The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	平成16年度年次報告書 : 活動状況と課題
Author(s)	
Citation	年次報告書. 2005, p. 1-326
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/77425
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

平成１６年度　年次報告書

－活動状況と課題－

大阪大学産業科学研究所

目　　次

１．はじめに ---------- 1
２．研究活動
　　１）組織 ---------- 3
　　２）運営 ---------- 9
　　３）研究費---------- 10
　　４）国際研究プロジェクト---------- 12
　　５）学術講演会・研究集会---------- 12
　　６）広報活動 ---------- 17
　　７）受賞状況 ---------- 17

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---------- 22
　　４）学部、共通教育担当授業一覧 ---------- 23

４．国際交流
　　１）活動状況 ---------- 24
　　２）国外との研究者往来---------- 25

５．産業界との交流---------- 26

６．まとめ（課題と展望)---------- 27

　　[附１]　各研究部門の組織と活動 ---------- 32
　　[附２]　各附属研究施設の組織と活動 ---------- 207
　　[附３]　共通施設、技術室、事務部の組織と活動---------- 318

本年次報告書は、平成１６年度（平成１６年（2004 年）４月１日から平成１７年（2005 年）３月３１日まで）を対象としたものである。

なお、発表論文リストについては、平成１６年（2004 年）中に発行されたもののみを集めた。

１．はじめに

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

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

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

また、当研究所の提案した「新産業創造指向インターナノサイエンス」が２１世紀 COE 拠点として認められ、産業創成を目指すナノサイエンスの総合的研究と教育を推進している。発足して間もないナノテクノロジーセンターと２１世紀 COE 拠点、そして各研究部門から新しい研究成果が次々と出されている。全国の国立大学は平成１６年度から法人化という大きな転換期を迎えた。そうした中、私達の研究所は２７名の教授を中心に全教員１０５名を有する国内有数の研究所として理学・工学の分野において更なる飛躍が期待されている。平成１７年度には、新たに東北大学多元物質科学研究所と連携を組み、特別教育研究経費により、さらなる産業応用展開をめざして新産業創造物質基盤技術研究センターが発足した。

改組及び大学院重点化と相前後して研究所に所属する大学院生も倍増し、ポスドク等も増え、研究室の面積不足は深刻な問題になってきた。この問題を解決すべく、かねてより文部省に第二研究棟の新設を要求していたが、幸いにして平成１１年度の補正予算で認められた。延面積６,６００㎡に及ぶ第二研究棟が平成１２年度末までに完成し、平成１３年９月には竣工式を行った。平成１５年度には、ナノテクノロジー総合研究棟が竣工した。一方、既存の第一研究棟の老朽化が著しく、修繕も追いつかない状況にある。また十分な耐震性もないため、改築が今後の大きな課題である。

それぞれの研究分野では独自の先端的な研究を進めており、同時に分野間の共同研究を進めている。これに対応して活発な学会活動と、学術誌への発表、メディアへの情報公開を行っている。平成９年度

からスタートした原子・分子プロセスグループの文部省中核的研究拠点（COE）としての研究は大きな成果を得て終了した（平成１４年度から２年間は特別推進研究として継続した）。さらに、文部科学省の戦略的基礎研究推進事業や未来開拓学術研究推進事業などに研究所教員の提案した課題が次々と採択されている。また、上に述べた２１世紀 COE 拠点として研究と教育に新しい局面を拓いている。客員教員や特任教授、特任助教授として産業界の研究者の協力が得られている点は特筆できる。２１世紀 COE の教育面としては、原子力工学科と協力して新しいインターナノサイエンス教育を提案し試行している。

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

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

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

この報告書は当研究所の平成１６年度の活動を各項目にわたって示している。１年間の研究・教育・社会貢献にわたる成果が詳しくまとめられている。従って、本報告書は広報活動の一環であると同時に、自己評価と外部評価の為の基礎資料という性格を持っている。研究所の所員は次の年度に向っての発展の為の資料とするべきものと考える。また、所外の諸賢におかれては、資料に基づいて私共の活動を御叱正、御批判を頂ければ幸いである。

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１７年３月３１日現在）

- 産業科学研究所
  - 研究部門
    - 量子機能科学研究部門
      - 量子分子デバイス研究分野
      - 光・電子材料研究分野
      - 半導体量子科学研究分野
      - 量子物性研究分野
    - 高次制御材料科学研究部門
      - 材料機能物性研究分野
      - 金属材料プロセス研究分野
      - 極微プロセス研究分野
      - セラミック機能材料研究分野
      - セラミック構造材料研究分野
      - エネルギー材料研究分野
    - 機能分子科学研究部門
      - 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
    - 知能システム科学研究部門
      - 知識システム研究分野
      - 複合知能メディア研究分野
      - 知能アーキテクチャー研究分野
      - 高次推論方式研究分野
    - 生体応答科学研究部門
      - 生体触媒科学研究分野
      - 高次細胞機能研究分野
      - 生体情報制御学研究分野
    - 量子ビーム科学研究部門
      - 量子ビーム発生科学研究分野
      - 量子ビーム物質科学研究分野
  - 附属研究施設
    - 産業科学ナノテクノロジーセンター
      - ナノマテリアル・デバイス研究部門
        - 人工生体情報ナノマテリアル分野
        - 単分子素子集積デバイス分野
        - 超分子プロセス分野
        - ナノバイオデバイス分野
        - ナノシステム設計分野
      - ナノ量子ビーム研究部門
        - 量子ビームナノファブリケーション分野
        - ナノ量子ビーム開発分野
        - ナノビームプロセス分野
        - 超高速ナノ構造分野
      - ナノテクノロジー産業応用研究部門
        - 環境調和ナノマテリアル分野
        - 計算機ナノマテリアルデザイン分野
        - ナノバイオ知能システム分野
        - 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
        - 表面ナノ構造プロセス評価分野
        - 量子マテリアルデバイス機能評価分野
      - オープンラボラトリー
      - 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
      - ナノテクノロジープロセスファンドリー
    - 材料解析センター
  - 共通施設
    - 試作室、情報ネットワーク室、放射性同位元素実験室、図書室
  - 技術室
  - 事務部

・教員組織　（平成１７年３月３０日現在）

量子機能科学研究部門

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

高次制御材料科学研究部門

材料機能物性研究分野	教授	工学博士	弘津禎彦
	助教授	博士（工学）	石丸　学
	助手	修士（工学）	佐藤和久
	助手	博士（工学）	平田秋彦
金属材料プロセス研究分野	教授	工学博士	中嶋英雄
	教授（兼）	工学博士	平尾雅彦
	助手	博士（工学）	玄　丞均
	助手	博士（工学）	多根正和
極微プロセス研究分野	教授	理学博士	川合知二
	助教授	博士（理学）	田中秀和
	助手	理学博士	北濵克熙
	助手	博士（理学）	田中裕行
セラミック機能材料研究分野	教授	理学博士	小林　光
	助教授	理学博士	髙橋昌男
	助手	理学博士	延谷宏治
	助手	博士（工学）	毎田　修
セラミック構造材料研究分野	教授	工学博士	新原晧一
	助教授	博士（工学）	関野　徹
	助手	博士（工学）	楠瀬尚史
	助手	博士（工学）	中山忠親
エネルギー材料研究分野	教授	工学博士	谷村克己
	助教授	理学博士	田中慎一郎

機能分子科学研究部門

精密制御化学研究分野	助教授	博士（理学）	鬼塚清孝
	助手	博士（工学）	周　大揚
医薬品化学研究分野	教授	理学博士	加藤修雄
	教授（兼）	理学博士	長谷純宏
	助手	理学士	新田　孟
	助手	博士（理学）	河野富一

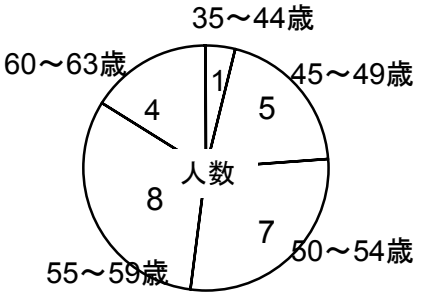
有機物性化学研究分野	教授	理学博士	安蘇芳雄
	助教授	理学博士	兼田隆弘
	助手	博士（工学）	家　裕隆
励起分子化学研究分野	教授	工学博士	真嶋哲朗
	助教授	博士（工学）	藤塚　守
	助手	工学修士	藤乗幸子
	助手	博士（工学）	川井清彦
分子合成化学研究分野	教授	工学博士	笹井宏明
	助手	理学博士	市原潤子
	助手	理学博士	山口俊郎
	助手	理学博士	Doss Jayaprakash
分子材料解析研究分野	教授（兼）	工学博士	真嶋哲朗
	助手	博士（工学）	髙井嘉雄
知能システム科学研究部門			
知識システム研究分野	教授	工学博士	溝口理一郎
	助教授	博士（工学）	來村徳信
	助手	博士（工学）	笹島宗彦
複合知能メディア研究分野	教授	博士（工学）	八木康史
	助教授	博士（工学）	向川康博
	助手	博士（工学）	佐川立昌
知能アーキテクチャー研究分野	教授	工学博士	沼尾正行
	助教授	博士（工学）	栗原　聡
	助手	博士（工学）	Nattee Cholwich
高次推論方式研究分野	教授	工学博士	元田　浩
	助教授	工学博士	鷲尾　隆
	助手	博士（工学）	大原剛三
生体応答科学研究部門			
生体触媒科学研究分野	教授	農学博士	谷澤克行
	助教授	博士（農学）	黒田俊一
	助手	修士（工学）	立松健司
高次細胞機能研究分野	助教授	理学博士	和田　洋
	助手	博士（理学）	孫　戈虹
生体情報制御学研究分野	教授	薬学博士	山口明人
	教授（兼）	理学博士	月原冨武
	助教授	博士（理学）	村上　聡
	助手	博士（薬学）	平田隆弘
量子ビーム科学研究部門			
量子ビーム発生科学研究分野	教授	理学博士	磯山悟朗
	助教授	博士（理学）	加藤龍好
	助手	工学士	池田稔治
	助手	博士（理学）	柏木　茂
量子ビーム物質科学研究分野	教授	工学博士	田川精一
	助教授	工学博士	山本幸男
	助手	工学博士	小林一雄
	助手	修士（工学）	佐伯昭紀

附属産業科学ナノテクノロジーセンター	ｾﾝﾀｰ長(併)		岩﨑　裕
ナノマテリアル・デバイス研究部門			
人工生体情報ナノマテリアル分野	教授	博士（理学）	田畑　仁
	助手	修士（工学）	佐伯洋昌
単分子素子集積デバイス分野	教授（兼）	理学博士	川合知二
	助教授	理学博士	松本卓也
	助手	博士（工学）	谷口正輝
超分子プロセス分野	教授（兼）	工学博士	笹井宏明
	助手	博士（工学）	遠藤政幸
	助手	博士（薬学）	滝澤　忍
ナノバイオデバイス分野	教授（兼）	農学博士	谷澤克行
	助教授	博士（理学）	岡島俊英
	助手	博士（理学）	中島良介
ナノシステム設計分野			
ナノ量子ビーム研究部門			
量子ﾋﾞｰﾑﾅﾉﾌｧﾌﾞﾘｹｰｼｮﾝ分野	教授	工学博士	吉田陽一
	教授（兼）	工学博士	西嶋茂宏
	助手	博士（理学）	楊　金峰
ナノ量子ビーム開発分野	教授（兼）	理学博士	磯山悟朗
	助教授	工学博士	誉田義英
	助手	工学博士	木村徳雄
ナノビームプロセス分野	教授（兼）	工学博士	田川精一
	助教授	博士（工学）	関　修平
	助教授	博士（工学）	古澤孝弘
超高速ナノ構造分野			
ナノテクノロジー産業応用研究部門			
環境調和ナノマテリアル分野	教授	工学博士	菅沼克昭
	助教授	博士（工学）	奥　健夫
	助手	博士（工学）	井上雅博
計算機ﾅﾉﾏﾃﾘｱﾙﾃﾞｻﾞｲﾝ分野	教授（兼）	理学博士	吉田　博
	助教授	博士（工学）	白井光雲
	助手	博士（理学）	佐藤和則
ナノバイオ知能システム分野	教授（兼）	工学博士	溝口理一郎
	助手	博士（工学）	古崎晃司
ﾅﾉﾃｸﾉﾛｼﾞ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）	工学博士	弘津禎彦
	助手	博士（工学）	内藤宗幸
表面ナノ構造プロセス評価分野	教授（兼）	工学博士	谷村克己
	助教授	博士（理学）	金﨑順一
量子ﾏﾃﾘｱﾙﾃﾞﾊﾞｲｽ機能評価分野	教授（兼）	工学博士	朝日　一
	助手	博士（工学）	周　逸凱

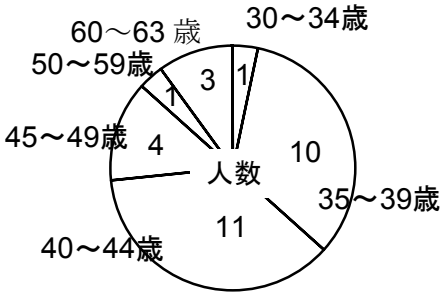
附属材料解析センター　　ｾﾝﾀｰ長(併)　　笹井宏明
助教授　　理学博士　　澤田正實

・教員の年齢構成　（平成１７年３月３０日現在。ただし、併任、兼任者は除く。）

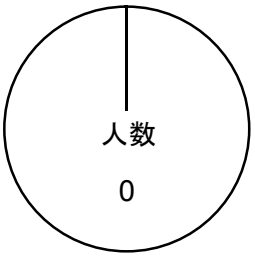
教授



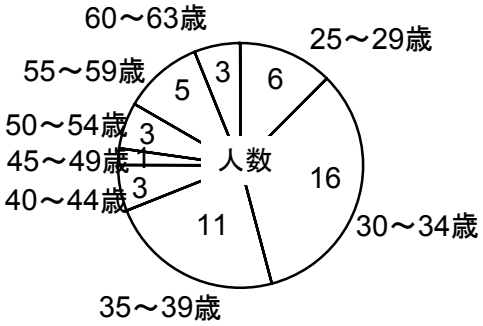
助教授



講師

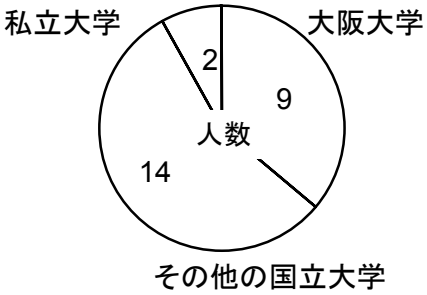


助手

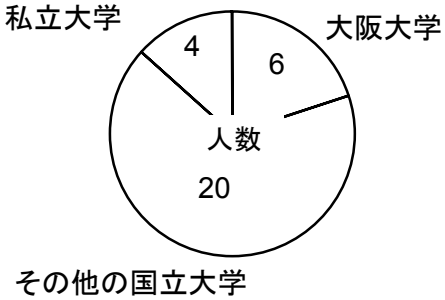


・教員の出身大学　（平成１７年３月３０日現在。ただし、併任、兼任者は除く。）

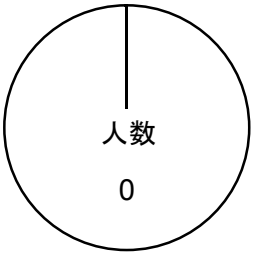
教授



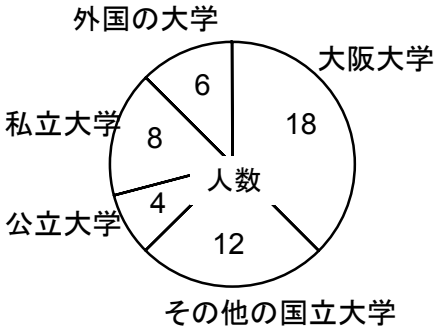
助教授



講師



助手



職員全体では、平成１７年３月３０日現在で教員１０３名、教務職員　３名、事務職員１６名、技術職員１２名、及び非常勤職員１２５名を含み、合計２５９名である。全職員のうち女子は６２名である。

平成１６年３月３１日から平成１７年３月３０日までの人事異動は次のとおりである。

異動事項　（　職　名　）	異動日	（　元　職　）	氏　　名
定年退官	16. 3. 31	（有機金属化合物・教授）	髙橋成年
定年退官	16. 3. 31	（生体膜分子学・教授）	二井將光
定年退官	16. 3. 31	（エネルギー材料・助手）	西浦徹也
定年退官	16. 3. 31	（技術室長）	奥田良行
辞職	16. 3. 31	（分子合成化学・助教授）	山髙　博
辞職	16. 3. 31	（金属材料プロセス・助手）	中畑拓治
辞職	16. 3. 31	（極微プロセス・助手）	リ　ヘリョン
辞職	16. 3. 31	（エネルギー材料・助手）	石川憲一
辞職	16. 3. 31	（知識システム・助手）	角　薫
辞職	16. 3. 31	（電子顕微鏡室・助手）	花田　剛
辞職	16. 3. 31	（医薬品化学・教務職員）	原　道寛
辞職	16. 3. 31	（総務課長）	井上清光
辞職	16. 3. 31	（分析・データ処理掛・掛員）	野村幸代
任命（産業科学研究所長）	16. 4. 1		川合知二
任命（産業科学ナノテクノロジーセンター長）	16. 4. 1		岩﨑　裕
昇任（総務課長）	16. 4. 1	（総務部人事課・課長補佐）	廣橋利夫
昇任（技術室長）	16. 4. 1	（計測班長）	山田　等
昇任（計測班長）	16. 4. 1	（分析・データ処理掛・掛長）	石橋　武
昇任（経理掛・主任）	16. 4. 1	（経理掛・掛員）	花木信夫
採用（金属材料プロセス・助手）	16. 4. 1		多根正和
採用（知能アーキテクチャー・助手）	16. 4. 1		NATTEE Cholwich
採用（医薬品化学・教務職員）	16. 4. 1		田島直人
転出（神戸大学理学部・教授）	16. 4. 1	（量子物性・助教授）	播磨尚朝
転出（北海道大学大学院情報科学研究科・助教授）	16. 4. 1	（高次推論方式・助手）	吉田哲也
出向（文部科学省・研修生）	16. 4. 1	（庶務掛・掛員）	林　史晃
転入（庶務掛・掛長）	16. 4. 1	（放送大学学園大阪学習センター教務係・係長）	松田健治
配置換（分子材料解析・助手）	16. 4. 1	（材料解析センター・助手）	髙井嘉雄
配置換（量子ﾏﾃﾘｱﾙﾃﾞﾊﾞｲｽ機能評価・助手）	16. 4. 1	（光・電子材料・助手）	周　逸凱
配置換（庶務掛・掛員）	16. 4. 1	（文科系総務課会計第一掛・掛員）	俊成謙介
配置換（分析・データ処理掛・掛長）	16. 4. 1	（計測班技術専門職員）	谷畑公昭
配置換（接合科学研究所庶務掛・掛長）	16. 4. 1	（庶務掛・掛長）	長井　純

任命（材料解析センター長）	16. 4. 2		笹井宏明
退職	16. 5. 31	（金属材料プロセス・助手）	池田輝之
採用（ナノバイオデバイス・助手）	16. 6. 16		中島良介
採用（表面ナノ構造プロセス評価・助教授）	16. 9. 1		金﨑順一
採用（知能アーキテクチャー・助教授）	16. 10. 1		栗原　聡
採用（複合知能メディア・助教授）	16. 11. 1		向川康博
昇任（生体情報制御学・助教授）	16. 12. 1	（生体情報制御学・助手）	村上　聡
採用（知能システム・助手）	17. 1. 1		笹島宗彦
採用（ナノ構造多次元評価・助手）	17. 1. 1		内藤宗幸
退職	17. 1. 31	（知能システム・助手）	稲葉晶子
採用（分析・データ処理掛・掛員）	17. 3. 16		松﨑　剛

