invited), H. Katayama-Yoshida, K. Sato, T. Fukushima, M. Toyoda, H. Kizaki, V. A. Dinh and P. H. Dederichs: MRS Spring Meeting, San Francisco, USA, April 9-13, 2007.

Materials Design of CuAlO<sub>2</sub>-based Dilute Magnetic Semiconductors for Semiconductor Spintronics (poster), H. Kizaki, K. Sato, H. Katayama-Yoshida: MRS Spring Meeting, San Francisco, USA, April 9-13, 2007.

Computational nano-materials design for semiconductor spintronics (invited), H. Katayama-Yoshida: International conference on Nanospintronic Design and Realization (ICNDR2007), Dresden, Germany, May 21-25, 2007.

Spinodal decomposition thermodynamics and nano-scale phase separations in half-Heusler compounds XYZ from first principle calculations (poster), V. A. Dinh: International conference on Nanospintronic Design and Realization (ICNDR2007), Dresden, Germany, May 21-25, 2007.

First-principles design of fabrication process for tera-bit-density nano-magnets in dilute magnetic semiconductors (poster), T. Fukushima: International conference on Nanospintronic Design and Realization (ICNDR2007), Dresden, Germany, May 21-25, 2007.

Spinodal decomposition and super-paramagnetism in dilute magnetic semiconductors (poster), K. Sato: International conference on Nanospintronic Design and Realization (ICNDR2007), Dresden, Germany, May 21-25, 2007.

Spinodal Decomposition and Super-Paramagnetism in Dilute Magnetic Semiconductors, K. Sato: 4th International School and Conference on Spintronics and Quantum Information Technology (Spintech-IV), Hawaii, USA, June 17-22, 2007.

Ferromagnetism in Half-Heusler  $\text{Fe}_2\text{A}$  (A=Si, B, C and N) (poster), V. A. Dinh, K. Sato, H. Katayama-Yoshida: 4th International School and Conference on Spintronics and Quantum Information Technology (Spintech-IV), Hawaii, USA, June 17-22, 2007.

Ab initio Design of Self-Organized Tera-Bit Density Nano-Magnets in Dilute Magnetic Semiconductors by Spinodal Decomposition (poster), T. Fukushima, K. Sato, H. Katayama-Yoshida, P. H. Dederichs: 4th International School and Conference on Spintronics and Quantum Information Technology (Spintech-IV), Hawaii, USA, June 17-22, 2007.

Curie Temperature of  $\text{CuAlO}_2$  Based Dilute Magnetic Semiconductors by First-Principles Calculations and Monte Carlo Simulations (poster), H. Kizaki, K. Sato, H. Katayama-Yoshida: 4th International School and Conference on Spintronics and Quantum Information Technology (Spintech-IV), Hawaii, USA, June 17-22, 2007.

First-Principles SIC-LDA Studies of Magnetism in Transition-Metal-Doped ZnO (poster), M. Toyoda, H. Akai, K. Sato, H. Katayama-Yoshida: 4th International School and Conference on Spintronics and Quantum Information Technology (Spintech-IV), Hawaii, USA, June 17-22, 2007.

Atom relaxation of H in silicon, K. Shirai, H. Dekura and H. Katayama-Yoshida: 12th International Conference on Phonon Scattering in Condensed Matter, Paris, France, July 15-20, 2007.

On the elastic softening due to a vacancy in Si (poster), J. Ishisada, K. Shirai, H. Dekur and H. Katayama-Yoshida: 12th International Conference on Phonon Scattering in Condensed Matter, Paris, France, July 15-20, 2007.

Valence control and metallization of boron by electronic doping (poster), H. Dekura, K. Shirai and H. Katayama-Yoshida: 24th International Conference on Defects in Semiconductors (ICDS-24), Albuquerque, USA, July 22-27, 2007.

Diffusion of TM impurities in silicon (poster), K. Matsukawa, K. Shirai, H. Yamaguchi and H. Katayama-Yoshida: 24th International Conference on Defects in Semiconductors (ICDS-24), Albuquerque, USA, July 22-27, 2007.

First-principles Design of Half-Heusler type Dilute Magnetic Semiconductors (poster), T. Fukushima, K. Sato, H. Katayama-Yoshida and P. H. Dederichs: 24th International Conference on Defects in Semiconductors (ICDS-24), Albuquerque, USA, July 22-27, 2007.

First-principles Study and Monte Carlo Simulations for Curie Temperatures in  $\text{CuAlO}_2$  Based Dilute Magnetic Semiconductors (poster), H. Kizaki, K. Sato and H. Katayama-Yoshida: 24th International Conference on Defects in Semiconductors (ICDS-24), Albuquerque, USA, July 22-27, 2007.

Self-organization and super-paramagnetism in dilute magnetic semiconductors (poster), K. Sato, T. Fukushima and H. Katayama-Yoshida: 24th International Conference on Defects in Semiconductors (ICDS-24), Albuquerque, USA, July 22-27, 2007.

Control of impurity diffusion by IR excitations (poster), K. Shirai, H. Yamaguchi and H. Katayama-Yoshida: 24th International Conference on Defects in Semiconductors (ICDS-24), Albuquerque, USA, July 22-27, 2007.

Computational nano-materials design for semiconductor spintronics (invited), K. Sato, T. Fukushima, M. Toyoda, H. Katayama-Yoshida: The 4th Conference of the Asian Consortium on Computational Materials Science

(ACCMS-4), Seoul, Korea, September 12-16, 2007.

Computational Nano-materials Design for II-VI Compound Semiconductor-based Spintronics: ~Top-down and Bottom-up Nanotechnology~ (invited), H. Katayama-Yoshida, K. Sato, T. Fukushima, H. Kizaki, M. Toyoda, V. A. Dinh, P. H. Dederichs: The 13th International Conference on II-VI Compounds, Jeju, Korea, September 10-14, 2007.

New High- $T_c$  Half-Heusler Ferromagnets NiMnZ (poster), V. A. Dinh, K.Sato and H.Katayama-Yoshida: Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium -Spin, Photonic, and Molecular Devices in Quantum Limit-, Osaka, Japan, September 26-28, 2007.

Ab-Initio Study and Monte Carlo Simulations for Curie Temperatures in CuAlO<sub>2</sub>-Based Dilute Magnetic Semiconductors (poster), H. Kizaki, K. Sato and H. Katayama-Yoshida: Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium -Spin, Photonic, and Molecular Devices in Quantum Limit-, Osaka, Japan, September 26-28, 2007.

Inhomogeneity and Its Effects on the Ferromagnetism of Dilute Magnetic Semiconductors (poster), K. Sato, T. Fukushima and H. Katayama-Yoshida: Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium -Spin, Photonic, and Molecular Devices in Quantum Limit-, Osaka, Japan, September 26-28, 2007.

Stable site and electronic states of copper in silicon (poster), H. Yamaguchi, K. Shirai and H. Katayama-Yoshida: Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium -Spin, Photonic, and Molecular Devices in Quantum Limit-, Osaka, Japan, September 26-28, 2007.

Theoretical study of elastic softening of Si with monovacancy (poster), J. Ishisada, K. Shirai, H. Dekura and H. Katayama-Yoshida: Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium -Spin, Photonic, and Molecular Devices in Quantum Limit-, Osaka, Japan, September 26-28, 2007.

Valence control and metallization of boron by electronic doping (poster), H. Dekura, K.Shirai and H.Katayama-Yoshida: Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium -Spin, Photonic, and Molecular Devices in Quantum Limit-, Osaka, Japan, September 26-28, 2007.

Control of Impurity Diffusion in Silicon by IR Laser Excitation (poster), K. Shirai, H. Yamaguchi, K. Matsukawa, T. Moriwaki and Y. Ikemoto: 4th International Workshop on Infrared Microscopy and Spectroscopy with Accelerator Based Sources (WIRMS2007), Hyogo, Japan, September 25-29, 2007.

Computational Nano-materials Design for Semiconductor Nano-Spintronics (invited), H. Katayama-Yoshida: Polish-Japanese Joint Seminar "Ferromagnetism and Magnetic Nanostructures in Semiconductors", Warsaw, Poland, September 27-28, 2007.

Structural and Magnetic properties of new high- $T_c$  half-heusler ferromagnets NiMnZ (poster), V. A. Dinh, K. Sato and H. Katayama-Yoshida: The 10th Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations, Hiroshima, Japan, October 29-31.

Design of colossal solubility of magnetic impurities for semiconductor spintronics by using the co-doping method (poster), K. Sato and H. Katayama-Yoshida: The 10th Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations, Hiroshima, Japan, October 29-31, 2007.

First-Principles calculations and Predictions of Curie Temperatures in CuAlO<sub>2</sub>-Based Dilute Magnetic

Semiconductors (poster), H. Kizaki, K. Sato and H. Katayama-Yoshida: The 10th Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations, Hiroshima, Japan, October 29-31, 2007.

The stable site and electronic states of Cu impurities in Si (poster), H. Yamaguchi, K. Shiari and H. Katayama-Yoshida: The 10th Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations, Hiroshima, Japan, October 29-31, 2007.

Dilute Magnetic Semiconductors Based on Half-Heusler Alloys (poster), T. Fukushima, K. Sato, H. Katayama-Yoshida and P. H. Dederichs: The 10th Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations, Hiroshima, Japan, October 29-31, 2007.

First-principles SIC-LDA Studies on Dilute Magnetic Semiconductors (poster), M. Toyoda, H. Akai, K. Sato and H. Katayama-Yoshida: The 10th Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations, Hiroshima, Japan, October 29-31, 2007.

The effects of monovacancy on the elastic properties of Si (poster), J. Ishisada, K. Shirai and H. Katayama-Yoshida: The 10th Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations, Hiroshima, Japan, October 29-31, 2007.

The theoretical study of impurity doped solid boron (poster), H. Dekura, K. Shirai and H. Katayama-Yoshida: The 10th Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations, Hiroshima, Japan, October 29-31, 2007.

Computational Nano-materials Design for Spin-Currents Control in Semiconductor Nano-spintronics (poster), H. Katayama-Yoshida, T. Fukushima, M. Toyoda, H. Kizaki, V. A. Dinh and K. Sato: 11th Sanken International Symposium, 6th Nanotechnology Center International Symposium, 1st MSTEC International Symposium, Awaji, Japan, February 4-5, 2008.

Design of colossal solubility of magnetic impurities for semiconductor spintronics by using the co-doping method (poster), K. Sato and H. Katayama-Yoshida: 11th Sanken International Symposium, 6th Nanotechnology Center International Symposium, 1st MSTEC International Symposium, Awaji, Japan, February 4-5, 2008.

Spinodal decomposition in (In, Ga)N (poster), M. Eto, M. Toyoda, K. Sato and H. Katayama-Yoshida: 11th Sanken International Symposium, 6th Nanotechnology Center International Symposium, 1st MSTEC International Symposium, Awaji, Japan, February 4-5, 2008.

Ab-initio Materials Design of CuAlO<sub>2</sub>-based Diluted magnetic Semiconductors (poster), H. Kizaki, K. Sato and H. Katayama-Yoshida: 11th Sanken International Symposium, 6th Nanotechnology Center International Symposium, 1st MSTEC International Symposium, Awaji, Japan, February 4-5, 2008.

First Principle Material Design of High-*T<sub>c</sub>* Half-Metallic Half-Heusler Alloys (poster), V. A. Dinh, K. Sato and H. Katayama-Yoshida: 11th Sanken International Symposium, 6th Nanotechnology Center International Symposium, 1st MSTEC International Symposium, Awaji, Japan, February 4-5, 2008.

Improvement of the getting efficiency of Cu by BO complexes (poster), K. Shirai, K. Matsukawa, H. Yamaguchi, H. Katayama-Yoshida: 11th Sanken International Symposium, 6th Nanotechnology Center International Symposium, 1st MSTEC International Symposium, Awaji, Japan, February 4-5, 2008.

The effects of monovacancy on the elastic properties of Si (poster), J. Ishisada, K. Shirai and H.

Katayama-Yoshida: 11th Sanken International Symposium, 6th Nanotechnology Center International Symposium, 1st MSTEC International Symposium, Awaji, Japan, February 4-5, 2008.

The stable site and electronic states of Copper in Silicon (poster), H. Yamaguchi, K. Shirai, H. Katayama-Yoshida: 11th Sanken International Symposium, 6th Nanotechnology Center International Symposium, 1st MSTEC International Symposium, Awaji, Japan, February 4-5, 2008.

The theoretical study of elemental solid Boron under high pressure (poster), H. Dekura, K. Shirai and H. Katayama-Yoshida: 11th Sanken International Symposium, 6th Nanotechnology Center International Symposium, 1st MSTEC International Symposium, Awaji, Japan, February 4-5, 2008.

Computational Nano-materials Design for Spin-Currents Control in Semiconductor Nano-spintronics (invited), H. Katayama-Yoshida, T. Fukushima, M. Toyoda, H. Kizaki, V. A. Dinh and K. Sato: 3rd Indo-Japan Conference on Ferroics and Multiferroics (under the aegis of DST-JSPS Program), Kolkata, Indo, February 4-6, 2008.

Computational nano-materials design for spin-currents control in semiconductor nano-spintronics (invited), H. Katayama-Yoshida: SPIN CURRENTS 2008, Sendai, Japan, February 18-19, 2008.

First-principles Study on the Magnetic Interactions in ZnO-based Dilute Magnetic Semiconductors (poster), M. Toyoda, H. Akai, K. Sato and H. Katayama-Yoshida: APS, AmericanPhysical Society March Meeting, New Orleans, USA, March 10-14, 2008.

Design of Colossal Solubility of Magnetic Impurities for Semiconductor Spintronics by the co-doping Method, T. Fukushima, K. Sato and H. Katayama-Yoshida: APS, AmericanPhysical Society March Meeting, New Orleans, USA, March 10-14, 2008.

Computational Nano-materials Design for Spin-Currents Control in Semiconductor Nano-Spintronics, H. Katayama-Yoshida, T. Fukushima, V. A. Dinh and K. Sato: APS, AmericanPhysical Society March Meeting, New Orleans, USA, March 10-14, 2008.

First-Principles Study on Electronic Structure of TiO<sub>2</sub> based Dilute Magnetic Semiconductors, H. Kizaki, M. Toyoda, K. Sato and H. Katayama-Yoshida: APS, AmericanPhysical Society March Meeting, New Orleans, USA, March 10-14, 2008.

Design of dilute magnetic semiconductors with room temperature ferromagnetism by controlling spinodal decomposition (invited), K. Sato: APS, AmericanPhysical Society March Meeting, New Orleans, USA, March 10-14, 2008.

Improvement of the gettering efficiency of Cu by BO complexes (poster), K. Shirai, K. Matsukawa, N. Yamaguchi, H. Katayama-Yoshida: The Forum on the Science and Technology of Silicon Materials 2007, Niigata, JAPAN, Nov.12-14, 2007.

Effect of monovacancy on the elastic constant of crystalline silicon (poster), J. Ishisada, K. Shirai, H. Dekura and H. Katayama-Yoshida: The Forum on the Science and Technology of Silicon Materials 2007, Niigata, JAPAN, Nov.12-14, 2007.

The stable site and electronic states of Cu in Si (poster), H. Yamaguchi, K. Shirai and H. Katayama-Yoshida: The Forum on the Science and Technology of Silicon Materials 2007, Niigata, JAPAN, Nov.12-14, 2007.

[ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

白井 光雲 第 16 回ホウ素およびその化合物に関する国際会議 (組織委員)  
 白井 光雲 The Forum on the Science and Technology of Silicon Materials 2007 (組織委員)

[ 国内学会 ]

日本物理学会	16 件
応用物理学会	9 件
日本磁気学会	1 件
PASPS-12	7 件
その他	4 件

[ 取得学位 ]

修士 (工学)	
中野 洋輔	ベンゼン/金属、ペンタセン/金属界面における界面電気二重層の理論的研究
修士 (理学)	
江藤 基比古	スピノーダル分解を利用した $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ におけるナノ超構造のデザイン
山口 宏信	シリコン中における銅不純物の安定位置と電子状態
博士 (工学)	
木崎 栄年	酸化物半導体スピントロニクスのための第一原理マテリアルデザイン
豊田 雅之	第一原理電子状態計算における自己相互作用補正の開発と応用:スピントロニクス材料のマテリアル・デザイン
福島 鉄也	第一原理計算と統計力学的手法を用いた希薄磁性半導体の電子構造と有限温度磁性の研究

[ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの) 単位: 千円

特定領域研究		
佐藤 和則	計算機ナノマテリアルデザインエンジンの開発・応用	10,500
若手研究 (B)		
佐藤 和則	非局所 CPA 法によるスピントロニクス材料の電子輸送特性の第一原理計算	2,000

[ 受託研究 ]

白井 光雲	科学技術振興機構 地域イノベーション創出 総合支援事業・重点地域 研究開発推進プログラム 「シーズ発掘試験」	半導体中の遷移金属不純物の除去 方法開発	2,000
白井 光雲	科学技術振興機構 産学共同イノベーション 化事業・顕在化ステージ	半導体中の遷移金属不純物の新ゲ ッタリング方法の理論的開発とそ の実証研究	2,400

[ 奨学寄附金 ]



佐藤 和則	(財)関西エネルギーリサーチ 科学振興財団	半導体スピントロニクスのための 自己組織化ナノ超構造の計算機マ テリアルデザイン	<b>1,000</b>
佐藤 和則	(財)関西エネルギーリサーチ 科学振興財団	「ナノスピントロニクスのデザイ ンと創製に関する国際会議」参加 援助	<b>130</b>
佐藤 和則	(財)井上科学振興財団	「スピントロニクスと量子情報技 術に関する第4回スクールと国際 会議」参加援助	<b>150</b>
佐藤 和則	(財)関西エネルギーリサーチ 科学振興財団	第12回半導体スピン工学の基礎 と応用研究会開催援助	<b>400</b>
佐藤 和則	(財)中部電力基礎技術研究 所	第12回半導体スピン工学の基礎 と応用研究会開催援助	<b>250</b>

### [ 共同研究 ]

佐藤 和則	ドイツ・ユーリッヒ研究 センター	希薄磁性半導体のキュリー温度の 第一原理計算と半導体スピントロ ニクスのための計算機マテリアル デザイン (村田学術振興財団研究 者海外派遣援助)	<b>250</b>
-------	---------------------	---	------------

# ナノバイオ知能システム分野

教授（兼任） 溝口 理一郎  
助教 古崎 晃司

## a) 概要

ナノ・バイオ知的支援システムの開発、ナノ・バイオテクノロジーに関わる膨大なデータからのデータマイニング・知識発見、ナノ・バイオテクノロジー知識の構造化、オントロジー工学などの知能システム科学とナノ・バイオテクノロジーとを融合した研究の中で、特にナノテクノロジー知識の構造化に重点を置いて研究を行っている。

ナノテクノロジーに関する研究は多種多様な領域にまたがり、かつ、これらの領域は互いに密接に絡み合っている。このため、知識を異なる領域間で共有することができれば、互いの領域のさらなる発展の促進に貢献することが期待される。各領域に共通であるべきナノテク世界を構成する基盤概念を抽出し、構造化することに貢献するものが「オントロジー」である。本研究では、オントロジー工学の手法を用いて機能概念を組織化して、一般社会が要求する材料の機能概念を整理し、ナノテク基盤概念との関係を確立する。更に、構造化された知識を用いたナノテク材料開発発想支援システムの設計・開発を行う。

## b) 成果

### ・オントロジー工学に基づくナノ・バイオテクノロジー知的支援システムの開発

化学工学の領域を含む複数の領域を対象にして、全体に共通する基盤概念を構造化するために必要な共通オントロジーを開発するに先立ち、教科書や関連論文をから抽出した基本的な用語をプロセス、構造、機能、材料、応用の5つのカテゴリーに分類し、予備的なオントロジー（ナノテクインデックスオントロジー）を構築した。さらに、このナノテクインデックスオントロジーに基づいて、ナノテクノロジーに関する知識を記述したコンテンツを管理するシステムを開発した。今年度は、機能と性質に関するオントロジー的考察に基づいて、ナノテクノロジーインデックスオントロジーの洗練を行った。

また、オントロジー工学に基づく知的支援システム開発技術を応用として、ライフサイエンス分野のデータベースを高度化する手法の基本設計を行った。

### ・方式知識に基づくナノテク材料設計支援システム

ナノテク材料への要求機能を分析して、要求レベルから見た機能のオントロジーを開発し、要求機能と基本機能とを接続し、材料からデバイスまでをつなぐことを目指している。更に、構造化された知識を用いたナノテク材料設計支援システムの設計・開発を行っている。まずナノテク知識を適切に計算機上で記述するために、従来の機能概念オントロジーに基づく知識共有枠組みを拡張し、機能・製造プロセス統合的記述枠組みを開発した。本枠組みは、材料が発揮する機能とその製造プロセスに関する知識を、機能概念オントロジーに基づいた「方式概念」を用いた機能分解木で記述する。これにより、これらの知識を一貫性のある視点から管理することができる。これらの方式概念をデータベースとして蓄えておき、必要に応じてユーザに提示することで、発想支援を行うことが出来る。今年度は、材料の構造を扱えるように記述枠組みを拡張した。これにより、ナノテク材料の製造プロセス—構造—機能に関する知識を統合的に管理し、材料設計に利用することができる。

### ・オントロジー構築・利用環境の開発

オントロジー工学に基づくナノテク知識の構造化を進める為の基盤技術として、オントロジーの構築から利用に至る一連の過程を支援する計算機システム「法造」の開発を進めてきた。「法造」とはオン

トロジー (= “法”) を構築する (= “造”) 為の計算機環境で、以下の3つのシステムから構成される。  
オントロジーエディタ

オントロジーの基礎理論に関する考察に基づいて設計がなされた記述環境を提供し、オントロジーをグラフィカルに表示・編集する機能を持つ。概念間の関係はノード・リンクを用いたグラフ状に表現され、ユーザはマウス操作で容易にオントロジーの表示・編集を行うことができる。本研究で開発したオントロジーエディタは、専用の Web サイト (<http://www.hozo.jp/>) でフリーソフトウェアとして公開しており、国内外の多くのユーザに使用されている。

#### 概念工房

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

#### オントロジーサーバー

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

また本システムで構築したオントロジーや知識モデルを処理する基盤ソフトウェア (API) の開発も行っており、先に述べたコンテンツ管理システムおよび設計支援システムは、この API を用いて開発された。

今年度は、臨床医療オントロジー構築に向けて、Web 標準技術である OWL 対応の強化、半構造化データのインポート機能、概念の別名管理機能といった「法造」の機能拡張を実施した。

### [ 原著論文 ]

The Model of Roles within Ontology Development Tool:Hozo, R. Mizoguchi, E. Sunagawa, K. Kozaki and Y. Kitamura: J. of Applied Ontology, 2 (2) (2007) 159-179.

機能発揮・製造プロセス知識統合的記述枠組みに基づくナノテク材料設計支援システムの開発, 垂見 晋也, 古崎 晃司, 來村 徳信, 田中 秀和, 溝口 理一郎: 人工知能学会論文誌, 23 (1) (2008) 36-49.

### [ 国際会議 ]

Development of a Design Supporting System for Nano-Materials based on a Framework for Integrated Knowledge of Functioning-Manufacturing Process, \*S. Tarumi, K. Kozaki, Y. Kitamura, H. Tanaka and R. Mizoguchi: The 10th IASTED International Conference Intelligent Systems and Control(ISC2007),Cambridge, Massachusetts, USA, Novemb 19-21, 2007.

A Framework for Cooperative Ontology Construction Based on Dependency Management of Modu, \*K. Kozaki, E. Sunagawa, Y. Kitamura and R. Mizoguchi: International Workshop on Emergent Semantics and Ontology Evolution (ESOE2007), Busan, Korea, November 12, 2007.

Role Representation Model Using OWL and SWRL, \*K. Kozaki, E. Sunagawa, Y. Kitamura and R. Mizoguchi: 2nd Workshop on Roles and Relationships in Object Oriented Programming, Multiagent Systems, and Ontologies, Berlin, July 30-31, 2007.

Distributed and Collaborative Construction of Ontologies Using Hozo, \*K. Kozaki, E. Sunagawa, Y. Kitamura and R. Mizoguchi: Workshop on Social and Collaborative Construction of Structured Knowledge, Banff, Canada, May 8, 2007.

[ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

溝口理一郎	Semantic Web Science Association (副会長)
溝口理一郎	International Artificial Intelligence in Education Society (Executive Committee 委員)
溝口理一郎	Asia-Pacific Society for Computers in Education(APSCE) (理事)
溝口理一郎	The 15 <sup>th</sup> International Conference on Computers in Education (ICCE2007) (プログラム委員)
溝口理一郎	The 12 <sup>th</sup> Conference of the Spanish Association for Artificial Intelligence and The Workshop on Artificial Intelligence Technology Transfer (CAEPIA - TTIA '07) (プログラム委員)
溝口理一郎	The 2nd European Conference on Technology Enhanced Learning (EC-TEL 2007) (プログラム委員)
溝口理一郎	The 13 <sup>th</sup> International Conference on Artificial Intelligence in Education (AIED2007) (プログラム委員)
溝口理一郎	The 4 <sup>th</sup> European Semantic Web Conference (ESWC2007) (プログラム委員)
溝口理一郎	The 4th International Conference on Knowledge Capture (K-CAP 2007) (プログラム委員)
溝口理一郎	The 7th IEEE International Conference on Advanced Learning Technologies (ICALT'07) (プログラム委員)
溝口理一郎	The 2007 IEEE International Conference on Information Reuse and Integration (IEEE IRI-07) (プログラム委員)
溝口理一郎	The 16 <sup>th</sup> International World Wide Web Conference Semantic Web Track (トラックプログラム委員会委員長)
溝口理一郎	The 4 <sup>th</sup> International Conference on Knowledge Capture (K-CAP 2007) (プログラム委員)
溝口理一郎	The 6th international semantic web conference (ISWC2007) (組織委員長)
溝口理一郎	The 5th International Workshop on Applications of Semantic Web Technologies for E-Learning (SWEL'07) (組織委員長)
溝口理一郎	Workshop on Semantic Technology for Learning (組織委員長)
溝口理一郎	International Journal of Advanced Engineering Informatics (編集委員)
溝口理一郎	International Journal of Applied Ontology (編集委員)
溝口理一郎	Research and Practice in Technology Enhanced Learning (編集委員)
溝口理一郎	International Journal of Artificial Intelligence in Education (編集委員)
溝口理一郎	Frontiers in AI and Application (編集委員)
溝口理一郎	International Journal of Web Engineering and Technology (編集委員)
溝口理一郎	International Journal of Web Semantics (編集委員)
溝口理一郎	The 2 <sup>nd</sup> Asian Semantic Web Conference (運営委員)
古崎晃司	The 6th international semantic web conference (ISWC2007) (プログラム委員)

[ 国内学会 ]

人工知能学会	4 件
電子情報通信学会	1 件

[ 取得学位 ]

[ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)			単位：千円
特定領域研究			
溝口 理一郎	人工物オントロジーに基づく製造業における技術ドキュメントの融合に関する研究		5,200
若手研究 (B)			
古崎 晃司	オントロジーベースの Web 知識統合・管理システムの開発とナノテク知識への適用		900
<b>[ 受託研究 ]</b>			
溝口 理一郎	東京大学	医療情報システムのための医療知識基盤データベース研究開発；意味関係モデル設計開発	10,000
<b>[ 共同研究 ]</b>			
溝口 理一郎	出光興産株式会社	ナノ材料に関わる知識基盤システムの構築	3,300

# ナノテクノロジートランスファー分野

客員教授

Sergey V. Anishchik (平成 18 年 8 月 21 日～平成 19 年 8 月 20 日)

## a) 概要

次世代ナノファブ리케이션では、更なる微細化のために、短波長化してX線 (EUV) を利用する。材料 (レジストなど) のイオン化ポテンシャルを超えたエネルギーを持つため、多くの問題があり、これらを解決して次世代極限ナノファブ리케이션を実現するため、超高速反応機構の解明が必要である。また、使用済み核燃料の再処理プロセスや、有害物質の放射線分解処理の観点からも、極性溶媒、非極性溶媒での放射線化学反応の解明が必要である。非極性溶媒中、特に飽和炭化水素中でのジェミネートイオン再結合過程を研究した。

## b) 成果

### ・飽和炭化水素高分子におけるジェミネートイオン対生成と再結合の研究

典型的な飽和炭化水素非極性高分子試料として、n-ドデカン ( $C_{12}H_{26}$ ) を用いた。非極性溶液体であり誘電率が小さいため、電気的な相互作用が長距離まで及び、放射線化学初期反応を特色付けるスパー内反応がオンサガー距離内で起こる不均一反応となる系である。ドデカンカチオンラジカルのジェミネートイオン再結合過程を測定するために、ピコ秒パルスラジオリシスシステムを構築し実験した。ピコ秒パルスラジオリシスでは、分析光発生と電子ビーム発生に同じレーザー光を用いたので、分析光と電子ビームの同期ジッターが極めて小さいパルスラジオリシスシステムを実現することができた。ピコ秒時間領域でのドデカンカチオンラジカルのジェミネートイオン再結合過程を観測した。ハロゲン化炭化水素 (四塩化炭素、1-クロロプロパン) などの捕捉剤を添加して濃度依存性を調べ、開発した理論計算コードとの比較を行った。また、鎖長の異なる飽和炭化水素でも同様の実験を行った。鎖長の短いアルカンのneatな系でも、励起状態とカチオンラジカルの時間挙動をシミュレートできた。

## ナノテクノロジートランスファー分野

客員准教授      Adhikari Soumyakanti      (平成 19 年 9 月 3 日～平成 19 年 12 月 3 日)

### a) 概要

半導体大量生産に用いられるリソグラフィ技術は現在 100 nm 以下の加工が可能なレベルに到達している。さらなる高解像化を目指すため、露光源は極端紫外光や電子線を用いることが有望視されている。しかしその実現のためには、電離放射線に対する物質の応答性について明らかにしなければならないことが数多く残されている。電離放射線が引き起こす現象の解明は物理・化学的に興味深いだけでなく、今後のトップダウン型ナノテクノロジーの進展のために大いに貢献が期待される。

### b) 成果

#### ・*p*-ジオキサンのパルスラジオリシス

*p*-ジオキサンは環状エーテルであるが、放射線照射後に生成するラジカルカチオンの脱プロトン性が低く、広く研究されているラジカルカチオンの脱プロトン性の高いテトラヒドロフランとは、異なる放射線化学反応が期待される。*p*-ジオキサンの放射線化学反応過程を、パルスラジオリシス法により調べ、生成する反応中間体のダイナミクスを明らかにした。

## ナノテクノロジートランスファー分野

客員教授 任 燦 (平成 19 年 12 月 10 日～平成 20 年 3 月 10 日)

### a) 概要

この $\pi$ 電子共役型高分子における、単一高分子鎖中の $\pi$ 電子クロモファの励起、励起エネルギー移動、失活過程などを解明することで、有機発光材料の機能発現機構を明らかにし、LED 材料開発の指針を得ることを目的とした。

### b) 成果

得られた結果を以下の 2 つのオリジナル研究論文としてまとめ、学術雑誌に投稿中である。

- 1) Triplet Level Dependent Photoluminescence and Photoconduction Properties of  $\pi$ -Conjugated Polymer Thin Films Doped by Iridium Complexes.
- 2) Comparing Electroluminescence Efficiency and Photoluminescence Quantum Yield of Fluorene-based  $\pi$ -Conjugated Copolymers with Narrow Band-gap Comonomers.