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、当研究所専任の教授、助教授、講師及び助手による第一次選挙において３名の候補者が選ばれ、その中から、教授のみによる第二次選挙において１名の所長候補者が選ばれる。最終的には、教授会によって所長候補者が決定される。所長の任期は２年であり、再任は可能であるが、引き続き４年を超えることはできない。平成１７年（2005）３月３１日現在の所長は、川合知二教授が併任しており、任期は平成１６年（2004）４月１日から平成１８年（2006）３月３１日までである。

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前述のように部門であるが、意見の集約と伝達等の円滑化をはかるために、便宜上部門を下記のように２つずつまとめて３つの研究部としている。

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

その他、所内には、規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、次のようなものである。（　）内は、各委員会の構成を示す。

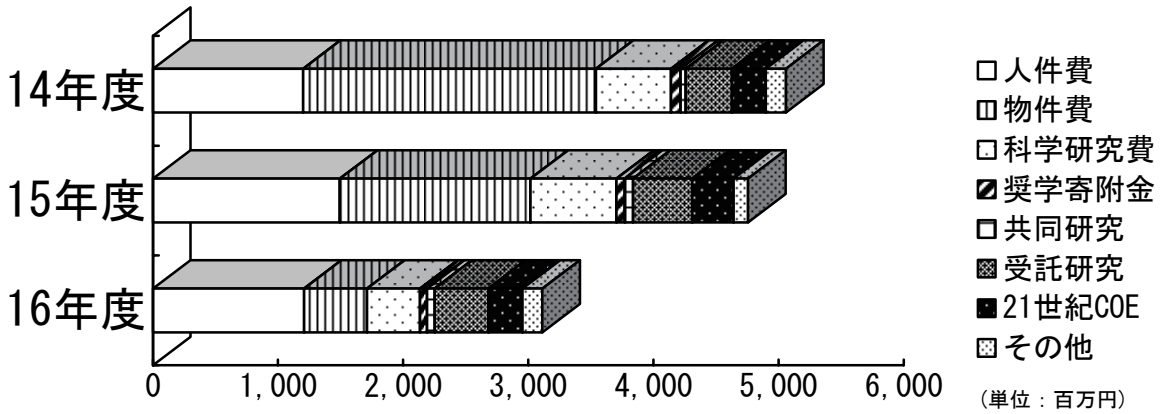
役員会（所長、副所長、附属産業科学ﾅﾉﾃｸﾉﾛｼﾞｰｾﾝﾀｰ長、事務部長、所長補佐）
産学官連携問題委員会（所長、副所長、附属産業科学ﾅﾉﾃｸﾉﾛｼﾞｰｾﾝﾀｰ長、事務部長、所長補佐）
運営協議会（所長、副所長、附属産業科学ﾅﾉﾃｸﾉﾛｼﾞｰｾﾝﾀｰ長、学外の学識経験者など）
将来計画委員会（所長、研究推進・企画評価担当の役員会構成員、附属産業科学ﾅﾉﾃｸﾉﾛｼﾞｰｾﾝﾀｰ長、各研究部門から教授１名、事務部長）
研究企画委員会（所長、研究推進・企画評価担当の役員会構成員、教授若干名など）
評価委員会（所長、学内評価委員会委員、広報委員会委員長、各研究部門から教授１名など）
財務委員会（所長、財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、附属産業科学ﾅﾉﾃｸﾉﾛｼﾞｰｾﾝﾀｰ長、各研究部から選出された教授３名など）
広報委員会（教授３名、総務課長、各研究部門から教員１名）
国際交流推進委員会（学内国際交流委員会委員、各研究部門から教員１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３名、情報ネットワーク室長など）
安全衛生管理委員会（遺伝子組換え実験安全主任者、放射線取扱主任者など）

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でなければ、設置することができない。研究分野検討委員会は、当該研究部から選出された３名の教授と他の研究部から選出された教授各１名の計５名で構成される。教授選考委員会は、当該研究部の教授全員とその他研究部の教授各１名で構成される。

当研究所では学内の他部局の教授と共同研究を行うために兼任教授制度を採用している。平成１６年度は学内から５名の理科系の教授（冷水佐壽教授（基礎工学研究科）、平尾雅彦教授（基礎工学研究科）、長谷純宏教授（理学研究科）、月原冨武教授（蛋白質研究所）、西嶋茂宏教授（工学研究科）にお願いした。

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。次にそれら研究費の平成１４年から３年間の推移を示す。



予算（単位：千円）（平成１４～１６年度）

（単位：千円）

		１４年度	１５年度	１６年度
運営費交付金（校　費）	人件費	1,183,164	1,493,979	1,207,747
	物件費	2,334,611	1,524,027	505,304
科学研究費（件数）		578,772(93)	686,997(104)	423,960(93)
奨学寄附金（件数）		76,760(74)	64,930(67)	55,658(77)
共同研究　（件数）		40,670(12)	66,393(13)	61,989(22)
受託研究　（件数）		367,966(27)	473,471(36)	429,474(44)
２１世紀ＣＯＥ（件数）		271,000(1)	330,000(1)	274,000(1)
その他（件数）		160,023(5)	116,005(4)	158,518(5)
合　　計		5,012,966	4,755,802	3,116,650

（注）科学研究費については、分担者として配分されたものは除く。

２１世紀ＣＯＥ

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

学 問 分 野　　：学際、複合、新領域

拠点のプログラム名：新産業創造指向インターナノサイエンス

拠点のリーダー　　：川合知二教授

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	量子ﾋﾞｰﾑ科学研究部門	産業科学ナノテクノロジーセンター	その他	合　計
平成 14	3,581	33,913	9,486	7,920	13,899	1,111		6,850	76,760
	(6)	(32)	(15)	(7)	(4)	(3)		(7)	(74)
平成 15	1,500	24,300	10,250	6,480	8,350	2,000	11,050	1,000	64,930
	(2)	(20)	(13)	(5)	(9)	(3)	(14)	(1)	(67)
平成 16	1,111	30,811	3,950	4,352	3,833	1,111	9,010	1,480	55,658
	(2)	(23)	(7)	(8)	(5)	(2)	(12)	(18)	(77)

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。

新原　晧一　　日本学術振興会　拠点大学方式による学術交流事業（コーディネーター）
韓国漢陽大学　Keun Ho Auh 教授　Kwang Bo Shim 助教授
「環境低負荷型の多機能セラミックスの新しいプロセッシング及びナノ構造と機能評価」

５）学術講演会・研究集会

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

拠点大学学術交流国際セミナー

日本学術振興会の拠点大学方式による学術交流事業(CUP)の一環として平成１６年１０月３１日～１１月３日に、千里阪急ホテル（大阪府豊中市）にて（社）日本セラミックス協会との共催で標記国際セミナーが開催された。日本、韓国、中国、インド、米国、カナダ、オーストラリア、ドイツ、スイス、フィンランド、ポーランド、スロバキア、イギリス等２０以上の国から、４００名以上の参加者を得た。３２０件の発表のうち、本プロジェクトに関係しての発表論文は６０件であった。

平成１６年度第１回排出蛋白研究会（平成１６年１１月２１日）

第６０回学術講演会

一般講演として、教職員、学生による材料・情報・生体に関する最新の研究成果をポスターセッションにより発表するとともに「学際融合領域研究から新産業創成へ」と題するシンポジウムを開催し、８件の講演（うち２件は招待講演）を実施した。平成１６年１１月２６日・当研究所講堂

第８回産研国際シンポジウム・第３回産業科学ナノテクノロジーセンター国際シンポジウム

平成１６年１２月６日～７日、大阪大学コンベンションセンターにおいて、第８回産研国際シンポジウムと第３回産業科学ナノテクノロジーセンター国際シンポジウムが共催として開催された。今年度は、「Advanced Characterization for Nano-materials,Nano-devices and Nano-processing」をテーマに、１８名の著名な研究者による招待講演、産研各研究部から６件の講演、ポスター発表１３０件があり、参加者も２６０名を超え盛況であり、活発な討論が行われた。

日本生体エネルギー研究会第３０回討論会　（平成１６年１２月１６日～１８日）

平成１６年度第２回排出蛋白研究会　（平成１７年１月２１日）

第３回２１世紀 COE プログラム国際シンポジウム

平成１７年３月９日～１０日、奥琵琶湖マキノプリンスホテル（滋賀県高島郡マキノ町）において、第３回２１世紀 COE 国際シンポジウムが開催された。シンポジウムでは、本２１世紀 COE の

「Toward Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience」テーマの下、著名な研究者による招待講演９件とグループからの講演５件の計１４件の口頭講演とポスター発表１０１件があり、参加者は１６０名以上であった。今年度は、大阪大学の地を離れて奥琵琶湖のホテルに泊まり込みでの国際シンポジウムであり、濃度の濃い議論がなされた。

平成１６年度第３回排出蛋白研究会　（平成１７年３月１８日）

研究所間交流プログラム

平成１６年度は以下のとおり研究所間交流が行われた。

・大阪大学産業科学研究所・東京大学生産技術研究所　研究所間交流会
（平成１６年１１月２４日～２５日）

・東北大学金属材料研究所との研究所間交流ワークショップ　（平成１７年１月２７日）

上記以外にも、外来講師を迎えての講演会、セミナーも随時開催しており、それらの合計は４６件（うち外国人を講師に迎えてのものは１９件）であった。

（開催日）	（講　師）	（演　題）
平成１６年		
４月１５日	Duk Yong Yoon （韓国KAIST 教授）	Interface Roughening Transition and Grain Growth in Ceramics and Metals
４月１６日	Sylwester POROWSKI （ポーランド科学アカデミー高圧研究所　教授）	High Pressure Research and Blue Lasers
４月１６日	Stanislaw FILIPEK （ポーランド科学アカデミー物理化学研究所　教授）	New Metal Hydrides Obtained Under Very High Pressure of Gaseous Hydrogen
５月１４日	Erja Turunen （フィンランドVTT技術研究センター教授）	Sealing of thermally sprayed coatings for boiler applications
５月１４日	Tommi Varis （フィンランドヘルシンキ工科大学教授）	Sealing of thermally sprayed coatings for boiler applications
５月１５日	小泉　雅彦 （京都府立医科大学放射線医学教室講師）	放射線治療と活性酸素

５月１９日	Ramasamy Ramaraj （インドMadurai Kamaraj大学　教授）	化学修飾電極および薄膜の光電気触媒反応
５月２８日	表　弘志 （岡山大学薬学部　助教授）	Drug transport mechanism of multidrug resistance protein, P-glycoprotein
６月　４日	Kamanio Chattopadhyay （インド科学工科大学　教授）	Understanding and designing the microstructure through laser surface alloying
６月２６日	清水　良 （田辺製薬（株）研究本部研究企画部主管研究員）	創薬とは何か？
７月２６日	Joao Gama （ポルトガル　ポルト大学　助教授）	Learning Decision Trees from Data Streams
８月１１日	清水　良 （田辺製薬（株）研究本部研究企画部主管研究員）	創薬とは何か？
９月１０日	清水　良 （田辺製薬（株）研究本部研究企画部主管研究員）	創薬とは何か？
１０月２１日	羽生　貴弘 （東北大学電気通信研究所　教授）	不揮発性ロジックインメモリ回路とその応用
１０月２１日	Byeong Kang （オーストラリアタズマニア大学上級講師）	Ripple Down Rules and Web Monitoring System
１１月　２日	川原　実 （大阪大学工学研究科　研究員）	Na フラックス法を用いた低転移バルクGaN 単結晶の育成
１１月　４日	西松　毅 （東北大学金属材料研究所　助手）	ペロブスカイト型強誘電体の全エネルギー表面の第一原理計算による自動的な評価方法
１１月　５日	Roman Nowak （フィンランドVTT技術研究センター教授）	THICKNES OF THE COMPONENTS OF MULTILAYER-STRUCTURE DETERMINED BY NON-CONTACT INDENTATION
１１月１２日	Chrys Chatgilialoglu	Free radical chemistry in the carbohydrate

	（イタリア国立科学研究所　研究リーダー）	moiety of nucleosides. Model studies of DNA damage
１１月１６日	古川　功治 （産業科学総合研究所　年齢軸生命工学研究センター　主任研究員）	B 細胞レパートリー形成のダイナミクスと抗体の親和性成熟
１２月　２日	Pang Kwok Pan （オーストラリアモナシュ大学）	Improving the Centered CUSUMS Statistic for Structural Break Detection in Time Series
１２月　７日	吉田　賢右 （東京工業大学資源化学研究所　教授）	シャペロニン蛋白質の構造生物学に関して
１２月　７日	岩田　想 （Imperial College London, professor）	膜蛋白質の構造生物学に関して～膜輸送体の結晶化、構造解析を中心に
１２月　９日	趙　大源 （韓国西南大学　準教授）	Photophysics of Expanded Porphyrins
１２月１７日	吉川　信也 （兵庫県立大学　教授）	チトクロム酸化酵素の反応機構
１２月１７日	栗栖　源嗣 （東京大学　助教授）	チトクロム b_6f 複合体の結晶構造と機能 −ラン藻、緑藻および高等植物由来複合体の違い−
１２月１７日	中江太治 （東海大学　教授）	緑膿菌の異物・薬物排出輸送体 MexAB-OprMにおけるエネルギー伝達の問題点
１２月１７日	金井　好克 （杏林大学　主任教授）	有機溶質トランスポーターを巡るタンパク質間相互作用 : トランスポーターの機能協調を可能とする分子複合体の探索
１２月１７日	吉田　賢右 （東京工業大学　教授）	ATP合成酵素のエンジンとブレーキ
１２月１７日	阿久津　秀雄 （大阪大学蛋白質研究所　教授）	H^+-ATPase、モーターを駆動するモノマー β サブユニットの構造変化
１２月１７日	野地　博行 （東京大学　助教授）	超微小溶液チャンバーを利用した F_1-ATPase 強制逆回転による ATP 合成の検出
１２月１７日	柳田　敏雄	１分子ナノ計測で見た生体システムの

	（大阪大学大学院生命機能研究科　教授）	やわらかさ
１２月１７日	難波　啓一 （大阪大学大学院生命機能研究科　教授）	細菌べん毛の自己構築とスイッチ機構
１２月２４日	古賀　裕明 （物質・材料研究機構）	立方晶窒化ホウ素生長機構の第一原理的研究
１２月２９日	高木　克彦 （名古屋大学大学院工学研究科教授）	光応答機能を持つナノ階層型複合材料
平成１７年		
１月　５日	Todd B. Marder （英国 Durham 大学　教授）	Synthesis and Properties of Conjugated Organoelement Compounds
１月１２日	Kyuho Lee （ソウル大学）	Pentacene on Au(001): first-principles calculations using localized basis
１月１８日	Jun-Hyung Cho （Dept. of Physics, Hanyang University）	Adsorption and reaction of unsaturated hydrocarbons on Si(001) and Ge(001)
１月１９日	Yong Hee Kim （韓国 Hannam University　博士）	Sensitized Emission of Luminescent Lanthanide Complexes Based on Naphthalene Derivatives through Charge Transfer Process
２月　５日	山路　稔 （群馬大学工学部応用化学科　助教授）	高励起三重項状態における解離反応
２月１４日	樋口　知之 （統計数理研究所　教授）	ベイズモデルに基づくデータフュージョン、予測そして発見
２月１５日	Werner Schlegel （ジュネーブ大学医学部　教授・同医学研究所　所長）	細胞内シグナルと遺伝子発現：超早期遺伝子発現は mRNA 伸長レベルでダイナミックに制御されている
２月１８日	小岩　昌宏 （京都大学　名誉教授）	材料開発とセレンディピティ-本多光太郎、三島徳七による永久磁石材料開発の経緯-
２月２８日	仲村　龍介 （東北大学金属材料研究所　特任講師）	B2 型金属間化合物における過飽和空孔とその自己組織化

２月２８日	池田　安宏 （山口大学医学部分子脈管病態学　助手）	心不全の新しい治療ターゲットととしてのカルシウム制御蛋白
３月　８日	Andreas Ochsner （University of Aveiro, Portugal　助教授）	Elastic and plastic behavior of porous metals under uniaxial stress

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）(2004)
・Memoirs of the Institute of Scientific and Industrial Research, Osaka University　Vol. ６１（2004）
・年次報告書（平成１５年度）
・産研ニュースレター　（年３回発行）
・産研テクノサロン　講演録・資料（平成１６年度）

「産研ホームページ」も開設しており、産研ニュースレター等をみることができる。
（URL:http://www.sanken.osaka-u.ac.jp）

７）受賞状況　（平成１６年１月２日～平成１７年１月１日）

溝口　理一郎	研究会優秀賞（人工知能学会）
中嶋　英雄	谷川・ハリス賞（社団法人日本金属学会）
中嶋　英雄	俵論文賞（社団法人日本鉄鋼協会）
池田　輝之	俵論文賞（社団法人日本鉄鋼協会）
青木　健	俵論文賞（社団法人日本鉄鋼協会）
久次米　利彦	技術奨励賞（社団法人高温学会）
中嶋　英雄	ベストポスター賞（先端材料プロセス科学技術ニューフロンティア国際会議）
池田　輝之	ベストポスター賞（先端材料プロセス科学技術ニューフロンティア国際会議）
井手　拓哉	ベストポスター賞（先端材料プロセス科学技術ニューフロンティア国際会議）
佐藤　和久	奨励賞物性部門（社団法人日本金属学会）
佐藤　和久	優秀ポスター賞（社団法人高温学会）
石丸　学	優秀ポスター賞（社団法人高温学会）
弘津　禎彦	優秀ポスター賞（社団法人高温学会）
関野　徹	研究進歩賞（粉体粉末冶金協会）
楠瀬　尚史	研究進歩賞（粉体粉末冶金協会）
中山　忠親	研究進歩賞（粉体粉末冶金協会）
楠瀬　尚史	学術写真賞（日本セラミックス協会）
関野　徹	学術写真賞（日本セラミックス協会）
新原　晧一	学術写真賞（日本セラミックス協会）
新原　晧一	ECD Bridge Building Award（アメリカセラミックス協会）

３．教育への関与　（平成１６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	磯山悟朗	助教授	加藤龍好
		教授	朝日　一	助教授	長谷川繁彦
				助教授	井上恒一
		教授	吉田　博	助教授	森川良忠
				助教授	白井光雲
	化　学	教授	川合知二	助教授	松本卓也
		教授	小林　光	助教授	髙橋昌男
				助教授	鬼塚清孝
		教授	加藤修雄	助教授	澤田正實
		教授	笹井宏明		
	生物科学	教授	谷澤克行	助教授	黒田俊一
				助教授	岡島俊英
				助教授	和田　洋
工　　学	知能･機能創成工学	教授	菅沼克昭	助教授	奥　健夫
	マテリアル科学	教授	弘津禎彦	助教授	石丸　学
		教授	中嶋英雄		
	分子化学	教授	安蘇芳雄	助教授	兼田隆弘
		教授	真嶋哲朗	助教授	藤塚　守
	物質化学	教授	新原晧一	助教授	関野　徹
		教授	田川精一	助教授	山本幸男
				助教授	関　修平
				助教授	古澤孝弘
	応用生物工学			助教授	和田　洋
	応用物理学	教授	岩﨑　裕	助教授	吉信達夫
	電子情報ｴﾈﾙｷﾞｰ工学	教授	朝日　一	助教授	長谷川繁彦
	通信工学	教授	元田　浩	助教授	鷲尾　隆
	電子工学	教授	溝口理一郎	助教授	來村徳信
	原子力工学	教授	谷村克己	助教授	田中慎一郎
		教授	磯山悟朗	助教授	誉田義英
		教授	吉田陽一	助教授	金﨑順一

基礎工学	物質創成	教授	松本和彦	助教授	井上恒一
		教授	吉田　博	助教授	森川良忠
				助教授	白井光雲
		教授	川合知二	助教授	田中秀和
		教授	谷村克己		
		教授	田畑　仁		
	システム創成	教授	溝口理一郎		
	情報数理系	教授	八木康史		
薬　　学	分子薬科学	教授	山口明人		
情報科学	情報数理学	教授	溝口理一郎	助教授	栗原　聡
		教授	沼尾正行		
	ｺﾝﾋﾟｭｰﾀｻｲｴﾝｽ	教授	元田　浩	助教授	鷲尾　隆
生命機能		教授	谷澤克行	助教授	和田　洋