# ナノ構造機能評価研究部門

## 概要

本研究部門は、ナノ構造多次元評価、表面ナノ構造プロセス評価、量子材料デバイス機能評価、ナノ構造機能理論・シミュレーションの4分野から構成され、材料機能物性研究分野、エネルギー材料研究分野、光・電子材料研究分野と協力しながら研究を進めている。本研究部門は従来の構造解析法・物性評価法を超えて、ナノメートルスケールの構造に特化した新たなナノ創製プロセス・ナノ構造・ナノ材料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。また、ナノ構造制御材料の時間分解創製プロセスや原子配列と電子状態、次世代量子材料デバイスの機能・物性などの高精度評価手法を開拓し、ナノテクノロジー研究に反映させる。

## 成果

- ・ ナノビーム電子回折法による Fe-Si 準安定相の局所構造解析
- ・ 相変化光ディスクにおける記録材料のナノ構造評価
- ・ 低エネルギー電子線ビーム励起によるトンネル電流リソグラフィの基礎過程の解明
- ・ プラズモン励起による表面原子ボンド切断過程の発見
- ・ フェムト秒光パルス励起によるグラファイトーダイヤモンド相転移の初期過程の解明
- ・ トンネル電流励起による半導体表面の局所的ボンド切断機構の解明
- ・ GaN ベース希薄磁性半導体ナノロッド構造のナノ評価
- ・ 新しい希薄磁性半導体 (In, Cr, Ga) N 中の Cr 周りの局所構造評価
- ・ Fe/GaN ハイブリッド構造のナノ評価

## ナノ構造多次元評価分野

教授（兼任） 弘津 禎彦  
助教 内藤 宗幸

### a) 概要

物質のナノ構造、ナノ組織に関する原子位置・原子種、原子結合状態・電子状態、ならびにそれらの温度、時間変化などについて、特に電子線を用いた高精度の評価・解析手法を開発する。これらの手法により、先端的ナノ材料・ナノデバイス極微構造の原子レベルでの評価や機能性予測を行い、新機能材料・デバイスの創製に寄与する。

### b) 成果

#### ・ Fe-Si準安定相の局所構造解析

Si単結晶基板にFeイオンを注入することにより形成されたアモルファス相の再結晶化時に析出する鉄シリサイド準安定相の構造を透過電子顕微鏡法(TEM)により調べた。エネルギー120 keV、照射量 $1.0 \times 10^{17} \text{cm}^{-2}$ 、照射温度-150°Cの条件で得られた試料では、基板表面に非晶質Si、非晶質Fe-Si、非晶質Siの3層からなる積層膜が形成されることが確認された。非晶質Fe-Siは350°C、8時間熱処理により一部結晶化し、 $\alpha$ -FeSi<sub>2</sub>準安定相が生成した。従来の研究では $\alpha$ -FeSi<sub>2</sub>準安定相などのシリサイド準安定相はエピタキシャル成長した薄膜、微粒子内においてのみ形成が確認されており、アモルファス中での形成は報告されていなかった。また、本研究で得られた $\alpha$ -準安定相には3種類のバリエーションが存在し、それぞれのドメインのc軸が互いに90°の角度をなすことから、 $\alpha$ -準安定相は立方晶を基本構造として形成されることが予想される。結晶構造を考慮すると、CsCl型構造を有するc-Fe<sub>1-x</sub>Siがその基本構造である可能性がある。

#### ・ 相変化光ディスクにおける記録材料のナノ構造評価

相変化光記録は記録材料の結晶-非晶質相変化に伴う物理特性の変化を利用した記録方式であるが、実際の記録媒体中における記録材料の相変化については不明な点が多い。そこで、相変化記録材料として用いられているGe<sub>2</sub>Sb<sub>2</sub>Te<sub>5</sub>薄膜の記録媒体中での構造を断面TEMにより調べた。その結果、as-deposited Ge<sub>2</sub>Sb<sub>2</sub>Te<sub>5</sub>薄膜は非晶質であるが、レーザーアニールによる結晶化によりNaCl型構造を有する準安定相を形成していることが確認された。また、記録マーク部では非晶質相が形成されており、as-deposited Ge<sub>2</sub>Sb<sub>2</sub>Te<sub>5</sub>薄膜とほぼ等しい非晶質構造を有することが明らかになった。

### [ 原著論文 ]

Direct Imaging of Local Atomic Ordering in a Pd-Ni-P Bulk Metallic Glass using Cs-Corrected Transmission Electron Microscopy, A. Hirata, Y. Hirotsu, T. G. Nieh, T. Ohkubo, N. Tanaka: Ultramicroscopy, 107 (2007) 116-123.

Local Atomic Structure Analysis of Zr-Ni and Zr-Cu Metallic Glasses using Electron Diffraction, A. Hirata, T. Morino, Y. Hirotsu, K. Itoh, T. Fukunaga: Mater. Trans., 48 (2007) 1229-1303.

Voronoi Analysis of the Structure of Ni-Zr-Al Ternary Metallic Glass, T. Fukunaga, K. Itoh, T. Otomo, K. Mori, M. Sugiyama, H. Kato, M. Hasegawa, A. Hirata, Y. Hirotsu, A. C. Hannon: Mater. Trans., 48 (2007) 1698-1702.

Structural Analysis of BiFeO<sub>3</sub> Polycrystalline Films by Transmission Electron Microscopy, H. Naganuma, A. Kovács, A. Hirata, Y. Hirotsu, S. Okamura: Mater. Trans., 48 (2007) 2370-2377.

Fabrication of L10-PdCoFe Nanocrystalline Particles with Tilted Magnetic Easy Axis, A. Kovács, Y. Hirotsu: *Appl. Phys. Lett.*, 91 (2007) 193106(1)- 193106(3).

Melt-Spun L10 Fe-Pt-(Zr, Nb and Ti)-B Nanocrystalline Alloys with High Coercivity, A. Makino, T. Bitoh, A. Inoue, Y. Hirotsu: *Mater. Sci. Eng. A*, 449-451 (2007) 66-70.

Magnetic Properties and Structure of Fe-Pt-M-B (M=Zr, Nb and Ti) Alloys Produced by Quenching Technique, A. Makino, T. Bitoh, A. Inoue, Y. Hirotsu: *J. Alloys Comp.*, 434-435 (2007) 614-617.

Magnetic Properties and Microstructure of FePt-M-B (M=Zr, Nb, La) Films, H. Okumura, S. Nishinakagawa, T. Bitoh, A. Makino, K. Sato, Y. Hirotsu: *J. Magn. Magn. Mater.*, 310 (2007) 2527-2528.

Particle Size Dependence of Atomic Ordering and Magnetic Properties of L10-FePd Nanoparticles, H. Naganuma, K. Sato, Y. Hirotsu: *J. Magn. Magn. Mater.*, 310 (2007) 2356-2358.

Strong Perpendicular Magnetic Anisotropy of Fe-Pd Nanocrystalline Particles Enhanced by Co Addition, A. Kovács, K. Sato, Y. Hirotsu: *J. Appl. Phys.*, 101 (2007) 033910(1)-033910(4).

Low-Temperature Atomic Ordering of Oriented L10-FePtCu Nanoparticles with High Areal-Density Characterized by Transmission Electron Microscopy and Electron Diffraction, H. W. Ryu, K. Sato, Y. Hirotsu: *Mater. Trans.*, 48 (2007) 903-908.

High-Resolution Transmission Electron Microscopy Analysis of L10 Ordering Process in Fe/Pd Thin Layers, A. Kovács, K. Sato, Y. Hirotsu: *J. Appl. Phys.*, 102 (2007) 123512(1)-123512(4).

Improvement of Structural and Magnetic Properties of L10-FePd Nanocrystals by Co Addition, A. Kovács, K. Sato, Y. Hirotsu: *IEEE Trans. Mag.*, 43 (2007) 3097-3099.

Synthesis of Iron Silicides by Electron-Beam Evaporation: Effects of Substrate Pre-Baking Temperature and Fe Deposition Thickness, J. H. Won, K. Sato, M. Ishimaru, Y. Hirotsu: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 46 (2007) 732-737.

Effect of Ionization Rates on Dynamic Recovery Processes during Electron-Beam Irradiation of 6H-SiC, I.-T. Bae, W. J. Weber, M. Ishimaru, Y. Hirotsu: *Appl. Phys. Lett.*, 90 (2007) 121910(1)-121910(3).

Exchange Interactions in Hydrogen-Induced Amorphous YFe<sub>2</sub> (invited), K. Suzuki, K. Ishikawa, K. Aoki, J. M. Cadogan, M. Ishimaru, Y. Hirotsu: *J. Non-Cryst. Solids*, 353 (2007) 748-752.

Post-Annealing Recrystallization and Damage Recovery Process in Fe Ion Implanted Si, M. Naito, A. Hirata, M. Ishimaru, Y. Hirotsu: *Nucl. Instrum. Meth. B*, 257 (2007) 340-343.

Ion-beam-induced phase transformations in d-Sc<sub>4</sub>Zr<sub>3</sub>O<sub>12</sub>, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, M. Tang, J. A. Valdez, K. E. Sickafus: *J. Appl. Phys.*, 102 (2007) 063532(1)-063532(7).

Formation process of sharp-pointed structures on GaN nanorods during RF-MBE growth and their field emission characteristics, M. Terayama, S. Hasegawa, K. Uchida, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, H. Asahi: *Physica Status Solidi C*, 4 (2007) 2371-2374.

Formation processes of iron silicide nanoparticles studied by ex situ and in situ transmission electron microscopy,

J. H. Won, A. Kovács, M. Naito, M. Ishimaru, Y. Hirotsu: J. Appl. Phys., 102 (2007) 103512(1)-103512(7).

Change of Nanostructure in (Fe<sub>0.5</sub>Co<sub>0.5</sub>)<sub>72</sub>B<sub>20</sub>Si<sub>4</sub>Nb<sub>4</sub> Metallic Glass on Annealing, A. Hirata, Y. Hirotsu, K. Amiya, N. Nishiyama, A. Inoue: Mater. Sci. Forum, 539-543 (2007) 2077-2081.

Low-Temperature Synthesis of Oriented L10-FePtCu Nanoparticles with High Coercivity, H. W. Ryu, K. Sato, Y. Hirotsu: Solid State Phenom., 124-126 (2007) 855-858.

Structure and Magnetic Properties of Nanocrystalline Pd-Co and Pd-Co-Fe Layers, A. Kovács, K. Sato, Y. Hirotsu: Solid State Phenom., 124-126 (2007) 907-910.

Direct Synthesis of Isolated L10-FePtCu Nanoparticles by RF-Magnetron Sputtering, H. W. Ryu, K. Sato, Y. Hirotsu: Solid State Phenom., 127 (2007) 129-134.

### [ 解説、総説 ]

最新電子線技術、弘津禎彦、吉田陽一、波紋 17 (2007) 75-80.

アモルファス鉄シリサイド薄膜の局所構造と結晶化過程、内藤宗幸、平田秋彦、石丸 学、弘津禎彦、日本結晶学会誌 49 (2007) 115-121.

相変化光記録材料の電子線構造解析、内藤宗幸、石丸 学、弘津禎彦、あたりあ 46 (2007) 652-659.

### [ 国際会議 ]

Medium Range Order Structures and their Changes in the Course of Primary Crystallization in some Metallic Glasses (invited), \*Y. Hirotsu: WPI & IFCAM Joint Workshop, Sendai, Japan, February 18-19, 2007.

Fabrication of Oriented Hard-Magnetic Alloy Nanoparticles and Their Characterization (invited), \*Y. Hirotsu, K. Sato, A. Kovacs, H. Naganuma, H.W. Ryu: 1st International Symposium on Advanced Magnetic Materials, Jeju, Korea, May 28-June 1, 2007.

Observation of Local Structural Change in the Course of Primary Crystallization of Metallic Glasses (invited), \*Y. Hirotsu, A. Hirata: 14th International Symposium on Metastable and Nano Materials, Corfu, Greece, August 26-30, 2007.

Local Structure Studies of Metallic Glasses using HREM and Electron Diffraction (invited), \*Y. Hirotsu, A. Hirata: Workshop on Fundamental Issues in Metallic Glasses, Guilin and Kunming, China, October 22-26, 2007.

### [ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

弘津 禎彦            7th Japan-Polish Joint Seminar on Materials Analysis (組織委員)

### [ 国内学会 ]

応用物理学会	2 件
日本顕微鏡学会	1 件
日本金属学会	1 件

粉体粉末冶金協会

1 件

[ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

特定領域研究(2)

弘津 禎彦 融体・金属ガラスの局所原子構造のその場観察 9,800

基盤研究(S)(2)

弘津 禎彦 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 14,430

[ 受託研究 ]

弘津 禎彦 (財)次世代金属・複合材料研究開発協会 NEDO (革新的部材産業創出プログラム) 高機能複合化金属増ガラスを用いた革新的部材技術開発 複合化金属ガラスの微細構造解析 3,150

弘津 禎彦 松下電工(株) ガラスに塗布された無機及び有機材料の組織形態に関する研究 400

## 表面ナノ構造プロセス評価研究分野

教授（兼任） 谷村 克己  
准教授 金崎 順一

### a) 概要

電子系の励起により基底構造が不安定化する現象は、多くの物質表面で観測される一般的事象である。電子系の励起状態を介した構造制御は、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り、新規の先進的材料プロセスへの発展が期待される。本研究分野では、電子励起による原子過程の誘起性・選択性・促進性を積極的に利用して、新しい特性・機能をもった表面ナノ構造を制御・組織化し、新規の高次機能性表面を創製することを目指している。そのため、固体表面の電子励起状態が構造不安定性を誘起する基礎過程を完全に理解すると共に、そこで得られた基礎的知見をさらに発展させ、電子励起による表面原子過程の特徴を生かした表面ナノプロセス技術の基本原理を確立する。この目的を達成するため、短パルスレーザー光・高エネルギー分解能低エネルギー電子線ビーム、金属探針からの電子・正孔注入を励起源とし、半導体及びグラファイト表面において誘起される構造変化の特徴を、走査型トンネル顕微鏡 (STM) を用いて原子スケールで明確にすると共に、構造変化の動力学を解明するための研究を展開している。

### b) 成果

#### I 高分解能低エネルギー電子ビーム励起による Si 表面の構造変化機構の研究

数 eV から 10eV 程度のエネルギーを有する低エネルギー電子ビームと固体との相互作用機構は、量子性が顕在化し、Born 近似などの代表的近似法が適応できない領域であり、今まで十分な物理的解明がなされていない。励起誘起表面構造変化現象を新規表面ナノ構造創製手法にまで高めるための基礎研究として、10eV 程度以下のエネルギーを持つ高分解能低エネルギー電子ビーム励起による半導体表面の構造的応答に関する研究を展開している。その結果、

- 1) STM チップからのトンネル電流励起による表面ナノリソグラフィの典型例として研究されている水素終端された Si(001)-(2x1) 表面における Si-H のボンド切断機構を研究した。その結果、入射電子の非弾性的電子励起が、Si-H ボンドの結合性から反結合性状態への遷移を誘起し、切断に支配的な寄与をすること、
  - 2) 最も代表的な半導体再構成表面の一つである Si(111)-(7x7) においては、7.5eV 以上のエネルギーを有する電子ビームの励起によって、(7x7) 表面を構成する最上層の adatom のボンド切断が発生すること、
  - 3) その効率は、Si 結晶内で非弾性的に電子系を励起できるエネルギーに換算して、12eV のところで最大値を示し、それ以上でも以下でも、急速に減少すること、
  - 4) 発生した adatom 空孔子の空間相関は、レーザー励起による 2 正孔局在によって発生する特徴と同一であること、
- が明らかとなった。

ボンド切断効率が最大値を示す 12eV は、Si 結晶のプラズモン励起エネルギーに対応しており、上記の結果は、プラズモン生成によるボンド切断を初めて実証した重要な結果である。プラズモン生成に伴う電荷の疎密波によって表面原子サイトに 2 正孔局在を誘起できるだけの正孔濃度分布が発生し、adatom のボンド切断に至ると考えられる。今後、更なる検証を進めて、低エネルギー電子ビームと半導体表面との相互作用の支配要因を解明し、新規表面ナノ構造創製への基礎を確立する。

#### II・グラファイト表面における光誘起構造不安定性

フェムト秒レーザー光励起したグラファイト表面構造の変化をSTM観察し、 $sp^3$ タイプのグラファイト原子層間の結合が、価電子励起に伴う非熱的原子過程により形成される事を示す直接的証拠を得た。

#### 1. フェムト秒レーザー励起によるグラファイト表面ナノ構造の形成

光励起した表面をSTMにより直接観察し、励起により形成される、2つの典型的なタイプのナノ構造を明らかにした。これらのナノ構造領域では、表面原子は $\langle 1-100 \rangle$ 方位に変位した構造的特徴を示す。さらに、ナノ構造領域においてトンネル分光測定を行い、フェルミレベルの約0.3eV上にある非占有状態の密度が上昇していることを明らかにした。この結果は、構造変化により、局所的にエネルギーギャップが形成されたことを示している。理論との比較検討を行い、観察されたナノ構造の特徴が原子層間の $sp^3$ タイプ結合の形成を示していると結論した。

#### 2. フェムト秒レーザー光励起によるグラフェン2重原子層の放出

アブレイション閾値よりわずかに低い強度でのフェムト秒光励起により、グラファイト表面に円形クレーターが生成されることを明らかにした。クレーターの直径は数ナノメートルで、その領域には $10^2$ 程度の表面原子サイトが含まれる。新たに露出されたクレーター内部の領域は、原子スケールで平坦であり、クレーターの深さは単原子層ステップ高さの2倍であることが明らかとなった。これらの結果は、表面2原子層が集団的に剥離したことを明確に示している。本研究においてはじめて実証された表面2原子層の集団的剥離という新規のアブレイション現象は、価電子励起による、表面2原子層間の強い $sp^3$ タイプ結合の形成を示す強い証拠である。

### [ 原著論文 ]

Fermi-Level Dependent Morphology in Photo-Induced Bond Breaking on (110) Surfaces of III-V Semiconductors, J. Kanasaki, E. Inami, and K. Tanimura, *Surface Science* **601**, 2367-2372 (2007).

Electronic Bond Rupture of Si Atoms on Si(111)-(2x1) Induced by Valence Excitation, E. Inami, and K. Tanimura, *Physical Review B* **76**, 035311-1-11 (2007).

### [ 国際会議 ]

Hydrogen removal from Si(001)-2x1:H surface induced by low-energy electron beam excitation, K. Ichihashi, J. Kanasaki, and K. Tanimura, *Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium 2007*, Osaka, Japan, September 26-28, 2007.

Scanning Tunneling Microscopy Study on Hydrogen Removal from Si(001)-(2x1):H Surface Excited with Low-Energy Electron Beams, J. Kanasaki, K. Ichihashi, and K. Tanimura, 11<sup>th</sup> SANKEN International Symposium, 6<sup>th</sup> Nanotechnology Center International Symposium, 1<sup>st</sup> MSTE International Symposium, Awaji, Hyogo, February 4-5, 2008

Photo-induced Structural Changes on Si(111)-(2x1), E. Inami, and K. Tanimura, 11<sup>th</sup> SANKEN International Symposium, 6<sup>th</sup> Nanotechnology Center International Symposium, 1<sup>st</sup> MSTE International Symposium, Awaji, Hyogo, February 4-5, 2008

### [ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

谷村 克己      International Workshop on Desorption Induced by Electronic Transitions (国際組織委員)

## [ 国内学会 ]

日本物理学会	2 件
その他	4 件

## [ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)		単位：千円
特別推進研究		
谷村 克己	光誘起構造相転移動力学の研究	188,110
基盤研究(A)		
谷村 克己	表面励起物性の研究	2,300
萌芽研究		
谷村 克己	可視光励起によるグラファイト・ダイヤモンド構造相転移に関する研究	1,500
基盤研究 (C)		
金崎 順一	低エネルギー電子線励起による半導体表面の構造不安定性	650

## [ その他研究助成金 ]

(代表者として配分されたもの)		単位：千円
池谷科学技術振興財団 研究助成		
金崎 順一	光励起プロセスによる半導体表面構造のナノ制御	1,500



# 量子マテリアルデバイス機能評価分野

教授（兼） 朝日 一  
助教 周 逸凱

## a) 概要

本分野では、量子マテリアル、次世代 LSI を含む量子デバイスの構造・物性をナノレベルで解析する手法の開発研究、評価研究を行い、それにより新機能・高機能量子マテリアルデバイスの創製・実現に寄与することを目的に、

- ・量子マテリアルのナノレベルでの物性の解析手法の開発、評価
  - ・次世代 LSI を含む量子デバイスのナノレベルでの構造・物性の評価手法の開発、評価
  - ・量子デバイスのデバイス特性の解析技術の開発、評価
- に関する研究を行っている。

## b) 成果

### ・ GaN ベース希薄磁性半導体ナノロッド構造のナノ評価

ナノ量子構造はデバイスの基本構造として知られている。希薄磁性半導体のナノ量子構造も同様に新機能スピンドバイスに大変重要な基本構造である。今年度では、分子線エピタキシー(MBE)装置を用いて、Crを縦型ナノ細線構造に添加し、GaCrNナノロッドを作製した。ナノ評価は、まず、GaNナノロッドに対して行い、ナノロッドの成長条件を明らかにした。ロッドの形成過程では、GaN低温バッファ層が形成核となり、大変重要な役割を果たしたことは走査型電子顕微鏡を用いたナノ評価でわかった。次に、700°Cで成長したGaCrNナノロッドに対し、表面形状を原子力間顕微鏡(AFM)、断面構造をTEM、Cr濃度分布をEELS (Electron Energy-Loss Spectroscopy) による観察を行った。ナノロッド内に取り込まれたCr濃度は1%以下であり、ほとんどがナノロッド周辺に析出していると考えられる。この結果に基づき、更に成長温度を550°Cまで下げ、Cr濃度2~3%のGaCrNナノロッドが作製できたことがわかった。

### ・ Fe/GaN ハイブリッド構造のナノ評価

スピン注入現象は、半導体スピントロニクスデバイス形成上では大変重要である。特に、今年度は、GaN上に室温で成長したFeに対して、その結晶構造、成長様式、及び磁気特性のナノ評価を行った。AFMおよびSTMを用いた観察から、成長初期段階で、ナノサイズ径のFeドットが形成され、無配向ということを確認した。Feの蒸着量の増加に伴ってドット径が大きくなっていき、その増加にともない配向し、その後ドットの合体が顕著となり、ダッシュ状の形状となることが分かった。磁性については、ドットの状態では、非磁性であり、磁化の温度依存性は超常磁性の振る舞いを示した。Feダッシュ構造がある場合には室温で強磁性を示したことがわかった。

### ・ 新しい希薄磁性半導体 (In, Cr, Ga) N 中の Cr 周りの局所構造評価

(In, Cr, Ga) Nをレーザー構造の活性層とすると、円偏光を発する半導体レーザーを作製することができる。転送する情報を左と右円偏光レーザーに乗せ、盗聴に強い光通信方式の実現が可能である。MBE法を用いて、350°Cで成長したInCrN、In,GaCrNにおいて、Cr原子が結晶中のいかなるサイトを占め、どのような配位環境にあるかは、混晶半導体として機能を期待する上で重要である。そこで、EXAFS, XANES測定により、Cr回りの局所構造を調べた。InCrN、In,Ga,CrNの第1近接と第2近接のピークはNaCl型CrNと全く異なり、CrがGaサイトを置換したh-GaCrNと類似したスペクトル形状を示している。特に重要な類似点は、スペクトルのピークが明瞭に観測でき、ピークエネルギーが置換型のh-GaCrNとほぼ同一であることである。すなわち、最適成長条件で成長したInCrN、In,Ga,CrNは、Cr原子がInN、InGaNのInサイトを置換した位置に占めていることが明らかとなった。

[ 原著論文 ]

Cr atom alignment in Cr-delta-doped GaN, S. Kimura, S. Emura, H. Ofuchi, Y. Nakata, Y.K. Zhou, C.W. Choi, Y. Yamauchi, S. Hasegawa and H. Asahi: American Institute of Physics, CP 882 (2007) 410-412.

Growth and Characterization of Ferromagnetic Cubic GaCrN: Structural and magnetic properties, S. Kimura, S. Emura, H. Ofuchi, Y. Zhou, S. Hasegawa and H. Asahi: J. Cryst. Growth, 301-302 (2007) 651-655.

Formation process of sharp-pointed structures on GaN nanorods during RF-MBE growth and their field emission characteristics, M. Terayama, S. Hasegawa, K. Uchida, M. Ishimaru, Y. Hirotsu and H. Asahi: Phys. Stat. Sol. (c), 4 (7) (2007) 2371-2374.

Molecular-beam epitaxy growth and characterization of ferromagnetic cubic GaCrN on GaAs substrate, S. Kobayashi, S. Shanthi, S. Kimura, Y.K. Zhou, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi: J. Cryst. Growth, 308 (1) (2007) 58-62.

High Gd concentration GaGdN grown at low temperatures, Y.K. Zhou, S.W. Choi, S. Kimura, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi: Journal of Superconductivity and Novel Magnetism, 20 (6) (2007) 429-432.

[ 解説、総説 ]

半導体ナノスピントロニクス材料創製、長谷川繁彦、周逸凱、朝日一、未来材料 7 (4) (2007) 34-39.

[ 国際会議 ]

MBE Growth and Characterization of Rare-Earth Doped Nitride Semiconductors for Spintronics (INVITED) (invited), H. Asahi, Y.K. Zhou, S. Emura and S. Hasegawa: E-MRS2007.

High Gd concentration GaGdN grown at low temperature (poster), Y.K. Zhou, S.W. Choi, S. Kimura, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi: SpinTech-IV.

Enhancement of magnetic moment in GaGdN/GaN superlattice structure (poster), Y.K. Zhou, S.W. Choi, S. Kimura, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi: ChinaNANO 2007.

Enhancement of magnetic moment in GaGdN/GaN superlattice structure, Y.K. Zhou, S.W. Choi, S. Kimura, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi: Material Today Asia.

Growth and characterization of InCrN and (In,Ga,Cr)N diluted magnetic semiconductors (poster), S. Kimura, S. Emura, Y. Hiromura, Y.K. Zhou, S. Hasegawa and H. Asahi: 7th International Conference on Nitride Semiconductors.

Deformation of CrN<sub>4</sub> tetrahedron site symmetry in GaCrN detected by X-ray linear dichroism (poster), S. Emura, S. Kimura, H. Tambo, Y. Hiromura, Y.K. Zhou, S. Hasegawa and H. Asahi: 11th SANKEN International Symposium, 6th Nanotechnology Center International Symposium, 1st MSTEC International Symposium.

Enhancement of magnetic properties in GaGdN/GaN superlattice structure and low-temperature-grown GaGdN layer (poster), Y.K. Zhou, S.W. Choi, S. Kimura, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi: 11th SANKEN International Symposium, 6th Nanotechnology Center International Symposium, 1st MSTEC International Symposium.

[ 国際会議の組織委員、国際雑誌の編集委員 ]

朝日 一 2007 International Conference on Solid State Devices and Materials (プログラム委員)

朝日	—	International Symposium on Compound Semiconductors 2007 (組織委員、プログラム委員)
朝日	—	15th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (出版委員)
朝日	—	15th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (国際諮問委員)
朝日	—	Second International Symposium on Growth of III-Nitrides (国際諮問委員)
朝日	—	Journal of Crystal Growth (編集委員)
朝日	—	Current Applied Physics (Editorial Board 委員)
朝日	—	J. Materials Science: Materials in Electronics (Editorial Board 委員)
朝日	—	Journal of Physics: Condensed Matter (Advisory Editorial Board 委員)
朝日	—	e-Journal of Surface Science and Nanotechnology (Advisory Board 委員)

### [ 国内学会 ]

応用物理学会		9 件
PASPS シンポジウム		5 件
電子材料シンポジウム		1 件

### [ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)		単位：千円	
基盤研究 (B) (2)			
朝日	—	室温強磁性窒化物物半導体ナノ構造とナノスピントロニクスデバイス応用に関する研究	3,700
特定領域研究			
周	逸凱	難固溶不純物原子添加半導体のナノ量子構造に関する実験的研究	3,000
(分担者として配分されたもの)		単位：千円	
学術創成研究			
朝日	—	希土類元素添加の精密制御による物性・機能性の開拓 (代表者：藤原康文)	30,420

## 阪大複合機能ナノファウンダリ

主任者、教授	川合 知二 (兼任)
参画者、教授	田川 精一 (兼任)
参画者、教授	森 博太郎 (兼任)
特任研究員	鷹岡 昭夫 (名誉教授)
特任研究員	古庄 公寿 (平成 19 年 5 月 1 日～)
特任研究員	梶村 直子
特任研究員	西田 倫希 (平成 19 年 7 月 1 日～)
特任研究員	ChunLin CHEN (平成 19 年 8 月 16 日～)
特任研究員	Lin-Yen LIN (平成 19 年 10 月 1 日～)
特任研究員	山田 直子
特任研究員	村杉 政一
特任研究員	大西 秀人 (平成 19 年 10 月 16 日～)
特任研究員	松井 良憲 (~平成 19 年 4 月 30 日)
特任研究員	大野 隆裕 (~平成 19 年 8 月 31 日)
特任研究員	末金 皇 (平成 19 年 7 月 1 日～平成 19 年 10 月 31 日)
派遣研究員	中村 安男 (平成 19 年 11 月 1 日～)
派遣研究員	梁守 尚美 (平成 19 年 12 年 17 日～)
研究補佐員	砂川 則雄
事務補佐員	圓見 恵子
事務補佐員	松本 智絵 (平成 19 年 6 月 1 日～)

### a) 概要

文部科学省による「先端研究施設共用イノベーション創出事業【ナノテクノロジー・ネットワーク】(以後“ナノテクネット事業”と略す)」は、大きな期待が掛かる真に新しいナノ材料やナノデバイス等の創出に貢献した地域の企業や研究機関との有機的な連携等を深めることを目的としている。

産業科学研究所が保有する分子や薄膜の合成ならびに超微細加工、そして超高压電子顕微鏡センターが保有するナノ計測や分析の3つの研究領域・機能を融合・複合化させて発揮し、ナノスケールプロセスやナノ構造・機能の解析に必要な施設・装置・技術等の提供による総合的な研究支援を行い、蓄積してきたものを単に発揮させるファシリティーとしての機能だけでなく、人材育成やイノベーションの核となる技術センター的機能を果たすことにしている。

具体的には、本ナノテクネット事業は、国内外・学内外のナノテクノロジー研究を支援する共用施設として、全国の26機関が参画し13の共用グループを構成し、平成19年4月より発足したが、それぞれのグループが①ナノ計測・分析、②超微細加工、③分子・薄膜合成、④極限環境の4つの研究領域の機能を提供しており、当ファウンダリでは①②③の3つの研究領域の機能を複合化させた一環プロセスと地域との連携を以って以下の支援事業を遂行し、計79件の支援を行った。

#### ①ナノ計測・分析の支援

$\mu\text{m}$ のスケール厚さの試料内部を $\text{nm}$ スケール分解能で構造解析に対して、材料や生体の試料作成とテクニックによる効率的な分析力と解析力等にて支援する。

#### ②超微細加工の支援

薄膜試料の超微細加工とデバイス化、またそのデバイスの評価等に対して支援する。

#### ③分子合成・薄膜合成の支援

有機物・無機物・金属等が持つ機能を最大限に利用し、空間的・エネルギー的に最適な

配列や組合せを考慮した原子・分子配列を有する材料の創製、また薄膜や人口格子を形成・物性測定等に対して支援する。

## b) 成果

ナノネット事業の一環として国内外・学内外のナノテクノロジー研究を支援する共用施設として、産業科学研究所が保有する分子や薄膜の合成と超微細加工そして超高圧電子顕微鏡センターが保有するナノ計測や分析の3つの研究領域・機能を融合・複合化し、ナノスケールプロセスやナノ構造・機能の解析に必要な施設・装置・技術等の提供による総合的な研究支援を行った。プロジェクト初年度である本年度は、計79件の支援(技術相談6件は含まず)をしてきた。なお、当ファウンダリが保有する①ナノ計測・分析、②超微細加工、③分子・薄膜合成、の3機能による19年度の総支援件数の項目別内訳は表-1の通りである。

表-1；平成19年度の支援課題件数

	①ナノ計測・分析				②超微細加工				③分子・薄膜の合成				合計			
	学	産	官	計	学	産	官	計	学	産	官	計	学	産	官	計
共同研究	30	8	3	41	2	1	0	3	1	2	0	3	33	11	3	47
装置利用	10	1	0	11	9	2	1	12	8	1	0	9	27	4	1	32
技術代行	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
計	40	9	3	52	11	4	1	15	9	3	0	12	60	15	4	79

また、支援に当たって、装置講習などを随時行っているが、その他に、若手研究者等の人材育成を目的とし、装置操作スクールを4日開催し、計127名の受講を得た。具体的には、産学官の研究者を対象とする透過型電子顕微鏡(TEM)基礎セミナー(4月6日、90名参加)、大学院生を対象とする薄膜作成のための装置操作実習(10月18日、22日、7名参加)、産学官の研究者を対象とする電子顕微鏡スクール(12月14日、30名参加)等のセミナーや実習の機会を設け、好評を得た。

さらには、地域連携として、大阪府立大学と大阪府立産業技術総合研究所や大阪市立工業研究所ならびに民間企業と連携し、超高圧電子顕微鏡共同利用研究会議を開催した。

### [ 原著論文 ]

Dielectric Properties of Ba(Zr,Ti)O<sub>3</sub> Thin Films Fabricated by Pulsed Laser Deposition, T.Hino, M. Nishida, T. Araki, T.Ohno, T. Kawahara, M. Murasugi, H. Tabata, T. Kawai: J. Laser Micro/Nanoengineering, 2 (3) (2007) 166-169.

### [ 国際会議 ]

High-aspect-ratio micromachining of fluoropolymers using focused ion beam (poster), Y. Matsui, N. Miyoshi, A. Oshima, S. Seki, M. Washio, S. Tagawa: 2007 MRS Spring Meeting, USA, Apr. 10, 2007.

Direct etching process for nanofabrication of crosslinked PTFE using focused ion beam (poster), N. Fukutake, T. Urakawa, N. Miyoshi, A. Oshima, M. Washio, Y. Matsui, S. Seki, S. Tagawa: 9<sup>th</sup> TROMBAY SYMPOSIUM ON RADIATION & CHEMISTRY(TSRP2008), Pune, India, January 6-11,2008.