２）大学院担当授業一覧

（研究科）	（科　目）	（担当教員）
理　　学	放射光物理学	磯山悟朗
	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
	ナノ構造物性物理学	井上恒一
	半導体物理学Ⅱ	井上恒一
	半導体セミナーⅡ	朝日　一、長谷川繁彦
	半導体特別セミナー	朝日　一、長谷川繁彦
	放射光セミナー	磯山悟朗、井上恒一、加藤龍好
	放射光特別セミナー	磯山悟朗、井上恒一、加藤龍好
	構造物性化学	川合知二
	半導体化学	小林　光
	有機金属化学	鬼塚清孝、澤田正實
	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、髙橋昌男
	半導体化学セミナーⅡ	小林　光
	有機金属化学セミナーⅠ	澤田正實、鬼塚清孝
	有機金属化学セミナーⅡ	澤田正實、鬼塚清孝
	機能性分子化学セミナーⅠ、Ⅱ	笹井宏明

	合成有機化学セミナーⅠ、Ⅱ	加藤修雄
	構造物性化学特別セミナー	川合知二
	半導体化学特別セミナー	小林　光
	合成有機化学特別セミナー	加藤修雄
	機能性分子化学特別セミナー	笹井宏明
	生体機能物質学Ⅰ	黒田俊一
	生体機能物質学Ⅱ	谷澤克行
	生体膜分子生化学Ⅰ	和田　洋
	生体膜分子生化学Ⅱ	和田　洋
	生体機能物質学セミナー	谷澤克行、黒田俊一、岡島俊英
	生体膜分子生化学セミナー	和田　洋
	生体機能物質学特別セミナー	谷澤克行、黒田俊一、岡島俊英
	生体膜分子生化学特別セミナー	和田　洋
工　　学	有機機能化学特論	安蘇芳雄、兼田隆弘
	励起反応化学特論	真嶋哲朗、藤塚　守
	分子化学ゼミナール	真嶋哲朗、安蘇芳雄、兼田隆弘、藤塚　守
	分子化学研究課題企画ゼミナール	真嶋哲朗、安蘇芳雄、兼田隆弘、藤塚　守
	分子化学先端研究情報ゼミナール	真嶋哲朗、安蘇芳雄、兼田隆弘、藤塚　守
	光物性・光エレクトロニクス	朝日　一
	複合基礎Ⅰ	長谷川繁彦
	電子情報エネルギー工学セミナー	朝日　一、長谷川繁彦
	超高温応用工学	朝日　一
	量子分子工学特論	田川精一、山本幸男、関　修平、古澤孝弘
	複合材料工学特論	新原晧一、関野　徹
	物質化学ゼミナール	田川精一、関野　徹、山本幸男
	物質化学研究課題企画ゼミナール	田川精一、新原晧一、関野　徹、山本幸男、関　修平、古澤孝弘
	物質化学先端研究情報ゼミナール	田川精一、新原晧一、関野　徹、山本幸男、関　修平、古澤孝弘
	生体応答科学	和田　洋
	バイオテクノロジー特論	和田　洋
	生物機能工学特論１，２	和田　洋
	応用生物工学ゼミナール１，２	和田　洋
	応用生物工学実験	和田　洋
	量子分子デバイス	岩﨑　裕、吉信達夫
	応用物理学演習１，２	岩﨑　裕、吉信達夫
	応用物理学実験	岩﨑　裕、吉信達夫

	応用物理学特別ゼミナール１，２	岩﨑　裕
	応用物理学ゼミナール	岩﨑　裕、吉信達夫
	表面・界面工学	奥　健夫
	創成工学演習	菅沼克昭、奥　健夫
	創成工学ゼミナール	菅沼克昭、奥　健夫
	材料設計・デバイス工学特論	菅沼克昭
	創成工学ゼミナール（Ｄｒ）	菅沼克昭
	材料設計特論	中嶋英雄
	極微構造解析学	弘津禎彦、石丸　学
	マテリアル科学実験	弘津禎彦、中嶋英雄、石丸　学
	放射線・量子ビーム工学	吉田陽一、誉田義英
	情報通信システム工学論	元田　浩、鷲尾　隆
	知識工学論	溝口理一郎
	知的コミュニケーション論	元田　浩、鷲尾　隆
	通信工学セミナー１，２	元田　浩、鷲尾　隆
	電子工学セミナー	溝口理一郎
	電子工学実験	溝口理一郎
	電子工学演習	溝口理一郎
	知識処理工学特論	溝口理一郎
	量子ビーム物性工学	谷村克己
	原子力工学演習	谷村克己、磯山悟朗
	原子力工学セミナー１	磯山悟朗、谷村克己
	原子力工学セミナー２	磯山悟朗、吉田陽一
	ナノ工学	谷村克己
基礎工学	半導体物性	井上恒一
	物質設計	吉田　博、川合知二、白井光雲
	機能材料特論	吉田　博
	強相関電子機能特論	田畑　仁
	ゼミナールⅠ、Ⅱ	川合知二、吉田　博、松本和彦、田畑　仁 井上恒一
	微小物質光学応答	谷村克己
	物理系研究Ⅰ、Ⅱ	川合知二、吉田　博、松本和彦、田畑　仁 井上恒一、森川良忠
	知的学習制御理論	溝口理一郎
	ゼミナールⅠ、Ⅱ	溝口理一郎
	システム人間系研究Ⅰ、Ⅱ	溝口理一郎
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	溝口理一郎、栗原　聡
	情報数理学演習Ⅰ、Ⅱ	溝口理一郎、栗原　聡
	知識メディア	溝口理一郎
	アフォーダンス理論	栗原　聡
	知能コンピューティング論	元田　浩
	コンピュータサイエンスセミナーⅠ	元田　浩
	コンピュータサイエンスセミナーⅡ	元田　浩
	コンピュータサイエンス演習Ⅰ	元田　浩
	コンピュータサイエンス演習Ⅱ	元田　浩
	コンピュータサイエンス研究Ⅰ	元田　浩
	コンピュータサイエンス研究Ⅱ	元田　浩
	アルゴリズム論	元田　浩
生命機能	理工医学ＩＨ	和田　洋
	理工医学セミナーＩＨ	和田　洋
	理工医学ⅡＦ	谷澤克行
	理工医学セミナーⅡＦ	谷澤克行
	理工医学特別セミナーＦ	谷澤克行

３）大学院生の受入数

（研究科）	（専攻）	（博士前期）	（博士後期）	（小計）
理　　学	物理学	11	2	13
	化　学	21	17	38
	生物科学	1	6	7
（小　計）		33	25	58
工　　学	分子化学	9	5	14
	物質化学	11	9	20
	応用物理学	4	1	5
	電子情報エネルギー工学	5	3	8
	通信工学	3	1	4
	電子工学	1	3	4
	原子力工学	4	2	6
	マテリアル科学	9	4	13
	知能・機能創成工学	4	8	12
（小　計）		50	36	86

基礎工学	物質創成	15	6	21
	システム創成	1		1
（小　計）		16	6	22
薬学	応用薬学	9	3	12
（小　計）		9	3	12
情報科学	情報数理	4	1	5
	コンピュータサイエンス	5	4	9
（小　計）		9	5	14
生命機能		3		3
（小　計）		3		3
合　　計		120	75	195

４）学部、共通教育担当授業一覧（平成１６年度）

理　　学	放射光物理学		磯山悟朗
	物理学セミナー１		朝日　一、長谷川繁彦
	物理学セミナー２		磯山悟朗、加藤龍好
	固体化学		川合知二
工　　学	量子線物理学		谷村克己
	先端科学序論		和田　洋
基礎工学部	固体電子論Ｂ		吉田　博
	知識工学		八木康史
	情報科学ゼミナールＢ		八木康史、向川康博
	プログラミングＣ		佐川立昌
	情報科学実験Ｃ		佐川立昌
	先端科学技術セミナー	物性物理工学の最前線	田畑　仁
	セラミックス物性		川合知二
薬学部	薬学特論Ｖ		山口明人
	薬学概論		山口明人
共通教育	基礎教育セミナー	生活の中の有機化学	笹井宏明、真嶋哲朗、安蘇芳雄 加藤修雄
		ﾅﾉｻｲｴﾝｽと量子機能	朝日　一、吉田　博、松本和彦 井上恒一、吉信達夫、白井光雲 長谷川繁彦
		分子と生命	谷澤克行、黒田俊一、岡島俊英 立松健司
	特別科目	新しい物質の科学	川合知二、新原晧一、弘津禎彦
	基礎教育科目	物理学概論Ⅰ	谷村克己
		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

化学要論	加藤修雄
基礎有機化学	笹井宏明
電磁気学要論	吉田　博
化学概論	真嶋哲朗、安蘇芳雄
分子化学Ａ	田川精一、関　修平

４．国際交流

１）活動状況

当研究所では、国際交流の推進が研究所の活動にとってひとつの重要な要因であるという認識にたって、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大阪大学国際交流委員会委員から成っており、国際交流の推進に中心的な役割を果たしている。

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

平成１６年度は、協定締結機関は合計１１機関となった。

ドイツ国	マグデブルグ・オットーフォンゲーリック大学自然科学部	平成 6 (1994).10.18～
米国	メリーランド大学カレッジパーク校	平成 9 (1997).12.15～
韓国	釜慶大学校基礎科学研究所	平成 11(1999). 2.26～
ドイツ国	ユーリッヒ研究センター	平成 13(2001). 1. 1～
英国	ユニバーシティカレッジロンドン	平成 15(2003).9.26～
韓国	漢陽大学産業科学研究所	平成 16(2004).2.11～
韓国	慶尚大学校工科大学	平成 16(2004)8.27～
韓国	釜山国立大学校自然科学大学	平成 16(2004)10.29～
韓国	忠南国立大学校自然科学大学	平成 16(2004)11.26～
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～

当研究所に所属する外国人は、平成１７年３月３１日現在で合計３０名であり、その内訳は助手６名、客員研究員１名、研究生４名、大学院博士課程１７名、修士課程２名である。

国別では次のとおりである。

韓国（１２）、中国（７）、インド（４）、タイ（２）、エジプト（１）、バングラデシュ（１）、台湾（１）、フィリピン（１）、フィンランド（１）

２）国外との研究者往来（平成１６年度）

教員の海外出張は、合計１７４件であった。訪問先は、米国、韓国、イタリア、中国、スイス、ドイツその他の多岐に渡っている。経費面では、科学研究費によるものが７２件で、奨学寄附金が３９件、その他によるものが６３件であった。

国外から当研究所を訪問した研究者は合計５７名であり、内訳は次のとおりである。
米国（１９）、韓国（６）、カナダ（１）、インド（１）、ウクライナ（１）、ポルトガル（１）、オランダ（２）、オーストラリア（１）、ノルウェー（１）、オーストリア（１）、イギリス（６）、イタリア（１）、スウェーデン（３）、スイス（１）、ブラジル（１）、フランス（２）、ドイツ（６）、ポーランド（３）

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１６年度は４回の会合をもった。

・第１回　平成１６年　９月　８日（水）

「産研が持つ科学技術ポテンシャル」　所長　川合　知二

「多元物質科学研究所が持つ科学技術ポテンシャル」

東北大学多元物質科学研究所所長　中西　八郎

「大学特許の特徴とその活用」　科学技術振興機構課長代理・弁護士　新井　則之

・第２回　平成１７年　３月　７日（月）

「Protein Kinase D が関与する心肥大化機構に関して」　助教授　黒田　俊一

「Structure-Based Drug Design による新規非ヌクレオシド体アデノシンデアミナーゼ阻害剤の創出研究」　藤沢薬品工業株式会社・化学研究所　寺坂　忠嗣

「細菌の薬剤耐性化克服へ向けた薬剤排出トランスポーター群の構造機能解析」

助教授　村上　聡

「X 線構造に基づく阻害剤開発と創晶プロジェクト」　大阪大学工学研究科助教授　井上　豪

・第３回　平成１６年１２月　８日（水）

「高性能ナノクラスター触媒の開発」　助手　中山　忠親

「アユミ工業における技術の変遷」

アユミ工業株式会社技術部　第２グループマネージャー　阿部　智之

「ロータス型ポーラス金属の開発と応用」　助手　玄　丞均

「－大学からの技術移転と事業化－　死の谷（デスバレー）を超えるために」

アセット・ウィット代表取締役　南部　修太郎

・第４回　平成１７年　１月１３日（木）

「機能性材料のマテリアルデザイン：デザインと実証」　教授　吉田　博

「第一原理電子状態計算による有機－金属界面の研究」　助教授　森川　良忠

「ワイドギャップ酸化物半導体スピントロニクス」　特任助手　松井　裕章

「III-V 族窒化物半導体ベースの半導体スピントロニクス」　教授　朝日　一

「企業から見た新物質の開発と次世代エレクトロニクス」

松下電器株式会社中尾研究所参事　高尾　正敏

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。１６年度は、排出トランスポーターから創薬を考える研究会、半導体新規化学プロセス研究会の２研究会で各３回、総計６回開催した。

６．まとめ（課題と展望）

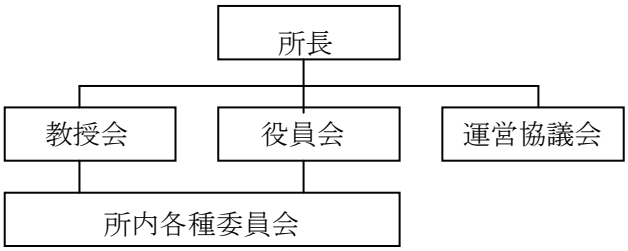
１）組織運営と運営形態

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

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

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

当研究所の運営については各種委員会が設置され、そこで議論されたことは教授懇談会と教授会に反映されている。この様にして、すべての教授が研究所の運営に関与している。当研究所としては、こうした運営方式がこれまでは最善であったと思われる。しかし、国立大学法人化後には、迅速な意志決定や将来に向けての戦略などが要求されるようになることを考え、運営方式を新たな形に変革した。即ち、所長の下に役員会を置き、さらに、外部の意見を取り入れる形の運営協議会を設置した。



２）研究の予算、設備、研究活動

研究設備、装置類については活発な外部資金の導入により比較的恵まれている。平成１３年度には第二研究棟、平成１５年度にはナノテクノロジー総合研究棟が竣工した。今後は老朽化の著しい第一研究棟の改築が大きな課題である。

放射線実験所と高次インターマテリアルセンターを改組し、産業科学ナノテクノロジーセンターが平成１４年４月１日より発足し、ナノサイエンスとナノテクノロジーの研究がスタートした。平成１６年度には、ナノ構造評価部門を加え、センターの充実を図った。さらに、２１世紀 COE 拠点「新産業創造指向インターナノサイエンス」として活発な研究をすすめている。

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が新たに発足した。

研究活動については、各教員は中核的研究拠点（COE)、戦略創造研究事業などに採用されてきており、大きなスケールの研究が進行している。

３）教育活動

教育活動では、大学院の理学、工学、基礎工学、薬学、生命機能、情報科学などの研究科から約２００名の院生を受け入れ、研究現場におけるユニークな教育を行って世に送り出している。RA を採用しており、院生としてさらに研究に密着できる体制となっている。２１世紀 COE プログラムにもとづく国際学会出席援助や著名外国人の招待セミナー、国際シンポジウムなどを通じて院生教育の国際化を図っている。各教員は学部の教育や共通教育機構の教育にも要請に応じて関与している。このような教育

活動に加えて、今後、さらに産研でなければ出来ない研究者教育を考えようとしている。

４）社会との連携、社会貢献

学会での発表や役員就任など所員による学界活動は積極的に行なわれている。産業界との連携は個人的な接触が多いが、当研究所としては会員制の産研テクノサロンを平成１０年度にスタートさせている。産研テクノサロンに参加する会員企業の数は年を追うにしたがい増加しており、特色ある産学交流の場としての役割を果たしつつある。また、平成１２年度には当研究所で生まれた科学技術のシーズを公開して、関心のある企業が参加して事業化を目指す目的で「新産業創造研究会」を設置した。１６年度は２テーマについて研究会が行われた。研究会の中から企業化へという方向も出てきている。研究所として、産学連携を強化する方向で、産学連携室を設置する予定である。

５）国際交流

数多くの外国人研究者、外国人客員教授や留学生（平成１６年度は総計２３名）を受入れている。さらに外国人研究者を増やす努力をしている。当研究所としては毎年一回国際交流パーティーを開くとともに、留学生の要望を積極的に取り入れるように努めている。

当研究所主催の国際会議は平成９～１５年度に続いて、平成１６年度も２回開催した。当研究所から世界に向って情報を発信し、外国の研究者と意見交換を行なう場を持つ意義は大きい。

６）将来計画

平成１０年度に行われた外部評価において、当研究所の将来計画を策定する必要性が指摘された。これを受けて、平成１１年度に将来計画委員会において当研究所の将来像について検討を行ない、まとめた。平成１５年度に外部評価を受け、更に検討を行った。この将来像は当研究所の基本的なビジョンとなっており、法人化された１６年度からの中期目標と中期計画にも反映している。

産業科学研究所の将来像

１）総論

産業科学研究所においては（１）社会的・経済的ニーズに応じた研究の推進と、（２）長期的なビジョンの上に立った基礎研究を行う。これは科学技術基本法にうたわれている研究推進の基本方向と一致するものである。すなわち「産業に必要な先端的事項を基礎科学及び応用科学の立場で研究し」、同時に「各専門分野の研究を深化させ異分野にわたる融合学際型研究を推進し」、「新しい研究分野を拓いていける人材を育成していく」。これによって、トップレベルの研究所として世界に発信する。研究課題の項に述べるように、研究体制の機動性とプロジェクトの学際性において特徴を持つ研究を発展させる。さらに、大阪大学の一員として、大学院各研究科との密接な関係を維持しつつ、レベルの高い研究者教育に貢献する。 “尊敬される科学”と“役立つ技術”そして“それらを結ぶ２１世紀の新しい科学技術”を生み出すのが産業科学研究所である。

２）研究課題

当研究所が対象とする３つの領域「材料」、「情報」、「生体」に属するそれぞれの分野が国内外に類例のない超一流の研究を推進する。同時に、これを踏まえて、３つの領域の融合した研究を行う(異分野間・異部門間の共同研究)。２１世紀には分析的な個別科学から統合的な予測の科学が求められる。このような視点から諸分野を融合させた新しい科学を立ち上げ、積極的に推進を図る。異分野の研究室が同じ建物

にあり、常に討論する学問的な雰囲気のある産研には新しい融合科学を生み出す素地がある。量子ビーム科学、生命物質科学、生命情報科学、複合材料科学、量子機能科学、分子機能科学、環境科学、知識科学、ヒューマンインタフェース科学、ナノテクノロジー、ナノバイオなどがキーワードとなる。

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

３）運営

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

社会的インパクトが高く、産研の目玉となるような基礎または応用研究を一定の年限で行うプロジェクトを設け、特別教育研究経費、総長経費や外部資金を活用して人、予算、研究スペースなどの面で全所的に支援する。プロジェクト研究分野の特任教員には任期を設ける。さらに、ポストドクトラルフェローを増員し、レベルの高い研究者の養成に努める。

４）教育、社会的貢献

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

２０世紀の科学者は専門に閉じこもりがちであり、知識と成果を社会に還元する姿勢に欠けていた。その結果、社会は最終的な工業製品の恩恵は受けてはいるものの、製品を可能にした技術と基礎科学に対する興味と理解とをほとんど示さなかった。これと対応するかのように高校生の理科離れと理工系学生の学力低下が指摘されている。これは次の世代の科学と社会の発展にとって好ましい事ではない。このような認識に立ち、産研の各研究分野は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。２１世紀には社会人に対するレベルの高い科学教育が必要になることも自明である。これらに対して、産研の特徴を生かし、積極的に関与する。