### [ 国内学会 ]

日本高分子学会		1 件
日本アイソトープ協会		1 件
日本放射線化学会		1 件

**[ その他の競争的研究資金 ]**

川合 知二	文部科学省・科学技術試験研究委託事業	ナノメートルスケールでの分子・薄膜の合成、超微細加工、計測・分析の研究支援および地域連携と人材育成によるイノベーション創出(阪大複合機能ナノファウンダリ)	155,000
-------	--------------------	---	---------

## オープンラボラトリー

教授（オープンラボラトリー管理室長、兼任）	吉田 陽一
教授（オープンラボラトリー管理室、兼任）	菅沼 克昭
教授（オープンラボラトリー管理室、兼任）	田中 秀和
技術担当研究員（オープンラボラトリー管理室）	法澤 公寛
事務補佐員（オープンラボラトリー管理室）	大橋 佳代子

### a) 概要

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する。産業科学ナノテクノロジーセンターの学内兼任教員及び客員教員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に利用資格がある。

### b) 成果

2004年度より新規利用者の募集をし、2007年度は22の研究テーマで19の研究代表者より利用があった。以下に19の研究代表者を示す。

研究代表者	所属	研究代表者	所属
伊東一良 教授	工学研究科	生田和良 教授	微生物病研究所
井上佳久 教授	工学研究科	谷口直之 教授	微生物病研究所
掛下知行 教授	工学研究科	山崎義光 招聘教授	医学系研究科
桑畑進 教授	工学研究科	森博太郎 教授	超高压電子顕微鏡センター
中谷亮一 教授	工学研究科	川合知二 教授	産業科学研究所
森勇介 教授	工学研究科	黒田俊一 准教授	産業科学研究所
福井希一 教授	工学研究科	小林光 教授	産業科学研究所
藤原康文 教授	工学研究科	田川精一 教授	産業科学研究所
西尾章治郎 教授	ナノサイエンス・ナノテクノロジー研究推進機構	溝口理一郎 教授	産業科学研究所
		吉田博 教授	産業科学研究所

## 加速器量子ビーム実験室

実験室長・教授	真嶋 哲朗（兼任）
室長補佐・教授	田川 精一（兼任）、磯山 悟朗（兼任）、吉田 陽一（兼任）
准教授	加藤 龍好（兼任）、誉田 義英（兼任）、関 修平（兼任）（2007.9.30 まで）、藤塚 守（兼任）、古澤 孝弘（兼任）、川井 清彦（兼任）、楊 金峰（兼任）
特任准教授	遠藤 政幸（兼任）
助教	池田 稔治（兼任）、木村 徳雄（兼任）、小林 一雄（兼任）、藤乗 幸子（兼任）、柏木 茂（兼任）、佐伯 昭紀（兼任）、立川 貴士（兼任）
特任助教	坂本 雅典（兼任）、近藤 孝文（兼任）
技術職員	山本 保（2007.7.20 まで）、馬場 久美子（2007.7.20 まで）
事務補佐員	長尾 りつ子

### a) 概要

加速器量子ビーム実験室（以下「実験室」という）は、旧放射線実験所の加速器・量子ビーム設備を維持、管理、運転する組織として、平成 14 年度産業科学ナノテクノロジーセンターに設立された。主要な装置は、L バンド電子ライナックと、S バンド電子ライナック、RF 電子銃ライナックの計 3 台の電子ライナック、およびコバルト 60 ガンマ線照射装置であるが、この内の 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共同利用に供している。実験室は、量子ビーム科学研究部門とナノ量子ビーム研究部門を中心に、加速器・量子ビームを利用する産研の他部門からの兼任教員と、技術室所属の技術職員、事務補佐員より構成され、実験室の管理運営と共同利用を行なっている。

### b) 成果

#### ・L バンドライナック

L バンド電子ライナックは、電子ビームの長短とサブハーモニックバンチャー使用の有無の組み合わせることにより、過渡モード、定常モード、単バンチモード、マルチバンチモードの 4 種類の運転モードを有し、最大エネルギーが 40MeV、最大電荷量が 91nC（単バンチモード）、または最大電流 30.6A（過渡モード）、最大繰り返し 60Hz の性能をもつ。平成 19 年度の利用状況は、前期に保守作業の 18 日を含む 119 日が配分され、後期に保守作業の 36 日を含む 119 日が配分された。通算運転日数は 195 日で通算運転時間は 2,240 時間である。今年度は単バンチモード、マルチバンチモードの安定化のためにサブハーモニックバンチャー空洞 3 台の更新を行った。

#### ・S バンドライナック

S バンドライナックは、代表的電子エネルギーが 100 MeV、ピーク電流 0.2 A、繰り返し 30 Hz の電子ライナックであり、従来から陽電子生成に利用している。前年度行った接地系の配線のし直し、電源内ノイズ除去フィルターの改良や時定数の変更などで、電源の即断ヒューズが切れることは無くなったが、依然として長時間の安定運転が行える状況ではないため、今年度も引き続きノイズ対策を試みた。現在はモジュレーター筐体を変更し、根本的な接地回路系の整備を行っているところである。

#### ・RF 電子銃ライナック

RF 電子銃ライナックの正式な名称は、レーザーフォトカソード S バンド RF 電子銃ライナックであり、RF 電子銃から発生したピコ秒電子線パルスをも、最大 40MeV まで加速し、磁気パルス圧縮法を用いてフェムト秒領域までの短時間パルス電子線を発生することができる。これらフェムト秒・ピコ秒電子線パルスは、主として量子ビーム誘起反応現象の解明に関する研究に利用されている。本年度は運転は 8 ヶ月、約 950 時間であり、順調に運転を行うことができた。



#### ・コバルト 60 ガンマ線照射装置

コバルト棟に設置されているコバルト 60 ガンマ線照射装置は、広さの異なる 2 つの照射室を持ち、3 個の大強度コバルト 60 ガンマ線源を用いて照射実験を行っている。本年度も、産研をはじめ、理学研究科、工学研究科、微生物病研究所ならびに医学部その他の研究者に広く利用された。延べ稼働時間は約 2520 時間であり、昨年度に比べて利用時間が増加した。得に工学研究科の利用が飛躍的に増加しており、前年比にして約 3 倍の 1000 時間を越える利用が行われた。保守に関しては、本年度はコバルト 60 照射設備管理システムの抜本的・全面的な改修に着手し、改修工事は現在も進行中である。

#### ・共同利用

本年度の共同利用件数は、産研が 23 件、学内が 14 件、学外の利用者を含むものが 5 件の合計 42 件であった。研究会は、平成 19 年 12 月 14 日に「加速器量子ビーム実験室とビーム科学の新展開」の題目で、平成 20 年 1 月 23 日に「ビーム利用化学の新展開」の題目で、更に平成 20 年 3 月 13 日に「平成 19 年度成果報告会」を産研第 2 研究棟共同プロジェクト室で開催した。今年度は 200 名を越える見学者を受け入れた。

#### ・放射線安全管理

産業科学研究所放射線施設における放射線業務従事者数は 151 名であった。これらの業務従事者に対する教育訓練は平成 19 年 4 月 5, 6 日に、大阪大学コンベンションセンターMO ホールにて行った。新規登録者に対する教育訓練は平成 19 年 4 月 23 日に加速器量子ビーム実験室セミナー室で行なった。

## 電子顕微鏡室

室長 教授 弘津 禎彦

### a) 概要

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、ナノレベルでの形態観察および構造解析の立場から各研究部門におけるナノテクノロジー研究を支援している。

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) が稼働しており、これらの装置はそれぞれ各種試料の局所構造解析、表面組織観察などに利用されている。特に、平成 10 年より稼働を始めた 300 kV 透過電子顕微鏡は最高分解能が 0.17 ナノメートルであり、また、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ことから、原子レベルでの組織観察やナノ領域における元素分析に極めて有効である。

### b) 成果

2007 年度に 300 kV 電子顕微鏡を利用した研究室は 8 研究室であり、半導体、セラミックス、金属、高分子材料などの形態観察、局所構造解析が行われた。なお、総利用件数は 384 件であった。

## 電子プロセス実験室

室長 教授	朝日 一（兼任）
准教授	長谷川 繁彦（兼任）
准教授	松本 卓也（兼任）
准教授	須藤 孝一（兼任）
助教	周 逸凱（兼任）
助教	前橋 兼三（兼任）

### a) 概要

電子プロセス実験室は、平成3年（1991）に設置されたものである。当実験室は、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、半導体等の結晶品質を評価できる二結晶X線回析装置、表面構造を調べるための原子間力顕微鏡・デジタル光学顕微鏡、パターン形成を行うためのフォトリソグラフィ装置・電子線描画装置、各種の絶縁層・電極形成を行うためのスパッタ薄膜形成装置・真空蒸着装置・電子ビーム蒸着装置、微細加工を行うための反応性イオンエッチング装置・集束イオンビーム装置、端面形成のための劈開機、配線のためのワイヤーボンダー装置、解析用パーソナルコンピュータなどが設置されている。

### b) 成果

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氣的性質等の測定、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19年度は、13研究室・室で約310件の利用があった。例年より利用件数が減っているが、第1研究棟改修に伴う移転関連作業の影響によるものと考えられる。ナノ加工室の利用は100件を越えている。

## ナノ加工室

室長                   野地 博行（兼任）  
技術職員           谷畑 公昭、榊原 昇一、石橋 武（兼任）

### a) 概要

ナノ加工室は、産研の有する各種ナノ加工装置およびナノ加工技術を相互に有効活用し、各分野の研究の推進を図るため 2005 年度発足した。微細加工の技術代行のほか、微細加工の応用に関心を持つ研究者にデバイスの開発・提供を行っている。

### b) 活動内容

2007 年度の始めに電子線リソグラフィーによってガラスマスクを作製する環境を整えた。これにより、2006 年度立ち上げた縮小撮影によるエマルジョンマスクと組み合わせて、フォトリソグラフィーで加工可能なオーダーをすべてカバーするガラスマスクを作製できるようになった。また、光硬化性のアクリル系樹脂を利用する光造形装置を購入した。これにより、従来の加工では不可能だった複雑な 3 次元加工が可能になった。

#### ・加工依頼

8 研究室から計 57 件の加工依頼があった。

#### ・「マイクロデバイス作製・応用実習会」の実施

微細加工を利用したオブジェ作製の実習会を主催した。1 日間の日程で 3 回実施し、計 11 名の参加者があった。

#### ・「nanotech 2008 国際ナノテクノロジー総合展・技術会議」への参加

2008 年 2 月 13 日～15 日に東京で行われた上記の展覧会において、産研ナノテクノロジーセンターのブースに出展した。

## 材料解析センター

センター長・教授	笹井 宏明（兼任）
准教授	鈴木 健之
助教	高井 嘉雄（兼任）
技術職員	山田 等（兼任）
	田中 高紀（兼任）
	松崎 剛（兼任）
事務補佐員	今井 珠沙世

### a) 概要

材料解析センターは、材料解析のための各種の分析および測定を行い、かつ、その周辺技術に関する研究を行うことを目的としている。産業科学研究所内研究部門のプロジェクト研究、基盤研究、および一般基礎研究などの遂行に当たり、当センター所属の分光分析機器、組成分析機器、状態分析機器類を用いる各種材料スペクトル測定、解析、評価などを通じて強力な研究支援活動を行っている。一方、これら分析装置類を駆使して新しい材料合成法の開発と応用に関する研究、新規機能性物質の構造解析などの研究活動を行っている。

### b) 成果

#### ・イリジウム触媒を用いる酸化反応の開発と応用

クリーンな酸化剤を用いる触媒反応の開発は最重要課題の一つである。また対称ジオールの非対称化はキラルビルディングブロックを合成する上で有効な手段である。今回、メソジオールの酸化的非対称化反応を用い、強力なチューブリン阻害活性を示す *ottelione* 類や *sphingomyelinase* 阻害活性を有する *scyphostatin* の鍵中間体の効率的な触媒的不斉合成法を開発した。本反応では適切な共酸化剤、塩基、保護基を選択することが収率、選択性の向上に重要であることがわかった。今後、*ottelione* や *scyphostatin* の類縁体合成にも適用することで構造活性相関研究の推進にもつながると期待される。

### [ 原著論文 ]

Design and Synthesis of Chiral Hybrid Spiro (isoxazole-isoxazoline) Ligands, Koranne, P. S.; Tsujihara, T.; Arai, M. A.; Bajracharya, G. B.; Suzuki, T.; Onitsuka, K.; Sasai, H.: *Tetrahedron: Asymmetry*, 18 (2007) 919-923.

Enantioselective Total Synthesis of (+)-Ottelione A, (-)-Ottelione B, (+)-3-epi-Ottelione A and Preliminary Evaluation of Their Antitumor Activity, Araki, H.; Inoue, M.; Suzuki, T.; Yamori, T.; Kohno, M.; Watanabe, K.; Abe, H.; Katoh, T.: *Chem. Eur. J.*, 13 (2007) 9866-9881.

Enantioselective Glyoxylate-ene Reaction using a Novel Spiro Bis(isoxazoline) Ligand in Copper Catalysis, Wakita, K.; Bajracharya, G. B.; Arai, M. A.; Takizawa, S.; Suzuki, T.; Sasai, H.: *Tetrahedron: Asymmetry*, 18 (2007) 372-376.

### [ 国際会議 ]

Development of Dendritic Artificial Enzymes with Catechol Oxidase Activity (poster), Doss Jayaprakash, Rashid N. Nadaf, Takahiro Kawase, Takeyuki Suzuki, Hiroaki Sasai: 12th Asian Chemical Congress.

Development of Dendritic Artificial Enzymes with Catechol Oxidase Activity (poster), Rashid Nabisaheb Nadaf, Takahiro Kawase, Doss Jayaprakash, Takeyuki Suzuki and Hiroaki Sasai: 2nd Aachen-Osaka Joint Symposium: Green Sustainable Biological and Chemical Processes.

Development of Dendritic Artificial Enzymes with Caetchol Oxidase Activity (poster), Doss Jayaprakash, Rashid N. Nadaf, Takahiro Kawase, Takeyuki Suzuki, Hiroaki Sasai: Chirality at the Nanoscale 2007.

[ 国内学会 ]

第 54 回有機金属化学討論会	1 件
第 87 回有機合成シンポジウム	1 件
日本化学会第 88 春季年会	3 件

[ 奨学寄附金 ]

鈴木 健之	(株) KRI	単位 : 千円
		300

# 新産業創造物質基盤技術研究センター

## 概要

本センター（略称：「物質基盤センター」）は平成17年4月1日に発足した研究センターであり、大阪大学産業科学研究所（産研）と東北大学多元物質科学研究所（多元研）との連携のもとに運営を行っている。産研と多元研の研究集団が、対企業での個別的及び学内連合の壁を超えた相補的連携を組んで、シーズに則ったニーズ指向研究開発を時限展開することにより、大学主導で、我が国に不可欠な新産業の創造に貢献することを目的として設立され、5年間のプロジェクト研究を展開している。

これまで、産研並びに多元研の両研究所においては、材料技術革新への貢献を目指した原子・分子単位でのハイブリッド化に関する材料科学分野、および健康で活力に溢れる人間生活を目指した生命科学・医療科学・医薬品科学分野に関する基礎・応用研究が進められ、独創的な学術・技術に関する研究成果を挙げて来ている。そこで、本センターでは、両研究所が共同で「新産業の基となる科学技術の発信」を目的として、産業界において直接的に経済的・社会的ニーズが高い研究分野においてプロジェクト研究を集中的に推進し、必要に応じて企業が参画するなど、附置研究所の連携による相乗効果を産業界にすばやく、かつ効率的に発信する社会還元機構の役割を果たすことを目指している。

下記の2つの研究プロジェクト（合計4研究グループ）において、それぞれに、両研究所から相補的な組み合わせの人員配置を行い、さらに企業からの研究者を加えて集中的な研究を進める体制としている。具体的には、両研究所にそれぞれのセンター長と、グループ長4名（以下は産研のグループ長を示す）を置き、各グループには兼任教授、特任教員、PDなどを配置している。

- ・センター長：中嶋英雄教授

- ・P1 材料基盤研究プロジェクト

- ・G1 ハード材料基盤研究グループ：グループ長：中嶋英雄教授

高次ナノ構造・組織・マクロ形態制御した構造材料および機能材料の創製、物性解明とその応用研究。ロータス型ポーラス材料の創製と物性、実用化、および異相界面ナノレベル制御による環境調和微細配線・接続技術の開発。

- ・G2 ソフト材料基盤研究グループ：グループ長：真嶋哲朗教授

光・電子機能、分子認識、触媒作用、高次構造、機能集積などの機能性分子の機能解明と、機能性有機分子、高分子、生体分子などの設計・合成・集合化・組織化、高機能分子材料の創製、その機能発現機構や作用機構の解明、高機能分子、多機能分子や分子材料の創製のプロセス開発などの産業応用化。

- ・P2 安全・安心ヒューマンインターフェース研究プロジェクト

- ・G3 医療基盤研究グループ：グループ長：山口明人教授

新規輸送蛋白質の同定とその機能解析に基づいたトランスポーターオリエンテッドな創薬のための基盤技術開発。がん治療を目指した次世代の強度変調放射線治療の実現のための加速器ビーム開発。

- ・G4 ヒューマンインターフェース研究グループ：グループ長：吉田博教授

人に優しい安全・安心技術へのパラダイムシフトにあわせた新産業の予測、環境・情報・バイオ技術の融合研究。バイオセンサー遠隔ヘルスケアシステム、ナノテク技術による高感度バイオデバイス、認知科学・機械学習技術を応用した総合評価システム、知識共有システムの開発。

## 成果

- ・高圧・暴爆性水素を用いない新しい蓮根型ポーラス金属の製法に関する研究
- ・異相界面ナノレベル制御による環境調和微細配線・接続技術の開発に関する研究
- ・新規ロータス型ポーラス材料創製技術の確立と表面加工による機能性付与に関する研究
- ・環境調和鉛フリー実装技術に関する研究
- ・レーザー機能化学とその応用に関する研究
- ・スピロ型キラル配位子の創製と応用に関する研究
- ・光機能性生体超分子の創成に関する研究

- ・不斉触媒反応による機能性キラルスピロ化合物の効率的創製に関する研究
- ・2色2レーザーを用いた三次元極微配線技術に関する研究
- ・異物排出タンパクの構造・機能・制御と生理的役割に関する研究
- ・放射線治療の新しい可能性の探索に関する研究
- ・新しい創薬の標的としての脂溶性細胞間情報伝達物質の輸送体の同定に関する研究
- ・新奇高機能強度変調放射線治療のための電子ビームの動的光変調に関する研究
- ・異物排出トランスポーターによる細胞機能制御の解明に関する研究
- ・産業構造の転換と新産業予測に関する研究
- ・安全・安心・創造的もの作り支援のための知識共有技術に関する研究
- ・センサデータに基づく音楽コンテンツ生成に関する研究
- ・細胞加工デバイス/研究実装プラットフォームロボットに関する研究
- ・産業構造の変化に伴う戦略的な新産業予測に関する研究
- ・AE法と機械学習による固体電池の健全性診断法に関する研究



# 材料基盤研究プロジェクト

## 概要

本研究プロジェクトは、金属・半導体・セラミックスを対象にするハード材料基盤研究グループと有機分子、高分子、生体分子を対象にするソフト材料基盤研究グループからなり、東北大学多元物質科学研究所、民間企業との共同研究を積極的に行っている。これからの高度化した材料の発展を支えるために、新しい機能を持つ新材料の創製および機能解明が不可欠である。ハード材料基盤研究グループでは、組織・形態制御したポーラス材料の製造プロセスの開発と物性解明、実用化研究、および異相界面ナノレベル制御による環境調和微細配線・接続技術の開発を行い、ソフト材料基盤研究グループでは、光・電子機能、分子認識、触媒作用、高次構造、機能集積などの機能性分子の機能解明に基づいて、機能性有機分子、高分子、生体分子などの設計・合成・集合化・組織化を達成し、新しい機能性分子材料に関する研究を行う。

## 成果

- ・ 高圧・暴爆性水素を用いない新しい蓮根型ポーラス金属の製法に関する研究
- ・ 異相界面ナノレベル制御による環境調和微細配線・接続技術の開発に関する研究
- ・ 新規ロータス型ポーラス材料創製技術の確立と表面加工による機能性付与に関する研究
- ・ 環境調和鉛フリー実装技術に関する研究
- ・ レーザー機能化学とその応用に関する研究
- ・ スピロ型キラル配位子の創製と応用に関する研究
- ・ 光機能性生体超分子の創成に関する研究
- ・ 不斉触媒反応による機能性キラルスピロ化合物の効率的創製に関する研究
- ・ 2色2レーザーを用いた三次元極微配線技術に関する研究

## ハード材料基盤研究グループ

教授（兼任） 中嶋 英雄、菅沼 克昭  
特任准教授 上野 俊吉  
特任助教 金 権銖（平成 19 年 10 月 15 日退職）  
大学院学生 河染 満

### a) 概要

高次ナノ構造・組織・マクロ形態を制御した構造材料および機能材料の創製、物性解明とその応用研究を行っている。具体的には、ロータス型ポーラス材料の創製と物性研究、実用化研究、および異相界面ナノレベル制御による環境調和微細配線・接合技術の開発を行っている。

ロータス型ポーラス材料は、孔の向きのそろったレンコン状のポーラス金属である。孔のサイズは $1\mu\text{m}$ から $10\text{mm}$ の大きさで孔の空隙率は最大 $80\%$ 程度である。また、高強度材料の軽量化、孔や表面を利用した機能性材料などへの広範な用途が期待される。今年度は、高圧・暴爆性水素を用いない新しいロータス型ポーラス金属の製法を確立するとともに、新規ロータス型ポーラスセラミックスの開発を行なった。また、東北大学多元物質科学研究所との共同研究開発により、ロータス型ポーラス金属の気孔形成機構を重畳磁場環境下において調べ、超音波を利用したコーティング法による耐食性皮膜に関して研究を進めた。

新世代の各種情報機器あるいは車載機器では、高信頼性や高速化などに対応する微細な異相界面形成技術が求められる。それら異相界面形成においてナノレベルで生じる諸反応を解析し、その理想的な構造や制御技術を確認し、新たな産業技術の形成へ結びつけることを目的とし、ナノペースト・オンデマンド配線技術の開発と環境調和鉛フリー実装技術の開発を行った。

### b) 成果

#### ・高圧・暴爆性水素を用いない新しいロータス型ポーラス金属の製法の確立

高圧・暴爆性水素を用いない新しいロータス型ポーラス金属の製法を世界に先駆けて発明した。新製法は、ガスを発生する化合物粉末を $1$ 気圧のアルゴン雰囲気中や大気中で熔融金属に添加して凝固させる方法で、高圧容器も水素ガスも不要であり、安全・簡単・安価なロータス型ポーラス金属の製造方法である。金属溶湯に均一分散した化合物は、気泡の生成核になるため、緻密で均一な気孔を形成させることができる。作製装置のコストは、高圧容器を用いる従来の装置と比較して $1/10$ 以下に抑えることができるので、実用化が国内外で急速に発展すると期待される。

#### ・新規ロータス型ポーラスセラミックスの開発

$10\%H_2-90\%Ar$ の低い水素分圧下で気孔率が $30\%$ のロータス型ポーラススピネルを作製した。アルミナの溶解原料にシリカやマグネシアを添加すると、得られる凝固材の気孔率が大幅に増加することを明らかにした。添加するマグネシアとアルミナの比を $1:1$ にすると、 $1\%H_2-99\%Ar$ の低い水素分圧下でも $10\%$ ほどの気孔率を有するロータス型ポーラススピネルを作製することができる。水素分圧の増加とともに気孔率は増大し、 $10\%H_2-90\%Ar$ の雰囲気下では $30\%$ の気孔率を有するロータス型ポーラススピネルが得られる。

#### ・ナノペースト・オンデマンド配線技術の開発

インクジェットなど配線技術での利用が期待される金属ナノ粒子ペーストは、加熱処理によってナノ粒子から分散剤などが剥離、蒸発し、活性な金属ナノ粒子は焼結する。金属ナノ粒子ペーストの中で最も有望な銀ペーストの場合、現状では $150^\circ\text{C}$ 以上での焼成処理が必要である。回路形成基材に用紙やPETフィルムを想定した場合、 $150^\circ\text{C}$ 以上の温度で長時間の焼成には、基材に不良が起こる可能性が高い。そこで、菅沼研開発の低温焼成銀塩技術を用い、紙上への回路形成を実現することを目的とし、本

年度は、インクジェット及びオフセット印刷用 $\beta$ -ケトカルボン酸銀塩ペーストを用いて用紙上に電子回路を形成し、デバイス（ICやLED等）内蔵したサンプル作製に成功した。

・環境調和鉛フリー実装技術の完遂

錫ウイスカは、はんだの鉛フリー化とともに電子機器の信頼性を低下させる大きな問題として浮上している。ますます高密度化が進む実装部品にとり、錫ウイスカ発生は深刻な問題となる。そこで、錫ウイスカの発生メカニズム解明からウイスカ抑制策に取り組んでいる。本年度は、錫めつき表面にAuやPdの薄めつき処理を施すことで、完全ウイスカ抑制に成功した。微細組織の解明から、抑制効果決定へ向けて活動している。

[ 原著論文 ]

**Fabrication of Lotus-type Porous Metals by Continuous Zone Melting and Continuous Casting Techniques, \*H. Nakajima, S.K. Hyun, S.K. Park and M. Tane: Materials. Science Forum, 539-543 (2007) 187-192.**

**Lotus-Type Porous Nickel-free Stainless Steel with High Temperature Nitriding, \* K. Alvarez, S.K. Hyun and H. Nakajima: Materials. Science Forum, 539-543 (2007) 756-76.**

**Fabrication of Lotus-type Porous Copper-Aluminum Alloy by Unidirectional Solidification in Hydrogen Atmosphere, \*S.K. Hyun, T. Awadu, T. Ikeda and H. Nakajima: Materials. Science Forum, 539-543 (2007) 1898-1902.**

**Fabrication of Lotus-type Porous Ni-(15, 28 and 31) at.% Al Alloys by Unidirectional Solidification in Hydrogen Atmosphere, \*S.K. Hyun, T. Ikeda and H. Nakajima: Materials. Science Forum, 544-545 (2007) 323-32.**

**Pore Morphology of Lotus-Type Porous Copper Fabricated by Continuous Casting Technique, \*J.S. Park, S.K. Hyun, M. Tane and H. Nakajima: Solid State Phenomena, 124-126 (2007) 1725-1728.**

**Prediction of Laser Fusion Zone Profile lotus-type Porous Metals by 3D Heat Transfer Analysis, \*T. Tsumura, F. Ye, T. Murakami, H. Nakajima and K. Nakat: Solid State Phemonena, 127 (2007) 307-312.**

**Properties and Application of Porous Metals with Directional Pores, \*H. Nakajima: Progress in Materials Science, 52 (7) (2007) 1091-1173.**

**Three-dimensinal Image-based Modeling of Lotus-type Porous Carbon Steel and Simulation of its Mechanical Behavior by Finite Element Method, \*T. Kujime, M. Tane, S.K. Hyun and H. Nakajima: Materials Science and Engineering A, 460-461 (2007) 220-226.**

**Anisotropic Fusion Profile and Joint Strength of Lotus-type Porous Magnesium by Laser Fusion, \* T. Murakami, T. Tsumura, T. Ikeda, H. Nakajima and K. Nakata: Materials Science and Engineering A, 456 (2007) 278-285.**

**Effect of transference velocity and hydrogen pressure on porosity and pore morphology of lotus-type porous copper fabricated by continuous casting technique, \*J.S.Park, S.K.Hyun, S.Suzuki and H.Nakajima: Acta Materialia, 55 (16) (2007) 5646-5654.**

ロータス型ポーラス鉄のレーザ溶接, \*柳野博泰, 津村卓也, 中嶋英雄, 玄丞均, 中田一博: 日本金属学会誌, 71 (10) (2007) 896-900.

連続鋳造法によるロータス型ポーラス銅の作製, \*朴宰成, 玄丞均, 鈴木進補, 中嶋英雄: 銅と銅合金, **46 (1) (2007) 270-273.**

窒素ガスを用いた一方向凝固によるロータス型ポーラス炭素鋼の作製と機械的性質, \*檜原一, 米谷周, 小尾孝宏, 玄丞均, 鈴木進補, 中嶋英雄: 鉄と鋼, **94 (1) (2008) 30-34.**

**Fabrication and Properties of Lotus-type Porous Nickel-free Stainless Steel with High Temperature Nitriding, \*K. Alvarez, K. Sato, S.K. Hyun, and H. Nakajima: Materials Science and Engineering C, 28 (1) (2008) 44-50.**

**Corrosion behaviour of Lotus-type porous high nitrogen nickel-free stainless steels, \*K. Alvarez, S.K. Hyun, H. Tsuchiya, S. Fujimoto and H. Nakajima: Corrosion Science, 50 (1) (2008) 183-193.**

**Steady State Comparative-longitudinal Heat Flow Method Using Specimen of Different Thicknesses for Measuring Thermal Conductivity of Lotus-type Porous Metals, \*H. Chiba, T. Ogushi, H. Nakajima, K. Torii, T. Tomimura, and F. Ono: Journal of Applied Physics, 103 (1) (2008) 013515(9pages).**

**Dissolution of copper on Sn-Ag-Cu system lead free solder, \*G. Izuta, T. Tanabe, K. Suganuma: Soldering & Surface Mount Technology, 19 (2) (2007) 4-11..**

**Studies on solder bump electromigration in Cu/Sn-3Ag-0.5Cu/Cu system, \*K. Yamanaka, Y. Tsukada, K. Suganuma: Microelectronics Reliability, 47 (8) (2007) 1280-1287.**

**Solder electromigration in Cu/In/Cu flip chip joint system, \*K. Yamanaka, Y. Tsukada, K. Suganuma: J. Alloys and Compounds, 437 (1-2.) (2007) 186-190.**

**Sn-Zn low temperature solder, \*K. Suganuma, K.S. Kim: J. Materials Science: Materials in Electronics, 18 (1-3.) (2007) 121-127.**

**Microstructure development of mechanical-deformation-induced Sn whiskers, \*S. K. Lin, Y. Yorikado, J. Jiang, K.S. Kim, K. Suganuma, S.W. Chen, M. Tsujimoto, I. Yanada: J. Electronic Mater., 36 (12) (2007) 1732-1734.**

**Mechanical deformation-induced Sn whiskers growth on electroplated films in the advanced flexible electronic packaging, \*S.K. Lin, Y. Yorikado, J. Jiang, K.S. Kim, K. Suganuma, S.W. Chen, M. Tsujimoto, I. Yanada: J. Materials Research, 22 (7) (2007) 1975-1986.**

**Corrosion and Recession Behavior of Zircon in Water Vapor Environment at High Temperature, \*S. Ueno, T. Ohji and H.T. Lin: Corrosion Science, 49 (3) (2007) 1162-1171.**

**Recession Behavior of a Silicon Nitride with Multi-layered Environmental Barrier Coating System, \*S. Ueno, T. Ohji and H.T. Lin: Ceramics International, 33 (5) (2007) 859-862.**

**Internal friction behavior of an Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/YAG eutectic at high temperatures, \*S. Takata, S. Ueno, Y. Tanabe, T. Akatsu, E. Yasuda and Y. Waku: Ceramics International, 33 (8) (2007) 1569-1571.**

**Corrosion and recession of mullite in water vapor environment, \*S. Ueno, T. Ohji and H.T. Lin: J. European Ceramics Society, 28 (2) (2008) 432-435.**

**Recession behavior of Yb<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>7</sub> under high speed steam jet at high temperatures, \*S. Ueno, T. Ohji and H.T. Lin: Corrosion Science, 50 (1) (2008) 178-182.**

Effect of Impurities on Formation of Pores in Porous Alumina during Unidirectional Solidification, \*S. Ueno, L.M. Lin and H. Nakajima: Materials Science Forum, 569 (2008) 313-316.

Effects of Impurities on Formation Pores during Solidification for Porous Alumina and Its Compressive Strength, \*S. Ueno, L.M. Lin and H. Nakajima: J. Ceramics Society of Japan, 116 (1) (2008) 137-140.

Formation Mechanism of Porous Alumina with Oriented Cylindrical Pores Fabricated by Unidirectional Solidification, \*S. Ueno, L.M. Lin and H. Nakajima: J. American Ceramics Society, 91 (1) (2008) 223-226.

Properties of low temperature Sn-Ag-Bi-In solder systems, \*K.S. Kim, T. Imanishi, K. Sugauma, M. Ueshima, R. Kato: Microelectronics Reliability, 47 (7) (2007) 1113-1119.

### [ 解説、総説 ]

ロータス型ポーラスアルミナの形成機構と気孔形成に及ぼす不純物の添加効果、上野俊吉、林礼明、中嶋英雄、高温学会誌、34[2] (2008) 51-55

連続鋳造法によるロータス型ポーラス金属の作製、鈴木進補、朴 宰成、玄 丞均、金 相烈、檜原 一、米谷 周、中嶋英雄、高温学会誌、34[2] (2008) 38-44

RoHS 規制発効後の課題と対策—さらに浮上する技術課題、深刻なすずウイスカ問題への対応—、菅沼克昭、工業材料、55[2] (2007) 30-38

エレクトロニクス機器と自動車に対する世界の環境規制、菅沼 克昭、軽金属、57[5] (2007) 210-217

すずウイスカ発生のメカニズムと対策の現状、菅沼 克昭、Uyemura Technical Reports、62 (2007) 3-15

### [ 著書 ]

「多孔体の精密制御と機能・物性評価 (分筆)」、ロータス型ポーラス金属の作製と特性、中嶋 英雄、サイエンス&テクノロジー、(2008) 53-62

「Cellular and Porous Materials: Thermal Properties Simulation and Prediction (分筆)」、Thermal property of lotus-type porous copper and application to heat sinks、T. Ogushi, H. Chiba, M. Tane and H. Nakajima、WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA、(2008) 239-265

「インクジェットプリンターの応用と材料 II (分筆)」、第 17 章 インクジェット技術による金属ナノ粒子インク配線、菅沼 克昭、和久田 大介、金 権銖、シーエムシー出版、(2007) 209-218

「鉛フリーはんだ技術・材料 ハンドブック (編著)」、菅沼 克昭、工業調査会、(2007)

### [ 特許 ]

「皮膜形成用組成物及びその利用」、中嶋英雄、上野俊吉、葛西栄輝、林直人、特願 2007-077132

他、国内出願 3 件

[ 国際会議 ]

Mechanical Properties of Lotus-type Porous Metals (invited), \*H. Nakajima, M. Tane, S.K. Hyun, H. Seki: International Union of Theoretical and Applied Mechanics (IUTAM) Symposium on Mechanical Properties of Cellular Materials.

New Fabrication Method for Lotus-Type Porous Metals and its Application (invited), \*H. Nakajima: 5th International Conference of Porous Metals and Metallic Foams (MetFoam2007).

Electrochemical Behavior of High Nitrogen Ni-free Austenitic Stainless Steels in L929 and Cell Culture Medium, \*K. Alvarez, S.K. Hyun, H. Nakajima, and S. Fujimoto: 211th Meeting of The Electrochemical Society.

Fabrication and Plastic Deformation Process of Lotus-type Porous Metals, \*S. Suzuki, J.-S. Park, S.K. Hyun, H. Utsunomiya, and H. Nakajima: International Workshop for R&D Clustering among China, Japan, Korea in Eco-materials Processing.

Fabrication of Lotus-type Porous Carbon-steel by Continuous Casting Technique in Nitrogen Atmosphere, \*K. Kashihara, S. Suzuki, S.K. Hyun, H. Yonetani, and H. Nakajima: 5th International Conference of Porous Metals and Metallic Foams (MetFoam2007).

Fabrication of Lotus-type Porous Magnesium by Continuous Casting Technique (poster), \*S.K. Hyun, S. Suzuki, and H. Nakajima: 5th International Conference of Porous Metals and Metallic Foams (MetFoam2007).

Plasma Braze Welding of Lotus-type Porous Copper (poster), \*T. Tsumura, H. Yanagino, S.K. Hyun, H. Nakajima, and K. Nakata: 5th International Conference of Porous Metals and Metallic Foams (MetFoam2007).

Impact Properties of Lotus-type Porous Carbon Steel Measured by Instrumented Charpy Testing (poster), \*T. Kujime, S. K. Hyun, and H. Nakajima: 5th International Conference of Porous Metals and Metallic Foams (MetFoam2007).

Fabrication of Lotus-type Porous Al-Si by Continuous Casting Technique (poster), \*J.S. Park, S.K. Hyun, S. Suzuki, and H. Nakajima: 5th International Conference of Porous Metals and Metallic Foams (MetFoam2007).

Application of Lotus Type Porous Metal for an Air Bearing Spindle System (poster), \*Um, Y.S., Park, S.H., Nakajima, H., Yoon, J.H., Hur, B.Y.: 5th International Conference of Porous Metals and Metallic Foams (MetFoam2007).

Prevention of Sn Whisker Formation by Surface Treatment of Sn Plating Part 2, \*K.S. Kim, S.S. Kim, S.K. Kim, K. Suganuma, M. Tsujimoto, I. Yanadaa: 137th TMS Annual Meeting & Exhibition.

Sn-Ag-Cu soldering reliability influenced by process atmosphere, \*A. Baated, J. Jiang, K.S. Kim, K. Suganuma, S. Huang, B. Jurcik, S. Nozawa, M. Ueshima: 9th International IEEE CPMT Symposium on High Density Design, Packaging and Microsystem Integration (HDP' 07).

Evolution of Cu<sub>2</sub>O Micro/Nano-Protrusions on the Inner Wall of Lotus Copper by Ar Ion Irradiation (poster), \*S. Tukuda, S. Ueno, H. Nakajima, S. Tanaka: 7th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology.

Fabrication of Lotus-type Porous Alumina with High Compressive Strength Using Unidirectional Solidification (poster), \*L.M. Lin, S. Ueno, H. Nakajima: 5th International Conference of Porous Metals and Metallic Foams

(MetFoam2007).

Effect of Molten Temperature on the Formation of Lotus-type Porous Silicon during Unidirectional Solidification (poster), \*S. Ueno, S.Y. Kim, H. Nakajima: 5th International Conference of Porous Metals and Metallic Foams (MetFoam2007).

Hot Corrosion Resistance of Stainless Steel with LaPO<sub>4</sub> Environmental Barrier Coating (poster), \*S. Ueno, H. Nakajima, N. Hayashi and E. Kasai: 1st International Conference on Science and Technology for Advanced Ceramics.

Hot Corrosion Resistance of Stainless Steel with LaPO<sub>4</sub> Coating (poster), \*S. Ueno, H. Nakajima, N. Hayashi, S. Romankov, S. Komarov and E. Kasai: 11th Sanken International Symposium.

Effect of Impurities on Formation of Pores in Porous Alumina during Unidirectional Solidification, \*S. Ueno, L.M. Lin and H. Nakajima: 9th International Symposium on Ecomaterials Processing & Design.

#### [ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

中嶋 英雄	Fifth International Conference on Porous Metals and Metal Foaming Technology (MetFoam2007) (組織委員会委員)
中嶋 英雄	High Temperature Materials and Progress (国際編集委員)
中嶋 英雄	High Temperature Materials and Progress (ゲストエディター)
中嶋 英雄	Advanced Engineering Materials (ゲストエディター)
中嶋 英雄	Materials Transactions (ゲストエディター)
中嶋 英雄	Diffusion and Defect Data (編集顧問)
中嶋 英雄	Materials Science Foundations (編集顧問)
中嶋 英雄	Fifth Pacific Rim International Conference on Materials (PRICM-5) (組織委員会委員)
中嶋 英雄	International Conference on New Frontiers of Process Science and Engineering in Advanced Materials (組織委員会委員)
中嶋 英雄	4 <sup>th</sup> International Conference on Diffusion in Solids and Liquids (名誉組織委員会委員長)
中嶋 英雄	International Conference on Eco-Materials Processing and Design VIII (国際顧問)
中嶋 英雄	International Conference on Diffusion in Materials (国際顧問)
中嶋 英雄	2nd International Symposium on Cellular Metals for Structural and Functional Applications (プログラム委員会委員)
中嶋 英雄	International Conference on Advanced Structural Functional Materials Design (組織委員会委員)
中嶋 英雄	First International Conference on Light Alloy technology and Application (組織委員会委員)
中嶋 英雄	THERMEC International Conference on Advanced Materials (国際顧問)
菅沼 克昭	TMS Annual Meeting (組織委員)
菅沼 克昭	Electronic Components and Technology Conference (ECTC) (組織委員)

#### [ 国内学会 ]

エレクトロニクス実装学会	5 件
日本金属学会	15 件
高温学会	1 件
日本伝熱学会	1 件

### [ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

基盤研究 (C)

上野 俊吉	高次構造制御酸化物多孔体の生成メカニズム解明と触媒担体としての応用	650
-------	-----------------------------------	-----

### [ 受託研究 ]

菅沼 克昭	電子情報技術産業協会	電子実装の信頼性向上のためのウイスカ防止技術の開発	5,235
-------	------------	---------------------------	-------

### [ 奨学寄附金 ]

金 権鉄	銅及び銅合金技術研究会	200
------	-------------	-----

### [ 共同研究 ]

菅沼 克昭	大阪産業振興機構	低温焼成金属ナノ粒子を用いた電子情報媒体の開発	25,747
-------	----------	-------------------------	--------



## ソフト材料基盤研究グループ

教授（兼任） 真嶋 哲朗（グループ長）、笹井 宏明  
特任准教授 遠藤 政幸  
特任助教 坂本 雅典、竹中 和浩

### a) 概要

光・電子機能、分子認識、触媒作用、高次構造、機能集積などの機能性分子の機能解明に基づいて、機能性有機分子、高分子、生体分子などの設計・合成・集合化・組織化を達成し、新しい機能性分子材料に関する研究を行う。

### b) 成果

#### ・機能性生体分子ナノスケール材料の創製

DNA 及びタンパクをフレームとしてクロモフォアを配置し、自己集合による規則的な集積と配列特異的かつ導入位置特異的なクロモフォア間の相互作用を検討した。具体的には、架橋型 DNA と DNA タイルをビルディングブロックとして用い、ナノ構造の構築とマイクロメーターまで伸張した制御されたメゾスコピック構造の構築に成功した。また、生体超分子タバコモザイクウイルス (TMV) をフレームとして、自己集合により光機能性分子ポルフィリンの規則的な集積を行い、その配置とエネルギー移動を検討した。これらのナノスケールの有用な機能性材料を開発し、超分子集合したときの構造、光物性、及び光応答性の制御から、光機能性材料としての光化学的及び電気化学的特性を検討した。

#### ・光化学反応法による金属ナノ粒子の創製

高分子マトリクス中において光化学的手法を用いて様々な金属ナノ粒子を作成し、形成されたナノ粒子の評価を行った。ポリビニルアルコール中に置いて金イオンと銅イオンをケチルラジカルにより還元した場合、コア・シェル構造の金属ナノ粒子が形成されることを発見した。これに対し、金イオンとニッケルイオンを共存させた系に置いて同様の実験を行った結果、ニッケルイオンは還元されず金ナノ粒子の表面に吸着することがわかった。

#### ・新規多機能不斉有機分子触媒の開発

キラルスピロビスイソオキサゾリン-パラジウム錯体触媒による新規不斉酸化的環化反応：独自に開発したキラルスピロビスイソオキサゾリン配位子を有するパラジウム二価錯体が、 $\beta$ 、 $\gamma$ -不飽和カルボン酸ならびに $\beta$ 、 $\gamma$ -不飽和アミドの不斉酸化的環化反応において高い触媒活性と中程度のエナンチオ選択性を示し、生理活性物質の合成中間体として有用な $\gamma$ -ブテノリド類や2-ピロリノン誘導体の実用的合成に有効であることを明らかにした。

ハイブリッド型キラルスピロ配位子の効率的調製法の開発：パラジウム触媒によるカップリング反応を機軸としたハイブリッド型キラルスピロイソオキサゾール-イソオキサゾリン配位子の効率的合成法を開発した。イソオキサゾール環の5位にブロモ基を導入した鍵中間体を設計・合成しカップリング反応による変換を可能とすることで、多種多様な新規キラルスピロ型配位子が簡便に得られた。本法を用いた迅速な配位子スクリーニングは、パラジウム二価錯体触媒による不斉ワッカー型環化反応において、低温下でも触媒活性を損なわず高い選択性を示す配位子の開発へと繋がった。

不斉合成による新規キラルスピロ型配位子の実用的合成：不斉合成を利用した新規キラルスピロビスイソオキサゾリン配位子の実用的合成法を開発した。別途調製した光学活性なアルコールとマロン酸ジエステルから常法により鍵中間体となるジオキシムを合成した後、ジアステレオ選択的ダブルニトリルオキシド環化付加反応を行うことで目的とする光学活性スピロビスイソオキサゾリン配位子の合成に

成功した。

不斉遷移金属触媒反応を活用した効率的キラルスピロ骨格構築法の開発：分子内ダブル **Buchwald-Hartwig** 反応を活用したスピロビラクタムの不斉合成法の開発を行った。バルビツル酸から容易に調製できる **2,2**-ビス(2-プロモベンジル)マロナミド誘導体を基質に用い、パラジウム触媒存在下種々の不斉配位子を検討することで、目的とする **3,4**-ジヒドロキノリノン骨格を有するスピロ化合物のエナンチオ選択的合成に成功した。さらに、生成物の誘導体化による不斉触媒反応への応用に即した化合物群の創製も試み、求電子芳香族ブロモ化、ヒドリド還元など通常の有機合成手法により、スピロビス (**1,2,3,4**-テトラヒドロキノリン) 骨格を有する相間移動触媒へと導いた。

## [ 原著論文 ]

Single-Molecule Observation of DNA Charge Transfer, T. Takada, M. Fujitsuka, and T. Majima: Proc. Nat. Acad. Sci. USA, 104 (27) (2007) 11179-11183.

Intermolecular Electron Transfer from Excited Benzophenone Ketyl Radical, M. Sakamoto, X. Cai, S. S. Kim, M. Fujitsuka, and T. Majima: J. Phys. Chem. A, 111 (2) (2007) 223-229.

One-Electron Oxidation of Alcohols by the 1,3,5-Trimethoxybenzene Radical Cation in the Excited State during Two-Color Two-Laser Flash Photolysis, X. Cai, M. Sakamoto, M. Fujitsuka, and T. Majima: J. Phys. Chem. A, 111 (10) (2007) 1788-1791.

Bimolecular Hole Transfer from the Trimethoxybenzene Radical Cation in the Excited State, X. Cai, M. Fujitsuka, and T. Majima: J. Phys. Chem. A, 111 (22) (2007) 4743-4747.

Intramolecular Triplet Energy Transfer via Higher Triplet Excited State during Stepwise Two-color Two-laser Irradiation, Y. Oseki, M. Fujitsuka, M. Sakamoto, A. Sugimoto, and T. Majima: J. Phys. Chem. A, 111 (39) (2007) 9781-9788.

Electron Transfer from Axial Ligand to  $S_1$ - and  $S_2$ -Excited Phosphoros Tetraphenylporphyrin, M. Fujitsuka, D. W. Cho, S. Tojo, A. Inoue, T. Shiragami, M. Yasuda, and T. Majima: J. Phys. Chem. A, 111 (42) (2007) 10574-10579.

Electron Transfer from  $S_2$  and  $S_1$  States of Pentacoordinated Tetrapyrrole Macrocycles to Pyromellitic Diimide as an Axial Ligand, K. Harada, M. Fujitsuka, A. Sugimoto, and T. Majima: J. Phys. Chem. A, 111 (45) (2007) 11430-11436.

Hole Transfer in DNA and Photosensitized DNA Damage: Importance of Adenine Oxidation, K. Kawai, Y. Osakada, M. Fujitsuka, and T. Majima: J. Phys. Chem. B, 111 (9) (2007) 2322-2326.

Energy Levels of Oligothiophenes in the Higher Excited Triplet States, Y. Oseki, M. Fujitsuka, M. Sakamoto, X. Cai, and T. Majima: J. Phys. Chem. C, 111 (2) (2007) 1024-1028.

Fluorescence Properties of Si-linked Oligothiophenes, M. Fujitsuka, D. W. Cho, J. Ohishita, A. Kunai, and T. Majima: J. Phys. Chem. C, 111 (5) (2007) 1993-1998.

Design of Cyclic Reaction Driven by Two-Color Two-Photon Excitation, M. Sakamoto, S. S. Kim, M. Fujitsuka, and T. Majima: J. Phys. Chem. C (Lett.), 111 (19) (2007) 6917-6919.

Correction to "Acceleration and Deceleration of Laser Induced Formation of Gold Nanoparticles in a PVA Film", M. Sakamoto, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima: Langmuir, 23 (14) (2007) 7886-7886.

Donor-Acceptor Substituted Tetrakis(phenylethynyl)benzenes as Emissive Molecules during Pulse Radiolysis in Benzene, S. Samori, S. Tojo, M. Fujitsuka, E. L. Spitler, M. M. Haley, and T. Majima: *J. Org. Chem.*, 72 (8) (2007) 2785-2793.

Relationship between Charge Transfer and Charge Recombination Determines Photocurrent Efficiency through DNA Films, T. Takada, C. Lin, and T. Majima: *Angew. Chem. Int. Ed.*, 46 (35) (2007) 6681-6683.

Hole transfer rates in A-from DNA/2'-OMeRNA hybrid, K. Kawai, Y. Osakada, A. Sugimoto, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Chem. Eur. J.*, 13 (8) (2007) 2386-2391.

C-O-bond cleavage of esters with a naphthyl group in the higher triplet excited state during two-color two-laser flash photolysis, X. Cai, M. Sakamoto, M. Yamaji, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Chem. Eur. J.*, 13 (11) (2007) 3143-3149.

Porphyrin Light-Harvesting System Constructed in the Tobacco Mosaic Virus Scaffold, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Chem. Eur. J.*, 13 (31) (2007) 8660-8666.

Photochemical Formation of Au/Cu Bimetallic Nanoparticles with Different Shapes and Sizes in a PVA Film, M. Sakamoto, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Adv. Funct. Mater.*, 17 (6) (2007) 857-862.

Spin-correlated radical pairs in the synthetic hairpin DNA, S. Nakajima, K. Akiyama, K. Kawai, T. Takada, T. Ikoma, T. Majima, and S. Tero-Kubota: *ChemPhysChem*, 8 (4) (2007) 507-509.

Fabrication of Chromophore-Functionalized Gold Nanoparticles-Poly(Vinyl alcohol) Thin Film Nanocomposite: New Coordination Method using the Ni(II)-Nitrilotriacetic acid Complex Formation, M. Sakamoto, T. Tachikawa, Sung Sik Kim, M. Fujitsuka, and T. Majima: *ChemPhysChem*, 8 (11) (2007) 1701-1706.

Errata to "Two-color Two-laser Fabrication of Gold Nanoparticles in a PVA Film", M. Sakamoto, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Chem. Phys. Lett.*, 442 (1-3) (2007) 170.

The C-O bond dissociation of naphthoxymethyl compounds in the higher triplet excited state using two-color two-laser flash photolysis, X. Cai, M. Yamaji, M. Sakamoto, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Chem. Phys. Lett.*, 443 (4-6) (2007) 248-252.

Nanoscale Heterogeneities in Adsorption and Electron Transfer Processes of Perylene Diimide Dye on TiO<sub>2</sub> Nanoparticles Studied by Single-Molecule Fluorescence Spectroscopy, T. Tachikawa, S.-C. Cui, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Chem. Phys. Lett.*, 443 (4-6) (2007) 313-318.

Monitoring G-Quadruplex Structures and G-Quadruplex-ligand Complex by 2-Aminopurine Modified Oligonucleotide, T. Kimura, K. Kawai, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Tetrahedron*, 63 (17) (2007) 3585-3590.

S<sub>2</sub>- and S<sub>1</sub>-States Properties of Zinc Porphyrin Polypeptides, M. Fujitsuka, D. W. Cho, N. Solladie, V. Troiani, H. Qiu, and T. Majima: *J. Photochem. Photobiol. A*, 188 (2-3) (2007) 346-350.

Intermolecular Exciplex Formation and Intramolecular Electron Transfer during Photoirradiation of 1,8-Naphthalimide-linker-phenothiazine Dyads in Methylated Benzenes, D. W. Cho, M. Fujitsuka, U. C. Yoon, and T. Majima: *J. Photochem. Photobiol. A*, 190 (1) (2007) 101-109.

Monitoring of Three Distinct Structures of Restriction Enzyme Complexes Using Characteristic Fluorescence from Site-selectively Incorporated Solvatochromic Probe, K. Nakayama, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Photochem. Photobiol. Sci.*, 6 (2007) 836-841.

Reversible Intramolecular Triplet-Triplet Energy Transfer in Benzophenone-N-Methylphthalimide Dyad Aprotic Polar and Protic Polar Solvents, M. Sakamoto, S. S. Kim, M. Fujitsuka, and T. Majima: *J. Phys. Chem. A*, 112 (7) (2008) 1403-1407.

Charge Separation in Acridine- and Phenothiazine-Modified DNA, K. Kawai, Y. Osakada, M. Fujitsuka, and T. Majima: *J. Phys. Chem. B*, 112 (7) (2008) 2144-2149.

Real-Time Single-Molecule Imaging of the Spatial and Temporal Distribution of Reactive Oxygen Species with Fluorescent Probes: Applications to TiO<sub>2</sub> Photocatalysts, K. Naito, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima: *J. Phys. Chem. C*, 112 (4) (2008) 1048-1059.

Protein Recording Material: Photo-Record/Erasable Protein Array Using a UV-Eliminative Linker, K. Nakayama, T. Tachikawa, and T. Majima: *Langmuir (Letter)*, 24 (5) (2008) 1625-1628.

Diastereochemically Controlled Porphyrin Dimer Formation on a DNA Duplex Scaffold, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima: *J. Org. Chem.*, 73 (3) (2008) 1106-1112.

Three-Dimensional Writing of Copper Nanoparticles in a Polymer Matrix with Two-Colour Two-Laser, M. Sakamoto, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima: *J. Org. Chem.*, 73 (9) (2008) 3551-3558.

Photocatalytic Cleavage of Single TiO<sub>2</sub>/DNA Nanoconjugates, T. Tachikawa, Y. Asanoi, K. Kawai, S. Tojo, A. Sugimoto, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Chem. Eur. J.*, 14 (5) (2008) 1492-1498.

Mechanism of Charge-Separation in DNA via Hole Transfer through Consecutive Adenines, K. Kawai, Y. Osakada, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Chem. Eur. J.*, 14 (12) (2008) 3721-3726.

Conformational regulation of porphyrin dimers on geometric scaffold of duplex DNA, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima: *Tetrahedron*, 64 (8) (2008) 1839-1846.

Development of New Methods towards Efficient Immobilization of Enantioselective Catalysts, S. Takizawa, M. L. Patil, K. Marubayashi, H. Sasai: *Tetrahedron*, 63 (28) (2007) 6512-6528.

Design and Synthesis of Chiral Hybrid Spiro (isoxazole-isoxazoline) Ligands, P. S. Koranne, T. Tsujihara, M. A. Arai, G. B. Bajracharya, T. Suzuki, K. Onitsuka, H. Sasai: *Tetrahedron: Asymmetry*, 18 (8) (2007) 919-923.

Enantioselective Glyoxylate-ene Reaction using a Novel Spiro Bis(isoxazoline) Ligand in Copper Catalysis, K. Wakita, G. B. Bajracharya, M. A. Arai, S. Takizawa, T. Suzuki, H. Sasai: *Tetrahedron: Asymmetry*, 18 (3) (2007) 372-376.

Optical Resolution of Tetra Isopropyl-substituted Spiro Bis(isoxazoline) i-Pr-SPRIX, S. Takizawa, J. Yogo, T. Tsujihara, K. Onitsuka, H. Sasai: *J. Organomet. Chem.*, 692 (1-3) (2007) 495-498.

Novel Azalides Derived from Sixteen-membered Macrolides. I. Isolation of the Mobile Dialdehyde and its One-pot Macrocyclization with an Amine, T. Miura, S. Natsume, K. Kanemoto, K. Atsumi, H. Fushimi, H. Sasai, T. Arai, T. Yoshida, K. Ajito: *J. Antibiot.*, 60 (7) (2007) 407-435.

Chiral Dinuclear Vanadium(V) Catalysts for Oxidative Coupling of 2-Naphthols, S. Takizawa, T. Katayama, C. Kameyama, K. Onitsuka, T. Suzuki, T. Yanagida, T. Kawai, H. Sasai: *Chem. Commun.*, (15) (2008) 1810-1812.

Dual Activation in Oxidative Coupling of 2-Naphthols Catalyzed by Chiral Dinuclear Vanadium Complexes, S. Takizawa, T. Katayama, H. Somei, Y. Asano, T. Yoshida, C. Kameyama, D. Rajesh, K. Onitsuka, T. Suzuki, M. Mikami, H. Yamataka, D. Jayaprakash, H. Sasai: *Tetrahedron*, 64 (15) (2008) 3361-3371.

Regio- and Enantioselective O-Allylation of Phenol and Alcohol Catalyzed by Planar-Chiral Cyclopentadienyl-Ruthenium Complex, K. Onitsuka, H. Okuda, H. Sasai: *Angew. Chem. Int. Ed.*, 47 (8) (2008) 1454-1457.

Synthesis of Novel Spiro Imidazolium Salts as Chiral Ionic Liquids, M. L. Patil, C. V. L. Rao, S. Takizawa, K. Takenaka, K. Onitsuka, H. Sasai: *Tetrahedron*, 63 (51) (2007) 12702-12711.

#### [ 解説、総説 ]

DNA 中の電荷移動速度と情報の関係を明らかにしたい、真嶋哲朗、*化学*、62[1] (2007) 23-24.

DNA 分子化学、真嶋哲朗、日本化学会・第2次先端ウォッチング「生命分子科学の進展」41-45 (2007).

Mechanistic Insight into the TiO<sub>2</sub> Photocatalytic Reactions: Design of New Photocatalysts, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima, *J. Phys. Chem. C (Feature Article)*, 111[14] (2007) 5259-5275.

Single-Molecule Detection of Reactive Oxygen Species: Application to Photocatalytic Reactions, T. Tachikawa and T. Majima, *J. Fluores. (Special issue on "Advances in Single Molecule Spectroscopy", invited)*, 17[6] (2007) 727-738.

Photochemical Properties of Porphyrin-attached Tobacco Mosaic Virus, M. Endo, Fujitsuka, and T. Majima, *Photomedicine and Photobiology*, 29 (2007) 19-20.

DNA デバイス—DNA 中で起こる電荷移動を利用する、真嶋哲朗、*化学*、63[1] (2008) 38-40.

DNA 中の電荷移動、高田忠雄・真嶋哲朗、*生産と技術*、60[1] (2008) 55-60.

DNA 内電荷移動とバイオセンサーへの応用、高田忠雄・真嶋哲朗、*BIO INDUSTRY*、25[3] (2008) 61-71.

Bifunctional Organocatalysts for Enantioselective aza-Morita-Baylis-Hillman (aza-MBH) Reactions、滝澤忍、松井嘉津也、笹井宏明、*有機合成化学協会誌*、65 [11] (2007) 1089-1098.

Recent Development on Chiral Ionic Liquids: Design, Synthesis, and Applications、M. L. Patil、笹井宏明、*The Chemical Record*、8 [2] (2008) 98-108.

#### [ 著書 ]

"Photochemistry of Short-lived Species using Multi-beam Irradiation" "Advanced in Photochemistry Vol 29" (ed by D. C. Neckers, W. Jenks, T. Wolff), M. Fujitsuka and T. Majima, John Wiley & Sons, Inc., (2007) 53-109.

“Single-Molecule Fluorescence Imaging Techniques for the Detection of Reactive Oxygen Species”, “Modern Research and Educational Topics on Microscopy” (ed by A. Mendez-Vilas and J. Diaz), T. Tachikawa and T. Majima, Formatex, (2007) 651-659.

“DNA Supramolecular Structures for the Creation of Functional Nanomaterials” “Soft Nanomaterials” (ed by H. S. Nalwa, American Scientific Publishers), M. Endo and T. Majima, Valencia, (2008).

「光触媒反応の1分子蛍光イメージング」、「光と界面がおりなす新しい化学の世界—光触媒と光エネルギー変換」(高木克彦ら編)、真嶋哲朗、(株)クバプロ、(2008) 50-58.

「Asymmetric Phase Transfer Catalysis」(丸岡啓二編集)、笹井宏明、M. L. Patil、Wiley-VCH、(2008) 135-159.

#### [ 特許 ]

「DNA 電荷移動を利用した DNA 一分子蛍光測定による一塩基多型の検出法」真嶋哲朗、高田忠雄、川井清彦、藤塚守、特願 2007-6829

「媒体中に金属ナノ粒子を形成する方法」真嶋哲朗、坂本雅典、藤塚守、特願 2007-28166

「修飾金属ナノ粒子およびその製造方法」真嶋哲朗、坂本雅典、藤塚守、特願 2007-095031

#### [ 国際会議 ]

Charge Transfer in DNA (invited), T. Majima: 2007 Photochemistry Gordon Research Conference, Bryant University, Smithfield, Rhode Island, USA, July 8-13, 2007.

Mechanistic Insight into the TiO<sub>2</sub> Photocatalytic Reactions (invited), T. Majima: 23th International Conference on Photochemistry, Cologne, Germany, July 29-Aug. 3, 2007.

Rapid Energy Migration along Photofunctional Polymers (poster), M. Fujitsuka and \*T. Majima: 23th International Conference on Photochemistry, Cologne, Germany, July 29-Aug. 3, 2007.

Charge Separation via Rapid Hole Transfer through Adenine-Hopping (poster), T. Takada, K. Kawai, M. Fujitsuka, and \*T. Majima: 23th International Conference on Photochemistry, Cologne, Germany, July 29-Aug. 3, 2007.

One-electron oxidation of organic compounds during TiO<sub>2</sub> photocatalytic reactions (invited), \*T. Tachikawa and T. Majima: Langmuir Symposium 2007 in Osaka University, Suita, Japan, Oct. 9, 2007.

Photochemical synthesis of metal nanoparticles in a PVA film (invited), \*M. Sakamoto and T. Majima: Langmuir Symposium 2007 in Osaka University, Suita, Japan, Oct. 9, 2007.

Development of New TiO<sub>2</sub> Photocatalysts (invited), T. Majima: 7th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology, Shanghai, Nov. 11-14, 2007.

Adsorption and Electron Transfer Processes of Perylene Diimide Dye on TiO<sub>2</sub> Nanoparticles Studied by Single-Molecule (poster), \*S.-C. Cui, T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, T. Majima: 7th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology, Shanghai, Nov. 11-14, 2007.

Possibility of Negative Charge Conduction in Cyclophanes (invited), T. Majima: The Third Taiwan-Japan

Bilateral Symposium on Functional Molecules, Janfusen, Taiwan, Nov. 11-14, 2007.

Development of New TiO<sub>2</sub> Photocatalyst: Mechanistic Study of TiO<sub>2</sub> Photocatalytic Reactions (invited), T. Majima: 2007 Korea-Japan Symposium on Frontier Photoscience, Gyeongju, Korea, Nov. 22-25, 2007.

Intramolecular Electron Transfer from Axial Ligands to S<sub>2</sub>-Excited Tetraphenyl Porphyrins (invited), \*M. Fujitsuka and T. Majima: 2007 Korea-Japan Symposium on Frontier Photoscience, Gyeongju, Korea, Nov. 22-25, 2007.

Excited State Properties of Trimethoxybenzene Radical Cation (poster), X. Cai, M. Fujitsuka, and \*T. Majima: 2007 Korea-Japan Symposium on Frontier Photoscience, Gyeongju, Korea, Nov. 22-25, 2007.

Photoinduced Electron Transfer from S<sub>2</sub>-Excited Porphyrins and Phthalocyanines (poster), K. Harada, M. Fujitsuka, and \*T. Majima: 2007 Korea-Japan Symposium on Frontier Photoscience, Gyeongju, Korea, Nov. 22-25, 2007.

Energy Levels of Oligothiophenes in Higher Triplet Excited State (poster), Y. Oseki, M. Fujitsuka, and \*T. Majima: 2007 Korea-Japan Symposium on Frontier Photoscience, Gyeongju, Korea, Nov. 22-25, 2007.

Development of New TiO<sub>2</sub> Photocatalyst: Mechanistic Study of TiO<sub>2</sub> Photocatalytic Reactions (invited), T. Majima: The 9th International Symposium on Eco-materials Processing and Design, Changwon Exhibition Convention Center, Changwon, Korea, Jan. 7-9, 2008.

Photoinduced Charge Separation in Titania Nanotubes (poster), \*T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, T. Sekino, and T. Majima: The 9th International Symposium on Eco-materials Processing and Design, Changwon Exhibition Convention Center, Changwon, Korea, Jan. 7-9, 2008.

Single-Molecule Detection of Airborne Singlet Oxygen (poster), \*K. Naito, T. Tachikawa, S.-C. Cui, A. Sugimoto, M. Fujitsuka, and T. Majima: The 9th International Symposium on Eco-materials Processing and Design, Changwon Exhibition Convention Center, Changwon, Korea, Jan. 7-9, 2008.

Charge Separation in Acridine Modified DNA (poster), \*K. Kawai, M. Fujitsuka, and T. Majima: 11th Sanken International Symposium / 6th nanotechnology center international symposium / 1st MSTEC international symposium, Awaji, Japan, Feb. 4-5, 2008.

Kinetic SNP typing Based on Charge Transfer through DNA (poster), Y. Osakada, \*K. Kawai, M. Fujitsuka, and T. Majima: 11th Sanken International Symposium / 6th nanotechnology center international symposium / 1st MSTEC international symposium, Awaji, Japan, Feb. 4-5, 2008.

Intramolecular Electron Transfer from Axial Ligands to S<sub>2</sub>-Excited Tetraphenyl Porphyrins (poster), M. Fujitsuka and \*T. Majima: 11th Sanken International Symposium / 6th nanotechnology center international symposium / 1st MSTEC international symposium, Awaji, Japan, Feb. 4-5, 2008.

Single-Molecule Detection of Airborne Singlet Oxygen (poster), T. Tachikawa, K. Naito, M. Fujitsuka and \*T. Majima: 11th Sanken International Symposium / 6th nanotechnology center international symposium / 1st MSTEC international symposium, Awaji, Japan, Feb. 4-5, 2008.

Design of Cyclic Reaction Driven by the Two-color Two-photon Excitation (poster), M. Sakamoto, M. Fujitsuka and \*T. Majima: 11th Sanken International Symposium / 6th nanotechnology center international symposium / 1st

MSTEC international symposium, Awaji, Japan, Feb. 4-5, 2008.

Molecular Excitation Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials, T. Majima: International Symposium on "New Trend in Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2008", Osaka University, Japan, Feb. 6, 2008.

Electron Transfer from Axial Ligand to  $S_1$ - and  $S_2$ -Excited Phosphoros Tetraphenylporphyrin, \*M. Fujitsuka, D. W. Cho, and T. Majima: International Symposium on "New Trend in Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2008", Osaka University, Japan, Feb. 6, 2008.