５）産業界との連携

各分野は基礎研究、応用研究を通じて積極的に２１世紀の産業への貢献を目指す。産業界との連携は２１世紀の産業科学研究所という組織において、特に重要になると予想される。当研究所としては新産業の芽となる原理的な研究を推進するとともに、研究成果、取得特許、ナノテクノロジー関係の大型装置、材料解析センター、等をホームページを通して公開し、産業界の利用に供する。産業界の要求に対処し実質的な関係を積極的に押し進める研究を研究所として重点的に支援する。同時に産業界より客員教授を招きニーズとシーズを通じ産業界との連携を強める。さらに、産研テクノサロンや新産業創造研究会を活性化し、産業界との密接な関係を維持し発展させる。

（広報委員）

委員長	（教　　授）	田　川　精　一
委　員	（　〃　）	真　嶋　哲　朗
	（助　　手）	江　村　修　一
	（　〃　）	※笹　島　宗　彦
	（　〃　）	多　根　正　和
	（　〃　）	※柏　木　　茂
	（　〃　）	川　井　清　彦
	（　〃　）	平　田　隆　弘
	（　〃　）	古　崎　晃　司
	（総務課長）	廣　橋　利　夫

※は、編集作業に当たった委員

［附１］各研究分野の組織と活動

［附２］各附属研究施設の組織と活動

［附３］共通施設、技術室、事務部の組織と活動

（注）各研究分野等の所属者については、平成１６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ナノ加工プロセス、シリコン基板上に生体分子などを配列させるプロセス、分子線結晶成長法を中心とした化合物半導体系の材料合成、低次元量子構造の自己組織的形成、電子分光法・フォトルミネセンス法を中心技術とした評価、電気伝導などの電気的評価、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の広範な材料を用いた多岐にわたる材料設計・合成、ナノ加工が可能なナノファクトリーを形成している。このナノファクトリーを駆使することにより、新物質の創製、高性能デバイス、量子デバイスの開発および超五感・生体指向センサ・メモリの開発に関する研究を推進している。具体的には、電子励起原子移動による半導体中不純物欠陥の制御と物理、ナノスケール磁性半導体によるスピンと電荷の制御と光磁気効果の物質設計、カーボンナノチューブの物性制御とそれを用いた単電子トランジスタの作成、量子ドット・細線の形成と評価、光子と電子波の量子相互作用等の量子物性、量子電子デバイス・量子光デバイス・スピントロニクスデバイスの基礎、バイオ・化学イメージセンサの開発、DNA コンピューティングなどの研究を行っている。併せて、材料、情報、生体の学際的な研究テーマも推進している。

成果

・シリコン表面のステップダイナミクスとトレンチの熱緩和
・バイオ・化学イメージセンサの高性能化と応用
・AFM を用いた生体分子のナノパターニング
・半導体-半金属混晶 Tl 系新半導体の成長と温度安定波長半導体レーザへの応用
・室温強磁性半導体の創製とスピントロニクスデバイス応用
・高密度量子ドットの形成と量子ドットレーザ応用
・カーボンナノチューブの物性制御と単電子トランジスタの作成
・II-VI 族半導体 CdSe 量子構造の形成と評価
・第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
助教授　　吉信　達夫
助手　　足立　敏之、須藤　孝一
博士研究員　　Hongwen Liu、Kumaran Shanmugam
大学院学生　　栗林　均、藤村　英明、後藤　洋臣、宮里　幸司、森影　有貴
事務補佐員　　栂井　文

a ）　概要

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

b ）　成果

・$SrTiO_3$(001)表面におけるステップの平坦化ダイナミクスに関する研究

超高真空 STM を用いて、$SrTiO_3$(001)表面上の原子ステップの平坦化のダイナミクスについて調べた。ステップ形状スペクトルの時間変化を評価し、テラス上を拡散する吸着原子のステップ端での取り込み・脱離がステップ運動を引き起こす支配的なミクロ過程であることを明らかにした。また、ステップの平坦化に、弾性歪みに起因したステップ間の反発相互作用が影響していることも明らかにした。

・シリコン基板上に形成したトレンチ構造の水素アニールによる変形に関する研究

シリコン基板上に形成したトレンチ構造の高温水素アニールによる変形機構について調べた。原子間力顕微鏡（AFM）を用いたトレンチ側壁表面の観察により、高温水素アニールによってコーナーが丸められるのに伴い、トレンチ側壁の原子ステップ運動に不安定化が起こり、側壁表面の構造も劇的に変化することを明らかにした。さらに、トレンチ側壁におけるステップの振る舞いを、1 次元ステップフローモデルに基づいて解析し、吸着原子が局所的な粒子数保存則に従いながらテラス上を拡散する場合に、実験で観察されたようなステップ運動の不安定化が起こることを示した。

・AFM 陽極酸化を用いたシリコン表面への生体分子の微細パターニング

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

・AFM, STM, 走査分光エリプソメトリによるタンパク質の研究

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

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

STL によるポリフィリン分子の分子準位間発光のスペクトルを測定し、基板の貴金属のプラズモン誘

起電磁場による分子発光の増強が顕著であることを明らかにした。

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

［ 原著論文 ］

Fractal Aggregation of DNA after Therma Denaturation, L. Yan and H. Iwasaki: Chaos, Solitons and Fractals. 20 (2004) 877-881.

Immobilization of Urease and Cholinesterase on the Surface of Semiconductor Transducer for the Development of Light-Addressable Potentiometric Sensors, I. G. Mourzina, T. Yoshinobu, Yu. E. Ermolenko, Yu. G. Vlasov, M. J. Schöning and H. Iwasaki: Microchim. Acta., 144 (2004) 41-50.

Investigation of Shape Transformation of Silicon Trenches during Hydrogen Annealing, H. Kuribayashi, R. Hiruta, R. Shimizu, K. Sudoh and H. Iwasaki: Jpn. J. Appl. Phys.,43 (2004) L468-L470.

Step Distribution on Vicinal $SrTiO_3$(001) Surfaces, K. Sudoh and H. Iwasaki: Surf. Sci., 557 (2004) L151-L155.

Laser-Scanned Transducer (LSST) as a Multisensor System, Yu. E. Ermolenko, T. Yoshinobu, Yu. G. Mourzina, Yu. G. Vlasov, M. J. Schöning and H. Iwasaki: Sensors and Actuators B., 103 (2004) 457-462.

Evolution of Surface Morphology of Si-Trench Sidewalls during Hydrogen Annealing, R. Hiruta, H. Kuribayashi, R. Shimizu, K. Sudoh and H. Iwasaki: Appl. Surf. Sci., 237 (2004) 63-67.

Hydrogen Pressure Dependence of Trench Corner Rounding during Hydrogen Annealing, H. Kuribayashi, R. Hiruta, R. Shimizu, K. Sudoh and H. Iwasaki: J. Vac. Sci. Technol. A., 22 (2004) 1406-1409.

Fabrication of Thin-Film LAPS with Amorphous Silicon, T. Yoshinobu, M. J. Schöning, F. Finger, W. Moritz and H. Iwasaki: Sensors., 4(2004) 163-169.

Numerical Study on Shape Transformation of Silicon Trenches by High Temperature Hydrogen Annealing, K. Sudoh, H. Iwasaki, H. Kuribayashi, R. Hiruta and R. Shimizu: Jpn. J. Appl. Phys., 43 (2004) 5937-5941.

Application of AFM Anodic Oxidation to Patterning of Biomolecules on Si, T. Yoshinobu, W.-C. Moon, A. Nishikawa, J. Suzuki and H. Iwasaki: Sensors and Materials, 16 (2004) 421-428.

High Resolution LAPS Using Amorphous Silicon as the Semiconductor Material, W. Mortiz, T. Yoshinobu, F. Finger, S. Krause, M. Martin-Fernandez, and M.J. Schöning: Sensors and Actuators B, 103 (2004) 436-441.

Re-examination of Scanning Tunneling Spectroscopy for Its Practical Application in Studies of Surface Electronic Structures, N. Li, M. Zinke-Allmang, and H. Iwasaki: Surf. Sci. 554 (2004) 253-261.

Analysis of Cu Silicides by Atom Probe Field Ion Microscope, T. Adachi: J. Vac. Soc. Jpn. 47 (2004) 567-573.

Growth of SiC Nanodots on Si(111) by Exposure to Ferrocene and Annealing Studied by Scanning Tunneling Microscopy, K. Kametani, K. Sudoh, and H. Iwasaki: Thin Solid Films 467 (2004) 50-53.

［ 国際会議 ］

Surface Morphological Evolution During Protein Crystal Growth from Solutions, K. Kimura, T. Yoshinobu, K. Sudoh and *H. Iwasaki, 2004 Scanning Probe Microscopy, Sensors and Nanostructures, Beijing - TEDA, China, May. 23 – 27, 2004.

Interaction between Steps on $SrTiO_3$(001) Vicinal Surfaces, K. Sudoh and *H. Iwasaki, 2004 Scanning Probe Microscopy, Sensors and Nanostructures, Beijing - TEDA, China, May. 23 – 27, 2004.

Island Nucleation during Submonolayer Growth of CaF_2 on Vicinal Si(111), Y. Miyata, K. Sudoh, and *H. Iwasaki, 2004 Scanning Probe Microscopy, Sensors and Nanostructures, Beijing - TEDA, China, May. 23 – 27, 2004.

Fabrication of Thin-Film LAPS with Amorphous Silicon (Invited), * T. Yoshinobu, M. J. Schöning, F. Finger, W. Moritz and H. Iwasaki, The 2nd International Symposium on Sensor Science, Nanjing, China, May. 29 – June. 4 2004.

Towards a Portable Multi-Sensor LAPS Unit with Integrated Signal Processing (Poster), T. Wagner, C. Wang, R. Otto, J. P. Kloock, *T. Yoshinobu and M. J. Schöning, The 2nd International Symposium on Sensor Science, Nanjing, China, May. 29 – June. 4 2004.

Development of a Handheld 16 Channel Pen-Type LAPS for Electrochemical Sensing, M. J. Schöning, C. Wang, R. Otto and *T. Yoshinobu, The 10th International Meeting on Chemical Sensors (10-IMCS), Tsukuba, Japan, July. 11 - 14 2004.

AFM Patterning and Immobilization of Biomolecules on Si (Poster), W.-C. Moon, *T. Yoshinobu, A. Nishikawa and H. Iwasaki, The 10th International Meeting on Chemical Sensors (10-IMCS), Tsukuba, Japan, July. 11 - 14 2004.

Immobilization of Urease and Cholinesterase on the Surface of Semiconductor Transducer for the Development of Light-Addressable Potentiometric Sensors (Poster), I. G. Mourzina, *T. Yoshinobu, Yu. E. Ermolenko, Yu. G. Vlasov, M. J. Schöning and H. Iwasaki, The 10th International Meeting on Chemical Sensors (10-IMCS), Tsukuba, Japan, July. 11 - 14 2004.

Application of the Light-Addressable Potentiometric Sensor to Microfluidic Devices (Poster), *T. Yoshinobu, Y. Ui, H. Iwasaki, N. Näther, M. J. Schöning and M.Koudelka-Hep, Eurosensors XVIII (18th European Conference on Solid-State Transducers), Rome, Italy, September. 13 - 15 2004.

STL of Organic Materials on Metal Substrates, *H.-W. Liu, R.Nishitani and H. Iwasaki, 2004 Fall Meeting of the Chinese Physical Society (CPS2004), Taiyuan, China, September. 18 - 20 2004

A Handheld 16 Channel Pen-Type LAPS as a Platform for (Bio-)Electrochemical Sensing, T. Wagner, M. J. Schöning, R. Otto and, *T. Yoshinobu, International Symposium on Cellular Engineering and Nanosensors (part of the 38th Annual Congress on Biomedical Engineering), Ilmenau, Germany, September. 21 2004.

Potentiometric Imaging in a Microfluidic Channel, * T. Yoshinobu, Y. Ui, H. Iwasaki, N. Näther, M. Koudelka-Hep and M. J. Schöning, International Symposium on Cellular Engineering and Nanosensors (part of the 38th Annual Congress on Biomedical Engineering), Ilmenau, Germany, September. 21 2004.

Microscopy of Impedance and Surface Ion Concentrations (Poster), W. Moritz, * T. Yoshinobu, F. Finger, S. Krause,M. Xu and M. J. Schöning, International Symposium on Cellular Engineering and Nanosensors (part of the 38th Annual Congress on Biomedical Engineering), Ilmenau, Germany, September. 21 2004.

Micropatterning of Biomolecules on Silicon by AFM Anodic Oxidation (Poster), * T. Yoshinobu, W. Moon, A. Nishikawa, J. Suzuki and H. Iwasaki, International Symposium on Cellular Engineering and Nanosensors (part of the 38th Annual Congress on Biomedical Engineering), Ilmenau, Germany, September. 21 2004.

Immobilization of DNA on Arrayed SiO_2 Dots Prepared by AFM Anodic Oxidation (Poster), * T. Yoshinobu, W. Moon, A. Nishikawa and H. Iwasaki, 5th International Symposium on Electrochemical Micro& Nanosystem Technologies (EMT2004), Tokyo, Japan, September. 28 – October. 1 2004.

Application of the Light-Addressable Potentiometric Sensor to Chemical Imaging of a Microfluidic Channel (Poster), *T. Yoshinobu, Y. Ui, H. Iwasaki, N. Näther, M. J. Schöning and M. Koudelka-Hep, 5th International Symposium on Electrochemical Micro& Nanosystem Technologies (EMT2004), Tokyo, Japan, September. 28 – October. 1 2004.

Scanning Photo-Induced Impedance Microscopy - Improvements in Lateral Resolution, W. Moritz, T. Yoshinobu, F. Finger, S. Krause and M. J. Schöning, 2004 Joint International Meeting: 206th Meeting of The Electrochemical Society, Inc. & 2004 Fall Meeting of The Electrochemical Society of Japan, Honolulu, Hawaii, October. 3 - 8, 2004.

Micropatterning of Biomolecules on Si by AFM Anodic Oxidation Technique, *T. Yoshinobu and H. Iwasaki, International Workshop on Surface-Biotronics, Tokyo, Japan, October. 19 - 20, 2004.

Patterning of Biomolecules on Silicon by AFM Oxidation, *T. Yoshinobu, W. C. Moon, A. Nishikawa, J. Suzuki and H. Iwasaki, 2004 International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC 2004), Osaka, Japan, October. 26 - 29, 2004.

STM-Excited Fluorescence from Organic Films, *H. W. Liu, R. Nishitani, T. Yoshinobu, H. Iwasaki and T. Matsumura-Inoue, Korea Japan Joint Forum 2004 "Organic Materials for Electronics and Photonics", Okinawa, Japan, November. 3 - 6, 2004.

A Theory of Molecular Spectra from STM-Induced Light Emission, *R. Nishitani and H. Iwasaki, Korea Japan Joint Forum 2004 "Organic Materials for Electronics and Photonics", Okinawa, Japan, November. 3 - 6, 2004.

Portable Multi-Sensor LAPS (Light-Addressable Potentiometric Sensor) for Ion Sensing, T. Wagner, R. Otto, H. Iwasaki, *T. Yoshinobu and M.J. Schöning, Shanghai International Conference on Physiological Biophysics (Shanghai ICPB'04), Shanghai, China, November. 9 - 13, 2004.

AFM Micropatterning of Protein and DNA Molecules on Si, *T. Yoshinobu, W.-C. Moon, A. Nishikawa, J. Suzuki and H. Iwasaki, Shanghai International Conference on Physiological Biophysics (Shanghai ICPB'04), Shanghai, China, November. 9 - 13, 2004.

STM-Excited Luminescence from Organic Materials on Au(111) (Poster), *H. W. Liu, R. Nishitani, Y. Ie, T. Yoshinobu , Y. Aso and H. Iwasaki, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology - Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing (8th SANKEN International Symposium & 3rd International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology), Osaka, Japan, December. 6 - 7, 2004.

STM Study on Scaling Property of 2D Island Density in CaF_2 Growth on Vicinal Si(111) (Poster), *K. Sudoh, Y. Miyata, K. Kametani and H. Iwasaki, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology - Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing (8th SANKEN International Symposium & 3rd International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology), Osaka, Japan, December. 6 - 7, 2004.

Micropatterning of Protein and DNA Molecules on Si by AFM (Poster), *T. Yoshinobu, W. C. Moon, J. Suzuki, A. Nishikawa and H. Iwasaki, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology - Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing (8th SANKEN International Symposium & 3rd International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology), Osaka, Japan, December. 6 - 7, 2004.

AFM Micropatterning of Biomolecules on Silicon (Invited), *T. Yoshinobu, Molecule-Based Information Transmission and Reception - Application of Membrane Protein Biofunction - (MB-ITR2005), Okazaki, March. 3 - 7 2005.

Study of Porphyrin Molecules Adsorbed on Conductive Substrates by STL (Poster), *H. W. Liu, R. Nishitani, Y. Ie, T. Yoshinobu, Y. Aso and H. Iwasaki, Third 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" International Symposium (ISCOE-2005), Shiga, March. 9 - 10 2005.

Positive Patterning of Ferritin Molecules on Silicon (Poster), *K. Shanmugam, S. Iida, T. Yoshinobu and H. Iwasaki, Third 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" International Symposium (ISCOE-2005), Shiga, March. 9 - 10 2005.

Observation of Si (100) Surface Annealed in Hydrogen Gas Ambient by Scanning Tunneling Microscopy (Poster), *H. Kuribayashi, K. Sudoh, H. Iwasaki, M. Gotoh, R. Hiruta and R. Shimizu, Third 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" International Symposium (ISCOE-2005), Shiga, March. 9 - 10 2005.

［ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ］

岩崎　裕	Scanning Probe Microscopy, Sensors and Nanostructures 2004 （組織委員）
岩崎　裕	Molecule-Based Information Transmission and Reception（組織委員）
吉信　達夫	The 10th International Meeting on Chemical Sensors (general affairs committee)
吉信　達夫	雑誌 Sensors (international advisory editorial board)
吉信　達夫	Molecule-Based Information Transmission and Reception (secretariat)
吉信　達夫	2005 International Microprocesses and Nanotechnology Conference (sub-head of the Nanomaterials section)

［ 国内学会 ］

日本物理学会	2 件
応用物理学会	2 件
真空学会	2 件
表面科学会	1 件
電気化学会	1 件
日本化学会	1 件

［ 取得学位 ］

修士（工学）

藤村　英明　　結晶表面上の微細構造の変形過程におけるステップの挙動

［ 科学研究費補助金 ］

（代表者として配分されたもの）　　単位：千円

基盤研究（C）（2）

吉信　達夫	二次元化学敏感面の開発と人工感覚への応用	120

［ 受託研究 ］

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

光・電子材料研究分野

教授	朝日　一
助教授	長谷川　繁彦
助手	江村　修一
博士研究員	Shanthi SUBASHCHANDRAN
大学院学生	藤原　淳志、金　武成、崔　誠佑、木村　重哉、島田　隆司 土井　航、向井　俊和、宗像　宏典、山下　剛司、内田　夏苗 小林　覚、松野　俊輔、松本　武、薮内　敦
事務補佐員	菊本　記子

a ）　概要

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

b ）　成果

・希薄磁性半導体の結晶成長と物性

半導体と磁性体という２つの性質をあわせもつ希薄磁性半導体は新しい機能を発現できる材料として注目されている。当研究室では平成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、室温強磁性を実現した。この GaCrN からは強磁性半導体では初めての PL 発光を観測した。その後、希土類原子を添加した GaGdN, GaEuN においても室温強磁性成分のあることを見出した。放射光を用いた XAFS 測定により Cr Gd 等の磁性原子が Ga サイトを置換していることを確認した。平成１６年度の大きな成果は、DyN/GaN 超格子構造デバイスを作製し磁気スピントンネル特性を観測したこと、GaCrN/GaN/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縦磁気抵抗特性を実現したことである。

・半導体-半金属混晶（Tl 系新半導体）の結晶成長、評価とデバイス応用

禁制帯幅（波長領域）が温度によって変化しない新しい材料として Tl 系材料 TlInGaP, TlInGaAs を平成７年に当研究室が提案し、分子線結晶成長法による結晶成長検討から始めて、物性評価、デバイス応用の研究を行っている。これまでに、TlInGaAs/InP レーザダイオード(LD)でパルス電流注入によるレーザ発振を達成し、発振スペクトルのピーク波長の温度変化が 0.06 nm/K と小さいことを確認している。さらに、TlInGaAs の屈折率の温度依存性を測定し、予想どおり屈折率も温度安定化することを確認した。平成１６年度は、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、第１段階として TlInGaAs/GaAs での電流注入レーザ発振を実現した。また、TlInGaAs/InP レーザの特性向上のために TlInP クラッド層の挿入を提案した。TlInP の成長と屈折率の評価を行い、TlInP の有用性を確認した。

・窒化物半導体混晶の結晶成長と物性

III-V 族窒化物半導体は、発光素子や高温素子への応用で注目を浴びている材料であり、研究が進めばより応用が広がる可能性をもっている。今までに、非晶質の石英ガラス基板あるいは金属基板上に多結晶 GaN を成長し、その発光強度が非常に大きいことを示し、多様な応用を提案した。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。平成１５年度には 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 V/μm、電流密度 2.5mA/cm2 と極めて良好な電界電子放出特性を得た。平成１６年度は、表面に AlN 薄層を形成することにより、更に電子放出特性を改善できることを示した。また、GaN 低温バッファ層成長後のアニール温度により GaN ナノロッド径が変化すること、最適なナノロッド径があることを明らかとした。

・半導体量子構造の形成と物性

当研究室では、(N11)面 InP 基板上に GaAs/InAs 短周期超格子を成長することにより、光情報通信で重要な 1.3-1.6μm で発光する量子ドットが自己形成されることを見出している。この自己形成量子ドットでは、短周期超格子層構造のパラメータの調整により精密な発光波長の制御ができることを確認している。平成１６年度は、この量子ドット構造を活性層に用いた量子ドットレーザを作製し、電流注入レーザ発振を実現した。

・短チャンネル MOSFET のナノ観察と評価

当研究室では短チャンネル 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。平成１６年度は、断面の切り出し角度、切り出し場所を換えたサンプルに対してナノ評価を行い、デバイスの微細特性を STM で可視化できること示した。

［ 原著論文 ］

Observation of photoluminescence emission in ferromagnetic semiconductor GaCrN, M. Hashimoto, H. Tanaka, R. Asano, S. Hasegawa, and H. Asahi: Appl. Phys. Lett. 84 (21) (2004) 4191-4193.

Growth and characterization of new III-V-based magnetic semiconductors for application to semiconductor spintronics devices (Invited), H. Asahi, Y.K. Zhou, M. Hashimoto, H. Tanaka and S. Emura: Proceedings of 12th International Workshop on The Physics of Semiconductor Devices (Eds. by K.N. Bhat and A. DasGupta, 2004 Narosa Publishing House, New Delhi, India) 1095-1100.

Migration enhanced epitaxy (MEE) growth of five-layer asymmetric coupled quantum well (FACQW) and its cross-sectional STM observation, J.H. Noh, S. Hasegawa, T. Suzuki, T. Arakawa, K. Tada and H. Asahi: Physica E 23 (2004) 482-486.

Wavelength control of 1.3-1.6 μm light emission from the quantum dots self-formed in GaAs/InAs short-period superlattices grown on InP (411)A substrates, J. Mori, T. Nakano, T. Shimada, S. Hasegawa and H. Asahi: J. Appl. Phys. 96 (3) (2004) 1373-1375.

Temperature stability of the refractive index and the direct-band edge in TlInGaAs quaternary alloys, A. Imada, H.J. Lee, A. Fujiwara, T. Mukai, S. Hasegawa and H. Asahi: Appl. Phys. Lett. 84(21) (2004) 4212-4214.

1.3-1.5-μm-wavelength GaAs/InAs superlattice quantum-dot light-emitting diodes grown on InP(411)A substrates, J. Mori, T. Nakano, T. Shimada, S. Hasegawa and H. Asahi: Jpn. J. Appl. Phys. 43(7A) (2004) L901-L903.

Barrier height control for electron field emission by growing an ultra-thin AlN layer on GaN/Mo,

S. Nishida, T. Yamashita, S. Hasegawa and H. Asahi: Thin Soild Films, 464-465 (2004) 128-130.

GaN-based magnetic semiconductors for nanospintronics (Invited), H. Asahi, Y.K. Zhou, M. Hashimoto, M.S. Kim, X.J. Li, S. Emura and S. Hasegawa: J. Phys.: Condens. Matter. 16 (48) (2004) S5555-S5562.

Optical properties of GaN-based magnetic semiconductors, Y.K. Zhou, M.S. Kim, X.J. Li, S. Kimura, A. Kaneta, Y. Kawakami, Sg. Fujita, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi: J. Phys.: Condens. Matter. 16 (48) (2004) S5743-S5748.

Magnetic, optical and transport properties of GaN-based ferromagnetic/nonmagnetic heterostructurtes, M.S. Kim, Y.K. Zhou, X.J. Li and H. Asahi: J. Phys.: Condens. Matter. 16 (48) (2004) S5711-S5716.

Ramana scattering characterization of GaN-based spintronics materials, N. Hasuike, H. Fukumura, H. Harima, K. Kisoda, M. Hashimoto, Y.K. Zhou and H. Asahi: J. Phys.: Condens. Matter. 16 (48) (2004) S5811-S5814.

Local structural change in GaCrN grown by radio frequency plasma-assisted molecular-beam epitaxy, M. Hashimoto, H. Tanaka, S. Emura, M.S. Kim, T. Honma, N. Umesaki, Y.K. Zhou, S. Hasegawa and H. Asahi: J. Cryst. Growth 273 (2004) 149-155.

Two-dimensional characterization of carrier concentration in metal-oxide-semiconductor field-effect transistors with the use of scanning tunneling microscopy: H. Fukutome, H. Arimoto, S. Hasegawa, and H. Nakashima, J. Vac. Sci. Technol. B22 (2004) 358-363.

Accelerated decay of the 31-yr isomer of Hf-178 induced by low-energy photons and electrons, C. B. Collins, N. C. Zoita, F. Davanloo, S. Emura, Y. Yoda, T. Uruga, B. Patterson, B. Schmitt, J. M. Pouvesle, I. I. Popescu, V. I. Kirischuk and N. V. Strilchuk: Laser Physics, 14 (2004) 154-165.

Carbon-supported Pt-Fe alloy as a methanol-resistant oxygen-reduction catalyst for direct metanol fuel cells, K. Shukla, R. K. Raman, N. A. Choudhury, K. R. Priolkar, P. R. Sarode, S. Emura, R. Kumashiro: Electroanalytical Chemistry 563 (2004) 181-190.

Accelerated γ emission from isomeric nuclei, C.B. Collins, N.C. Zoita, F. Davanloo, S. Emura, Y. Yoda, T. Uruga, B. Patterson, B. Schmitt, J.M. Pouvesle, I.I. Popescu, V.I. Kirischuk, and N.V. Strilchuk: Radiation Physics and Chemistry 71 (2004) 619-625.

$Ce_{1-x}Rh_xO_{2-\delta}$ solid solution formation in combustion-synthesized Rh/CeO_2 catalyst studied by XRD, TEM, XPS, and EXAFS: A. Gayen, K. R. Priolkar, P. R. Sarode, V. Jayaram, M. S. Hegde, G. N. Subbanna, and S. Emura: Chemistry of Materials 16 (2004) 2317-2131.

［ 解説、総説 ］

温度無依存発振波長 TlInGaAs/InP 半導体レーザ、朝日一：電気学会技術報告「パワー半導体レーザ応用技術調査報告」パワー半導体レーザ応用技術調査専門委員会編、第 961 号（2004）36-39.

強磁性半導体と創製、朝日一：第３回スピントロニクス入門セミナー「磁性の初歩からスピントロニクス材料、デバイスまで」（2004）53-61.

［ 著書 ］

Structural and optical characterization of self-formed quantum dots, S. Gonda and H. Asahi: in

Encyclopedia of Nanoscience and Nanotechnology, Eds. by J.A. Schwarz, C. Contescu and K. Putyera (Marcel Dekker, Inc., 2004) 3227-3235.

［ 国際会議 ］

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

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

Luminescence from Gd Site in Dilute Magnetic Semiconductor GaGdN, *S. Emura, Y.K. Zhou, M. Hashimoto, H. Tanaka, M.S. Kim, S. Kimura, S. Shanthi, X.J. Li, N. Teraguchi, A. Suzuki, A. Yanase, and H. Asahi, Second 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" and 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science, Osaka, Japan, January 13-14, 2004.

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

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

GaN-based magnetic semiconductors for nanospintronics (Invited), *H. Asahi, Y.K. Zhou, M. Hashimoto, M.S. Kim, X.J. Li, S. Emura and S. Hasegawa, International Conference on Nanospintronics Design and Realization, Kyoto, Japan, May 24-28, 2004.

Optical properties of GaN-based magnetic semiconductors, *Y.K. Zhou, M.S. Kim, X.J. Li, S. Kimura, A. Kaneta, Y. Kawakami, Sg. Fujita, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, International Conference on Nanospintronics Design and Realization, Kyoto, Japan, May 24-28, 2004.

Magnetic, optical and transport properties of GaN-based ferromagnetic/nonmagnetic semiconductor heterostructures, *M.S. Kim, Y.K. Zhou, X.J. Li and H. Asahi, International Conference on Nanospintronics Design and Realization, Kyoto, Japan, May 24-28, 2004.

Raman scattering characterization of GaN-based spintronics materials, *H. Fukumura, N. Hasuike, H. Harima, K. Kisoda, M. Hashimoto, Y.K. Zhou and H. Asahi, International Conference on Nanospintronics Design and Realization, Kyoto, Japan, May 24-28, 2004.

Gas source MBE growth of Tl-containing semiconductors and their application to temperature–insensitive wavelength laser diodes (Invited), *H. Asahi, H.J. Lee, A. Fujiwara, A.

Imada, K. Mukai and S. Hasegawa, 16th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials, Kagoshima, Japan, May 31-June 4.

Reduced temperature dependence of refractive index in TlInGaAs by addition of Tl, A. Imada, A. Fujiwara, H.J. Lee, *T. Mukai, S. Hasegawa and H. Asahi, 16th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials, Kagoshima, Japan, May 31-June 4.

GaAs-InAs short-period superlattice/InP(411)A self-formed quantum dot light emitting diodes with 1.3-1.5 μm light emission, *T. Shimada, J. Mori, S. Hasegawa and H. Asahi, 16th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials, Kagoshima, Japan, May 31-June 4.

Photoluminescence emission from room temperature ferromagnetic semiconductor GaCrN, *H. Asahi, M. Hashimoto, H. Tanaka and S. Hasegawa, International Workshop on Nitride Semiconductors 2004, Pittsburgh, USA, July 19-23, 2004.

Electric field emission characteristics of GaN nanorods grown on Si substrates with native oxides, *T. Yamashita, S. Nishida, S. Hasegawa and H. Asahi, International Workshop on Nitride Semiconductors 2004, Pittsburgh, USA, July 19-23, 2004.

Magnetic, optical and transport properties of GaCrN-based ferromagnet/nonmagnet/ferromagnet trilayer structure, *M.S. Kim, Y.K. Zhou, S. Kimura, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, 13th International Conference on Molecular Beam Epitaxy, Edinburgh, UK, August 22-27, 2004.

GaN-based diluted magnetic semiconductors for spintronics (Invited), *H. Asahi, Y.K. Zhou, M.S. Kim, S. Emura, S. Shanthi, S. Kimura and S. Hasegawa, 31st International Symposium on Compound Semiconductors, Seoul, Korea, September 12-15, 2004.

Polycrystalline GaN for field electron emitter application (Invited), *S. Hasegawa, S. Nishida, T. Yamashita and H. Asahi, International Conference on Polycrystalline Semiconductors 2004, Potsdam, Germany, September 5-10, 2004.

Formation of local ferromagnetic area on GaAs by focused Mn ion beam implantation, *M. Kasai, J. Yanagisawa, H. Tanaka, S. Hasegawa, H. Asahi, K. Gamo, and Y. Akasaka, 14th International Conference on Ion Beam Modification of Materials, Monterey, California, USA, September 5 - 10, 2004.

Magnetoresistance in GaCrN-based ferromagnet/nonmagnet/ferromagnet trilayer structures, *Y.K. Zhou, M.S. Kim, H. Kimura, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, 13th Semiconducting and Insulating Materials Conference, Beijing, China, September 20-25, 2004.

Magnetic, electric and optical properties of AlN and GaN doped with rare-earth element Gd, *S.W. Choi, Y.K. Zhou, M.S. Kim, S. Kimura, S. Shanthi, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, 3rd Asian International Symposium on the Science of Engineering Ceramics, Osaka, Japan, October 31-November 3, 2004.

Optical properties of Cr-doped GaN/AlN quantum dots, *H. Munakata, S. Matsuno, S. Hasegawa and H. Asahi, 3rd Asian International Symposium on the Science of Engineering Ceramics, Osaka, Japan, October 31-November 3, 2004.

Emission spectra from AlN and GaN doped with rare earth elements (Invited), S. Emura, *S.W.

Choi, S. Kimura, M.S. Kim, Y.K. Zhou, N. Teraguchi, A. Suzuki, A. Yanase, and H. Asahi, International Conference on Rare Earths in Nara, Nara, Japan, November 7-12, 2004.

Electron field emission from polycrystalline GaN nanorods (Invited), *S. Hasegawa and H. Asahi, 2004 Fall International Symposium on Crystal Growth and Devices, Seoul, Korea, November 10-13, 2004.

Evaluation of device configurations through different cross-sectional planes of 0.1 μm MOSFETs by scanning tunneling microscopy/spectroscopy, *S. Hasegawa, W. Doi, A. Yabuuchi and H. Asahi, 12th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, Izu-Atagawa, Shizuoka, December 9-11, 2004.

Luminescence properties of GaN and AlN doped by rare earth elements, *S. Emura, S.W. Choi, S. Kimura, S. Kobayashi, M.S. Kim, S. Shanthi, Y.K. Zhou, N. Teraguchi, A. Suzuki and H. Asahi, Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 -Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing-, Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Effect of chromium doping on the luminescence properties of GaCrN on sapphire, *S. Shanthi, M. Hashimoto, S. Kimura, Y. K. Zhou, S.W. Choi, M. S. Kim, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 -Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing-, Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Cross-sectional scanning tunneling microscopy study of 100 nm MOSFETs through the different cross sections, *W. Doi, A. Yabuuchi, S. Hasegawa and H. Asahi, Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 -Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing-, Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

The use of selected monochromatic X-rays to induce a cascade of gamma transitions from the 31-year nuclear isomer to the 4 second isomeric state of Hf-178, *N.C. Zoita, F. Davanloo, C.B. Collins, J.M. Pouvesle, S. Emura, I.I. Popescu, V.I. Kirischuk, N.V. Strilchuk, T. Uruga and Y. Yoda, UVX2004, St. Etienne, France, June 7 – 11, 2004.

Li De-Intercalate Mechanism of the Layered $LiNi_{1/3}Mn_{1/3}Co_{1/3}O_2$, H. Kobayashi, *Y. Arachi, S. Emura, H. Kageyama, K. Tatsumi and T.Kamiyama, 12th International Meeting on Lithium Batteries, Nara, Japan, June 27 – July 2, 2004.

Crystal Structure and Feasibility for 16x DVD-Rewritable Media of In-Sb Phase-Change Material, *H. Miura, E. Suzuki, H. Tashiro, M. Harigaya, K. Ito, N. Iwata, A. Watada, K. Tani, Y. Nakata and S. Emura, PCOS symposium, Osaka, Japan, Novembre 18 – 19, 2004.

［ 国際会議の組織委員、国際雑誌の編集委員 ］

朝日　一　　16th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials（国際諮問委員）

朝日　一　　International Conference on Nanospintronics Design and Realization（組織委員）

朝日　一　　International Workshop on Nitride Semiconductors 2004（国際諮問委員）

朝日　一　　12th International Colloquim on Scanning Probe Microscopy（運営委員、出版委員）

朝日　一　　14th International Conference on Molecular Beam Epitaxy

（組織委員会副委員長、プログラム委員長）

朝日　一　17th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials（国際諮問委員、プログラム委員）

朝日　一　SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nano-Technology 2004（組織委員、会場委員長）

朝日　一　Third International Symposium on 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience"（組織委員、広報・出版委員長）

朝日　一　International Workshop on Nitride Semiconductors 2006（国際諮問委員）

朝日　一　SpinTech III（組織委員）

朝日　一　2005 International Conference on Solid State Devices and Materials（プログラム委員）

長谷川繁彦　16th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials（実行委員）

長谷川繁彦　14th International Conference on Molecular Beam Epitaxy（プログラム委員、財務委員）

長谷川繁彦　SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004（実行委員）

朝日　一　Japan. J. Appl. Phys. （編集委員）

朝日　一　Current Applied Physics（編集委員）

朝日　一　J. of Materials Science: Materials in Electronics（編集委員）

朝日　一　e-Journal of Surface Science and Nanotechnology（Advisary Board 委員）

［ 国内学会 ］

応用物理学会	22 件
電子材料シンポジウム	2 件
PASPS シンポジウム	3 件

［ 取得学位 ］

修士（工学）

木村 重哉　GaN ベース希薄磁性半導体の結晶成長とその物性

向井 俊和　ガスソース MBE 法による TlInGaAsN/GaAs の結晶成長、評価、デバイス応用に関する研究

修士（理学）

島田 隆司　III-V 族半導体量子ドット構造に関する研究

土井 航　走査型トンネル顕微鏡による微細構造デバイスのナノ評価に関する研究

宗像 宏典　Cr ドープ GaN/AlN 量子ドットの作製及び評価に関する研究

山下 剛司　SiO2/Si 上に形成した GaN ナノロッドからのフィールドエミッション特性

［ 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	多結晶窒化物半導体の電界放射電子源、可視蛍光体への応用に関する研究	4,200
長谷川 繁彦	スピン偏極走査型トンネル顕微鏡による希薄磁性半導体のナノ磁性評価	3,500

基盤研究（C）（2）

江村修一	XAFS 及び XMCD による GaN 系希薄磁性半導体の局所原子配置と磁性起源の研究	500

[受託研究費補助金]

長谷川 繁彦	STM データ解析システムの構築	3,150

[その他の競争的研究資金]

朝日　一	文部科学省書科学技術振興　ナノスピントロニクスのデザインと創製調整費（代表：笠井秀明）	18,717

半導体量子科学研究分野

教授　　松本　和彦
助教授　　井上　恒一
助手　　前橋　兼三、大野　恭秀
大学院学生　　上村　崇史、尾崎　弘和、紙西　大祐、成実　一樹、藤原　泰幸、安田　将人
学部学生　　奥野　潤、所司原　大輔
事務補佐員　　岡野　愛弓

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。

特にカーボンナノチューブはその微細性から、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を利用して単一電子トランジスタを作成し、単一の電子・スピンをセンシングする。さらに、このカーボンナノチューブの特長を生かして従来の感度を遥かに凌駕する様々なセンサーを作成することを目指す。現在、熱 CVD 成長法、ラマン分光法、原子間力顕微鏡およびフォトルミネセンス法を中心技術として、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

・レーザーCVD 法によるカーボンナノチューブのカイラリティー選択制御成長

カーボンナノチューブをデバイスに応用するためには、カイラリティーを制御することが重要である。前年度に、カーボンナノチューブのカイラリティーが異なるとバンド構造が異なることを利用し、多数成長したカーボンナノチューブにレーザーを大気中で共鳴吸収させ、選択的にカーボンナノチューブを焼却除去しカイラリティーを制御することに初めて成功した。この手法はカイラリティーを制御した初めての例であるが、所望のカイラリティーを得るという手法ではなかった。本年度、レーザー照射下でカーボンナノチューブを成長するレーザーCVD 法を開発し、カイラリティーを制御して成長できる予備的知見を得た。

・酸素イオン注入したカーボンナノチューブのラマン分光

通常カーボンナノチューブは大気の酸素に触れることにより、p 型伝導を示すことが知られている。ｎ型電動特性を持つカーボンナノチューブを得るため、グラフェンシートの炭素の置換エネルギーに相当する 25eV という超低エネルギーでカーボンナノチューブへ酸素イオンを注入した。得られたカーボンナノチューブを共鳴ラマン測定により評価し、ラマン散乱の共鳴位置が変化するという知見を得た。第一原理計算から、酸素はカーボンナノチューブのカーボン原子の位置に安定に置換することがわかり、そのときのバンド構造の変調により、ラマンの共鳴位置の変化を説明できる。

・トップゲート構造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)の作製

低温において形成可能な Cat-CVD 法を用いて、カーボンナノチューブチャネル電界効果型トランジスタ(CNT-FET)上への絶縁性保護膜作製を行った。その結果、３００℃以下で SiN 膜を形成するとカーボンナノチューブチャネルは破壊されず、SiN 膜の作製温度により、n、および、p 型 CNT-FET 作製が可能となった。さらに、SiN 膜上にトップゲート電極を形成することで、大気安定なトップゲート構造を有する CNT-FET の作製に成功した。

・カーボンナノチューブ電界効果トランジスタを用いた DNA ハイブリダイゼイションの高感度検出

CNT-FET のバックゲイトに、ペプチド核酸(PNA)を化学修飾し、DNA との二本鎖形成の検出を行った。PNA は無電荷であるため、DNA とより強く二本鎖形成をおこす。CNT-FET を用いることにより 6.8 fM の極めて低い濃度の DNA を検出可能であることがわかった。この濃度の検出は電気化学的手法において世界最高レベルであり、CNT-FET を用いることにより DNA 二本鎖形成を高感度に検出できることを明らかにした。

［原著論文］

Effects of Ultra Low Energy Nitrogen Ion Irradiation on Carbon Nanotube Channel Single-Electron Transistor, T. Kamimura, K. Yamamoto and K. Matsumoto: Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 43, No. 5A, (2004) 2771-2773.