Photophysical Properties of 1,8-Naphthalimide-linker-phenothiazine Dyads in Non-polar Solvents, \*D. W. Cho, M. Fujitsuka, and T. Majima: International Symposium on "New Trend in Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2008", Osaka University, Japan, Feb. 6, 2008.

Single Molecule Fluorescence Imaging of  $TiO_2$  Photocatalytic Reactions, \*T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima: International Symposium on "New Trend in Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2008", Osaka University, Japan, Feb. 6, 2008.

Photochemical Formation of Au/Cu Bimetallic Nanoparticles with Different Shapes and Sizes in a PVA Film, \*M. Sakamoto, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima: International Symposium on "New Trend in Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2008", Osaka University, Japan, Feb. 6, 2008.

Hole Transfer in DNA and Photosensitized DNA Damage: Importance of Adenine Oxidation, \*K. Kawai, Y. Osakada, M. Fujitsuka, and T. Majima: International Symposium on "New Trend in Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2008", Osaka University, Japan, Feb. 6, 2008.

Single-Molecule Observation of DNA Charge Transfer, \*T. Takada, M. Fujitsuka, and T. Majima: International Symposium on "New Trend in Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2008", Osaka University, Japan, Feb. 6, 2008.

Porphyrin Light-Harvesting System Constructed in the Tobacco Mosaic Virus Scaffold, \*M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima: International Symposium on "New Trend in Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2008", Osaka University, Japan, Feb. 6, 2008.

Higher Excited State Chemistry for Light-Energy Conversion (invited), M. Fujitsuka and \*T. Majima: The 3rd CNU-SANKEN Joint Symposium on Advanced Materials Science, Daejeon, Korea, Feb. 27-28, 2008.

DNA Devices Based on Charge Transfer in DNA (invited), T. Majima: The 3rd CNU-SANKEN Joint Symposium on Advanced Materials Science, Daejeon, Korea, Feb. 27-28, 2008.

Development of New Catalytic Enantioselective Reactions Promoted by Pd(II)-Spiro Bis(isoxazoline) Complexes (poster), \*G. B. Bajracharya, P. S. Koranne, M. L. Patil, C. V. L. Rao, T. Tsujihara, S. Takizawa, T. Suzuki, H. Sasai: 19th French-Japanese Symposium on Medicinal and Fine Chemistry (FJS-2007), Toyama, Japan, May 13-16, 2007.

Pd(II)-SPRIX-Catalyzed Enantioselective Intramolecular Cyclizations (poster), \*G. B. Bajracharya, M. L. Patil, P. S. Koranne, C. V. L. Rao, T. Tsujihara, T. Suzuki, H. Sasai: 14th IUPAC Symposium on Organometallic Chemistry Directed Towards Organic Synthesis (OMCOS 14), Nara, Japan, August 2-6, 2007.

Development of Dendritic Artificial Enzymes with Catechol Oxidase Activity (poster), D. Jayaprakash, \*R. N.



Nadaf, T. Kawase, T. Suzuki, H. Sasai: 12th Asian Chemical Congress, Kuala Lumpur, Malaysia, August 22-25, 2007.

Development of Dendritic Artificial Enzymes with Catechol Oxidase Activity (poster), \*D. Jayaprakash, R. N. Nadaf, T. Kawase, T. Suzuki, H. Sasai: Chirality at the Nanoscale, Barcelona, Spain, September 17-21, 2007.

Development of New Catalytic Enantioselective Reactions Promoted by Pd(II)-Spiro Bis(isoxazoline) Complex (poster), G. B. Bajracharya, P. S. Koranne, M. L. Patil, C. V. L. Rao, T. Tsujihara, S. Takizawa, T. Suzuki, \*H. Sasai: Chirality at the Nanoscale, Barcelona, Spain, September 17-21, 2007.

Development of New Catalytic Enantioselective Reactions Promoted by Pd(II)-Spiro Bis(isoxazoline) Complexes (poster), \*Y. Tanigaki, G. B. Bajracharya, P. S. Koranne, C. V. L. Rao, M. L. Patil, T. Tsujihara, K. Takenaka, S. Takizawa, K. Onitsuka, H. Sasai: Green Sustainable Biological and Chemical Processes, Osaka, Japan, November 15-17, 2007.

Development of Novel Chiral Spiro-type Ligands (poster), \*S. Nakatsuka, T. Nagano, P. S. Koranne, K. Takenaka, S. Takizawa, T. Suzuki, K. Onitsuka, H. Sasai: Green Sustainable Biological and Chemical Processes, Osaka, Japan, November 15-17, 2007.

Development of Dendritic Artificial Enzymes with Catechol Oxidase Activity (poster), \*R. N. Nadaf, D. Jayaprakash, T. Kawase, R. K. M. Gabr, S. Hashimoto, M. Mikami, T. Suzuki, H. Sasai: Green Sustainable Biological and Chemical Processes, Osaka, Japan, November 15-17, 2007.

Development of Dendritic Artificial Enzymes with Catechol Oxidase Activity (poster), \*S. Hashimoto, R. N. Nadaf, D. Jayaprakash, T. Kawase, G. R. K. Mohamed, M. Mikami, T. Suzuki, H. Sasai: 11th Sanken, 6th Nanotechnology Center, 1st MSTEC International Symposium, Awaji, Japan, February 4-5, 2008.

Bifunctional Chiral Organocatalysts for the Enantioselective aza-Morita-Baylis-Hillman Reaction, \*H. Sasai: 21st International Congress for Heterocyclic Chemistry, Sydney, Australia, July 15-20, 2007.

Development of Bifunctional Organocatalysts for Enantioselective Aza-Morita-Baylis-Hillman Reaction (invited), \*H. Sasai: First International Conference on Advanced Organic Synthesis Directed toward the Ultimate Efficiency and Practicability, International Conference on Asymmetric Organocatalysis, Otsu, Japan, May 28-29, 2007.

Novel Enantioselective Reactions Promoted by Pd(II)-SPRIX Catalyst (invited), \*H. Sasai: International Chemical Conference (ICCT-2007), Hsinchu, Taipei, December 13-16, 2007.

Dual Activation in Oxidative Coupling of 2-Naphthols Catalyzed by Chiral Dinuclear Vanadium Complexes (invited), \*H. Sasai: Post-symposium of ICCT-2007, Hsinchu, Taipei, December 17, 2007.

Dual Activation Catalysis (invited), \*H. Sasai: Green Sustainable Biological and Chemical Processes, Osaka, Japan, November 15-17, 2007.

Regio- and Enantioselective O-Allylation of Phenol and Alcohol Catalyzed by Planar-Chiral Cyclopentadienyl-Ruthenium Complex (poster), \*K. Onitsuka, H. Okuda, C. Kameyama, H. Sasai: 14th IUPAC Symposium on Organometallic Chemistry Directed Towards Organic Synthesis (OMCOS 14), Nara, Japan, August 2-6, 2007.

Development of New Catalytic Asymmetric Reaction Using Helical Polymer (poster), \*Y. Itano, K. Onitsuka, H.

Sasai: Green Sustainable Biological and Chemical Processes, Osaka, Japan, November 15-17, 2007.

Asymmetric Catalysis of Planar-Chiral Cyclopentadienyl-Ruthenium Complexes: Regio- and Enantioselective Allylic Substitutions (poster), \*K. Onitsuka, H. Okuda, C. Kameyama, H. Sasai: 11th Sanken, 6th Nanotechnology Center, 1st MSTEC International Symposium, Awaji, Japan, February 4-5, 2008.

Design of Novel Helical Polymer Ligands and Their Application to Asymmetric Diels-Alder Reaction (poster), \*K. Onitsuka, Y. Itano, H. Sasai: 11th Sanken, 6th Nanotechnology Center, 1st MSTEC International Symposium, Awaji, Japan, February 4-5, 2008.

Synthesis of Optically Active Spiro Compounds via Palladium-catalyzed Asymmetric Amidation (poster), \*N. Itoh, K. Takenaka, H. Sasai: Green Sustainable Biological and Chemical Processes, Osaka, Japan, November 15-17, 2007.

Synthesis of Optically Active Spiro Compounds via Palladium-catalyzed Asymmetric Amidation (poster), \*N. Itoh, K. Takenaka, H. Sasai: 11th Sanken, 6th Nanotechnology Center, 1st MSTEC International Symposium, Awaji, Japan, February 4-5, 2008.

#### [ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

真嶋 哲朗	2007 KOREA-JAPAN Symposium on Frontier Photoscience (組織委員長)
真嶋 哲朗	Symposium on "Beam-induced Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2007" (組織委員長)
真嶋 哲朗	Langmuir Symposium 2007 in Osaka University (組織委員長)
真嶋 哲朗	The 9 <sup>th</sup> International Symposium on Eco-materials Processing and Design (組織委員)
真嶋 哲朗	International Symposium on "New Trend in Chemistry of Supramolecules and Nanomaterials 2008" (組織委員長)
真嶋 哲朗	The 3rd CNU-SANKEN Joint Symposium on Advanced Materials Science (組織委員長)
真嶋 哲朗	Langmuir, American Chemical Society (Senior Editor)
笹井 宏明	14th IUPAC Symposium on Organometallic Chemistry Directed Towards Organic Synthesis (OMCOS 14), (組織委員)

#### [ 国内学会 ]

日本光生物・光医学会	2 件
光化学討論会	11 件
高分子討論会	1 件
日本化学会春年会	10 件
日本化学会春季年会	13 件
有機反応懇談会	2 件
有機金属化学討論会	1 件
有機合成シンポジウム	1 件

#### [ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)	単位：千円
基盤研究 (S)	
真嶋 哲朗	光機能性DNAのナノサイエンス
	10,920

萌芽研究 真嶋 哲朗	光機能化タバコモザイクウィルス超分子による光電変換デバイスの創製	1,800
特定領域研究 笹井 宏明	相乗的活性化により反応を促進する不斉有機触媒の創製	2,300
基盤研究 (C) 遠藤 政幸	癌治療を目指したアポトーシス関連タンパクの光機能化と応用	900
若手研究 坂本 雅典	2色2レーザー照射による三次元金属ナノ粒子アレイ作成技術の研究	3,100

### [ 受託研究 ]

真嶋 哲朗	IDEC 株式会社、株式会社サタケ	レーザ光を用いたプラスチック種類判別方法の研究	1,690
-------	-------------------	-------------------------	-------

### [ 奨学寄附金 ]

笹井 宏明	明治製菓株式会社	1,000
笹井 宏明	ダイソー株式会社	600
笹井 宏明	日産化学工業	400
笹井 宏明	ナガセケムテックス	200

### [ 共同研究 ]

真嶋 哲朗	トヨタ自動車株式会社	光励起還元法による高比表面積水素吸蔵合金の研究	5,989
真嶋 哲朗	積水化学工業株式会社	酸化チタン光触媒作用による超親水性	999
真嶋 哲朗	松下電器産業株式会社	チタニアナノ構造体を用いた光触媒の高活性化に関する研究	1,732
真嶋 哲朗	三菱化学株式会社	高励起状態からの光化学反応を利用した非線形光応答材料の開発	2,000

### [ その他の競争的研究資金 ]

笹井 宏明	(財) ホソカワ粉体工学振興財団	機能性ナノ粒子の効率的調製法の開発	1,000
-------	------------------	-------------------	-------

# 安全・安心ヒューマンインターフェース研究プロジェクト

## 概要

平成 17 年度から新たに設置された、東北大学多元物質化学研究センターとの大学研究所間連携機構である、新産業創造物質基盤センターの 2 つのプロジェクトの一つである。安全・安心ヒューマンインターフェース研究プロジェクトは、ヒトと環境に優しい、安全で持続可能な産業基盤技術の研究を目指し、医療基盤技術と、ヒューマンインターフェース技術の開発研究を推進している。医療基盤技術研究グループでは、生体防御を担う異物排出トランスポーターの解明とトランスポーターオリエンテッドな創薬のための基盤技術開発と、加速器量子ビームを応用したビーム医療の基盤技術開発を行っている。またヒューマンインターフェース研究グループでは、人間と各種情報との適切なインターフェース構築に役立つセンサ・ソフトウェアシステムなどの開発を進めている。

## 成果

- ・ 新しい要約の標的となる赤血球からの S1P 放出機構の発見と S1P 輸送体の酵素化学的性質の解明
- ・ 細菌薬剤耐性化と病原性発現における異物排出トランスポーターの役割を解明
- ・ 放射線がん治療の新しい可能性の探索
- ・ 新規高機能強度変調放射線治療のための電子ビームの動的光変調の適用
- ・ インターフェース統合運用ロボットの高性能化と高伸縮比マニピュレータ機構の開発
- ・ 安全・安心・創造的もの作り支援のための知識共有技術の応用
- ・ 産業構造変化に伴う新産業予測・技術ベンチャー成功要因に関するモデル化と解析ツールの開発
- ・ 各種センサデータと機械学習による対象適応状況・解析インターフェースを具体化

## 医療基盤研究グループ

兼任教授 山口 明人（グループ長）、吉田 陽一  
特任助教（常勤） 西 毅、近藤 孝文、西野 邦彦（平成19年5月31日まで）

### a) 概要

本グループは、生体防御を担う異物排出輸送体発現制御機構と、生理活性脂質の細胞外への放出を担う膜輸送タンパク質の同定とその機能解析に基づいたトランスポーターオリエンテッドな創薬のための基盤技術開発、新しい高機能な放射線がん治療のためにフォトカソード電子銃を用いた高度な空間・時間のビーム制御技術の開発、放射線治療の新しい可能性を探索するための生体内の高速な放射線誘起反応を観察するフェムト秒パルスラジオリシスの開発と極限短パルス放射線による全く新しい効果の理論的研究等を進めている。

### b) 成果

#### ・赤血球からのS1P放出機構の発見とS1P輸送体の酵素化学的性質の解明

我々は昨年度までにS1Pの血小板からの放出に輸送体が関与することを見いだした。本年度は血小板以外でも赤血球においてもS1Pが合成され、細胞外へ放出されることを新たに見出した。赤血球からのS1Pの放出は血小板のように刺激を必要とせず、合成されたものから順次細胞外へ放出されることが分かった。最近、この赤血球から放出されて、血液中に一定濃度存在するS1Pが、リンパ球などの血液中への移行に必須であることが明らかになってきた。このことは赤血球からのS1Pの放出輸送体を明らかにできれば、その阻害剤が新しい免疫抑制剤となる可能性がある。そこでより詳細にS1P輸送体の酵素化学的性質を知るために、赤血球の反転膜小胞を用いたS1Pの輸送活性の測定系の開発を進め、S1PがATP存在下で時間依存的に小胞内へ輸送されることを観察できる系を確立することに成功した。この系を用いて酵素の性質や、様々な阻害剤などを検討した結果、これまでにABCA型の輸送体が関与している可能性を示す結果が得られた。これは、セミインタクトの細胞を用いた系で血小板によって得られた結果と同じ結果であり、輸送の活性化などに違いがあるが、血小板と赤血球では類似の輸送体を使って細胞外へS1Pが放出されていることを示した。

#### ・放射線がん治療の新しい可能性の探索

放射線がん治療の新しい可能性を探索している。生体内の高速な放射線誘起反応を観察するためにフェムト秒パルスラジオリシスを産研のレーザーフォトカソードRF電子銃LINACを用いて開発している。また、重粒子線、プロトン等量子ビームの線種の違いによる放射線誘起効果を解明するために独自のイオンパルスラジオリシスシステムも開発している。また最新の研究では、極限の短パルス放射線による集団励起効果を用いた全く新しい治療原理の理論的な研究を行った。

#### ・新規高機能強度変調放射線治療のための電子ビームの動的変調に関する研究

正常組織の照射線量を軽減し安全かつ有効ながん治療を目指して、産研のレーザーフォトカソードRF電子銃 LINACを用いて、全く新しい高機能な強度変調放射線治療のための電子ビームの変調技術の開発を行った。放射線がん治療における呼吸同期・不随意筋運動への追従を実現するための電子ビームの動的な光学変調に成功した。光学変調の高度化を図るために、デジタルマイクロミラーデバイスを用いて、可視レーザー光のコンピュータ制御に成功した。

### [ 原著論文 ]

Tissue specific expression of the splicing variants of the mouse vacuolar proton-translocating ATPase a4 subunit, S. Kawasaki-Nishi, A. Yamaguchi, M. Forgac, T. Nishi: *Biochem. Biophys. Res. Commun.*, 364 (2007) 1032-1036.

The AraC-family regulator GadX enhances multidrug resistance of *Escherichia coli* by activating expression of the mdtEF multidrug efflux genes, K. Nishino, Y. Senda and A. Yamaguchi: *Journal of Infection and chemotherapy*, 14 (1) (2008) 23-29.

Identification of a spermidine excretion protein complex (MdtJI) in *Escherichia coli*, K. Higashi, H. Ishigure, R.

Demizu, T. Uemura, K. Nishino, A. Yamaguchi, K. Kashiwagi and K. Igarashi: *Journal of Bacteriology*, 190 (2) (2008) 872-878.

Regulation of multidrug efflux systems involved in multidrug and metal resistance of *Salmonella enterica* serovar Typhimurium, K. Nishino, E. Nikaido and A. Yamaguchi: *Journal of Bacteriology*, 189 (24) (2007) 9066-9075.

Bunch Length Measurement using Spectral Width of Monochromatic Synchrotron Radiation, A. Ogata, T. Kondoh, J. Yang, A. Yoshida and Y. Yoshida: *Nucl. Instr. and Meth. A*, 578 (2007) 348-350.

LWFA of Atto-Second Bunches for Pulse Radiolysis, A. Ogata, T. Kondoh, J. Yang, A. Yoshida and Y. Yoshida: *Int. J. Modern. Phys.*, 21 (2007) 447-458.

#### [ 解説、総説 ]

異物排出タンパクのメカニズム、山口明人、感染・炎症・免疫、37 [2] (2007) 106-115

大腸菌の異物排出トランスポーターAcrBの構造と異物認識機構、村上聡、山口明人、生化学、79 [6] (2007) 542-549

#### [ 特許 ]

「オートインデューサー-2受容体のモデュレーター」加藤修雄、平岡正光、大神田淳子、河野富一、山口明人、平田隆弘、西野邦彦、恵比須繁之、Bonnie L. Bassler、特願 2007-056450

#### [ 国際会議 ]

Tissue and cellular localization of mouse ABCA5 proteins (poster), \*M. Ohigashi, T. Nishi, A. Yamaguchi: 11th Sanken International Symposium, 6th Nanotechnology Center International Symposium, 1st MSTEC International Symposium.

Thrombin stimulates S1P release from platelet-like particles derived from MEG-O1 cells (poster), \*Y. Hisano, T. Nishi, A. Yamaguchi: 11th Sanken International Symposium, 6th Nanotechnology Center International Symposium, 1st MSTEC International Symposium.

Roles of multidrug efflux pumps in antimicrobial peptide resistance of *Salmonella enterica*, \*T. Nakano, K. Nishino and A Yamaguchi: Florence Conference on Phenotype MicroArray Analysis of Microorganisms (19-21 Mar. 2008, Florence, Italy).

Regulatory network of AcrAB multidrug efflux pump in *Salmonella* and its role in response to metabolites, \*E. Nikaido, K. Nishino and A Yamaguchi: Florence Conference on Phenotype MicroArray Analysis of Microorganisms (19-21 Mar. 2008, Florence, Italy).

Physiological functions of bacterial multidrug efflux pumps (invited), \*K. Nishino and A Yamaguchi: The 3rd CNU-SANKEN Joint Symposium on Advanced Materials Science (27-28 Feb. 2008, Chungnam National University, Korea).

Structural Basis of Bacterial Multidrug Export, \*A Yamaguchi: 11<sup>th</sup> Sanken International Symposium/6th nanotechnology center international symposium/1st MSTEC international symposium(4-5 Feb. 2008, Hyogo).

Roles of indole signaling and intercellular signal transduction on type III secretion system-dependent pathogenicity in EHEC, \*H. Hirakawa, T. Kodama, T. Honda and A Yamaguchi: 3<sup>rd</sup> ASM Conference on Cell-Cell Communication in Bacteria (7-10 Oct. 2007, Texas, USA).

Visualization of *Escherichia coli* AcrAB-TolC efflux pump activity using ultra small chambers (poster), \*Y. Matsumoto, K. Nishino, R. Iino, S. Sakakihara, M. Nakata, H. Nojii and A Yamaguchi: 47<sup>th</sup> Interscience Conference on Antimicrobial Agents and Chemotherapy (Sep. 17-20, 2007, McCormick Place, Illinois USA).

Novel Aspects of Mechanisms of Antibacterial Resistance Revealed by Crystal Structure (invited), \*A Yamaguchi: 47<sup>th</sup> Interscience Conference on Antimicrobial Agents and Chemotherapy (Sep. 17-20, 2007, McCormick Place,

Illinois USA).

Regulatory network of multidrug transporters reveals their physiological role in Salmonella virulence, \*K. Nishino, E. Nikaido, H. Sakata, T. Nakano, M. Tanaka and A Yamaguchi: 7<sup>th</sup> The Awaji International Forum on Infection and Immunity (Sep. 1-5, 2007, Awaji Yumebutai International Conference Center).

Regulatory network of multidrug transporters reveals their physiological role in Salmonella virulence (poster), \*K. Nishino, E. Nikaido, H. Sakata, T. Nakano, M. Tanaka and A Yamaguchi: 7<sup>th</sup> The Awaji International Forum on Infection and Immunity (Sep. 1-5, 2007, Awaji Yumebutai International Conference Center).

Regulation mechanisms of the acrAB multidrug efflux pump in Salmonella enterica in response to bacterial metabolites (poster), \*E. Nikaido, K. Nishino and A Yamaguchi: 7<sup>th</sup> The Awaji International Forum on Infection and Immunity (Sep. 1-5, 2007, Awaji Yumebutai International Conference Center).

Single Cell Measurement of Bacterial Drug Efflux in Femtoliter Chamber Array (poster), \*K. Nishino, R. Iino, M. Nakata, Y. Matsumoto, E. Nikaido, S. Sakakihara, S. Takeuchi, A Yamaguchi and H. Noji: American Society of Microbiology, 107th General Meeting, (May 21-25, 2007, Metro Toronto Convention Center, Toronto, Canada).

Metabolites of Escherichia coli Induce the Expression of Multidrug Efflux Pumps in Salmonella enterica (poster), \*E. Nikaido, K. Nishino and A Yamaguchi: American Society of Microbiology, 107th General Meeting, (May 21-25, 2007, Metro Toronto Convention Center, Toronto, Canada).

Dynamic Optical Modulation of the Electron Beam for the High Performance Intensity Modulated Radiation Therapy (poster), \*T. Kondoh, H. Kashima, J. Yang and Y. Yoshida: Proceedings of the Particle Accelerator Conference 2007.

Simulation Study on Attosecond Electron Bunch Generation (poster), \*K. Kan, T. Kondoh, J. Yang, Y. Yoshida: Proceedings of the Particle Accelerator Conference 2007.

Femtosecond Electron Beam Dynamics in Photocathode Accelerator (poster), \*J. Yang, K. Kan, T. Kondoh, S. Tagawa, Y. Yoshida: Proceedings of the Particle Accelerator Conference 2007.

Dynamic Optical Modulation of Electron Beam on a Photocathode RF Gun toward the Intensity Modulated Radiation Therapy (IMRT) (poster), \*T. Kondoh, H. Kashima, J. Yang, Y. Yoshida and S. Tagawa: The 7th International Symposium on Advanced Science Research ASR2007.

Reactions of solvated electrons in ionic liquid Diethylmethyl(2-methoxy)ammonium  $\ddot{\text{N}}$  Bis(trifluoromethanesulfonyl)imide (poster), A. Asano, T. Kondoh, J. Yang, R. Nagaishi, K. Takahashi, Y. Yoshida: The 7th International Symposium on Advanced Science Research ASR2007.

Picosecond pulse radiolysis: dynamics of solvated electrons in ionic liquid and geminate ion recombination in liquid alkanes (poster), J. Yang, T. Kondoh, K. Norizawa, R. Nagaishi, M. Taguchi, K. Takahashi, R. Katoh, S. V. Anishchik, Y. Yoshida, and S. Tagawa: The 7th International Symposium on Advanced Science Research ASR2007.

Decomposition of halogenated organic chemicals in room temperature ionic liquids by ionizing radiation (poster), A. Kimura, M. Taguchi, T. Kondoh, J. Yang, Y. Yoshida, and H. Koichi: The 7th International Symposium on Advanced Science Research ASR2007.

Pulse Radiolysis Study of Water Effects on the Solvated Electrons in the Hydrophobic Liquid (poster), T. Kondoh, A. Asano, J. Yang, M. Taguchi, R. Nagaishi and Y. Yoshida: Proceedings of the 2nd International Congress on Ionic Liquids(COIL-2).

Pulse Radiolysis Study of Solvated Electrons Reactions in DEMMA-TFSI (poster), A. Asano, T. Kondoh, J. Yang, R. Nagaishi, K. Takahashi and Y. Yoshida: Proceedings of the 2nd International Congress on Ionic Liquids(COIL-2).

[ 国内学会 ]

日本薬学会 第128年会	8件
第81回日本細菌学会総会	9件
第30回日本分子生物学会年会・第80回日本生化学会大会 合同大会	12件
第29回生体膜と薬物の相互作用シンポジウム	4件
日本生体エネルギー研究会 第33回討論会	2件
第19回微生物シンポジウム	2件
第4回21世紀大腸菌研究会	1件
第55回日本化学療法学会総会	2件
日本原子力学会	4件
日本物理学会	2件
日本放射線化学会	8件
日本加速器学会	5件
高周波電子銃研究会	4件

### [ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

基盤研究 (S)		
山口 明人	異物排出トランスポーターの構造・機能・制御と生理的役割	18,000
基盤研究 (A)		
吉田 陽一	サブフェムト秒・アト秒パルスラジオリシス等価速度分光法の研究	13,130
基盤研究 (C)		
西 毅	脂質メディエーターの細胞外放出機構の解明	2,210

### [ 受託研究 ]

山口 明人	科学技術振興機構 CREST	異物排出トランスポーターの構造 機能解析と多剤耐性機構の解明	3,023
山口 明人	新興・再興感染症研究拠点形成プログラム	細菌の病原性と多剤排出蛋白質発現制御の網羅的、系統的解析と創薬の新戦略	300
山口 明人	医薬基盤研究所 保健医療分野における基礎研究推進事業	多剤耐性菌感染症を克服する新規治療薬の開発	75,385

### [ 共同研究 ]

吉田 陽一	放射線医学総合研究所	粒子線がん治療のためのビーム制御に関する研究
吉田 陽一	住友重機械工業株式会社 技術開発センター	フォトカソードRF電子銃と高品質電子ビームの開発
吉田 陽一	日本原子力研究開発機構・高崎研	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
吉田 陽一	日本原子力研究開発機構 関西光科学研究所	レーザー駆動フェムト秒電子ビームの応用に向けた基礎



## ヒューマンインターフェース研究グループ

教授(兼任) 吉田 博(グループ長)、沼尾 正行、溝口理一郎  
特任教授(常勤) 高藤 淳  
特任准教授(常勤) 齋藤 敬  
特任助教(常勤) 中沢 誠、福井 健一

### a) 概要

人に優しい安全安心技術へのパラダイムシフトに合わせた戦略的な新産業予測を行い、環境・情報・エネルギー・バイオ技術の融合研究を行った。安全・安心もの作り支援のための知識共有技術に関する研究、AE法と機械学習による固体電池の健全性診断法、および、細胞加工デバイス/研究実装プラットフォームロボット、新産業予測に関する研究を行った。

### b) 成果

- ・安全・安心・創造的なもの作り支援のための知識共有技術の研究(高藤・溝口)
  - 1) 機能的知識外化ツール「OntoGear」のバージョンアップを行い、「機能・不具合統合モデル」の表出化が可能となるなど大幅な機能性の向上を果たした。
  - 2) 方式知識を組織化するための「方式知識編集ツール」を完成し、「OntoGear」と併せて用いることで方式知識の共有が可能となった。
  - 3) 複数の企業で「OntoGear」の試用が開始され、必要な導入支援を実施した。また、燃料電池の設計支援への応用可能性を確認した。
- ・産業構造の変化に伴う戦略的な新産業予測に関する研究(吉田、中沢)
  - 1) 日本企業を商法に基づき資本金で分類した利益成長率は小・中・大会社の順に増加することから、資本金による分類が企業の成長性を論じる際の重要な指標となり得ることを示した。
  - 2) 注目する特許明細書と、当該特許明細書から抽出されたキーワードとを同じ平面にプロットするための知財マップ作成プログラムの初期版を完成させた。
- ・各種センサデータと機械学習による対象適応状況・解析インターフェース(沼尾、福井)
  - 1) ユーザの心的状態に適応して、音楽コンテンツを動的に生成する手法を発展させた。その一つとして、脳波センサを導入することで、コンテンツ生成の所要時間を1/10に短縮した。
  - 2) 固体型電池の健全性診断支援に、アコースティック・エミッション(AE)法による損傷計測データに対して適切なAE波形の自動抽出および時系列解析手法を提案した。
- ・細胞加工デバイス/研究実装プラットフォームロボット(齋藤)
  - 1) 集積型細胞膜穿孔チップ、及び量産性と大型化に適した新規細胞膜穿孔ナノロッドを開発、更に運用条件最適化のための細胞膜穿孔ロボットシステムを構築した。
  - 2) プラットフォームロボットに自律重心制御を導入し、不整地適用性を向上した。更に長距離マニピュレータ機構の商業モデルの共同開発を開始した。

### [ 原著論文 ]

固体酸化物燃料電池における破壊ダイナミクスの可視化法, 福井 健一, 佐藤 一永, 水崎 純一郎, 齋藤 和巳, 沼尾 正行: 情報科学技術レターズ, 6 (2007) 5-8.

ベクトル表現可能な機械抽出トピックの定量的評価法, 福井 健一, 齋藤 和巳, 木村 昌弘, 沼尾 正行: 情報処理学会論文誌 数理モデル化と応用, 48 (SIG 6) (2007) 1-11.

## [ 解説、総説 ]

神経インターフェース、齋藤 敬、応用物理、76 [12] (2007) 1384-7

## [ 特許 ]

「文書理解支援装置」高藤淳、溝口理一郎、來村徳信、特願 2007-158581

「DOCUMENT PROCESSING DEVICE AND DOCUMENT PROCESSING METHOD」Sunao TAKAFUJI、JUSTSYSTEMS CORPORATION、 国際出願 PCT/JP2006/30162

「METHOD OF PERFORATING MEMBRANE AND APPARATUS THEREFORE」Takashi Saito, United States Patent 7,320,885

齋藤 敬、特願 2008-039483

齋藤 敬、国際出願 PCT/JP2007/066233

## [ 国際会議 ]

Reliability Evaluation of SOFC under Simulated Operating Condition, \*Kazuhisa Sato, Norihiro Imanaka, Ken-ichi Fukui, Masayuki Numao, Shintaro Kyotani, Keiji Yashiro, Tatsuya Kawada, Toshiyuki Hashida, Junichiro Mizusaki: 10th International Symposium on Solid Oxide Fuel Cells (SOFC-X) , Japan, Jun 2007.

Interpretable Likelihood for Vector Representable Topic, \*Ken-ichi Fukui, Kazumi Saito, Masahiro Kimura, Masayuki Numao: 11th International Conference on Knowledge-Based and Intelligent Information & Engineering Systems (KES), Italy, Sep 2007.

Combining Burst Extraction Method and Sequence-based SOM for Evaluation of Fracture Dynamics in Solid Oxide Fuel Cell, \*Ken-ichi Fukui, Kazumi Saito, Masahiro Kimura, Masayuki Numao: 19th IEEE International Conference on Tools with Artificial Intelligence (ICTAI), Greece, Oct 2007.

Evaluation of Fracture Dynamics in SOFC by Burst Extraction Method and Sequence-based SOM (poster), \*Ken-ichi Fukui, Kazuhisa Saito, Junichiro Mizusaki, Kazumi Saito, Masayuki Numao: 11th SANKEN and 6th Nanotechnology Center and 1st MSTEC International Symposium, Japan, Feb 2008.

Photodynamic Perforation of Cell Membrane on Micro Channel Array Toward Intra Cellular Technology (poster), \*K. Iso, T.K. Saito, H. Muguruma, H. Tabata, S. Konishi: 20<sup>th</sup> IEEE International Conference on Micro Electro Mechanical Systems (MEMS) 2007, Kobe, Japan, January 21-25, 2007.

TOWARDS A REFERENCE ONTOLOGY FOR FUNCTIONAL KNOWLEDGE INTEROPERABILITY, \*Yoshinobu Kitamura, Sunao Takafuji, Riichiro Mizoguchi: the ASME 2007 International Design Engineering Technical Conferences & Computers and Information in Engineering Conference, U.S.A., Sep 2007.