Reduction of Hysteresis by Refining Process to Carbon Nanotube Field-Effect Transistors, T. Kamimura and K. Matsumoto: IEICE TRANS. ELECTRON, E87-C, (2004) 1795-1798.

Chirality Selection of Single-Walled Carbon Nanotubes by Laser Resonance Chirality Selection Method, K. Maehashi, Y. Ohno, K. Inoue, and K. Matsumoto: Appl. Phys. Lett. 85 (2004) 858-860.

Field emission characteristics from CNT field emitter arrays grown on silicon emitters, T. Yoshimoto, D. Kamimaru, H. Iwasaki, T. Iwata, and K. Matsumoto: J. Vac. Sci. Technol. B 22(3), 1338 (2004).

Ultrasensitive Detection of DNA Hybridization Using Carbon Nanotube Field-Effect Transistors, K. Maehashi, K. Matsumoto, K. Kerman, Y. Takamura, E. Tamiya: Jpn. J. Appl. Phys. Vol.43 No.12A, (2004) L1558-L1560 (Express Letter)

Growth Control of Carbon Nanotube for Electron Device Applications, M. Maeda, T. Kamimura, C. K. Hyon, A. Kojima, K. Matsumoto: Extended Abstracts of the 2004 International Conference on Solid State Devices and Materials SSDM, pp.346 - 347.

Ballistic Transport of Hole in p type Semiconductive Carbon nanotube, T. Kamimura, K. Matsumoto: Extended Abstracts of the 2004 International Conference on Solid State Devices and Materials SSDM, (Tokyo) pp. 344-345.

Chirality Selection of Single-Walled Carbon Nanotubes by Laser Resonance Chirality Selection Method, K. Maehashi, Y. Ohno, K. Inoue, and K. Matsumoto: Virtual Journal of Nanoscale Science & Technology, VOL10, August 16, (2004), http://www.vjnano.org.

［特許］

「カーボンナノチューブ含有金属薄膜」前橋兼三、松本和彦、大野恭秀、井上恒一、特願2004-088051

「ナノスケールの低次元量子構造体の製造方法、及び、当該製造方法を用いた集積回路の製造方法」藤原泰幸、前橋兼三、井上恒一、松本和彦、大野恭秀、特願2004-08805

「集積トランジスタ」松本和彦、小島厚彦、長尾哲、加藤尚範、井福康夫、三谷浩、齋藤靖代、特願2004-257698

［国際会議］

Coherent Transport of Hole in p type Semiconductive Carbon Nanotube, *T. Kamimura, C. K. Hyon, A. Kojima, M. Maeda, and K. Matsumoto, Device Research Conference(DRC) Notre Dame University, Jun. 22, 2004.

Carbon Nanotube Quantum Devices and its Applications with Ultra-High Charge Sensitivity (Invited), *K. Matsumoto, Japan-Switzerland Nanoscience Workshop, Nara, Jun.23, 2004.

Control of Electrical Property of Carbon Nanotube by Oxygen Ion Implantation with Ultra-low Energy of 25eV, *T. Kawai, T. Kamimura, C. K. Hyon, A. Kojima, M. Maeda, K. Matsumoto, The Electronic Materials Conference (EMC), Notre Dame University, Jun. 24. 2004.

P type Semiconductive Carbon nanotube for Quantum Wire, *T. Kamimura, C. K. Hyon, A. Kojima, M. Maeda, K. Matsumoto, The Electronic Materials Conference (EMC), Notre Dame University, Jun. 24. 2004.

Growth Control of Carbon Nanotube by Applied Electric Field, *M. Maeda, T. Kamimura, C. K. Hyon, A. Kojima, K. Kurachi, T. Kawai, M. Torigoe, K. Matumoto, Electronic Material Conference Notre Dame University, Jun. 24, 2004.

Application of Ultra-High Sensitive Electrometer by Carbon Nanotube Quantum Dot Single Electron Transistor at Room Temperature, *K. Matsumoto, NANO 8, Venice, Jul. 1, 2004.

High Sensitivity of Carbon Nanotube Single Electron Transistor Sensor, *K. Matsumoto, T. Kamimura, A. Kojima, Y. Nagamune, Asia-Pacific Conference on Transducer and Micro-Nano Technology (APCOT MNT2004), Sapporo, Jul. 6, 2004.

Coexistence of ballistic transport and Coulomb blockade effect of hole in 4μm carbon nanotube channel transistor, *K. Matsumoto, T. Kamimura, 27th Int. Conf. on Physics of Semiconductors Flagstaff, Arizona, USA, Jul. 26-30, 2004.

Chirality Selection of Single-Walled Carbon Nanotubes by Laser Resonance Chirality Selection Method, *K. Maehashi, Y. Ohno, K. Inoue, and K. Matsumoto, 27th Int. Conf. on the Physics of Semiconductors, Flagstaff, Arizona, USA, Jul. 26-30, 2004.

Transport properties of charge carriers in single-walled carbon nanotubes by pulse-radiolysis time-resolved microwave conductivity technique, *Y. Ohno, K. Maehashi, K. Inoue, K. Matsumoto, A. Saeki, S. Seki, and S. Tagawa, 27th Int. Conf. on the Physics of Semiconductors, Flagstaff, Arizona, USA, Jul. 26-30, 2004.

The application of AFM electrical manipulation to the fabrication of room temperature operating carbon nanotube SET, *C. K. Hyon, T. Kamimura, A. Kojima, M. Maeda, K. Matsumoto, NANO KOREA 2004 Symposium and Exhibition, Seoul, Aug. 24, 2004.

Field-Emission Characteristics from Carbon Nanotube Single Emitter Grown on Si Cone, *T. Yoshimoto, T. Iwata, K. Matsumoto, 15th European Conference on Diamond, Diamond-Like

Materials, Carbon Nanotubes, Nitrides & Silicon Carbide, Sept. 12-17, Riva Del Garda, Italy, Sep. 12-17, 2004.

Carbon Nanotube Devices and Bio-Sensor Applications with Ultra-High Charge Sensitivity (Invited), *K. Matsumoto, JAIST International Symposium on Nano Technology 2004, Kanazawa, Sep. 9, 2004.

Ballistic Transport of Hole in p type Semiconductive Carbon nanotubes, *T. Kamimura, and K. Matsumoto, The 2004 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM), Tower Hall Funabori, Tokyo, Sep. 16, 2004.

Growth Control of Carbon Nanotube for Electron Device Applications, *M. Maeda, T. Kamimura, C. K. Hyon, A. Kojima, K. Matsumoto, The 2004 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM), Tower Hall Funabori, Tokyo, Sep.16, 2004.

Ballistic Transport of Hole in 4μmm Carbon Nanotube Channel Transistor with Coulomb Blockade Effect, *K. Matsumoto, 51th American Vacuum Society Meeting, Anaheim USA, Nov. 15, 2004.

Carbon Nanotube Applications for Nanoelectronic Devices (Invited), *K. Matsumoto, The 1st International Symposium on the Functionality of Organized Nanostructures (FON'04) Tsukuba, Dec. 2, 2004.

Laser-Resonance Chirality Selection in Single-Walled Carbon Nanotubes, *K. Maehashi, Y. Ohno, K. Inoue, and K. Matsumoto, Sanken Int. Symp. on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004: Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing, Osaka, Japan, Dec. 6-7, 2004.

Carbon Nanotube Field-Effect Transistors with Si3N4 Passivation Films Formed by Catalytic Chemical Vapor Deposition Method, *H. Ozaki, D. Kaminishi, Y. Ohno, K. Maehashi, K. Inoue, K. Matsumoto, Y. Seri, A. Masuda, and H. Matsumura, Sanken Int. Symp. on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004: Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing, Osaka, Japan Dec. 6-7, 2004.

Laser-Irradiated Chemical Vapor Deposition for Position-Controlled Growth of Single-Walled Carbon Nanotubes, *Y. Fujiwara, K. Maehashi, Y. Ohno, K. Inoue and K. Matsumoto, Sanken Int. Symp. on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004: Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing, Osaka, Japan Dec. 6-7, 2004.

Flash-photolysis Time-resolved Microwave Conductivity Measurements of Single-Walled Carbon Nanotubes, *Y. Ohno, K. Maehashi, K. Inoue, K. Matsumoto, A. Saeki, S. Seki, and S. Tagawa, Sanken Int. Symp. on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004: Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing, Osaka, Japan, Dec. 6-7, 2004.

Carbon Nanotube Devices and Applications, *K. Matsumoto, Advanced Hetero Workshop, Hawaii, Dec. 10, 2004.

Carbon Nanotube Quantum Devices and its Application to Bio-Sensor with Ultra-High Sensitivity (Invited), *K. Matsumoto, The 6th International Conference on Nano-Molecular Electronics (ICNME 2004), International Conference Center Kobe, Dec. 17, 2004.

［国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員］

松本　和彦　2004 Advanced Heterostructure Workshop (co-chairperson)

松本　和彦　The 2nd international conference on Quantum Sensing: Evolution and Revolution from Past to Future at the SPIE Optoelectronics （組織委員）

松本　和彦　Seventh International Conference on New Phenomena in Mesoscopic Structures（組織委員）

松本　和彦　Fifth International Conference on Surfaces and Interfaces of Mesoscopic Devices（組織委員）

［国内学会］

応用物理学会　28 件

［共同研究］　単位：千円

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

［その他の競争的研究資金］

松本　和彦	科学技術振興機構	カーボンナノチューブ単一電子・スピン計測システムの確立	120,000

量子物性研究分野

教授　　吉田　博
助教授　　森川　良忠
特任教授　　柳瀬　章
博士研究員　　真砂　啓、Dinh Van An、中山　博幸、浜田　幾太郎、柳澤　将
研究生　　張　允僖
大学院学生　　松村　隆嘉、光田　直樹、山内　邦彦、舩島　洋紀、松川　和人、松岡　秀行、木崎　栄年、劔持　一英、豊田　雅之、福島　鉄也、小倉　明夫、野口　隆行
学部学生　　竹内　康祐、名兒耶　彰洋、平松　雅規
事務補佐員　　浅田　美香

a ）　概要

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

b ）　成果

・電子励起原子移動を利用した新物質創製法のマテリアルデザイン

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

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

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

案した。これらの提案は最近になって実証された。

・大きな磁気光学効果を持つ４ｄ遷移金属不純物をドープした逆（アンチ）CaF_2構造を持つ K_2S ベース透明強磁性半導体のデザイン

大きな磁気光学効果を持つ４ｄ遷移金属不純物をドープした逆（アンチ）CaF_2構造を持つ K_2S ベース透明強磁性半導体のデザインも行った。これにより、光誘起やFET電場誘起、また円偏光レーザー発光によるスピングラス状態からハーフメタル透明半導体強磁性体への転移を起こすマテリアルデザインが可能になり、これを用いた脳型メモリや脳型演算装置などの機能調和材料デバイスのデザインを行った。

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

第一原理計算委基づいて、磁性不純物（遷移金属や希土類金属）を含まないハーフメタル強磁性半導体のマテリアルデザインをおこなった。K_2S などの逆蛍石構造を持つ半導体や、CaO, BaO, SrO, MgO などのイオン結晶中にドープしたＢ、Ｃ、Ｎなどの深い不純物バンドのバンド幅は狭く、電子相関エネルギーとの競合により、磁性状態が実現し、さらに、不純物状態による二重交換相互作用や強磁性的超交換相互作用を不純物濃度によってバンド幅を制御することにより強磁性状態を安定化させるためのマテリアルデザインを行った。

・ワイドギャップ透明半導体の価電子制御と新機能性のマテリアルデザイン

ワイドバンドギャップ半導体、$CuAlO_2$やダイヤモンドにおいて、第一原理計算からアクセプター不純物、原子空孔、侵入型原子の形成エネルギーや不純物準位を予測し、価電子制御のためのアクセプターやドナーの補償機構を解明し、低抵抗化のためのアクセプターとドナーの同時ドーピング法による不純物バンドを利用した新しい価電子制御法のマテリアルデザインを行った。これらの系についての同時ドーピング法による価電子制御法の予言はその後の実験的に検証された。また、これらの価電子制御に基づいたｐ型透明酸化物伝導体や透明超伝導体、また高効率熱電機能のマテリアルデザインをおこなった。

・アモルファス半導体の高効率太陽エネルギー変換材料のマテリアルデザイン

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

・強誘電体のスピン制御法と価電子制御法に関するマテリアルデザイン

$BaTiO_3$や$SrTiO_3$などの強誘電体について、第一原理計算手法により、低抵抗ｐ型化のための新しい価電子制御法を明らかにした。また第一原理計算により磁性不純物のドーピングによる強磁性および反強磁性基底状態の予言を行った。

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

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

・第一原理 FLAPW 計算による強相関電子系のフェルミ面の研究

L(S)DA+U 法を用いた電子状態計算を行ない、強磁性相の CeSb および CeRh3B2 の電子状態およびフェルミ面を明らかにした。その際、強い相関を示す強磁性体の計算に有用である、スピン・軌道相互作用および LSDA+U 法による有効クーロンポテンシャルの両方を従来の FLAPW 法に取り入れた新しい計算手法を開発し、その妥当性を議論した。

・新超伝導体の電子状態の解明

新しい超伝導体である Y_2C_3 と KOs_2O_6 の電子状態を計算し、バンド構造を求めた。Y_2C_3 では C の p 電子が超伝導に重要な寄与をしている事を示した。

・n-アルカン分子と金属基板との相互作用

有機デバイスで重要となる界面電気二重層の生成起源および基板金属依存性を調べるモデル系として、まず、n-アルカン分子と金属基板との相互作用について研究を行った。その結果、n-アルカンと基板金属との距離が基板金属によって大きく異なり、界面電気二重層の大きさ、および、CH 伸縮振動モードのソフト化の基板金属依存性を支配している重要なパラメータであることを示した。また、n-アルカンの非占有状態と基板金属との相互作用が重要であることを明らかにした。

・ グリシンの Cu(001)表面上でのキラル構造

最も単純なアミノ酸分子であるグリシンが Cu(001)表面上で形成する自己組織化構造について、特にキラル構造を明らかにした。

・ 有機分子エレクトロニクスの基礎としてのベンゼンチオールと金基板との相互作用

ベンゼンチオール分子の金基板上での吸着構造およびその電子状態について明らかにした。その結果、低被服率ではベンゼンチオールの硫黄と金基板との結合構造はアルカンチオール系自己組織化膜と非常に良く似ていることが明らかになった。しかし、高被覆率では分子間の相互作用により分子の構造は制限され、大きく変わることを示した。

・ 金クラスターの TiO_2 表面上への吸着状態

金触媒の触媒活性発現機構を明らかにするために金クラスターの TiO_2 表面上への吸着状態について研究を行った。金クラスターの状態は基板 TiO_2 のストイキオメトリによって大きく変わることを示した。欠陥のない表面では金クラスターは TiO_2 表面上に弱くしか吸着しないが、酸素欠陥があると強く結合し、また、電子分布も変わってくることを示した。これらは触媒活性と大きく関連していると考えられる。

・ 量子ドット形成初期過程で重要となる Ge/Si(105)表面の安定性の起源の解明

Si(100)表面に Ge を蒸着していくと(105)微結晶面で囲まれたクラスターが生成する。この特異的な構造について調べ、表面ひずみとの関連について研究を行った。その結果、この表面ではダングリングボンドの数を減らすために Ge-Ge 間の結合距離がバルクに比べて 0.02nm 程度長くなっており、そのため、表面に圧縮的なひずみがかかったときに大変安定化することを明らかにした。

・ 有機 EL デバイスのための Alq_3/Al 界面の構造と電子状態の解明

有機 EL 材料として最も幅広く用いられている Alq_3 分子が Al 表面上で吸着する構造およびその電子状態について詳しく調べた。その結果、Alq_3 分子の酸素と Al 基板が結合すること、Alq_3 の分子自身が持つ電気双極子は真空側に向いたほうが安定であり、その場合は仕事関数が-1.0〜-1.6eV 下がる。これは実験的に報告されている値-1.4eV とよく一致している。このように、界面の電気二重層は主として Alq_3 分子自身が持つ電気双極子が主な起源であることが明らかになった。

・ Alq_3 と Al 原子との反応過程

実有機 EL デバイスの作成過程では Alq_3 分子層に Al 原子を蒸着する。上記で研究したモデル Alq_3/Al 界面とは逆の構造になっている。そのため、反応性や構造が異なっている可能性も考えられる。この Alq_3 上に Al 原子が成長していく際の化学反応過程を調べるシミュレーションを開始した。Al 原子は Alq_3 の酸素と強く相互作用するが、ひとつの Al 原子が Alq_3 に結合すると、二つ目の Al 原子はもはやあまり Alq_3 分子とは強く結合しないことが明らかとなった。この電子論的要因についてさらに解明を進めている。

［ 原著論文 ］

Theoretical study on anti-site defects in half-metallic zinc-blend ferromagnets, M. Shirai, Seike, K. Sato, H. Katayama-Yoshida, J. Magn. Magn. Matt., 272-276 (2004) 344-345.

High-pressure properties of icosahedron-based solid borons, K. Shirai, A. Masago, and H. Katayama-Yoshida, phys. stat. sol. (b) 241 (2004) pp. 3161-3167.

New Route to Fabricate Ferromagnetic Semiconductors without Transition Metal Elements, M. Seike, K. Kenmochi, K. Sato, A. Yanase and H. Katayama-Yoshida, Jpn. J. of Appl. Phy., 43, (2004) L 579-L 581.

Mechanism of enhanced ferromagnetism in delta-doped (Ga,Mn)As studied by *ab initio* electronic structure calculation, Y. Ohishi, K. Sato and H. Katayama-Yoshida, J. Magn. Magn. Matt., 272-276 (2004) 1989-1990.

Materials Design of Transparent, Half-metallic and Room-temperature Ferromagnets in I_2-VI Semiconductors with 4d Transition Metal Element, M. Seike, K. Sato, A. Yanase and H. Katayama-Yoshida, Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2004) L834-L837.