## [ 国内学会 ]

人工知能学会

1 件

人工知能学会第 21 回全国大会

1 件

情報処理学会	1 件
電気化学会	1 件
応用物理学関係連合講演会	2 件
東京大学生命科学研究ネットワークシンポジウム	1 件
「センサ・マイクロマシンと応用システム」シンポジウム	1 件
日本物理学会	1 件
産学連携学会	1 件

### [ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)		単位：千円
萌芽研究		
齋藤 敬	細胞膜穿孔ナノロッドによる細胞治療システム	2,300
中沢 誠	産業構造の変化に伴う戦略的な新産業予測に関する研究	1,800

### [ 共同研究 ]

高藤 淳	株式会社ジャストシステム	オントロジー工学と自然言語処理を融合した知識共有に関する研究	6,500
齋藤 敬	株式会社アテクト	細胞への新規高効率遺伝導入技術の応用開発	3,200
齋藤 敬	日本飛行機株式会社	宇宙用伸展ブーム機構の開発	1,000

# ポストシリコン物質・デバイス創製基盤技術アライアンス

## 概要

ポストシリコン物質・デバイス創製基盤技術アライアンス（略称：ポストシリコンアライアンス）は、附置研究所間連携事業の新産業創造物質基盤技術のテーマの中で新たな物質創製に拡大するために、平成 18 年度よりポストシリコン物質・デバイス創製基盤技術研究の戦略的展開を図る目的で発足したものである。21 世紀の高度情報・高齢化社会においては、安全安心・大容量・高速・省エネルギーが要求され、20 世紀を支えてきたシリコン技術に相補的な基盤を与え、飛躍的な発展を促す、ポストシリコン技術の研究開発が急務となっている。この研究開発においては、物質創製からデバイス創製に至る一貫した研究体制が必要であり、個々の研究所での従来型の研究では対応し切れない。すなわち、これらの研究の効果的進展のためには、広い分野をカバーできる異分野の研究者間連携、各種の研究装置・設備の有機的使用の学際融合研究が必要である。

産研、東北大学多元物質科学研究所（多元研）、北海道大学電子科学研究所（電子研）、東京工業大学資源化学研究所（資源研）がアライアンスを組むことにより、新物質創製、加工、計測・評価、デバイス創製と一貫した研究を進めることができ、研究の格段の進展が期待できる。本事業では、各研究所が得意の分野で相互に連携を組み、相補的・協力的な附置研究所間連携によるネットワーク型研究による戦略的基盤技術開発研究の推進を図るものであり、連携のシステムに重きを置いたプロジェクトである。本アライアンスは、下記の 3 つの研究グループを各研究所に編成し、新物質創製、加工、計測・評価、デバイス創製と縦の繋がりを特徴とした連携研究を進めている。

本アライアンスは、4 研究所からなる運営委員会により運営されているおり、産研からの運営委員は、朝日一教授（代表世話人）、川合知二教授、弘津禎彦教授、安蘇芳雄教授である。

産研のグループ長、副グループ長、兼任教授は次の通りである。

### （1）「分子ナノエレクトロニクス」研究グループ

安蘇芳雄教授（グループ長）、岩崎裕教授（副グループ長）、川合知二教授、田川精一教授

### （2）「新機能ナノエレクトロニクス」研究グループ

弘津禎彦教授（グループ長）、松本和彦教授（副グループ長）、朝日一教授、谷村克己教授、小林光教授

### （3）「ナノ分子メカニクス・バイオメカニクス」研究グループ

加藤修雄教授（グループ長）、野地博行教授（副グループ長）、中谷和彦教授

## 成果

- ・被覆やアンカー導入による機能化分子ワイヤおよびフッ素化アルキル環有機 n 型半導体の開発
- ・有機分子の STM 誘起発光の機構解明と SPM による結晶表面ナノ構造の動的過程の観察
- ・有機半導体単結晶中の電荷キャリアダイナミクスの解明
- ・微細加工電極を用いた機械的破断接合による単一分子計測と絶縁体上電荷観察手法の開発
- ・カーボンナノチューブのコヒーレント伝導と単一正孔伝導の同時観察に成功
- ・低温成長および Si ドーピングによる GaGdN の磁化特性の向上と GaCrN ナノロッドの作製と評価
- ・フェムト秒レーザー励起によるグラファイトから新奇 sp<sup>3</sup>型凝縮相の創成とその機構解明
- ・環境半導体鉄シリサイドナノ粒子形成過程の透過電子顕微鏡「その場」観察
- ・SiC を 120°C で酸化できる硝酸酸化法を開発して、SiC-MOS ダイオードで良好な電気特性を達成
- ・タンパク質の内部・外部表面認識型 GGTase-I 阻害剤の創製
- ・回転分子モータータンパク質の新しい反応中間体の発見とその解析
- ・光応答性 DNA の分子糊を提案し、金表面上での自在な DNA 二重鎖形成を達成

## 分子ナノエレクトロニクス研究グループ

教授（兼） 安蘇 芳雄（グループ長）、岩崎 裕（副グループ長）、  
田川 精一、川合 知二

### a) 概要

有機・分子エレクトロニクス素子に適したナノスケール分子材料の開発を目的として、 $\pi$ 電子共役系の化学修飾による高いキャリア移動度を示す有機半導体材料の開発と、機能化分子ワイヤおよび金属電極接合ユニットの開発と評価を進めている。

ポスト・シリコン・テクノロジーにおいて、種々の原子的に平坦な基板、それらの上のナノ構造の形成、有機物質やタンパク質を用いたデバイスなどは重要な役割が期待されている。又、例えば光を利用した新しい物性・デバイスとして、局在プラズモンと物質との間の局所的電磁相互作用を利用するナノフォトニクス・デバイス応用が注目を集めている。これらのメゾスケールの構造、物性の評価・解析手法の開発を目的として、走査トンネル顕微鏡（**Scanning Tunnelling Microscope, STM**）や原子間力顕微鏡（**AFM**）を用いた、（1）シリコンに加えて $\text{SrTiO}_3$ など種々の原子的に平坦な基板とそれらの上のナノ構造の形成、（2）タンパク質結晶成長、（3）**STM**による有機分子の発光を調べている。

（3）の研究は、岩崎グループが北大電子研三澤グループおよび安蘇グループと共同して行われた。

電極レスで半導体の伝導度測定が可能な時間分解マイクロ波伝導度法を用い、様々な有機・無機エレクトロニクス材料の電気特性を測定し、さらに光過渡吸収分光と組み合わせて移動度の定量やキャリアのダイナミクスを研究した。本年度はルブレン結晶やオリゴチオフェンといった有機材料に加え、無機材料である **MgO** ナノワイヤに対して本手法を適用した。

ナノスケール分子エレクトロニクスの実現に向けて、単一分子の電気特性計測法の開発と、自己組織化とトップダウンプロセスが融合したデバイス作製プロセスを開発している。

### b) 成果

#### ・有機エレクトロニクス材料の開発

n 型有機電界効果トランジスタ材料の開発として、強い電子求引効果とオリゴマーにおける共役平面性保持の観点から、フッ素化およびカルボニル化シクロペンテンを縮環させた各種芳香族系をユニットとするオリゴマーを遷移金属触媒カップリング反応で合成した。幾つかのオリゴマーは最高レベルの電子移動度を有し、大気下でも安定に動作する n 型 **FET** 材料も見いだされている。

#### ・分子エレクトロニクス材料の開発

単分子導電性計測に適した分子ワイヤの構築を目指して、被覆型オリゴチオフェン分子ワイヤの合成を行った。酸化状態の電子吸収スペクトル解析から、通常のオリゴチオフェンと異なり、被覆によって  $\pi$ ダイマー形成が完全に阻害されることが分かった。また、オリゴチオフェン分子ワイヤのナノギャップ電極への接合を目的として、両末端チオールおよびエチニル置換チオフェン **24** 量体（分子長約 **10 nm**）分子ワイヤの合成を達成した。チオールアンカーを有する化合物を用いて、ナノギャップ金電極による分子ワイヤの導電特性に成功した。さらに、確実な金属電極接合と効率的な電子注入の実現を目的として、各種官能基を有するテトラフェニルメタン骨格の三脚型アンカーを開発し、金属電極上での単分子膜の生成と接合状態を評価した。特に、セレン官能基における特異な接合挙動を明らかにしている。

#### ・シリコン、 $\text{SrTiO}_3$ など種々の原子的に平坦な基板とそれらの上のナノ構造の形成

結晶表面のナノ構造の熱的安定性を理解することは、ナノデバイスの開発のために重要である。本研究では、超伝導薄膜などの成長基板として注目されている  $\text{SrTiO}_3$  (**001**) 表面上に、ナノスケールの **3** 次元穴をつくり、その緩和の様子を **STM** でその場観察し、従来の **3** 次元ナノ構造が原子ステップの張力と、ステップ間にはたらく斥力の効果によって崩壊するケースに加えて、本研究ではじめて、

ステップ張力とステップ間の引力の効果で起きる新奇な 3 次元ナノホールの緩和ダイナミクスを発見した。

#### ・タンパク質結晶成長

タンパク質結晶成長においてさまざまな化合物が結晶化剤として有効であることは知られているが、溶液中でのタンパク質分子間相互作用における個々のイオンの役割は未だ理解されていない。本研究ではタウマチン正方晶に一価の陽イオンがもたらす影響について調べ、同じ一価の陽イオンでも、ナトリウムイオンとカリウムイオンではタンパク質分子間相互作用が異なること、それがこれらのイオンとタンパク質分子の特定のアミノ酸残基との相互作用の違いによることが分かった。

#### ・STMによる有機分子の発光《北大電子研三澤研とのアライアンス》

ポスト・シリコン・テクノロジーにおいて、有機物質を用いたデバイスは重要な役割が期待されている。又、電子に加えて、光やスピンを利用することが必須と考えられる。本研究では、岩崎グループが本研究所の安蘇グループ及び九州工大の西谷教授とも共同して、STMを用いたトンネル電子誘起有機分子の発光における非線形光学現象を調べた。HOPG 基板上に金を数ナノメートルから 90 ナノメートルまでの厚さで蒸着し、金局在プラズモンに由来する STM 発光強度を測定した。金 STM 発光が顕著な強度の増大を示し、これが表面のオーバーオールなラフネスではなく、ラフネスの高空間周波数成分のピークと良い対応を示し、このとき表面では特異的に数十ナノメートルの金クラスターが狭いギャップで高密度に存在していることを見いだした。

#### ・単結晶ルブレン中の電荷ダイナミクス

単結晶ルブレン中に光照射で誘起される電荷キャリアのダイナミクスをマイクロ波および光過渡吸収により測定した。溶液中でのナノ秒パストラジオリシスを行い過渡種の同定および吸光係数の定量を行った。マイクロ波・光過渡吸収分光より得られた電極レス AC 電荷移動度は  $0.052 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  となり、ダイナミクスの比較から、ホールと電子のコンポーネントに分離することができた。電荷キャリアの減衰は 2 次のバルク電荷再結合によるものであり、励起密度の増加により減衰速度が増加することが観測され、その速度定数を得た。励起密度依存性をエキシトン-エキシトン消滅から議論し、また、励起三重項の寄与の検討や密度汎関数法の結果との比較を行った。さらに、高角度分解電極レス電気伝導度異方性測定に初めて成功し、ナノメートルスケールの移動度にも結晶軸方向による異方性があることが分かった。

#### ・微細加工電極を用いた機械的破断接合の開発

単分子の電気特性・デバイス特性を詳細に調べるため、電極—分子—電極接合を安定に長時間保持する機械的破断接合 (nano-MCBI) を開発した。通常の MCBI では、室温条件下で金の単原子接点を 10m 秒程度しか保持できないが、nano-MCBI では、これを 100 秒以上安定に保持することができる。

#### ・電極—分子接合の開発

これまでに開発した金—セレン界面の構造と電子状態を明らかにするため、金電極におけるベンゼンセレンオールの自己組織化膜の走査トンネル顕微鏡 (STM) 観察と電子状態計算を行った。STM 観察の結果、ベンゼンセレンオールは、特異な周期構造を形成することが分かり、第一原理計算から得られた最安定構造と一致した。

#### ・絶縁体上電荷観察手法の開発

一般に、走査プローブ顕微鏡を用いたナノスケールの電荷観察のためには、導体の基板を用いた電場変調が必要である。基板が絶縁体のときには、電場変調ができないので、電荷観察は不可能であると考えられてきた。ところが、探針絶先端の不均一電界を利用すれば、絶縁体基板上においてもナノサイズ電荷の計測が可能であることを見出した。

#### ・プラズマプロセスを用いた自己組織化

金属微粒子、有機分子、酸化物など全く異なる種類の物質を自己組織的に互いに結合し、高度は複合構造を形成するためには、一度に全ての構成要素を混ぜたのではうまくいかない。自己組織化のス

トップ間にプラズマプロセスを導入することで、反応活性や溶媒親和性を調整し、分子／微粒子構造体を得る手法を開発した。

[ 原著論文 ]

Electrical Conductance Measurement of Oligothiophene Molecular Wires Using Nano-gap Electrodes Prepared by Electrochemical Plating, N. Hatanaka, M. Endo, S. Okumura, Y. Ie, R. Yamada, Y. Aso, K. Tanaka, and H. Tada, *Chem. Lett.* 36[2] (2007) 224-225.

Synthesis of 10-nm Scale Oligothiophene Molecular Wires Bearing Anchor Units at Both Terminal Positions, M. Endou, Y. Ie, T. Kaneda, Y. Aso, *J. Org. Chem.* 72,[7] (2007) 2659-2661.

Electronegative Oligothiophenes for n-Type Semiconductors: Difluoromethylene-Bridged Bithiophene and Its Oligomers, Y. Ie, M. Nitani, M. Ishikawa, K.-i. Nakayama, H. Tada, T. Kaneda, and Y. Aso, *Org. Lett.* 9[11] (2007) 2115-2118.

Synthesis, Properties, and Structures of Difluoromethylene-bridged Coplanar p-Terphenyl and Its Aryl-capped Derivatives for Electron-transporting Materials, Y. Ie, M. Nitani, and Y. Aso, *Chem. Lett.* 36[11] (2007) 1326-1327.

Electronegative Oligothiophenes Based on Difluorodioxocyclopentene-Annelated Thiophenes: Synthesis, Properties, and n-Type FET Performances, Y. Ie, Y. Umemoto, M. Okabe, T. Kusunoki, K.-i. Nakayama, Y.-J Pu, J. Kido, H. Tada, and Y. Aso, *Org. Lett.* 10[5] (2008) 833-836.

Electronegative Oligothiophenes Fully Annelated with Hexafluorocyclopentene: Synthesis, Properties, and Intrinsic Electron Mobility, Y. Umemoto, Y. Ie, A. Saeki, S. Seki, S. Tagawa, and Y. Aso, *Org. Lett.* 10[6] (2008) 1095-1098.

Perfluoroalkyl-Annelated Conjugated Systems towards n-Type Organic Semiconductors, Y. Ie, Y. Umemoto, M. Nitani, and Y. Aso, *Pure Appl. Chem.* 80[3] (2008) 589-597.

Decay of Multilayer Holes on SrTiO<sub>3</sub>(001), M. Yamamoto, K. Sudoh, and H. Iwasaki, *Surf. Sci.* 601 (2007) 1255-1258.

Evolution of One-Dimensional Gratings with High Aspect Ratios on Si(001) Surfaces by High-Temperature Annealing, J. Nakamura, K. Sudoh, and H. Iwasaki, *Jpn. J. Appl. Phys.* 46 (2007) 7194-7197.

STM Tip-Enhanced Photoluminescence from Porphyrin Film, R. Nishitani, H. Liu, A. Kasuya, H. Miyahira, T. Kawahara, and H. Iwasaki, *Surf. Sci.* 601 (2007) 3601-3604.

Bias Dependence of Tunneling-Electron-Induced Molecular Fluorescence from Porphyrin Films on Noble-Metal Substrates, H. Liu, Y. Ie, R. Nishitani, Y. Aso, and H. Iwasaki, *Phys. Rev. B*, 75 (2007) 115429-1-5.

Mutual Enhancement between Plasmon and Molecular Fluorescence of Conjugated Polymer on Metal Substrates Induced by STM, Y. Lifeng, H. Liu, and H. Iwasaki, *Chem. Phys. Lett.* 433 (2007) 312-316.

STM-Induced Light Emission of Conjugated Polymer Thin Film in Different Chain Aggregations, Y. Lifeng, H. Liu, and H. Iwasaki, *Physica B*, 393 (2007) 6-10.

STM-Excited Molecular Fluorescence from MEH-PPV Conjugated Polymer on Ag and Au, H. Liu, Y. Lifeng, and H. Iwasaki, *Chem. Phys. Lett.* 450 (2007) 101.

Study on Enhancement of Tunneling-Induced Fluorescence from Porphyrin Film by Substrate Plasmon, R. Nishitani, H. Liu, A. Kasuya, and H. Iwasaki, *Journal of Physics*, 61 (2007) 879.

Desymmetrization of the Polyhedral Crystal Shape of Tetragonal Lysozyme due to Face Growth Rate Fluctuations, N. Hori, K. Sudoh, and H. Iwasaki, *J. Cryst. Growth*, 309 (2007) 164-169.

Nano-scale Morphology and Hydrogenation of Si Surfaces in the Early Phase of Hydrogen Annealing, R. Shimizu, H. Kuribayashi, R. Hiruta, K. Sudoh, and H. Iwasaki, *J. Phys.*, IVC-17/ICSS-13 and ICN+T2007, 100 (2008) 012031-012035.

Substrate Effect of STM-Induced Luminescence from Porphyrin Molecules, HW. Liu, Y. Ie, R. Nishitani, TZ. Han, Y. Aso, and H. Iwasaki, *Thin Solid Films*, 516 (2008) 2727-2730.

Effects of Porphyrin Substituents on Film Structure and Photoelectrochemical Properties of Porphyrin/Fullerene Composite Clusters Electrophoretically Deposited on Nanostructured SnO<sub>2</sub> Electrodes, H. Imahori, M. Ueda, S. Kang, H. Hayashi, S. Hayashi, H. Kaji, S. Seki, A. Saeki, S. Tagawa, T. Umeyama, Y. Matano, K. Yoshida, S. Isoda, M. Shiro, N. V. Tkachenko, and H. Lemmetyinen, *Chem. Eur. J.* 13 (2007) 10182-10193.

Molecular Engineering of Coaxial Donor-Acceptor Heterojunction by Coassembly of Two Different Hexabenzocoronenes: Graphitic Nanotubes with Enhanced Photoconducting Properties, Y. Yamamoto, T. Fukushima, A. Saeki, S. Seki, S. Tagawa, N. Ishii, and T. Aida, *J. Am. Chem. Soc.* 129 (2007) 9276-9277.

Radiation Induced One-Step One-pod Polymerization of Functional Conjugated Molecules, Y. Koizumi, S. Seki, K. Okamoto, A. Saeki, and S. Tagawa, *J. Photopolym. Sci. Technol.* 20 (2007) 97-99.

Electronic properties of the charge carriers on oligofluorene backbone, Y. Koizumi, S. Seki, A. Saeki, and S. Tagawa, *Radiat. Phys. Chem.* 76 (2007) 1337-1341.

Reactivity between biphenyl and precursor of solvated electrons in tetrahydrofuran measured by picosecond pulse radiolysis in near-ultraviolet, visible, and infrared, A. Saeki, T. Kozawa, Y. Ohnishi, and S. Tagawa, *J. Phys. Chem. A* 111 (2007) 1229-1235.



Dynamics of photogenerated charge carrier and morphology dependence in polythiophene films studied by in-situ time-resolved microwave conductivity and transient absorption spectroscopy, A. Saeki, S. Seki, Y. Koizumi, and S. Tagawa, *J. Photochem. Photobiol. A* 186 (2007) 158-165.

Stroboscopic picosecond pulse radiolysis using near-ultraviolet-enhanced femtosecond continuum generated by CaF<sub>2</sub>, A. Saeki, T. Kozawa, K. Okamoto, and S. Tagawa, *Jpn. J. Appl. Phys.* 46 (2007) 407-411.

Anchoring Gold Nanoparticles Onto a Mica Surface by Oxygen Plasma Ashing for Sequential Nanocomponent Assembly, A. Takagi, K. Ojima, E. Mikamo, T. Matsumoto, and T. Kawai, *Appl. Phys. Lett.*, 90 (2007) 043122-1-3.

Tunnelling Charge Injection into a Pentacene Layer Using Dynamic-Mode Scanning Force Microscopy, T. Kusaka, K. Ojima, T. Matsumoto, and T. Kawai, *Nanotechnology*, 18 (2007) 095503 (5pp)

Discrete Dihedral-Angle Modulation in Porphyrin Wheels Adsorbed on Cu(100) Observed by Scanning Tunneling Microscopy, A. Takagi, T. Hori, X. Peng, N. Aratani, T. Matsumoto, A. Osuka, and T. Kawai, *Surface Sci.* 601 (2007) 2178-2181

Control of the Electrode-Molecule Interface for Molecular Devices, K. Yokota, M. Taniguchi, and T. Kawai, *J. Am. Chem. Soc.*, 129 (2007) 5818-5819.

Electronic States of The DNA Polynucleotides Poly(dG)poly(dC) in The Presence of Iodine, M. Furukawa, Hiroyuki S. Kato, M. Taniguchi, T. Kawai, T. Hatsui, N. Kosugi, T. Yoshida, M. Aida, and M. Kawai, *Phys. Rev. B*, 75 (2007) 045119-045127.

Infrared Spectroscopy on poly(dG)-Poly(dC) DNA at Low Hydration, H. Abdurakhman, K. Tajiri, H. Yokoi, N. Kuroda, H. Matsui, T. Yanagimachi, M. Taniguchi, T. Kawai, and N. Toyota, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 76 (2007) 024009-024014

Synthesis of Nanometer-Scale Porphyrin Wheels of Variable Size, T. Hori, X. Peng, N. Aratani, A. Takagi, T. Matsumoto, T. Kawai, Z. S. Yoon, M.-C. Yoon, J. Yang, D. Kim, and A. Osuka, *Chem. Eur. J.* 14 (2008) 582-595

Formation and self-breaking mechanism of stable atom-sized junctions, M. Tsutsui, K. Shoji, M. Taniguchi, and T. Kawai, *Nano Lett.* 8 (2008) 345-349.

#### [ 解説、総説 ]

水素雰囲気中高温アニール処理によるシリコン微細構造のナノスケール制御、清水了典、岩崎裕、応用物理, 76[7] (2007) 764-770.

有機薄膜のSTM発光分光、岩崎裕、Liu Hongwen、西谷龍介、表面科学, 29[1] (2008) 50-54.

自己組織化配線法を用いたナノ分子デバイスの開発、谷口正輝、川合知二、ナノ学会会報 6[1] (2007) 23-28.

## [ 著書 ]

「ナノカーボンハンドブック（分筆）」（遠藤守信、飯島澄男監修）、「オリゴチオフェン／フラーレンハイブリッドの開発と電子的機能および素子開発」、安蘇芳雄、家裕隆、エヌ・ティー・エス、(2007) 639-644.

「電子共役系有機材料の創製・機能開発・応用（分筆）」（檜山爲次郎監修）、「オリゴチオフェンの合成と機能」、安蘇芳雄、家裕隆、シーエムシー出版、(2008) 198-208.

「量子ドットの生命科学領域への応用（分筆）」、岩崎裕、シーエムシー出版、(2007).

## [ 特許 ]

「共役系化合物，並びにこれを用いた有機薄膜及び有機薄膜素子」家裕隆、安蘇芳雄、岡部誠、上田将人、特願 2007-311381

「含窒素縮合環化合物，含窒素縮合環重合体，有機薄膜及び有機薄膜素子」家裕隆、二谷真司、安蘇芳雄、上田将人、特願 2008-031972

“Probe device”, Takuya Matsumoto, Yasuhisa Naitoh, Tomoji Kawai, 登録番号 US 7,250,602 B2 登録日 : Jul. 31, 2007

## [ 国際会議 ]

Synthesis and Properties of Conjugated Oligomers Containing Perfluoroalkyl-bridged Terphenyl, \*M. Nitani, Y. Ie, and Y. Aso, 12th International Symposium on Novel Aromatic Compounds, Awaji Island, Japan, July 22-27, 2007.

Synthesis of 10-nm Scale Oligothiophene Molecular Wires Bearing Anchor Units at both Terminal Positions, \*M. Endou, Y. Ie, T. Kaneda, and Y. Aso, 12th International Symposium on Novel Aromatic Compounds, Awaji Island, Japan, July 22-27, 2007.

Thieno[3,2-d]imidazolium-containing Molecular Wire: Switching Behavior of Photoinduced Intramolecular Electron Transfer, \*Y. Ie, T. Kawabata, T. Kaneda, and Y. Aso, 12th International Symposium on Novel Aromatic Compounds, Awaji Island, Japan, July 22-27, 2007.

Fluoroalkyl-Annulated Conjugated Oligomers as n-Type Organic Semiconductors (Invited), \*Y. Aso and Y. Ie, 12th International Symposium on Novel Aromatic Compounds, Awaji Island, Japan, July 22-27, 2007.

Synthesis and Electronics Application of Modified Oligothiophenes (Invited), \*Y. Aso, Post-Symposium of ISNA in Himeji/Harima on Functional Aromatic Compounds, Hyogo, Japan, July 30-31, 2007.

Synthesis and Properties of Conjugated Oligomers Containing Perfluoroalkyl-bridged Terphenyl, \*M. Nitani, Y. Ie, and Y. Aso, 11th SANKEN International Symposium 6th Nanotechnology Center International Symposium 1st MSTEC International Symposium – New Advances in Nanoscience & Nanotechnology -, Awaji Island, Japan, February 4-5, 2008.

Synthesis of 10-nm Scale Oligothiophene Molecular Wires Bearing Anchor Units at both Terminal Positions, \*M. Endou, Y. Ie, T. Kaneda, and Y. Aso, 11th SANKEN International Symposium 6th Nanotechnology Center

International Symposium 1st MSTE International Symposium – New Advances in Nanoscience & Nanotechnology -, Awaji Island, Japan, February 4-5, 2008.

Electronegative Oligothiophenes Based on Difluorodioxocyclopentene-Annulated Thiophenes: Synthesis, Properties, and n-Type FET Performances, \*Y. Ie, M. Okabe, Y. Umemoto, and Y. Aso, 11th SANKEN International Symposium 6th Nanotechnology Center International Symposium 1st MSTE International Symposium – New Advances in Nanoscience & Nanotechnology -, Awaji Island, Japan, February 4-5, 2008.

Nano-scale Morphology and Hydrogenation of Si Surfaces in the Early Phase of Hydrogen Annealing, Ryosuke Shimizu, H. Kuribayashi, R. Hiruta, K. Sudoh, and H. Iwasaki, IVC-17/ICSS-13 and ICN+T2007, Stockholm, Sweden, July 2-6, 2007.

STM-Induced Light Emission from Gold Films, T. Han, H. Liu, K. Sudoh, R. Nishitani, and H. Iwasaki, ChinaNano2007, Beijing, June 4-7, 2007.

Enhanced Luminescence of Porphyrin in STM Nano-Cavity, H. Liu, T. Han, H. Iwasaki, and R. Nishitani, Korea-Japan Joint Forum (KJF) 2007 on Organic Materials for Electronics and Photonics, Seoul, Korea, Sep 27-29, 2007.

Cavity effect in STM junction on the tunneling-induced molecular fluorescence, R. Nishitani, H. Liu, and H. Iwasaki, Korea-Japan Joint Forum (KJF) 2007 on Organic Materials for Electronics and Photonics, Seoul, Korea, Sep 27-29, 2007.

Smoothing of an Atomically Rough Vicinal Surface - STM Observation and MC Simulation, K. Sudoh, H. Iwasaki, T. Irisawa, K. Matsumoto, and M. Uwaha, The 15th International Conference on Crystal Growth, Salt Lake City, USA, August 12-17, 2007.

Cavity effect in STM junction on the tunneling-induced molecular fluorescence, R. Nishitani, H. Liu, H. Iwasaki, 9th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures, Tokyo, Japan, Nov 11-15, 2007.

Cavity Effect and Energy Forbidden Spectra in STM-Induced Molecular Fluorescence, H. Liu, T. Han, Y. Ie, Y. Aso, H. Iwasaki, and R. Nishitani, 9th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures, Tokyo, Japan, Nov 11-15, 2007.

Blue-shift of Molecular Fluorescence from Porphyrin in STM with Bias, H. Liu, T. Han, Y. Ie, Y. Aso, H. Iwasaki, and R. Nishitani, 9th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures, Tokyo, Japan, Nov 11-15, 2007.

STM-excited light emission from Au films on HOPG surface, T.Z. Han, H.W. Liu, K. Sudoh, R. Nishitani, and H. Iwasaki, 9th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures, Tokyo, Japan, Nov 11-15, 2007.

Effects of Na<sup>+</sup> and K<sup>+</sup> on the Molecular Arrangement of Tetragonal Thaumatin Crystals (110) Surface, N. Hori, K. Sudoh, H. Iwasaki, and S. Antoranz Contera, 9th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures, Tokyo, Japan, Nov 11-15, 2007.

Effect of Short Range Step-Step Interactions on Relaxation of Nano-scale Holes on SrTiO<sub>3</sub>(001), M. Yamamoto, K. Sudoh, H. Iwasaki, 9th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures, Tokyo, Japan, Nov 11-15, 2007.

STM-Induced Molecular Fluorescence in Nano-Cavity, H.W. Liu, T.Z. Han, R. Nishitani, Y. Ie, Y. Aso, and H. Iwasaki, 15th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM15), Atagawa, Japan, Dec 6-8, 2007.

Dynamics of Charge Carriers in Single-Crystal Rubrene (Invited), A. Saeki, S. Seki, and S. Tagawa, Trombay Symposium on Radiation & Photochemistry, Pune, India, January 2008.

Self-organized Interconnect Method for Molecular Devices, \*M. Taniguchi, J. Terao, and T. Kawai, CREST-Nanolink joint international workshop on "Electron transport through a linked molecule in nano-scale", Tokyo, Japan, Aug 18-20, 2007.

Surface Potential and Capacitance Images of Biological Molecules on Insulating Substrates, \*T. Matsumoto, F. Yamada, E. Mikamo-Sato, A. Takagi, and T. Kawai, 10th International Non-Contact AFM 2007, Antalya, Turkey, Sep16-20, 2007.

Molecule Recognition Imaging by Frequency Shift Detection in Liquid, \*T. Matsumoto, T. Kawahara, H. Hokonohara, and T. Kawai, 10th International Non-Contact AFM 2007, Antalya, Turkey, Sep.16-20, 2007.