New Class of Diluted Ferromagnetic Semiconductors based on CaO without Transition Metal Elements, K. Kenmochi, M. Seike, K. Sato, A. Yanase and H. Katayama-Yoshida, Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2004) L934-L936.

Design of Transparent, Half-Metallic Ferromagnetiic 4d-Transition-Metal-Doped K_2S with High Curie Temperature, M. Seike, K. Sato, A. Yanase and H. Katayama-Yoshida, Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2004) 3367-3370.

Enhancement of TC by a carrier codoping method with size compensation for nitride-based ferromagnetic dilute magnetic semiconductors, V. A. Dinh, K. Sato and H. Katayama-Yoshida, J. Phys.: Condens. Matter 16 (2004) S5705–S5709.

Exchange interactions in diluted magnetic semiconductors, K. Sato, P. H. Dederichs, H. Katayama-Yoshida and J. Kudrnovský, J. Phys.: Condens. Matter 16 (2004) S5491–S5497

Theoretical Prediction of Curie Temperature in (Zn,Cr)S, (Zn,Cr)Se and (Zn,Cr)Te by First Principles Calculations, T. Fukushima, K. Sato, H. Katayama-Yoshida and P. H. Dederichs, Jpn. J. of Appl. Phys. 43 (2004) L 1416–L 1418.

Materials Design of Transparent and Half-Metallic Ferromagnets of MgO, SrO and BaO without Magnetic Elements, K. Kenmochi, V. A. Dinh, K. Sato, A. Yanase and H. Katayama-Yoshida, J. Phy.

Soc. Jpn, 73, (2004) pp. 2952–2954.

Low-temperature ferromagnetism in (Ga,Mn)N: Ab initio calculation, K. Sato, W. Schweika, P. H. Dederichs, H. Katayama-Yoshida, Phys. Rev. B70, (2004) 201202 R.

Theoretical Study of n-Alkane Adsorption on Metal Surfaces, Y. Morikawa, H. Ishii and K. Seki, Phys. Rev. B 69 (2004) 041403 (R) 1-4.

Stability of Homochiral and Heterochiral Phases of Glycine on Cu(001); a First-principles Theoretical Study, K. Mae and Y. Morikawa, Surf. Sci. Lett. 553 (2004) L63-L67.

DFT investigation of benzenethiol adsorption on Au(111), J. Nara, S. Higai, Y. Morikawa and T. Ohno, J. Chem. Phys. 120 (2004) 6705-6711.

Two-dimensional self-assembled structures of adenine molecules: modeling and simulation, K. Shinoda, W. Shinoda, C.C. Liew, S. Tsuzuki, Y. Morikawa and M. Mikami, Surf. Sci. 556, (2004) 109-120

Electronic Structures of Au on TiO_2(110) by First-principles Calculations, K. Okazaki, Y. Morikawa, S. Tanaka, K. Tanaka and M. Kohyama, Phys. Rev. B 69, (2004) 235404 1-8.

First-principles Theoretical Study and Scanning Tunneling Microscopic Observation of Dehydration Process of Formic Acid on a TiO_2(110) Surface, Y. Morikawa, I. Takahashi, M. Aizawa, Y. Namai, T. Sasaki and Y. Iwasawa, J. Phys. Chem. B 108, (2004) 14446-14451.

Adsorption structure of benzenethiol on Au(111): first-principles study, J. Nara, S. Higai, Y. Morikawa and T. Ohno, App. Surf. Sci., 237, (2004) 433-438.

Cluster and periodic DFT calculations of adsorption and activation of CO_2 on the Cu(hkl) surfaces, G.C. Wang, L. Jiang, Y. Morikawa, J. Nakamura, Z.S. Cai, Y.M. Pan, X.Z. Zhao, Surf. Sci., 570, (2004) 205-217.

Imaging of all dangling bonds and their potential on the Ge/Si(105) surface by noncontact atomic force microscopy, T. Eguchi, Y. Fujikawa, K. Akiyama, T. An, M. Ono, T. Hashimoto, Y. Morikawa, K. Terakura, T. Sakurai, M. Lagally and Y. Hasegawa, Phys. Rev. Lett., 93, (2004) 266102.

Bandstructure calculations and Fermi surfaces of RNi_2B_2C, K. Yamauchi, H. Katayama-Yoshida, A. Yanase, H. Harima, Physica C 412-414 (2004) 225-229.

［ 解説 ］

計算機ナノマテリアルデザインの基礎と応用, 吉田博, 固体物理 39, (2004) 711-714

有機分子エレクトロニクスへの第一原理計算の応用, 森川良忠, 固体物理 39, (2004) 818-823

半導体スピントロニクスのマテリアルデザイン, 佐藤和則, P. H. Dederichs, 吉田博, 固体物理 39, (2004) 855-860

第一原理電子状態計算による表面吸着系の振動スペクトル解析, 森川良忠, 分光研究 53, (2004) 28-29

第一原理電子状態計算による自己組織化膜の研究, 森川良忠, 膜 29, (2004) 363-366

[特許]

「シリコン結晶中のＣu 不純物のゲッタリング方法」吉田博、白井光雲、道北俊行、特願 2004-135971
「二次元酸化物自然超格子を用いた高効率熱電材料とその熱電特性の調整方法」吉田博、舩島洋紀、浜田幾太郎、播磨尚朝、柳瀬章、特願 2004-085615
「遷移金属または希土類金属を固溶する透明強磁性アルカリ・カルコゲナイド化合物及びその強磁性特性の調整方法」吉田博、清家聖嘉、佐藤和則、柳瀬章、PCT/JP04/003373
「遷移金属または希土類金属などの磁性不純物を含まず不完全な殻を持つ元素を固溶した透明強磁性化合物及びその強磁性特性の調整方法」吉田博、劔持一英、清家聖嘉、佐藤和則、柳瀬章、特願 2004-055017
「磁気抵抗ランダムアクセスメモリー装置」吉田博、佐藤和則、特許登録番号第 3571034 号
「強磁性 VI 族系半導体、 強磁性 III-V 族系化合物半導体、または強磁性 II-VI 族系化合物半導体とその強磁性特性の調整方法」吉田博、荒木和也、佐藤和則、韓国出願：第 7019113 号
「内殻励起によりグラファイトからダイヤモンドを製造する方法」吉田博、中山博幸、台湾特許番号発明第 206737 号
「磁性半導体を用いた円偏光スピン半導体レーザーおよびレーザー光の発生方法」吉田博、佐藤和則、台湾出願第 2244106 号
「シリコン結晶中の遷移金属不純物のゲッタリング方法」吉田博、韓国出願：第 70106351 号
「低抵抗 n 型ダイヤモンドの合成法」吉田博、国内特許番号第 3568394 号
「抵抗率が低い n 型又は p 型金属シリコンの製造方法」吉田博、特許第 3525141 号（P3525141）
「低抵抗 p 型 $SrTiO_3$ の製造方法」吉田博、別役潔、川合知二、田中秀和、米国特許登録番号 6790278
「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、韓国登録番号 0446144
「強磁性 p 型単結晶酸化亜鉛およびその製造方法」吉田博、佐藤和則、台湾登録番号　発明第 203716 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、EP 特許番号 1219731

[国際会議]

Exchange interactions and Curie temperatures in diluted magnetic semiconductors (invited), *K. Sato, International Symposium on the Creation of Novel Nanomaterials (ISCNN04), Osaka, Japan, January 20-22, 2004

Ferromagnetism and Curie Temperature of V-doped Nitrides, *V. A. Dinh, K. Sato and H. Katayama-Yoshida, International Symposium on the Creation of Novel Nanomaterials (ISCNN04), Osaka, Japan, January 20-22, 2004

Materials design for spin-electronics by *ab-initio* electronic structure calculation (Invited), *H. Katayama-Yoshida, 31st Conference on The Physics and Chemistry of Semiconductor Interface (PCSI-31), Kailua-Kona, Hawaii, USA, January 18-22, 2004.

Exchange interactions and Curie temperatures in diluted magnetic semiconductors, *K. Sato, P. H. Dederichs, H. Katayama-Yoshida, APS(American Physical Society) March Meeting, Montreal, Quebec, Canada, March 22-26, 2004.

Exchange Interactions, Curie Temperatures and Spin-waves in Dilute Magnetic Semiconductors, *K. Sato, P. H. Dederichs and H. Katayama-Yoshida, 2004 MRS Spring Meeting, San Francisco, USA, April 12-16,2004

Ab Initio Materials Design for ZnO-Based Semiconductor Spintronics: Prediction vs. Experiment (Invited), *H. Katayama-Yoshida, Zinc Oxide WorkShop, Maui, USA, May 16-20, 2004.

Materials design for semiconductor spintronics by *ab initio* electronic structure calculation: Prediction vs. Experiment (Invited), *H. Katayama-Yoshida, International Conference on Nanospintronics Design & Realization (ICNDR), Kyoto, Japan, May 24-28, 2004.

Exchange interactions and Curie temperatures in diluted magnetic semiconductors (Invited), *P. H. Dederichs, K. Sato and H. Katayama-Yoshida, International Conference on Nanospintronics Design & Realization (ICNDR), Kyoto, Japan, May 24-28, 2004.

Computer modeling and simulation for nanospintronics: prediction vs. experiment (Invited), *H. Katayama-Yoshida, 3rd International Conference "Computational Modeling and Simulation of Materials" & Special Symposium "Modeling and Simulating Materials Nanoworld" (CIMTEC), Sicily, Italy, May 30- June 4, 2004.

Enhancement of Tc by Carrier Codoping Method with size compensation for Nitride (GaN), *V. A. Dinh, K. Sato and H. Katayama-Yoshida, International Conference on Nanospintronics Design and Realization (ICNDR 2004), May 24-28, 2004. Kyoto, Japan

Exchange interactions and Curie temperatures in diluted magnetic semiconductors (Invited), *K. Sato, P. H. Dederichs, H. Katayama-Yoshida, 3rd International Conference "Computational Modeling and Simulation of Materials" & Special Symposium "Modeling and Simulating Materials Nanoworld" (CIMTEC), Sicily, Italy, May 30- June 4, 2004.

Ab initio Molecular Dynamics Simulation of CN in amorphous silicon, *N. Mitsuda, K. Shirai and H. Katayama-Yoshida, 19th European Photovoltaic Solar Energy Conference, Paris, France, June 7-11, 2004

Electronics and spintronics materials design by first principles approach (Invited), *H. Katayama-Yoshida, 12th International Conference on Solid Films and Surfaces (ICSFS-12), Hamamatsu, Japan, June 21-25, 2004

Materials Design for Spintronics by *ab initio* Electronic Structure Calculation, *H. Katayama-Yoshida, IVC-16 (16th International Vacuum Congress), ICSS-12 (12th International Conference on Solid Surfaces), NANO-8 (8th International Conference on Nanometer Scale Science and Technology), AIV-17 (17th Vacuum National Symposium), Venice, Italy, June 28- July 2, 2004.

Is High-Tc possible in (Ga, Mn)N?: Monte Carlo Simulation vs. Mean Field Approximation, *K. Sato, H. Katayama-Yoshida, The 3rd International Conference on Physics and Applications of Spin-Related Phenomena in Semiconductors (PASPS-III), Santa Barbara, California, USA, 21-23 July, 2004

New Class of high-Tc Diluted Ferromagnetic Semiconductors Based on CaO without Transition Metal Elements, * K. Kenmochi, M. Seike, K. Sato, A. Yanase, H. Katayama-Yoshida, The 3rd International Conference on Physics and Applications of Spin-Related Phenomena in Semiconductors (PASPS-III), Santa Barbara, California, USA, 21-23 July, 2004

Carier Codoping Method with Size Compensation to Enhance the Tc of Mn-doped Nitrides, *V. A. Dinh, H. Katayama-Yoshida, The 3rd International Conference on Physics and Applications of Spin-Related Phenomena in Semiconductors (PASPS-III), Santa Barbara, California, USA, 21-23 July, 2004

Study of New Thermoelectric material $CuAlO_2$ using *ab initio* Calculations, *H. Funashima, A. Yanase, H. Katayama-Yoshida, 23rd International Conference on Thermoelectrics (23rd ICT), Adelaide, Australia, July 25-29, 2004

Bandstructure calculations and Fermi surfaces of RNi_2B_2C, *K. Yamauchi, H. Katayama-Yoshida, A. Yanase, H. Harima, The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems, Karlsruhe, Germany, July 26 - 30, 2004

New class of High-Tc Diluted Ferromagnetic Semiconductors Based on K_2S without Transition Metal Elements, *M. Seike, K. Kenmochi, K. Sato, A. Yanase, H. Katayama-Yoshida, 27th International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS-27), Flagstaff, Arizona, USA, 26-30 July, 2004

Crystal stability of α-and β-boron, *A. Masago, K. Shirai, H. Katayama-Yoshida, 27th International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS-27), Flagstaff, Arizona, USA, 26-30 July, 2004

Ab initio study of native point defects in Delafossite $CuAlO_2$, *I. Hamada, H. Katayama-Yoshida, 27th International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS-27), Flagstaff, Arizona, USA, 26-30 July, 2004

Exchange interactions and Curie temperatures in dilute magnetic semiconductors, *K. Sato, H. Katayama-Yoshida, 27th International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS-27), Flagstaff, Arizona, USA, 26-30 July, 2004

High-pressure properties of icosahedron-based solid borons, *K. Shirai, A. Masago and H. Katayama-Yoshida, 11th International Conference on High Pressure Semiconductor Physics, Berkeley USA, August 2-5, 2004

Theoretical investigation on the electronic structure of Alq_3/LiF/Al interface, *S. Yanagisawa and Y. Morikawa, International Discussion Meeting on Tris(8-hydroxyquinoline) aluminum (III): Basic Properties and Secrets of Alq_3 as an EL material, Wako, Japan, September 21-22, 2004

First-principles Study of Metal-organic Interfaces, *Y. Morikawa, International CREST Workshop on “Contact Problem- Toward Molecular Devices”, Sapporo, Japan, October 8, 2004

First-principles theoretical study of n-alkane and metal interfaces (Invited), *Y. Morikawa, H. Ishii and K. Seki, The International Symposium on Super-Functionality Organic Devices, Chiba, Japan, October 25-28, 2004

Theoretical investigation on the electronic structure of Alq_3/LiF/Al interface, *S. Yanagisawa and Y. Morikawa, The International Symposium on Super-Functionality Organic Devices, Chiba, Japan, October 25-28, 2004

Molecular Dynamics Simulation of Impurity Diffusion in Si, *K. Shirai, T. Michikita and H. Katayama-Yoshida, 4th International Symposium on Advanced Science and Technology of Silicon Materials, Hawaii, USA, November 22-26, 2004

Ab initio Materials Design for Semiconductor Spintronics (Invited), *H. Katayama-Yoshida, The 9th Asia Pacific Physics Conference (9th APPC), Hanoi, Vietnam, October 25-31, 2004.

Control of the Local Electronic Structure and Engineering of Highly Correlated Deep-Impurity Band for Semiconductor Spintronics (Invited), *H. Katayama-Yoshida, IFCAM (International Frontier Center for Advances Materials) Forum on "Electronic Properties of Interfaces and Contacts", Sendai, November 28-30, 2004

First-principles Theoretical Study of Metal-Organic Interfaces, * Y. Morikawa, H. Ishii and K. Seki, IFCAM (International Frontier Center for Advances Materials) Forum on "Electronic Properties of Interfaces and Contacts", Sendai, November 28-30, 2004

Computational Materials Design from the First Principles: ~21st Century's Alchemy and the Philosopher's Stone~, *H. Katayama-Yoshida, K. Sato, K. Kenmochi, T. Fukushima, M. Toyoda, V. A. Dinh, H. Nakayama, I. Hamada, H. Funashima, H. Kizaki and A. Yanase, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004

Conversion from Graphite into Diamond Induced by Excitation of Holes, *H. Nakayama, K. Shirai and H. Katayama-Yoshida, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004

Materials Design of Ferromagnetic Diamond, *K. Kenmochi, K. Sato, A. Yanase and H. Katayama-Yoshida, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004

Ab initio Molecular Dynamics Simulation of CN in Amorphous Silicon, *N. Mitsuda, K. Shirai and H. Katayama-Yoshida, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004

Gettering Mechanism of Cu in Silicon calculated from First Principles, * K. Matsukawa, K. Shirai and H. Katayama-Yoshida, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004

Study of Delafossite $CuAlO_2$ using *ab initio* Calculation, *H. Funashima, A. Yanase and H. Katayama-Yoshida, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004

First-Principles Materials Design of $CuAlO_2$ Based Diluted Magnetic Semiconducting Oxide, *H. Kizaki, K. Sato, A. Yanase and H. Katayama-Yoshida, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004

Ab initio Study of Native Point Defects in Delafossite $CuAlO_2$, *I. Hamada and H. Katayama-Yoshida, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004

Theoretical Prediction of Curie Temperature in (Zn, Cr)S, (Zn, Cr)Se and (Zn, Cr)Te by First Principles Calculations, *T. Fukushima, K. Sato, H. Katayama-Yoshida and P. H. Dederichs, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004

Self-interaction Corrected First Principles Calculations for ZnO-based Diluted Magnetic Semiconductors, *M. Toyoda, H. Akai, K. Sato and H. Katayama-Yoshida, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004

First-principles Theoretical Study of Metal-organic Interfaces; n-Alkane on Metals, *Y. Morikawa, H. Ishii and K. Seki, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004

Theoretical Investigation on the Electronic Structure of Alq_3/Al Interface, *S. Yanagisawa and Y. Morikawa, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004

Ferromagnetism and magnetic Transition Temperatures *Tc* of Nitride Ternary-based Dilute Magnetic Semiconductors, *V. A. Dinh, K. Sato and H. Katayama-Yoshida, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004

Tc-enhanced without Codoping by Avoiding Nearest Neighbor Mn-Mn Site in (Ga, Mn)N, (Ga, Mn)P, (Ga, Mn)As and (Ga, Mn)Sb, *Y. H. Chang, K. Sato, H. Katayama-Yoshida and C. H. Park, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004

Low Temperature Ferromagnetism in (Ga, Mn)N, *K. Sato, P. H. Dederichs and H. Katayama-Yoshida, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004

Pressure Dependence of Band Gap in Solid Boron, *A. Masago, K. Shirai and H. Katayama-Yoshida, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004

Bandstructure Calculations and Fermi Surfaces of Ferromagnetic CeSb, *K. Yamauchi, A. Yanase, H. Harima and H. Katayama-Yoshida, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004

［ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ］

吉田　博	第３回半導体中のスピンに関連する物理と応用国際会議（PASPS-3）国際諮問委員及びプログラム委員
吉田　博	ナノマテリアルデザインと実証に関する国際会議 (ICNDR) 組織委員及びプログラム委員及びプロシーディングス編集委員
吉田　博	第２３回半導体中の欠陥国際会議(ICDS-23)委員長
吉田　博	第３回スピントロニクスと量子情報技術に関する国際スクールおよび国際会議(Spintech III)委員長
吉田　博	磁性国際会議(ICM2006)組織委員

[国内学会]

物理学会	20 件
応用物理学会	5 件
分子構造討論会	3 件
日本膜学会	1 件

[取得学位]

博士（理学）

山内　邦彦　強磁性 Ce 化合物の電子状態の理論的研究

修士（理学）

豊田　雅之　自己相互作用を補正した電子状態計算手法の開発および ZnO 系稀薄磁性半導体の電子状態と磁性の研究

福島　鉄也　第一原理計算による(Zn，Cr)S，(Zn，Cr)Se，(Zn，Cr)Te のキュリー温度の理論予測

修士（工学）

木崎　栄年　第一原理計算による $CuAlO_2$ を母体とした希薄磁性半導体の物質設計

劔持　一英　Materials Design of Transparent and Half-Metallic Ferromagnetic Semiconductors without Transition Metal Elements

[科学研究費補助金]

単位：千円

（分担者として配分されたもの）

学術創成研究(2)（代表者:関一彦・名古屋大学教授）

森川　良忠　有機デバイス関連界面の解明と制御

特定領域研究 (代表者:白井正文、東北大学)