Surface Potential and Capacitance Images of Biological Molecules on Insulating Substrates, \*T. Matsumoto, F. Yamada, E. Mikamo-Sato, A. Takagi, and T. Kawai, 15th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM15), Atagawa, Japan, Dec. 6- 8, 2007

Inelastic Tunneling Spectroscopy of Single Molecule Using Nanofabricated Mechanically Controllable Break-junction (Invited), \*M. Taniguchi, M. Tsutsui, K. Shoji, and T. Kawai, CREST Symposium on Theories and Simulations for Charge Migration and Chemical Reactions at Nano-Scale Interfaces, Tsukuba International Congress Center, Tsukuba, Japan, Jan 29-31, 2008

[ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

安蘇 芳雄      12th International Symposium on Novel Aromatic Compounds (組織委員、財務委員長)  
岩崎 裕      JEJU 2007 ISPM (International Scanning Probe Microscopy Conference), Jeju, South Korea,  
June 10~ 14, 2007 (組織委員)

[ 国内学会 ]

日本化学会      7 件  
有機典型元素化学討論会      1 件

有機 $\pi$ 電子系シンポジウム	2件
構造有機化学討論会	3件
日本化学会関東支部大会	1件
高分子討論会	1件
日本放射線化学会	2件
応用物理学会	19件
日本高分子学会	2件
日本物理学会	7件
分子構造総合討論会	3件
その他	6件

## 新機能ナノエレクトロニクスグループ

教授(兼) 弘津 禎彦(グループ長)、松本 和彦(副グループ長)  
朝日 一、谷村 克己、小林 光

### a) 概要

新機能ナノエレクトロニクスグループでは、下記に示すように半導体を主な素材とし、その材料評価、物性評価、デバイス特性評価の研究を中心に行った。

窒化物半導体をベースとした室温透明発光強磁性半導体を創製・開発し、新規半導体ナノスピントロニクスデバイスの創製を目指した研究を行っている。(朝日)

熱 CVD 成長法、ラマン分光法、原子間力顕微鏡、フォトルミネセンス法を中心技術として、カーボンナノチューブの基本特性制御、カーボンナノチューブデバイスの特性・プロセス制御、そしてカーボンナノチューブのセンサー応用の研究を進めている。(松本)

種々の励起手法を駆使し、電子励起状態を介した物質構造変化の制御・組織化による新規ナノエレクトロニクス材料・構造の創製を目指した研究を展開している。(谷村)

鉄シリサイドナノ結晶形成過程を透過電子顕微鏡「その場」観察を行い、熱処理により非晶質Fe-Siの一部で結晶化が起こり、その領域が沿面方向に広がることにより $\epsilon$ -FeSi連続膜が形成されることを確認した。更なる熱処理により $\epsilon$ 相は消失し、準安定相である $\gamma$ -FeSi<sub>2</sub>が形成されることを確認した。(弘津)

低濃度の硝酸と共沸硝酸を用いる二段階硝酸酸化法によって、120°Cの低温でSiO<sub>2</sub>/SiC構造を創製した。創製したMOSダイオードのリーク電流は高かったが、水素処理を400°Cで施しその後二段階硝酸酸化法でSiO<sub>2</sub>膜を形成した場合、リーク電流が大幅に低減することを示した。(小林)

### b) 成果

#### ・低温成長およびSiドーピングによるGaGdNの磁化特性の向上

遷移金属および希土類添加 GaN は室温で強磁性を示し、しかも、発光性を示すことから、半導体スピントロニクス新材料として非常に注目されている。本年度は、GaN ベース強磁性半導体への磁性原子の取り込み増大を狙いとしてプラズマ励起 MBE 法による低温成長を検討し、GaGdN 強磁性半導体の飽和磁化の増大を確認した。また、Si の同時ドーピングにより更なる飽和磁化の増大を観測した。

#### ・GaCrN ナノロッドの作製と評価

磁性半導体デバイスのナノ構造化として、GaCrNナノロッドの作製を試み、形成条件を明らかとした。GaCrNナノロッドは、自然酸化膜(SiO<sub>2</sub>)付きのn-Si(001)基板上に700°Cで成長したGaNナノロッドの上にCrフラックスを同時供給することにより成長した。基板温度を550°Cに低下させて成長を行なうことによりCrNの析出のないGaCrNナノロッドが形成されることが分かった。成長されたGaCrNナノロッドは、室温強磁性を示すことが確認された。

#### ・カーボンナノチューブを用いたバイオセンサー

CNT 電極と二つの空気駆動型マイクロポンプを搭載した分析システムを組み合わせることで、一つのチップ上で溶液を自動的に交換し、微量物質の測定が可能であることを示した。さらに、酵素を化学修飾したCNT電極と、PDMS製のポンプ付きの微小流路を組み合わせ、バイオチップを作製した。その結果、微量のサンプル溶液を制御し、グルコースの定量分析に成功した。

#### ・低エネルギー電子ビームと半導体表面との相互作用機構の解明

トップダウン方式による固体表面ナノ構造創製手法の展開を目指して、数 eV 以下の低エネルギー電子ビーム励起による半導体構造変化の機構解明の研究を展開した。一つのモデルケースである水素終端された Si (001) 表面では、入射電子の非弾性励起によって、**Si-H** の結合性から反結合性状態への励起が発生し、ボンド切断が局所的に生ずる事、一方、**Si(111)-(7x7)** では、入射電子によるプラズモン励起が、電荷密度変動を誘起して **2** 正孔局在による局所的ボンド切断が発生することを明らかにした。

#### ・トンネル電流励起による InP 表面での原子選択的ボンド切断

走査型トンネル顕微鏡のチップからの **nA** 以下の電流励起によって、**InP(110)-(1x1)** 表面上で、**P** 原子のボンド切断が発生することを新たに見出した。電子注入によってはこのボンド切断は発生せず、閾正孔注入によってのみ発生する。正孔注入のバイアスおよび電流値依存性から、価電子系の光励起の場合と同様に、**2** 正孔局在機構でボンド切断が発生することを明らかにした。

#### ・フェムト秒パルスレーザー励起による Graphite-Diamond 相転移

グラファイト表面のフェムト秒レーザーによる励起によって、**sp<sup>3</sup>** 結合で特徴づけられる新たなナノ構造相が発生する。走査型トンネル顕微鏡によるこの誘起構造相の解明を進め、新構造創製時に発生する面内の原子変位を系統的に明らかにした。更に、**90 K** の低温では、新規相創成に至る中間構造が明確に検出され、局所的な層間結合の形成が相転移の前駆体となっていることが明らかになった

#### ・環境半導体鉄シリサイドナノ粒子形成過程の透過電子顕微鏡「その場」観察

**$\beta$ -FeSi<sub>2</sub>** は「環境半導体」として注目されており、近年精力的な研究が成されている。我々は、イオンビーム技術および電子ビーム蒸着法により本物質の **Si** 単結晶基板上への成長を試みている。本年は、鉄シリサイドナノ結晶形成過程を透過電子顕微鏡「その場」観察を行った。電子ビーム蒸直後の試料では、固相非晶質化によって基板表面に非晶質 **Fe-Si** 連続膜が形成された。熱処理により非晶質 **Fe-Si** の一部で結晶化が起こり、その領域が沿面方向に広がることにより  **$\epsilon$ -FeSi** 連続膜が形成されることが確認された。更なる熱処理により  **$\epsilon$**  相は消失し、準安定相である  **$\gamma$ -FeSi<sub>2</sub>** が形成される。以上の結果は、バルク試料を熱処理したときの構造変化と一致しており、本研究における「その場」観察結果の妥当性を支持している。

#### ・硝酸酸化法を用いる SiC-MOS デバイスの低温創製

低濃度の硝酸と共沸硝酸を用いる二段階硝酸酸化法によって、**120°C** の低温で **SiO<sub>2</sub>/SiC** 構造を創製した。創製した **MOS** ダイオードのリーク電流は高かったが、水素処理を **400°C** で施しその後二段階硝酸酸化法で **SiO<sub>2</sub>** 膜を形成した場合、リーク電流が大幅に低減した。水素処理によるリーク電流密度の低減は、**i) SiO<sub>2</sub>/Si** 界面の平坦化、**ii) SiO<sub>2</sub>** ギャップ準位の除去、**iii) SiO<sub>2</sub>/SiC** 界面でのエネルギー障壁高の増加によるものと結論した。

#### ・SiC の新規洗浄技術の開発

**SiC** 上に存在する金属汚染物は従来の **RCA** 洗浄法では完全には除去できないが、**RCA** 洗浄法と **HCN** 水溶液を用いる洗浄によって完全に除去できることを見出した。

#### [ 原著論文 ]

Growth and Characterization of Ferromagnetic Cubic GaCrN: Structural and magnetic properties, S. Kimura, S. Emura, H. Ofuchi, Y. Zhou, S. Hasegawa and H. Asahi, J. Cryst. Growth 301-302 (2007) 651-655.

Molecular-beam epitaxy growth and characterization of ferromagnetic cubic GaCrN on GaAs substrate, S.

Kobayashi, S. Shanthi, S. Kimura, Y.K. Zhou, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, *J. Cryst. Growth* 308 (1) (2007) 58-62.

High Gd concentration GaGdN grown at low temperatures, Y.K. Zhou, S.W. Choi, S. Kimura, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, *Journal of Superconductivity and Novel Magnetism*, 20 (6) (2007) 429-432.

Cr atom alignment in Cr-delta-doped GaN, S. Kimura, S. Emura, H. Ofuchi, Y. Nakata, Y.K. Zhou, C.W. Choi, Y. Yamauchi, S. Hasegawa and H. Asahi, *American Institute of Physics CP 882* (2007) 410-412.

Single-walled Carbon Nanotube-arrayed Microelectrode Chip for Electrochemical Analysis, J. Okuno, K. Maehashi, K. Matsumoto, K. Kerman, Y. Takamura and E. Tamiya, *Electrochem. Commun.* 9 (2007) 13-18.

Formation of single quantum dot in single-walled carbon nanotube channel using focused-ion-beam technique, K. Maehashi, H. Ozaki, Y. Ohno, K. Inoue, K. Matsumoto, S. Seki, S. Tagawa, *Appl. Phys. Lett.* 90 (2007) 023103/1-3

Label-free protein biosensors based on aptamer-modified carbon nanotube field-effect transistors, K. Maehashi, T. Katsura, K. Matsumoto, K. Kerman, Y. Takamura and E. Tamiya, *Anal. Chem.* 79 (2007) 782-787.

Label-free immunosensor for prostate-specific antigen based on single-walled carbon nanotube array-modified microelectrodes, J. Okuno, K. Maehashi, K. Matsumoto, K. Kerman, Y. Takamura and E. Tamiya, *Biosens. Bioelectron.* 22 (2007) 2377-2381.

Growth of Suspended Single-Walled Carbon Nanotubes by Laser-Irradiated Chemical Vapor Deposition, Y. Asai, Y. Fujiwara, Y. Ohno, K. Maehashi, K. Inoue and K. Matsumoto, *Journal of Physics: Conference Series* 61 (2007) 46-50.

Fermi-level dependent morphology in photoinduced structural instability on (110) surfaces of III-V semiconductors, J. Kanasaki, E. Inami, and K. Tanimura, *Surf. Sci.* 601, 2367-2372 (2007).

Identification of the conduction-band photoemission in time-resolved two-photon photoemission spectroscopy of Si surfaces, T. Ichibayashi and K. Tanimura, *Phys. Rev. B* 75, 235327-1-6 (2007).

Electronic bond rupture of Si atoms on Si(111)-(2x1) induced by valence excitation, E. Inami and K. Tanimura, *Phys. Rev. B* 76, 035311-1-11 (2007).

Scanning tunneling microscopy study on hydrogen removal from Si(001)-(2x1):H surface excited with low-energy electron beam, J. Kanasaki, K. Ichihashi, and K. Tanimura, *Surf. Sci.* 602, 1322-1327 (2008).

Properties of thick SiO<sub>2</sub>/Si structure formed at 120°C by use of two-step nitric acid oxidation method, S. Imai, S. Mizushima, Asuha, W.-B. Kim, and H. Kobayashi, *Appl. Surf. Sci.* 254, 3685-3689 (2008).



Nitric acid oxidation of 3C-SiC to fabricate MOS diodes with a low leakage current density, M. Takahashi, S.-S. Im, M. Madani, and H. Kobayashi, *J. Electrochem. Soc.* 155(1), H47-51 (2008).

Nitric acid method for fabrication of gate oxides in TFT, S. Mizushima, S. Imai, Asuha, M. Tanaka, and H. Kobayashi, *Appl. Surf. Sci.* 254, 3685-3689 (2008).

Nitric Acid Oxidation Method to Form SiO<sub>2</sub>/3C-SiC Structure at 120 °C, S.-S. Im, S. Terakawa, H. Iwasa, and H. Kobayashi, *Appl. Surf. Sci.* 254, 3667-3671 (2008).

#### [ 解説、総説 ]

半導体ナノスピントロニクス材料創製、長谷川繁彦、周逸凱、朝日一、*未来材料* 7 (4) (2007) 34-39.

アモルファス鉄シリサイド薄膜の局所構造と結晶化過程、内藤宗幸、平田秋彦、石丸 学、弘津禎彦、*日本結晶学会誌* 49 (2007) 115-121.

相変化光記録材料の電子線構造解析、内藤宗幸、石丸 学、弘津禎彦、*まてりあ* 46 (2007) 652-659.

#### [ 著書 ]

#### [ 特許 ]

半導体素子ならびに半導体素子製造法、長澤弘幸、八田直紀、河原孝光、小林光、特願 2007-293258.

絶縁膜形成方法、絶縁膜形成装置、半導体装置の製造方法、および半導体装置並びにシリコンカーバイドの基板の表面処理方法、小林光、PCT/JP2007/64759.

#### [ 国際会議 ]

MBE Growth and Characterization of Rare-Earth Doped Nitride Semiconductors for Spintronics (INVITED), H. Asahi, Y.K. Zhou, S. Emura and S. Hasegawa, E-MRS2007, Strasbourg, France, May 28- June 1, 2007.

High Gd concentration GaGdN grown at low temperature, Y.K. Zhou, S.W. Choi, S. Kimura, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, SpinTech-IV, Hawaii, USA, June 20-22, 2007.

Enhancement of magnetic moment in GaGdN/GaN superlattice structure, Y.K. Zhou, S.W. Choi, S. Kimura, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, Material Today Asia, Loong Palace Hotel, Beijing, China, September 3-5, 2007.

Growth and characterization of InCrN and (In,Ga,Cr)N diluted magnetic semiconductors, S. Kimura, S. Emura, Y. Hiromura, Y.K. Zhou, S. Hasegawa and H. Asahi, 7th International Conference on Nitride Semiconductors, Las Vegas, Nevada, USA, September 16-21, 2007.

High-sensitive Label-free Biosensors Based on Carbon Nanotube Field-effect Transistors Modified with Aptamer, K. Maehashi, T. Katsura, K. Matsumoto, K. Kerman, Y. Takamura and E. Tamiya, *NSTI Nanotech 2007 (2007)* May 20-24, Santa Clara, USA

Coulomb Oscillations at Room-Temperature of Single-Walled Carbon Nanotube Field-Effect Transistors, Y. Ohno, Y. Asai, K. Maehashi, K. Inoue, K. Matsumoto, *NSTI Nanotech 2007 (2007)* May 20-24, Santa Clara, USA

Microfluidic Amperometric Biochips Based on Carbon Nanotube Arrayed Electrode, Y. Tsujita, K. Maehashi, K. Matsumoto, H. Kwon, Y. Takamura and E. Tamiya, *2007 Int. Conf. on Solid State Device and Materials (2007)* Sept. 18-21, Tsukuba, Japan

Improvement of Hysteresis Characteristics in Carbon Nanotube Field-Effect Transistor, K. Nishiguchi, Y. Ohno, K. Maehashi, K. Inoue, and K. Matsumoto, *The 34th International Symposium on Compound Semiconductors, (2007)* Oct. 15-18, Kyoto, Japan

Laser-Irradiated Chemical Vapor Deposition for Growth of Single-Walled Carbon Nanotube, Y. Asai, Y. Fujiwara, K. Maehashi, Y. Ohno, K. Inoue, and K. Matsumoto, *The 34th International Symposium on Compound Semiconductors, (2007)* Oct. 15-18, Kyoto, Japan

Excitation-induced atomic desorption and structural instability of semiconductor surfaces (INVITED), K. Tanimura, *11<sup>th</sup> international workshop on "Desorption Induced by Electronic Transitions, March 11-15, 2007, Berlin, Germany*

Excitation-wavelength dependent ultrafast carrier dynamics on Si surfaces, T. Ichibayashi, S. Tanaka, and K. Tanimura, *11<sup>th</sup> international workshop on "Desorption Induced by Electronic Transitions", March 11-15, 2007, Berlin, Germany*

Hydrogen removal from Si(001)-2x1:H surface induced by low-energy electron beam excitation, K. Ichihashi, J. Kanasaki, and K. Tanimura, *11<sup>th</sup> international workshop on "Desorption Induced by Electronic Transitions", March 11-15, 2007, Berlin, Germany*

In situ TEM study on the formation process of iron silicide nanoparticles on Si substrate, J. H. Won, A. Kovacs, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, *Materials Research Society 1998 Fall Meeting, Boston, USA (2007.11)*

Fabrication of Oriented Hard-Magnetic Alloy Nanoparticles and Their Characterization, Y. Hirotsu, K. Sato, A. Kovacs, H. Naganuma, H.W. Ryu, *1st International Symposium on Advanced Magnetic Materials, Sendai (2008.1).*

Nitric Acid Oxidation of Si and SiC for the Low Temperature Fabrication of MOS Structure, H. Kobayashi, Asuha, T. Matsumoto and M. Takahashi, *International Seminar on Semiconductor Surface Passivation 2007.*

Surface Chemistry in Si Cleaning with Cyanides Solutions, M. Takahashi, Y.-L. Liu and H. Kobayashi, *International Seminar on Semiconductor Surface Passivation 2007.*

Photoluminescence of Passivated a-Si:H, R. Btunner, E. Pincik, H. Kobayashi, M. Takahashi, M. Kucera and J. Rusnak, International Seminar on Semiconductor Surface Passivation 2007.

Nitric Acid Oxidation of Si (NAOS) and Defect Passivation Etch-Less Cleaning (DPEL) Methods to Improve Si Device Characteristics, T. Matsumoto, Asuha, Y.-L. Liu, S. Imai, S. Mizushima, M. Takahashi and H. Kobayashi, 3rd Handai Nano Symposium.

Nitric Acid Oxidation of SiC for Fabrication of 3C-SiC Based MOS Devices, H. Kobayashi, S. Im, M. Takahashi and H. Nagasawa, International Conference on Silicon Carbide and Related Materials 2007.

Removal of Copper Adsorbate from Silicon Surfaces by the use of Semiconductor Cleaning Solutions with Capability of Defect Passivation, M. Takahashi, H. Narita, T. Shishido, H. Iwasa and H. Kobayashi, 11th Sanken, 6th Nanotechnology Center and 1st MSTEC International Symposium.

[ 国際会議の組織委員、国際雑誌の編集委員 ]

- 朝日 一 15th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (国際諮問委員)  
朝日 一 International Symposium on Compound Semiconductors 2007  
(組織委員、プログラム委員)  
朝日 一 Journal of Crystal Growth (編集委員)  
朝日 一 J. Materials Science: Materials in Electronics (Editorial Board 委員)  
松本和彦 International Conference on Solid State Device & Materials 2007  
(プログラム委員会サブコミッティーチェア)  
松本和彦 International Conference on Compound Semiconductor 2007 (プログラム委員)  
松本和彦 International Symposium on Nanotechnology (実行委員)  
松本和彦 IEEE Nanotechnology (Associate Editor)  
松本和彦 Japanese Journal of Applied Physics (Editor、STAP 7 Special Editor in Chief)  
谷村克己 11<sup>th</sup> international workshop on Desorption Induced by Electronic Transitions  
(国際組織委員)  
弘津 禎彦 7<sup>th</sup> Polish-Japanese Joint Seminar on Micro and Nano Analysis (顧問委員)  
石丸 学 Japanese Journal of Applied Physics (編集委員)  
小林光 Applied Surface Science (Editor-in-Chief)  
小林光 Vth International Workshop on Semiconductor Surface Passivation (International Scientific  
Committee)  
小林光 4<sup>th</sup> Vacuum and Surface Science Conference of Asia and Australia (Publishing Committee)

[ 国内学会 ]

- |   |      |
|---|------|
| 応用物理学会  | 36 件 |
| PASPS シンポジウム  | 5 件  |
| 電子材料シンポジウム  | 1 件  |
| International Conference on Solid State Device & Materials 2007 | 2 件  |
| 物理学会  | 12 件 |
| 日本金属学会  | 7 件  |
| 日本顕微鏡学会   | 4 件  |
| 表面科学会   | 2 件  |

表面・界面分光学会 1件

[ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

特別推進研究

谷村克己 光誘起構造相転移動力学の研究 188,110

特定領域研究

朝日 一 InN をベースとした長波長円偏光半導体レーザ創製に関する研究 3,700  
 弘津 禎彦 融体・金属ガラスの局所原子構造のその場観察 9,800

基盤研究 (S)

弘津 禎彦 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 14,430

基盤研究 (A)

谷村克己 表面励起物性の研究 2,300

基盤研究 (B)

朝日 一 室温強磁性窒化物半導体ナノ構造とナノスピントロニクスデバイス応用に関する研究 5,500

萌芽研究

谷村克己 可視光励起によるグラファイト・ダイヤモンド構造相転移に関する研究 1,500

(分担者として配分されたもの)

学術創成研究

朝日 一 希土類元素添加の精密制御による物性・機能性の開拓 (代表者：藤原康文) 30,420

[ その他の競争的研究資金 ]

松本和彦 科学技術振興機構 戦略的創造研究 戦 カーボンナノチューブ単一電子・スピン計測システム 65,000

松本和彦 新エネルギー・産業技術総合開発機構 パーソナル QOL システムのための CNT 超高感度生体分子センサーの研究開発 18,000

弘津 禎彦 (財) 次世代金属・複合材料研究開発協会 NEDO (革新的部材産業創出プログラム) 3,150

弘津 禎彦 松下電工(株) ガラスに塗布された無機及び有機材料の組織形態に関する研究 400

小林光 科学技術振興機構 戦略的創造研究 戦 硝酸酸化法による TFT ゲート酸化膜の低温創製と低消費電力化 53,469

小林光      日本学術振興会 二国      新規欠陥消滅法及び低温酸化法のメカニズム      **2,458**  
間交流事業      とシリコン太陽電池への応用

## ナノ分子メカニクス・バイオメカニクス研究グループ

教授（兼） 加藤 修雄（グループ長）、野地 博行（副グループ長）、中谷 和彦

### a) 概要

本研究グループでは、分子モーターのようなバイオメカニクスから DNA 等の関連分野まで、新物質創製、ナノ光加工、微小力計測・ナノ計測・微小空間ダイナミクス評価などの研究を行って自己組織化により機能するデバイス創製を目指し研究を進めている。加藤グループでは、天然物由来もしくはペプチドミメティクスなどの低分子による細胞内信号伝達経路の制御と光応答型ペプチド核酸を用いた遺伝子発現制御を目指し研究を進めた。野地グループでは北大電子研の永井グループおよび東工大資源研の吉田グループと共同して、1 分子計測技術とマイクロデバイスを用いた ATP 合成酵素のエネルギー変換メカニズムの解明について研究を進めた。さらに、ATP の蛍光プローブを開発し、細胞内における ATP 濃度のダイナミクスを計測した。中谷グループでは自発的に二本鎖形成しない DNA を貼り合わせる「DNA の分子糊」に光応答機能を付与し、溶液中や界面での DNA 二本鎖形成の光制御の実現を目指して研究を進めた。

### b) 成果

#### ・タンパク質の内部・外部表面認識型 GGTase-I 阻害剤の創製

作用面が広く構造的長に乏しいタンパク質間相互作用の低分子化合物による制御法の開発を指向し、がん化と密接に関わる GGTase-I の内部および外部表面認識能を併せ持つ阻害剤を設計・合成した。速度論的解析の結果、競合型阻害機構であること、類縁酵素である FTase の場合に比較し、GGTase-I に対して 150 倍以上の選択的阻害活性を有することも明らかとなり、本手法がタンパク質外部表面の位置選択的認識に有効であることを示した。

#### ・「細胞内 ATP 可視化のための蛍光タンパク質」の開発

これまで、個々の細胞内の ATP 濃度を計測する手法は存在しなかった。しかしながら、細胞内 ATP 濃度は細胞のエネルギー状態にとどまらずアポトーシスやインシュリン分泌などのシグナル伝達物質としても機能していることが示唆されており、その定量的計測法の確立が求められていた。そこで、本研究では北大電子研の永井研究室と共同で ATP 濃度に応じて蛍光強度（正確には蛍光エネルギー移動効率）が変化する蛍光タンパク質の開発を行った。その結果、細胞内 ATP の変化範囲である mM レベルの親和性をもつ蛍光タンパク質プローブの開発に成功した。

#### ・回転分子モーターのエネルギー変換メカニズムの研究

回転分子モーターである F<sub>1</sub>-ATPase は、ATP 加水分解によって分子内部の回転子を回転させる。この化学-力学エネルギー変換メカニズムを解明するために、ATP 加水分解反応を構成する個々の素反応がどのように回転運動と共役しているのかを研究している。低温度で回転観察をしたところ新しい温度感受性の強い反応ステップが発見された。速度論的解析から、この反応が ADP 解離反応であることが示唆された。本研究は、東工大資源研の吉田研究室と共同で行った。

#### ・「光応答性 DNA 分子糊」の開発

自発的に二重鎖形成しない 2 本の DNA を貼り合わせる分子糊を既に提案・実証しているが、本年度は光シース-トランス異性化するアゾベンゼンを分子糊に組み込むことにより、光で DNA の二重鎖形成を任意に制御出来る光応答性 DNA の分子糊の研究を行い、それを開発した。

### [ 原著論文 ]

Fusicoccins are biosynthesized by an unusual chimera diterpene synthase in fungi, T. Toyomasu, M. Tsukahara, A. Kaneko, R. Niida, W. Mitsuhashi, T. Dairi, N. Kato, and T. Sassa, Proc. Nat. Acad. Sci. USA. 104 (2007) 3084-3088.

Module assembly for protein-surface recognition: Geranylgeranyltransferase I bivalent inhibitors for simultaneous targeting of interior and exterior protein surfaces, S. Machida, K. Usuba, M. A. Blaskovich, A. Yano, K. Harada, S. M. Sebti, N. Kato, and J. Ohkanda, *Chem. Eur. J.* 14 (2008) 1392-1401.

Visualization of RecA filaments and DNA by fluorescence microscopy, T. Nishinaka, Y. Doi, M. Hashimoto, R. Hara, T. Shibata, Y. Harada, K. Kinoshita Jr., H. Noji, and E. Yashima, *J. Biochem.* 141 (2007) 147-156.

Single molecule energetics of F<sub>1</sub>-ATPase motor, E. Muneyuki, T. Watanabe-Nakayama, T. Suzuki, M. Yoshida, T. Nishizaka, and H. Noji, *Biophys. J.* 92 (2007) 1806-1812.

Coupling of Rotation and Catalysis in F<sub>1</sub>-ATPase Revealed by Single-Molecule Imaging and Manipulation, K. Adachi, K. Oiwa, T. Nishizaka, S. Furuie, H. Noji, H. Itoh, M. Yoshida, and K. Kinoshita Jr., *Cell* 130 (2007) 309-321.

Thermally responsive supramolecular nanomeshes for on/off switching of the rotary motion of F<sub>1</sub>-ATPase at the single-molecule level, S. Yamaguchi, S. Matsumoto, K. Ishizuka, Y. Iko, K.V. Tabata, H.F. Arata, H. Fujita, H. Noji, and I. Hamachi, *Chemistry* 14 (2007) 1891-1896.

An integrated system for enzymatic cleavage and electrostretching of freely-suspended single DNA molecules, L. Lam, S. Sakakihara, K. Ishizuka, S. Takeuchi, and H. Noji, *Lab on a Chip* 7 (2007) 1738-1745.

Temperature-sensitive reaction intermediate of F<sub>1</sub>-ATPase, R. Watanabe, R. Iino, K. Shimabukuro, M. Yoshida, and H. Noji, *EMBO Reports* 9 (2008) 84-90.

Lipid bilayer microarray for parallel recording of transmembrane ion currents, B. Le Pioufle, H. Suzuki, K.V. Tabata, and H. Noji, and S. Takeuchi, *Anal. Chem.* 80 (2008) 328-332.

Detection of L-DNA-Tagged PCR Products by Surface Plasmon Resonance Imaging, G. Hayashi, M. Hagihara, A. Kobori, and K. Nakatani, *ChemBioChem.* 8 (2007) 169-171.

Bidirectional control of gold nanoparticle assembly by turning on and off DNA hybridization with thermally degradable molecular glue, T. Peng, C. Dohno, and K. Nakatani, *ChemBioChem.* 8 (2007) 483-485.

Small-Molecule Binding to the Nonquadruplex Form of the Human Telomeric Sequence, Y. Goto, S. Hagihara, M. Hagihara, and K. Nakatani, *ChemBioChem.* 8 (2007) 723-726.

Allele Specific C-Bulge Probes with One Unique Fluorescent Molecule Discriminate the Single Nucleotide Polymorphism in DNA, F. Takei, H. Suda, M. Hagihara, J. Zhang, A. Kobori, and K. Nakatani, *Chem. Eur. J.* 13 (2007) 4452-4457.

Exploiting small molecule binding to DNA for the detection of single-nucleotide mismatches and their base environment, X. Li, H. Song, K. Nakatani, and H.-B. Kraatz, *Anal. Chem.* 79 (2007) 2552-2555.

The rare crystallographic structure of d(CGCGCG)(2): the natural spermidine molecule bound to the minor groove of left-handed Z-DNA d(CGCGCG)(2) at 10 °C, H. Ohishi, Y. Tozuka, Z. Da-Yang, T. Ishida, and K. Nakatani, *Biochem. Biophys. Res. Commun.* 358 (2007) 24-28.

Analysis of mismatched DNA by mismatch binding ligand (MBL)-Sepharose affinity chromatography, Y. Goto, H. Suda, A. Kobori, and K. Nakatani, *Anal. Bioanal. Chem.* 388 (2007) 1165-1173.

Emission of characteristic fluorescence from the ligand-cytosine complex in U<sub>A</sub>/ACU bulged RNA duplex, J. Zhang, F. Takei, and K. Nakatani, *Bioorg. Med. Chem.* 15 (2007) 4813-4817.

Photoregulation of a Peptide-RNA Interaction on a Gold Surface, G. Hayashi, M. Hagihara, C. Dohno, S. Uno, and K. Nakatani, *J. Am. Chem. Soc.* 129 (2007) 8678-8679.

Photoswitchable Molecular Glue for DNA, C. Dohno, S. Uno, and K. Nakatani, *J. Am. Chem. Soc.* 129 (2007) 11898-11899.

Polyamines stabilize left-handed Z-DNA: Using X-ray crystallographic analysis, we have found a new type of polyamine (PA) that stabilizes left-handed Z-DNA, H. Ohishi, M. Odoko, K. Grzeskowiak, Y. Hiyama, K. Tsukamoto, N. Maezaki, T. Ishida, T. Tanaka, N. Okabe, K. Fukuyama, D.-Y. Zhou, and K. Nakatani, *Biochem. Biophys. Res. Commun.* 366 (2008) 275-280.

The crystallographic study of left-handed Z-DNA d(CGCGCG)<sub>2</sub> and thermine complexes crystallized at various temperatures and at various concentration of cations, H. Ohishi, M. Odoko, D.-Y. Zhou, Y. Tozuka, N. Okabe, K. Nakatani, T. Ishida, and K. Grzeskowiak, *Biochem. Biophys. Res. Commun.* 368 (2008) 382-387.

Ligand-Stabilized Hairpin Structures Interfered with Elongation of Human Telomere, M. Hagihara, Y. Goto, and K. Nakatani, *ChemBioChem.* 9 (2008) 510-513.

[ 国際会議 ]

Design and Evaluation of Bivalent Enzyme Inhibitors for Simultaneous Recognition of Interior and Exterior Protein Surfaces, \*J. Ohkanda, S. Machida, and N. Kato, Gordon Research Conference, Bioorganic Chemistry, New Hampshire, USA, June 10-15, 2007.

An Unusual Chimera Diterpene Synthase Is Responsible for Fusicoccin Biosynthesis, \*T. Toyomasu, M. Tsukahara, A. Kaneko, R. Niida, C. Ikeda, W. Mitsuhashi, T. Dairi, N. Kato, and T. Sassa, 19th International Conference on Plant Growth Substances, Rivera Maya, Cancun, Mexico, July 21-25, 2007.

Bivalent Inhibitors of Type-I Geranylgeranyltransferase for Simultaneous Recognition of Interior and Exterior Protein Surfaces, \*J. Ohkanda, S. Machida, N. Kato, M. A. Blaskovich, S. M. Sebti, and K. Harada, American Chemical Society 234th National Meeting, Boston, USA, August 19-23, 2007.

Fusicoccin Derivatives as Therapeutic Agents Based on Induction of Differentiation, \*Y. Honma, M. Akimoto, T. Sassa, and N. Kato, 19th EORTC-NCI-AACR Symposium on "Molecular Targets and Cancer Therapeutics", San Francisco, USA, October 22-26, 2007.

Synthesis and Evaluation of VIS-Sensitive Azobenzene Derivatives for Controlling Cellular Gene Expressions, \*K. Kaihatsu, S. Sawada, and N. Kato, 11th Sanken International Symposium, Awaji, Japan, February 2-4, 2008.

Synthesis of Green Tea Catechin Derivatives and Evaluation of Their Anti-influenza Virus Activity, \*S. Mori, S. Miyake, K. Kaihatsu, and N. Kato, 11th Sanken International Symposium, Awaji, Japan, February 2-4, 2008.

Dual Inhibitors of Protein Prenyltransferase: Activity-tuning by Target Protein Surfaces, \*S. Machida, N. Kato, and J. Ohkanda, 11th Sanken International Symposium, Awaji, Japan, February 2-4, 2008.

Synthesis and Biological Evaluation of Fusicoccin Derivatives, \*T. Inoue, Y. Maruyama, H. Nitta, J. Ohkanda, and N. Kato, 11th Sanken International Symposium, Awaji, Japan, February 2-4, 2008.

Single Molecule Studies on F<sub>1</sub>-ATPase, \*H. Noji, 3rd Work Shop of the UK-Japan Bionanotechnology Collaboration, Oxford, UK, July 19, 2007.

Rapid detection of drug efflux from single bacterial cell enclosed in femtoliter chamber array, \*R. Iino, K. Nishino, M. Nakata, E. Nikaido, Y. Matsumoto, S. Sakakihara, S. Takeuchi, A. Yamaguchi, and H. Noji, *Micro Total Analysis Systems 2007*, Paris, France, October 7-11, 2007.

Versatile Acrylamide-based Microchambers for Single Molecular Biological Assays and Analysis, \*L. Lam, S. Sakakihara, K. Ishizuka, S. Takeuchi, and H. Noji, *Micro Total Analysis Systems 2007*, Paris, France, October 7-11, 2007.

Single Molecule Studies on F<sub>1</sub>-ATPase, \*H. Noji, Autumn School for PhD Students and Young Researcher (NAMIS) 2007, Tokyo, Japan, November 5, 2007.



Single Molecule Studies on F<sub>1</sub>-ATPase, \*H. Noji, The 6th JSPS Forum in France, "Chemical and Physical Nanobiology for Medicine", Strasbourg, France, November 23, 2007.

ATP-driven Rotation of FoF<sub>1</sub>-ATP Synthase Reconstituted into Supported Membrane. \*R. Iino, K. V. Tabata, H. Ueno, R. Hasegawa, and H. Noji, The Joint Biophysical Society 52nd Annual Meeting and 16th International Biophysics Congress, California, USA, February 2-6, 2008.

Fluorescence Imaging of Intracellular ATP Using A FRET-based Probe. \*H. Imamura, K. Saito, K. P. H. Nhat, R. Iino, Y. Yamada, T. Nagai, and H. Noji, The Joint Biophysical Society 52nd Annual Meeting and 16th International Biophysics Congress, California, USA, February 2-6, 2008.

Single Molecule Studies on F<sub>1</sub>-ATPase, \*H. Noji, International Symposium on Hierarchy and Holism (ISHH), "Bridging across Different Hierarchies in Natural Sciences", Okazaki, Japan, February 23, 2008.

Mismatch-Binding Ligands as a Molecular Glue for DNA, \*C. Dohno, T. Peng, and K. Nakatani, 7th International Meeting on Recognition Studies in Nucleic Acids, Sheffield, UK, April 1-5, 2007.

Photoswitchable Mismatch-Binding Ligands Control DNA Hybridization, C. Dohno, S. \*Uno, M. Oku, and K. Nakatani, 7th International Meeting on Recognition Studies in Nucleic Acids, Sheffield, UK, April 1-5, 2007

Mismatch-Binding Ligands: Chemistry Approach to Genotyping, \*K. Nakatani, International Symposium on Advanced Functional Genomics, Kazusa DNA Research Institute, Chiba, Japan, October 11, 2007.

Molecular Glue for DNA, \*K. Nakatani, The 13th Korea-Japan Seminar on Organic Chemistry, Department of Chemistry, KAIST, Daejeon, Korea, October 20-21, 2007.

Reversible regulation of binding between a photoresponsive peptide and its RNA aptamer, \*G. Hayashi, M. Hagihara, C. Dohno, M. Oku, and K. Nakatani, 5th International Symposium on Nucleic Acids Chemistry, Tokyo, Japan, November 20-22, 2007.

Reversible Control of DNA Hybridization by Photoresponsive Ligands, \*S. Uno, C. Dohno, M. Oku, and K. Nakatani, 5th International Symposium on Nucleic Acids Chemistry, Tokyo, Japan, November 20-22, 2007.

Application for the Fluorescent Detection of Single Nucleotide Difference using Cytosine Bulge Hairpin Primers, \*F. Takei, M. Hagihara, Y. Oka, and K. Nakatani, 11th Sanken International Symposium, Awaji, Japan, February 2-4, 2008.

Switching DNA hybridization by a molecular glue for DNA, \*T. Yamamoto, C. Dohno, S. Uno, and K. Nakatani, 11th Sanken International Symposium, Awaji, Japan, February 2-4, 2008.

Displacement Assay For RNA-ligand Interactions, Using Ligand's Fluorescent Property, \*S. Umemoto, J. Zang, and K. Nakatani, 11th Sanken International Symposium, Awaji, Japan, February 2-4, 2008.

[ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ]

加藤 修雄 24<sup>th</sup> Conference on Combinatorial Chemistry, Japan (議長)  
加藤 修雄 25<sup>th</sup> Conference on Combinatorial Chemistry, Japan (組織委員)

[ 国内学会 ]

日本化学会第 87 春季年会	14 件
第 45 回日本生物物理学会	11 件
日本生体エネルギー研究会 第 33 回 討論会	4 件
第 2 回日本ケミカルバイオロジー研究会年会	3 件

日本農芸化学会 2008 年度大会	3 件
第 34 回核酸化学シンポジウム	2 件
日本化学会西日本大会 2007	2 件
<b>SORST ジョイントシンポジウム (8)</b>	2 件
サポーテッドメンブランワークショップ	2 件
第 34 回有機反応懇談会	2 件
第 22 回生体機能関連化学シンポジウム	1 件
第 67 回日本癌学会学術総会	1 件
2007 年 光化学討論会	1 件
第 9 回 RNA ミーティングシンポジウム	1 件
日本薬学会第 128 年会	1 件
第 11 回生体触媒化学シンポジウム	1 件
第 29 回日本バイオマテリアル学会	1 件
情報計算化学生物学会 2007 年次大会	1 件
第 10 回生命化学研究会	1 件

### [ 科学研究費補助金 ]

(代表者として配分されたもの)

単位：千円

特定領域研究		
野地 博行	FoF1-ATP 合成酵素の回転動作機構の解明	49,800
基盤研究 (S)		
中谷 和彦	ミスマッチ塩基対安定化を基盤とした核酸構造制御による機能発現調節	34,500
基盤研究 (A)		
野地 博行	超微小溶液チャンバーを用いた生体分子 1 分子計測技術の開発	15,600

### [ 受託研究 ]

加藤 修雄	医薬基盤研究所 (保健医療分野における基礎研究推進事業)	ジテルペン配糖体をリードとした分化誘導型新規抗がん剤の開発	34,000
-------	------------------------------	-------------------------------	--------

# 生体ゆらぎに学ぶ知的人工物と情報システム

特任教授（常勤）	河原 敏男
特任准教授（常勤）	浅川 直紀
特任助教（常勤）	神吉 輝夫
特任助教（常勤）	堀田 育志

## a) 概要

「生体ゆらぎに学ぶ知的人工物と情報システム」（「生体ゆらぎ」）は「先端融合領域イノベーション創出拠点の形成」のプロジェクトとして、生体システムの機能発現の仕組みを「ゆらぎの利用」の視点から徹底的に追求して新しいコンセプトを創出し、その知見を取り入れた新しいナノ材料物質科学、情報システム科学、ロボット工学を構築することによって、生体特有の柔軟な機能を実現した新しい知的人工物及び情報システムの創成を目指す。協働機関として民間企業 7 社が本研究に参画する。以上のように、「ゆらぎの利用」に焦点を当てて、基礎科学から産業化・実用化技術に至る真のイノベーション創出を目指す。

本研究の推進方策として、頑強で柔軟な生命機能を実現している「ゆらぎ」を計測・解析し、生体のエネルギー変換・情報処理に触発された新しい原理に基づく物質機能の創成へと応用展開を図る。ゆらぎを効率的に活用する新しい原理がアトラクター選択モデルである。このモデルでは、ゆらぎ存在下で、環境(activity)によりアトラクターを持つダイナミクスが変形する。すなわち、従来の材料工学では取り除くことが目的であったゆらぎ(物性値の不規則性)を有効に利用し、決定論的モデルを超えたゆらぎアトラクター選択モデルを実現することで、頑強かつ柔軟なゆらぎ素子を創製するということになる。また、材料内の多谷ポテンシャルを有効に利用して、アトラクターを持つ制御構造を表現することも重要である。そこで、アトラクター選択素子を構成する基本となるゆらぎ素子の構造を明らかにし、それらの特性を調べることにより物理パラメータの探求を行っている。そして、ゆらぎ素子化のためのゆらぎ材料の探索開発を行い、さらに、プロセス・機能開発を行っている。また、生体ゆらぎを計測するための評価技術の開発も行う。

## b) 成果

### ・ 確率共振現象を用いたゆらぎアトラクター選択デバイスの設計

従来、カオスシステムやニューラルネットワークシステムは、脳に似た柔軟な情報処理システムとして研究開発されてきた。しかし、これらは基本的には決定論的な動作をするシステム、あるいは教師信号を基礎とする学習ベースのシステムであるため、未経験の事象や環境の変化に対応できず破綻していた。そこで我々は、確率論的な動作を基礎として、未経験の事象や変動環境からの入力信号に対してシステム破綻をきたすことなく柔軟な情報抽出処理を行うデバイスを考案し、具現化を目指している。そのために、以下のような多状態システムを考える。システムは、環境情報を基礎として、システムに内包するあるいは外部からのノイズによって状態遷移することができ、常に最適な状態を選択することが可能なものである。このようなシステムを記述する数理モデルとして、Langevin方程式から派生した「ゆらぎの式」がある。

$$Dx/dt=f(x)+\eta$$

ここで、 $x$  はシステムの状態、 $f(x)$  はシステムの各状態のポテンシャル、 $A$  はシステムが環境情報を基にその時の最適状態にどの程度近いかを反映したアクティビティ、 $\eta$  はノイズを各々表す。一方、確率共振(SR)現象はLangevin方程式に従う現象として生物学・情報数学の基礎学問分野や光学システム・電磁気工学システムなどの工学分野において研究されてきた。本研究では、環境情報センサからの

入力信号を基に、複数のSR素子を用いた遅延フィードバック回路によりアトラクター選択が可能なデバイスの設計を行った。

#### ・確率共振を用いたゆらぎ発振器

生体システムは、確率的要素を巧みに利用してシステムの状態をゆらかせ、柔軟性や頑強性を獲得している。本研究では、生体の確率的動作の根源である確率共振現象を発振器動作に取り入れることによって、発振器にゆらぎを持たせることを試みた。作製した発振器は、ノイズ入力を受けて発振周期のゆらぎを伴った自励発振を示し、外部からの突発的な信号入力に対しても柔軟に応答することが分かった。

#### ・スピנקラスタ型スピネルフェライト薄膜の室温光誘起強磁性とスピン伝導機能

スピネルフェライト $\text{Al}_{0.2}\text{Ru}_{0.8}\text{Fe}_2\text{O}_4$ 薄膜において、室温で光誘起磁化を示した。加えて、この薄膜は、非常に小さな飽和磁化 ( $0.6\mu_B/\text{unit cell}$ ) と、スピン分極率が計算見積りにより75%以上あることが示唆され、スピンエレクトロニクス応用への材料として期待できることが分かった。また、室温光誘起磁性とスピンエレクトロニクス特性を兼ね合わせることによって、光という次元性を加味しスピントロニクス分野を拓げる事ができると考えられる。また、スピングラスの持つ磁気ゆらぎ特性においても、高い効率で電気伝導ゆらぎ特性に変換できる可能性があることが考えられ、ゆらぎ材料においても非常に有望な材料である。

#### ・カーボンナノチューブ用コバルト触媒のアークプラズマガンによる成長制御

カーボンナノチューブ(CNT)は次世代集積素子用材料として期待されているが、例えば電界効果素子を作製するとノイズの大きいことが知られている。そして、素子化のためには、特性制御を目標にCNTの成長条件を最適化する必要がある。CNTの特性を決定する材料パラメータのひとつがCNTの直径であり、その直径と成長時に使われる触媒微粒子の間には相関があることが知られている。そこで、触媒微粒子として想定しているコバルト微粒子の成長制御を行った。ここでは、多くの物質で微粒子生成が可能であるアークプラズマガン(APG)を用いて微粒子作製を試みた。APGでは、堆積時の基板表面への欠陥導入により堆積材料の拡散長を抑えて微粒子化する。さらに、パルス上に高電圧をかけるため、パルス数による細かな蒸着量の制御を行うことができる。微粒子化するために、加速エネルギーを上げて、蒸着量依存性を調べた。その結果、蒸着量を変えることでコバルト微粒子の粒径が制御できることが分かった。さらに、微粒子のサイズ分布の分散を抑えるためプラズマ中の原子クラスターの中性化を行った。その結果、分散を抑えて粒径を制御することに成功した。

### [ 原著論文 ]

Dielectric Properties of  $\text{Ba}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$  Thin Films Fabricated by Pulsed Laser Deposition, Takanori Hino, Minoru Nishida, Takao Araki, Takahiro Ohno, Toshio Kawahara, Masakazu Murasugi, Hitoshi Tabata and Tomoji Kawai: *Journal of Laser Micro/Nanoengineering*, 2 (3) (2007) 166-169.

Possibility of reverse Monte Carlo modelling for hydrogenated amorphous Si deposited on reactive ion etched Si substrate, Toshio Kawahara, Yoshinori Matsui, Seiichi Tagawa, Tomoji Kawai and Hideki Matsumura: *J. Phys.: Condens. Matter*, 19 (2007) 335211.

STM tip-enhanced photoluminescence from porphyrin film, R. Nishitani, H. W. Liu, A. Kasuya, H. Miyahira, T. Kawahara, H. Iwasaki: *Surface Science*, 601 (2007) 3601-3604.

Fabrication of functionally graded bulk materials of organic polymer blends by uniaxial thermal gradient, S.Koide, K.Yazawa, N.Asakawa, Y.Inoue: *J.Mater.Chem.*, 17 (2007) 582-590.

Influence of a Melt Flow on Generation of functionally Graded Structure in Bulk Polymeric Materials under Uniaxial Thermal Gradient, S.Koide, N.Asakawa, Y.Inoue, K.Yazawa: *Macromol.Chem.Phys.*, 209 (2008)

499-507.

The Dynamic Structure of Regioregulated Poly(4-methylthiazole-2,5-diyl), S.Mori, T.Yamamoto, N.Asakawa, K.Yazawa, Y.Inoue: *Polymer J.*, 40 (2008) 475-478.

Characterization of LaVO<sub>x</sub> thin films by photoemission spectroscopy, H. Wadati, Y. Hotta, M. Takizawa, A. Fujimori, T. Susaki, and H. Y. Hwang: *J. Appl. Phys.*, 102 (2007) 53707.

Asymmetric interface profiles in LaVO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> heterostructures grown by pulsed laser deposition, L. Fitting Kourkoutis, D. A. Muller, Y. Hotta, and H. Y. Hwang: *Appl. Phys. Lett.*, 91 (2007) 163101.

Polar discontinuity doping of the LaVO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> interface, Y. Hotta, T. Susaki, and H. Y. Hwang: *Phys. Rev. Lett.*, 99 (2007) 236805.

Hard x-ray photoemission study of LaAlO<sub>3</sub>/LaVO<sub>3</sub> multilayers, H. Wadati, Y. Hotta, A. Fujimori, T. Susaki, H. Y. Hwang, Y. Takata, K. Horiba, M. Matsunami, S. Shin, M. Yabashi, K. Tamasaku, Y. Nishino, and T. Ishikawa: *Phys. Rev. B*, 77 (2008) 45122.

#### [ 解説、総説 ]

酸化物界面でくり広げられる新奇な物性、堀田育志、ハロルド・ファン、パリティ、23[1] (2008) 30-33

#### [ 特許 ]

「確率共振リング装置、確率共振リングネットワーク装置、学習記憶忘却装置、アトラクター選択装置、及び確率共振ユニット」 浅川直紀、堀田育志、神吉輝夫、河原敏男、川合知二、田畑仁、特願 2007-215458

「光アシスト型磁気記録装置」 神吉輝夫、河原敏男、藤原康文、川合知二、寺井慶和、堀田育志、浅川直紀、関宗俊、特願 2007-228376

「ゆらぎ発振器、ゆらぎ発振システム、観測装置、及び制御システム」 堀田育志、神吉輝夫、浅川直紀、河原敏男、川合知二、田畑仁、特願 2007-215457

#### [ 国際会議 ]

Size and distribution control of Co nano clusters grown by arc plasma gun, \*Toshio Kawahara, Teruo Kanki, Yasushi Hotta, Naoki Asakawa, Tomoji Kawai, Hitoshi Tabata: 9th International Conference on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures (ACSIN9), Tokyo, Japan, Nov. 11-15, 2007.

Magneto-Electric Properties of Photoinduced Magnet (Al,Ru,Fe)O<sub>3</sub> Thin Films (poster), \*T.Kanki, Y.Hotta, N.Asakawa, T.Kawahara, H.Tabata, T.Kawai: The 14th International Workshop on Oxide Electronics, Jeju island, Korea, October 7-10, 2007.

Epitaxial growth of spinel ferrite oxide (Al,Ru,Fe)<sub>3</sub>O<sub>4</sub> on a GaAs(001) substrate using a MgO buffer layer (poster), \*T.Kanki, T.Kawahara, N.Asakawa, Y.Hotta, Y.Terai, Y.Fujiwara, H.Tabata, T.Kawai: 2007 MRS Fall Meeting, Boston, USA, Nov. 26-30, 2007.

**[ 国内学会 ]**

応用物理学会  
高分子学会  
電子情通信学会

4 件  
1 件  
2 件

**[ 受託研究 ]**

川合 知二          文部科学省          生体ゆらぎに学ぶ知的人工物と情報システム

**86,856**

## 〔附 3〕 共通施設、技術室、事務部の組織と活動

## 試作室

室長（兼）教授		磯山 悟朗
技術職員（技術室所属）	金属工作室	角一 道明、大西 政義
	ガラス工作室	松川 博昭、小川 紀之

### a) 概要

試作室の前身である金木工場とガラス工場は、産業科学研究所が設立されると同時に付設された。後に統合されて試作工場となり、昭和 57 年（1982 年）に試作室となった。本研究所の研究分野は広範囲にわたるので、実験装置は多種多様かつ斬新なものが多い。金属工作室とガラス工作室からなる試作室は、これらの実験装置を製作して提供することにより本研究所の活動に重要な役割を果たしている。

金属工作室は、各種金属を用いる理工学実験装置の設計と試作および実験器具を製作している。近年は超高真空や極低温用実験装置等の依頼が多く、これらの要請に応じるために設計の段階から研究者と綿密な連携を保つことにより、実験目的に適応した装置を製作している。平成 13 年度には高精度門型マシニングセンタが導入され、研究者からの高度な依頼にも対応できるようになった。さらにオープンショップと呼ばれる共同利用工作室も併設しており、適時研究者への技術指導も行なわれている。

ガラス工作室は、各種理化学ガラスを材料とする実験器具と装置の設計と試作を行なっている。研究者が必要とする実験目的に適応した装置を開発すると共に、従来の機器も機能を高め使いやすさと安全性を追求した装置を提供できるように研鑽し技術の確立を図っている。また近年、高品質石英ガラス製品や各種セラミックス材料の加工も要求されているので、そのための装置の充実も図っている。

### b) 活動報告

試作室は、例年通りいちょう祭の施設一般公開を行った。金属工作室は、工作機械類を披露すると共に、展示コーナーでは実験装置類を公開し、刻印や針金細工の体験を実施した。ガラス工作室はガラス旋盤および実験器具類の他、科学にちなんだガラスのオブジェを展示し、ハンドワーク加工の実演および体験を実施した。また、8 月 1～3 日の 3 日間、技術室主催のものづくり教室において、金属工作室は「プレートをつくろう!」、ガラス工作室は「浮沈子をつくろう!」と題して、小中学生に物作りの楽しさ、科学の面白さを教えた。

設備の充実としては金属工作室の卓上ボール盤（自動送り付き）を更新した。また、ガラス工作室の内面研削ユニット、金属工作室の CAD 用ワークステーション、精密加工用マシニングセンタの周辺装置と工具を整備した。

また、全国の技術職員が集う技術研究会に参加し、技術を研鑽している。さらに、神戸大学、大阪府立大学の職員の技術研修を受け入れ技術指導を行った。これにより広範囲に技術を伝承する事に努めている。その他、所内向けに個別の技術指導を行っている。

#### [ 年間依頼処理件数 ]

金属工作室 254 件（前年度 228 件） ガラス工作室 209 件（前年度 240 件）

#### [ オープンショップ利用件数 ]

金属工作室 50 件 ガラス工作室 20 件

#### [ いちょう祭見学者数 ]

金属工作室 約 70 名（刻印体験 60 名） ガラス工作室 約 200 名（細工体験 180 名）

#### [ 実技指導受講者数 ]

金属工作室 11 名 ガラス工作室 5 名 18 件（内 所外 2 名 12 件）



## 情報ネットワーク室

室長（兼任）	菅沼 克昭
教授（兼任）	中谷 和彦
助手（兼任）	大原 剛三
助手（兼任）	金 権銖
技術職員（兼任）	田中 高紀
技術職員	相原 千尋
技術職員	奥村 由香
派遣職員	坂本 美夕（平成 19 年 10 月 1 日採用）

### a) 概要

情報ネットワーク室は、近年の研究環境における情報ネットワークの急速な普及と重要性を鑑み、これまでのボランティアベースの所内情報ネットワークの運営を組織化する為に、1999年3月に発足した。所内情報ネットワークは、1980年代後半に知能システム科学大部門の研究室が共同で構築し、1994年のODINS(Osaka Daigaku Information Network System)の運用開始に伴い研究所全体規模で整備された。現在では、産業科学研究所に携わる人々に情報の発信・受信の場を提供している。情報ネットワーク室では室長のもと、技術室より派遣された技術職員により産業科学研究所ネットワークの安定運用はもとよりネットワークポリシーの策定、整備における技術的作業をはじめ、各種サーバーの構築・管理、各種システムの構築・管理、利用者・研究者のサポート・教育、ホームページの更新・作成による広報支援等を行っている。また、産業科学研究所の於ける各種シンポジウム、講演会等において全世界へ向けてインターネットライブを提供しているかたわら、研究所入館管理システムや電子掲示板の運用・管理も行っている。

### b) 成果

#### [ インターネットライブ関連 ]

- ・ 第 11 回産研/第 6 回ナノテクセンター/第 1 回MSTEC国際シンポジウム「New Advances in Nanoscience & Nanotechnology」 (08 年 2 月)
- ・ 第 20 回技術室報告会－ 大阪大学産業科学研究所 技術室 設置 25 周年・技術室報告会 20 回記念報告会 － (07 年 11 月)
- ・ 産業科学研究所 第 63 回学術講演会「 知のフロンティア育成とグローバル展開 」 (07 年 11 月)

## 放射線同位元素実験室

室長（兼任）教授          山口 明人

### a) 概要

本実験室は、放射線同位元素のうち、非密封の $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{32}\text{P}$ ,  $^{33}\text{P}$ ,  $^{35}\text{S}$ を含む物質を取り扱う実験のために設置されたものである。本実験室では、上記の元素で標識された化合物の合成や、標識化合物を用いた生化学的、分子生物学的及び細胞生物学的実験が行われ、タンパク質や遺伝子の構造と機能など生化学や分子生物学の研究のために大きな役割を果たしている。教職員や学生（放射線同位元素取扱教育訓練受講者）が年間を通して利用しており、放射線障害予防規定に則した維持管理が行われている。

### b) 成果

放射線同位元素実験室を使用して得られた研究の成果は各研究室の頁にまとめられている。

## 図書室

室長（兼任）教授 岩崎 裕  
事務職員 小野 泰子  
事務補佐員 濱中 久仁子

本図書室は、専門的図書を所蔵し、現在、管理棟二階に開架図書室、図書作業室が設けられ、研究棟一階に第二書庫が設けられている。図書、雑誌の発注、受入及び文献の所在調査や照会、複写の申し込みや受付業務、図書館間相互貸借を行っている。又、利用案内、受入れ図書などをホームページ（<http://www.sanken.osaka-u.ac.jp/labs/lib-web/>）に掲示している。

【蔵書数】	和文図書	12,222 冊	和雑誌	234 種	新聞	5 種
	欧文図書	43,174 冊	洋雑誌	956 種		

（平成 20 年 4 月 1 日現在）

## 産学連携室

室長 特任教授 清水 裕一

### a) 概要

産学連携室は、産業科学研究所（産研）と産業界との連携活動を推進するオフィスで、産研の研究成果を社会に還元することを目的として活動を行っている。主な業務は、産研と産業界との緻密なネットワーク構築、産業界からの要望、要請に応じるような研究シーズの紹介、産研の研究成果であるシーズと産業界のニーズとの摺り合わせ等である。また、新産業の創出に向けて新しい分野の研究領域創出の提案、さらに、大学発ベンチャー企業への橋渡しや創出に向けた準備・支援・啓発活動を行った。

### b) 成果

- ・ **研究成果および技術シーズの産業界への紹介**

- ①産研テクノサロン：4回開催（平成19年5月22日、平成19年7月31日、平成19年10月24日、平成20年2月18日）
- ②Web 紹介：産学連携室のホームページにて、各研究室の内容や各種産学連携制度を紹介。さらに相談の窓口を設置し産業界からの問合せに対応。
- ③外部 Web サイトでの紹介：技術シーズの紹介シートを作成し外部機関を通じて紹介。

- ・ **技術移転の推進支援**

- ①新産業創造研究会：3研究会各3回開催
- ②保有特許の活用先の調査を実施

- ・ **企業との共同研究や実用化プロジェクトのコーディネイト**

企業との共同研究、受託研究等のコーディネーション

- ・ **公的支援事業のコーディネイト**

- ①JST「シーズ発掘試験研究」：採択3件
- ②JST「産学共同シーズイノベーション化事業：顕在化ステージ」：採択1件

- ・ **産業界とのネットワークの構築**

企業訪問、産学官連携会議、各種展示会、学会・シンポジウム、産研協会行事に参加し産業界とのネットワークを構築

- ・ **その他**

- ①招待講演  
”Key factors and efforts for University-corporate networking”, 2007 Integration Conference on Cooperate-University Network Activation, Gyeongsangnam, Korea
- ②国際ナノテクノロジー総合展で活動紹介

## 広報室

室長（兼任） 山口 明人  
技術補佐員 松本 紀子

### a) 概要

広報室は、広報委員会の企画・基本方針に沿って広報活動を積極的かつ効果的に行うため、平成 18 年 2 月に発足した。主な業務は、広報に関する基本計画案の作成に必要な資料収集、産研ニュースレター等の広報誌及び年次報告書等の編集及び発行の補助、ホームページ編集に係る資料収集、記者発表（庶務係所掌のものを除く）に関する事務、報道記事等の収集及び保管である。

### b) 成果

- ・ いちよう祭一般公開広報  
一般公開来場者 432 名  
新聞掲載 2 件(読売新聞、朝日新聞)  
テレビ取材 1 件(ケーブルウエスト「日刊すいた情報局」)
- ・ ものづくり教室広報  
参加者 66 名  
冊子掲載 1 件(朝日ファミリーニュース7月6日号・市報すいた7月号)  
テレビ取材 2 件(ケーブルウエスト「日刊すいた情報局」(平成 19 年 8 月 3 日放映))
- ・ スーパーサイエンスハイスクール(SSH)との連携  
武庫川女子高等学校への見学説明会実施と夏季体験実習受け入れ
- ・ 施設見学・訪問受け入れ(広報委員会確認分)  
受け入れ件数 19 件(高等学校 8 校、団体 11 団体)  
見学者数 432 名
- ・ 産研紹介パンフレット作成
- ・ 研究所内案内板更新
- ・ 歴史展示コーナー整備
- ・ 研究成果、報道情報の HP 掲載

## 技術室

	室 長	山田 等 (平成 19 年 10 月 31 日退職)
	室 長	石橋 武 (平成 19 年 12 月 1 日昇任)
工作班	班 長	角一 道明
機械回路工作係	係 長	大西 政義
	係 員	榊原 昇一 (平成 20 年 1 月 1 日採用)
ガラス工作係	係 長	松川 博昭
技術専門職員		谷畑 公昭、小川 紀之
計測班	班 長 (兼)	石橋 武
計測・情報システム係	係 長	相原 千尋
	係 員	奥村 由香
分析・データ処理係	係 長	田中 高紀
	係 員	松崎 剛
技術専門職員		山本 保、馬場 久美子

### a) 概要

技術室は室長以下、工作班と計測班から成り、それぞれ 2 つの係を有する組織である。技術室長(山田等)は技術室を統括すると共に、材料解析センターで業務を行ってきた。

工作班長(角一道明)は工作班を統括すると共に、試作室の金属工作室において業務を行ってきた。工作班所属技術専門職員(谷畑公昭)及び機械回路工作係所属技術職員(大西政義、榊原昇一)は、産業科学ナノテクノロジーセンター(ナノ加工室)及び試作室の金属工作室において業務を行ってきた。工作班所属技術専門職員(小川紀之)及びガラス工作係所属技術職員(松川博昭)は、試作室のガラス工作室において業務を行ってきた。

計測班長(石橋武)は計測班を統括すると共に、産業科学ナノテクノロジーセンター(電子顕微鏡室)において業務を行ってきた。計測班所属技術専門職員(山本保・馬場久美子)及び分析・データ処理係所属技術職員(田中高紀・松崎剛)は、技術室、産業科学ナノテクノロジーセンター(電子プロセス実験室)及び材料解析センターにおいて業務を行ってきた。計測・情報システム係所属技術職員(相原千尋・奥村由香)は、情報ネットワーク室において業務を行ってきた。

各技術職員は、上記のような派遣先において研究用装置や機器類の試作、運転、計測、ネットワークの保守及び研究用材料の各種分析、そのデータ処理などを効率よく遂行してきた。さらに、近年の研究の多様化に対応して班、係を越えた体制を構築し支援活動の範囲を拡大している。特に産研国際シンポジウムや COE 国際会議などのインターネットライブとそれらの映像記録、ネットによるテレビ会議等の運営にも支援協力している。また技術・知識の向上のため、技術職員各人は相互に技術研修を行うと共に、技術研究会、研修会、各種学会等にも積極的に参加、発表している。

技術室独自で開催している技術室報告会は 20 回目を数え、「技術室報告」No.20 (2007) を発刊した。これらにより得られた技術・知識は、教職員、研究生等に対してそれぞれの専門的技術指導等で成果を上げている。また本年も当研究所の新入学生を対象とした安全教育に取り組み技術室主催の安全講習会を 5 月に開催した。一方、ものづくり教室を子供たちの夏休みに 3 日間にわたり開催し、11 月には近隣の彩都西小学校においてサンデー・サイエンス 2007 にも科学実験屋台を出店し地域貢献事業の一端を担った。

### b) 成果

#### 技術室刊行物

- ・技術室報告 No.20 (2007)

#### 技術室主催、所内講習会及び報告会等

- ・安全講習会 2007年5月17日開催 参加人数 55名
- ・ものづくり教室 2007年8月1日～8月3日開催 参加人数 65名
- ・彩都サンデー・サイエンス2007 2007年11月25日 科学展示・実演等 出動人数 10名
- ・技術室設置25周年 「第20回 記念技術室報告会」  
2007年11月19日～11月20日開催 参加人数約150名（技術室では以下の4名が発表）
  - ・「金属工作に携わって42年の歩み」 工作班 角一 道明
  - ・「私と技術室、25年」 計測班 石橋 武
  - ・「石英ガラス細工用工具の改良」 工作班 松川 博昭
  - ・「支援スクリプトの作成」 計測班 相原 千尋

#### 技術室報告会への招待講演者氏名

- ・京都大学副学長 西本 清一 教授
- ・北海道大学 工学研究科 吉川 信一 教授
- ・熊本大学 理学部 吉朝 朗 教授
- ・物質物財研・材料研究機構 大久保 忠勝 グループリーダー
- ・名古屋工業大学 小澤 忠夫 技術主幹
- ・山形大学 佐藤 和昭 技術専門職員
- ・鳥取大学 丹松 美由紀 技術専門職員
- ・琉球大学 池原 清子 技術専門職員
- ・広島大学 藤高 仁 技術専門職員

#### 技術研究会、学会等の参加、発表

- ・第74回日本分析化学会有機微量分析研究懇談会一日大（07,5月）
- ・日本顕微鏡学会第63回学術講演会－新潟県（07,5月）
- ・理化電機 技術講習会－東京（07,5月）
- ・平成19年度 機器・分析技術研究会－富山大学五福キャンパス（07,8月）
- ・リニアック技術研究会－東京（07,8月）
- ・第28回有機微量分析ミニサロン－名古屋工業大学（07,10月）
- ・日本放射線安全管理学会（第6回学術大会）－東北大学青葉記念会館（07,12月）…ポスター発表
- ・大阪大学技術職員研修（第24回）－大阪大学（07,12月）
- ・TECHNOSIUM CONFERENCE AND EXPO 2008－Santa Clara Convention Center（08,1月）
- ・産研国際シンポジウム－淡路島（08,2月）
- ・国際ナノテクノロジー総合展・技術会議 ナノテック2008－東京都（08,2月）
- ・情報システム統一研修（九段合同庁舎）－東京都（08,2月）
- ・第3回 情報技術研究会－九州工業大学（08,3月）
- ・第14回国立大学附置研究所技術室長会議－東北大流体研（08,3月）

#### 各種免許・資格取得の現状

- ・衛生工学衛生管理者（2名）
- ・高圧ガス製造保安責任者免状 乙種化学（1名）
- ・床上操作式クレーン運転（1名）
- ・クレーンの玉がけ（1名）
- ・天井クレーン定期自主検査者（1名）
- ・アーク溶接特別教育（3名）
- ・研削砥石の取替、取り替え時の試運転の業務（2名）
- ・第2種放射線取扱主任者免状（1名）
- ・エックス線作業主任者（1名）
- ・情報処理技術者試験（初級システムアドミニストレーター）（2名）

- ・電気工事士免状（1名）
- ・危険物取扱者（乙種1類～6類免許）（1名）
- ・毒物劇物取扱者（1名）
- ・第1種衛生管理者（2名）



## 事務部 (平成20年3月30日現在)

	(部長)	仲田 昇
総務課	(課長)	水口 修
	(専門職員)	鎌谷 明
庶務係	(係長)	川添 勝仁
	(主任)	山咲 和久
	(事務職員)	花岡 宏亮
	(事務補佐員)	北浦 恵美子
	(事務補佐員)	小島 慶子
	(事務補佐員)	前川 瑠里
	(事務補佐員)	山田 由紀江
	(事務補佐員)	光森 幸子
	(事務補佐員)	林 和美
	(事務補佐員)	西田 彩
経理課	(課長)	上殿 克己
	(専門職員)	柏倉 重雄
	(特任事務職員)	中尾 名見子
経理係	(係長)	森 哲也
	(主任)	反橋 雄二
	(事務職員)	岐田 明海
	(事務補佐員)	清水 実佐子
	(事務補佐員)	小西 まり
	(事務補佐員)	大杉 昌子
	(事務補佐員)	新出 民子
	(事務補佐員)	山内 寛子
研究助成係	(係長)	金井 克典
	(主任)	中原 洋一
	(主任)	山口 智
	(事務補佐員)	久保 美里
	(事務補佐員)	寺田 久美子
	(事務補佐員)	津田 真由子

平成20年 10月発行

編集・発行

大阪大学産業科学研究所

評価委員会・広報委員会

〒567-0047 大阪府茨木市美穂ヶ丘8-1