吉田　博　光—スピントロニクスデバイス及びナノスピンプローブのデザイン

[受託研究]

吉田　博	科学技術振興調整費	ナノスピントロニクスのデザインと創製に関する研究「計算機ナノマテリアル・デバイスデザイン」	27,164
吉田　博	産学官連携イノベーション創出事業費補助金（独創的革新技術開発研究提案）	赤外レーザ照射による半導体中不純物の選択的低温拡散技術の研究	4,500
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	6,000
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	9,100

（分担者として配分されたもの）

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

［ 共同研究 ］

吉田　博	東北大学金属材料研究所	II-VI 族化合物半導体ベースの強磁性半導体のスピンエレクトロニクス
吉田　博	(財)高輝度光科学研究センター　Spring-8	電子励起による新物質創製の機構解明
吉田　博	(財)国際高等研究所	物質科学とシステムデザイン
吉田　博	ドイツ・ユーリッヒ固体物理研究所	計算機ナノスピントロニクスのマテリアル・デバイスデザイン
森川　良忠	東京大学大学院理学系研究科	酸化物表面上での触媒反応過程
森川　良忠	産業技術総合研究所	有機金属界面および電気化学反応のシミュレーション
森川　良忠	筑波大学物質工学系	銅触媒上でのフォルメート反応過程
森川　良忠	富士フィルム	無機光学材料の電子状態の解明
森川　良忠	東京大学物性研究所 および 東北大学金属材料研究所	Ge/Si(105)表面の安定性の起源に関する研究

高次制御材料科学研究部門

概要

本研究部門は、材料機能物性、金属材料プロセス、極微プロセス、セラミック機能材料、セラミック構造材料、エネルギー材料の６分野からなり、平成 14 年度に設置された産業科学ナノテクノロジーセンターと密接な協力関係を持ちながら研究を行っている。今後の急速な科学技術の発展を支えるためには、新しい機能・性能を持つ材料及び新材料の創成が不可欠であり、これらの材料は、従来からの材料構造制御の高度化と、原子･分子･ナノレベルからの新しい人工的な高次構造制御の構築から生まれる。本研究部門は６研究分野が協力して、既存のいわゆる金属・無機・有機材料研究の枠を超えた高次プロセ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、環境保護材料の創製、それらの物性解明と応用などを目的にして研究を推進している。分野・部門間の共同研究のみならず、国公立研究機関、民間企業ならびに国際的な共同研究にも積極的に取り組んでいる。

成果

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

材料機能物性研究分野

教授　　弘津　禎彦
助教授　　石丸　学
助手　　佐藤　和久、平田　秋彦
特任教員　　内藤　宗幸（平成１６年４月ー１２月）、ベ　インテ（平成１６年１０月ー）、永沼博（平成１６年１０月ー）
研究推進支援員　　是枝　淳夫
大学院学生　　ベ　インテ（平成１６年９月まで）、元　鐘漢、柳　韓尉、小寺　貴士、八木　啓介、大前　慶祐、森野　拓郎
事務補佐員　　冨井　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ている。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る研究や、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 基アモルファス合金におけるナノ結晶化機構

アモルファス $Fe_{84}Nb_7B_9$ 合金の熱処理過程において形成される bcc-Fe ナノ結晶組織の起源について、アモルファス局所構造の観点から検討した。昨年度までに確立した電子線構造解析手法により急冷試料の動径分布解析を行い、さらにリバースモンテカルロシミュレーションを用いてアモルファス構造モデルを構築した。その結果、Fe 原子を中心として bcc 的な局所構造が高い頻度で形成されていることが明らかとなった。また、アニール試料においては bcc 的局所領域がさらに発達し、高分解能像中に高密度(数密度 10^{25} 個/m^3 以上)で出現している様子が観察され、像シミュレーション、動径分布解析およびナノ電子回折からもその存在が示された。形成されるナノ結晶の数密度は 10^{23}~10^{24} 個/m^3 に及ぶため、通常の核生成理論では説明できないが、本研究で得られたアモルファス中の構造揺らぎの存在を考慮することにより矛盾なく説明できる。

・方位配向強磁性合金ナノ粒子分散膜の構造と磁性

NaCl 単結晶基板上での貴金属(Pt、Pd、Au)ナノ粒子のエピタキシャル成長を利用し、これらを種結晶とした方位配向 Fe ナノ粒子分散膜を作製し、その極微構造と磁性について研究を行っている。FePt、FePd 系では原子配列の規則化により優れた方位配向硬質磁性ナノ粒子分散膜が得られている。本年度は(1)(1)電子回折精密強度測定とマルチスライスシミュレーションによる FePt、FePd ナノ粒子の長距離規則度測定法の確立、(2)ナノビームを用いた個々の FePd ナノ粒子規則度測定とその粒径依存性の解明、(3)RF マグネトロンスパッタリング法を用いた高速製膜による FePtCu ナノ粒子高密度分散方位配向組織の低温合成、の 3 点について研究を行った。(1)より異なる加速電圧下での回折強度解析により試料厚さを測定すること無く固有の規則度を実測する手法を開発した。(2)では 10nm サイズの FePd ナノ粒子について規則度測定を行った結果、粒径約 8nm 以下のサイズ領域において規則度の減少が見られた。このような実験は X 線回折では不可能であり、全く新しい手法である。現在、規則化のサイズ限界との関係を調査中である。(3)では 10nm サイズの(001)方位配向・高密度分散 FePtCu ナノ粒子 2 次元分散膜を 340℃で合成することに成功し、室温で 1400 Oe、10K にて 5300 Oe の高保磁力発現を達成した。

・共有結合性アモルファス物質の局所構造解析

高分解能電子顕微鏡法、ナノビーム電子線構造解析ならびに分子動力学法による構造シミュレーションなどにより、機能性アモルファス物質の局所構造解析を行った。(1)Si ゲート絶縁膜である熱酸化 Si 膜の構造解析を行い、アモルファス母相中に局所的に原子が規則配列した中範囲規則領域が存在することを確認した。(2)アモルファス Si-Ge 半導体の構造緩和過程を調べ、熱処理に伴い幾何学的不規則性は回復するが、化学的不規則性は変化しないことを見いだした。(3)Ge-Sb-Te 系光メモリー材料のアモルファス局所構造研究では、昨年に引き続きナノ電子ビームによる動径分布解析を行い、中範囲規則構造と高速結晶化について考察した。

［ 原著論文 ］

Nanoscale Phase Separation in an $Fe_{70}Nb_{10}B_{20}$ Glass Studied by Advanced Electron Microscopy Techniques, T. Hanada, Y. Hirotsu and T. Ohkubo: Mater. Trans. 45 (2004) 1194-1198.

Prominent Nanocrystallization of $25KO•25Nb_2O_5•50GeO_2$ Glass, K. Narita, Y. Takahashi, Y. Benino, T. Fujiwara, T. Komatsu, T. Hanada and Y. Hirotsu: J. Am. Ceram. Soc. 87 (2004) 113-118.

Nanoscale Phase Separation in Metallic Glasses Studied by Advanced Electron Microscopy Techniques, Y. Hirotsu, T. Hanada, T. Ohkubo, A. Makino, Y. Yoshizawa and T. G. Nieh: Intermetallics 12 (2004) 1081-1088.

Glass-forming Ability and Crystallization Behavior of $Nd_{60}Al_{10}Ni_{10}Cu_{20-x}Fe_x$ (x=0, 2, 4) Bulk Metallic Glass with Distinct Glass Transition, Z. Zhang, W. H. Wang and Y. Hirotsu: Mater. Sci. Eng. A 385 (2004) 38-43.

Fabrication of Exchange-coupled α-Fe/$L1_0$-FePd Nanocomposite Isolated Particles, J. Kawamura, K. Sato and Y. Hirotsu: J. Appl. Phys. 96 (2004) 3906-3911.

Magnetoanisotropy, Long-range Order Parameter and Thermal Stability of Isolated $L1_0$ FePt Nanoparticles with Mutual Fixed Orientation, K. Sato and Y. Hirotsu: J. Magn. Magn. Mater. 272-276 (2004) 1497-1499.

The Investigation of Multiply Twinned $L1_0$-type FePt Nanoparticles by Transmission Electron Microscopy, A. Kovács, K. Sato, G. Sáfrán, P. B. Barna and Y. Hirotsu: Philos. Mag. 84 (2004) 2075-2081.

Structural Relaxation of Amorphous Silicon-germanium Alloys: Molecular-dynamics Study, M. Ishimaru, M. Yamaguchi and Y. Hirotsu: Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2004) 7966-7970.

Local Structure Analysis of Ge-Sb-Te Phase Change Materials Using High-resolution Electron Microscopy and Nanobeam Diffraction, M. Naito, M. Ishimaru, Y. Hirotsu and M. Takashima: J. Appl. Phys. 95 (2004) 8130-8135.

Local Structural Change of Amorphous Ge-Sb-Te Thin Film during Annealing, M. Naito, M. Ishimaru, Y. Hirotsu and M. Takashima: J. Non-Cryst. Solids 345/346 (2004) 112-115.

Solid Phase Epitaxy of Amorphous Silicon Carbide: Ion Fluence Dependence, I.-T. Bae, M. Ishimaru, Y. Hirotsu and K. E. Sickafus: J. Appl. Phys. 96 (2004) 1451-1457.

アモルファス $Si_{1-x}Ge_x$ 合金構造の分子動力学シミュレーション，山口允裕、石丸　学、弘津禎彦：日本金属学会誌 68 (2004) 70-73.

Crystallographic Correspondence between the bcc and C14-type Structures in the Fe-Ti Alloy System, A. Hirata and Y. Koyama: Mater. Sci. Eng. A 374 (2004) 72-76.

Kinetic Process of the Phase Separation in the Alloy $Ni_3Al_{0.52}V_{0.48}$, M. Tanimura, A. Hirata and Y. Koyama: Phys. Rev. B 70 (2004) 094111(1)-094111(7).

Disordered Atomic Column State in Fe-Mo Alloys, A. Hirata and Y. Koyama: Phys. Rev. B 70 (2004) 134203(1)-134203(7).

Atomistic Structures of Amorphous $Si_{1-x}Ge_x$ Alloys: A Molecular-dynamics Study, M. Yamaguchi, M. Ishimaru and Y. Hirotsu: Trans. Mater. Res. Soc. Jpn. 29 (2004) 3771-3774.

Structural Characterization of Oriented $L1_0$-FePd Nanoparticles, K. Sato and Y. Hirotsu: Trans. Mater. Res. Soc. Jpn. 29 (2004) 1647-1650.

Local Structure Analysis of Metallic Glasses Using HREM and Electron Diffraction (invited), Y. Hirotsu, T. Ohkubo and T. Hanada: Proc. 8th Asia-Pacific Conf. on Electron Microscopy (2004) 589-590.

Structural Analysis of As-sputterd and Melt-quenched Ge-Sb-Te Thin Film, M. Naito, M. Ishimaru, Y. Hirotsu and M. Takashima: Proc. 8th Asia-Pacific Conf. on Electron Microscopy (2004) 608-609.

Effects of Amorphous Structures on Recrystallization of Silicon Carbide, I.-T. Bae, M. Ishimaru, Y. Hirotsu and K. E. Sickafus: Proc. 8th Asia-Pacific Conf. on Electron Microscopy (2004) 746-747.

Characterization of Isolated Fe-Pd Alloy Nanoparticles with Orientation, K. Sato, J. Kawamura and Y. Hirotsu: Proc. 8th Asia-Pacific Conf. on Electron Microscopy (2004) 524-525.

Epitaxially-grown α-$FeSi_2$ Nano-particle Synthesized by Electron Beam Deposition, J. H. Won, K. Sato, M. Ishimaru and Y. Hirotsu: Proc. 8th Asia-Pacific Conf. on Electron Microscopy (2004) 813-814.

Crystallographic Feature of Laves Phase Formation in Fe-Mo Alloy, A. Hirata and Y. Koyama: Proc. 8th Asia-Pacific Conf. on Electron Microscopy (2004) 608-609.

Fabrication and Characterization of $FeSi_2$ Nanoparticles on Si(100) Substrate, J. H. Won, K. Sato, M. Ishimaru and Y. Hirotsu: Proc. Int'l Conf. New Frontiers of Process Science and Engineering in Advanced Materials (2004) 47-51.

［ 解説、総説 ］

Fe-B アモルファス合金におけるナノスケール相分離，花田剛、平田秋彦、弘津禎彦、大久保忠勝、V. Bengus：まてりあ 43 (2004) 1002.

強磁性 $L1_0$ 型規則合金ナノ粒子の構造と長範囲規則度，佐藤和久、弘津禎彦：顕微鏡 39 (2004) 144-149.

［ 著書 ］

Nanostructure of Amorphous Alloys, Y. Hirotsu, T. Ohkubo and M. Matsushita: "Novel Nanocrystalline Alloys and Magnetic Nanomaterials", Edited by B. Cantor, Series in Materials Science and Engineering, Institute of Physics Publishing, Bristol, 2004, p 16-41.

［ 国際会議 ］

Characterization of Exchange-Coupled Fe/L1o-FePd Nanoparticles (Poster), *K. Sato, J. Kawamura and Y. Hirotsu, 2nd 21st Century COE & 7th SANKEN Int'l Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology and Material Science, Osaka, Jan. 13-14, 2004.

Characterization of isolated Fe-Pd nanoparticles with orientation, *K. Sato, J. Kawamura and Y. Hirotsu, 8th Asia-Pacific Conference on Electron Microscopy, Kanazawa, June 7-11, 2004.

Effects of Amorphous Structures on Recrystallization of Silicon Carbide, I.-T. Bae, *M. Ishimaru, Y. Hirotsu, and K. E. Sickafus, 8th Asia-Pacific Conference on Electron Microscopy, Kanazawa, June 7-11, 2004.

Structural Analysis of As-sputterd and Melt-quenched Ge-Sb-Te Thin Film (Poster), *M. Naito, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, and M. Takashima, 8th Asia-Pacific Conference on Electron Microscopy, Kanazawa, June 7-11, 2004.

Epitaxially-grown α-$FeSi_2$ Nano-particle Synthesized by Electron Beam Deposition (Poster), *J. H. Won, K. Sato, M. Ishimaru, and Y. Hirotsu, 8th Asia-Pacific Conference on Electron Microscopy, Kanazawa, June 7-11, 2004.

Crystallographic Feature of Laves Phase Formation in Fe-Mo Alloy (Poster), *A. Hirata and Y. Koyama, 8th Asia-Pacific Conference on Electron Microscopy, Kanazawa, June 7-11, 2004.

Structure and metallurgy of alloy nanoparticles in Fe-Pd system (Invited), *Y. Hirotsu and K. Sato, $L1_0$ Ordered Intermetallic and Related Phases for Permanent Magnet and Recording Applications, Colorado, August 15-20, 2004.

Determination of long-range order parameter of $L1_0$-FePt and FePd nanoparticles by electron diffraction (Poster), *K. Sato and Y. Hirotsu, $L1_0$ Ordered Intermetallic and Related Phases for Permanent Magnet and Recording Applications, Colorado, Aug.15-20, 2004.

Local Structures and Nanocrystallization in Fe-Nb-B Amorphous Alloys (Poster), *E. Matsubara, T. Ichitsubo, S. Tanaka, A. Hirata, Y. Hirotsu and A. Makino, 11th International Symposium on Metastable, Mechanically Alloyed and Nanocrystalline Materials, Sendai, Aug. 22-26, 2004.

Transmission Electron Microscopy Study on $FeSi_2$ Nanoparticles Synthesized by Electron Beam Deposition (Poster), *J. H. Won, K. Sato, M. Ishimaru, and Y. Hirotsu, 11th International Symposium on Metastable, Mechanically Alloyed and Nanocrystalline Materials, Sendai, Aug. 22-26, 2004.

Nanostructure and Long-range Order Parameter of $L1_0$-FePd Particles, *K. Sato and Y. Hirotsu, 5th Polish-Japanese Symposium on Advanced Methods of Materials Characterization, Niedizca, Aug. 29-Sept.1, 2004.

Chemical Short-range Order in Ion-beam-induced Amorphous SiC, *M. Ishimaru, I.-T. Bae, Y. Hirotsu, J. A. Valdez, and K. E. Sickafus, 14th International Conference on Ion Beam Modification of Materials, Monterey, USA, Sep. 5-10, 2004.

Fabrication and Structural Analysis of Oriented $L1_0$-FePt and FePd Nanoparticles (Invited), *Y. Hirotsu and K. Sato, The First Asia Forum on Magnetics, Okinawa, Sept.21-24, 2004.

Growth and atomic ordering of hard magnetic $L1_0$-FePt, FePd and CoPt alloy nanoparticles studied by transmission electron microscopy (Invited), *Y. Hirotsu and K. Sato, 2004 International Symposium on Crystal Growth and Devices, Seoul, Korea, Nov. 10-13, 2004.

Solid Phase Epitaxy of Amorphous SiC Induced by Ion-beam-bombardment (invited), *M. Ishimaru, I.-T. Bae, and Y. Hirotsu, 2004 International Symposium on Crystal Growth and Devices, Seoul, Korea, Nov. 10-13, 2004.

Two dimensionally dispersed Fe/FePd nanocomposite particles synthesized by electron beam deposition (Invited), *Y. Hirotsu, K. Sato and J. Kawamura, International Conference on New Frontiers of Process Science and Engineering in Advanced Materials, Kyoto, Nov. 24-26, 2004.

Fabrication and Characterization of $FeSi_2$ Nanoparticles on Si(100) Substrate (Poster), *J. H. Won, K. Sato, M. Ishimaru, and Y. Hirotsu, International Conference on New Frontiers of Process Science and Engineering in Advanced Materials, Kyoto, Nov. 24-26, 2004.

Effects of Amorphous Structures on Solid Phase Epitaxy of SiC (Poster), *M. Ishimaru, I.-T. Bae, and Y. Hirotsu, Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 – Advance Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing, Osaka, Dec. 6-7, 2004.

Electron Diffraction and High-Resolution Electron Microscopy Studies of Amorphous $Fe_{80}B_{20}$ and $Fe_{70}Nb_{10}B_{20}$ Alloys (Poster), *Akihiko Hirata, Takeshi Hanada, Yoshihiko Hirotsu, Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 – Advance Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing, Osaka, Dec. 6-7, 2004.

Determination of order parameter of $L1_0$-FePt and FePd nanoparticles by electron diffraction (Poster), *K. Sato and Y. Hirotsu, Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 – Advance Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing, Osaka, Dec. 6-7, 2004.

[国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員]

弘津禎彦　8th Asia-Pacific Conference on Electron Microscopy（組織委員）
弘津禎彦　16th International Congress on Electron Microscopy （組織委員）
弘津禎彦　International Conference on New Frontiers of Process Science and Engineering in Advanced Materials（顧問委員）
弘津禎彦　11th International Symposium on Metastable, Mechanically Alloyed and Nanocrystalline Materials（顧問委員）
弘津禎彦　Japan-Polish Joint Seminar on Materials Analysis（組織委員）

[国内学会]

日本金属学会	12 件
応用物理学会	2 件
日本応用磁気学会	1 件
その他	11 件

[取得学位]

博士（工学）
べ　インテ　High-energy-beam Induced Amorphous Structures in SiC and Their Recrystallization Processes

修士（工学）
小寺　貴士　Co-Pt 薄膜及び Fe-Pt-Cu ナノ粒子の構造形態と磁気的性質
八木　啓介　熱酸化 Si ゲート絶縁膜極微構造の高分解能電子顕微鏡観察

[科学研究費補助金]

（代表者として配分されたもの）　単位：千円

特定領域研究（２）「金属ガラスの科学」

弘津　禎彦	融体・金属ガラスの局所原子構造のその場観察	30,100

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	33,400

基盤研究（Ｃ）（２）一般研究

石丸　学	相変化型光メモリー材料における記録層の非晶質局所構造と結晶化速度の関係	2,100

若手研究（Ｂ）

佐藤　和久	硬質磁性を示す方位配向 FePt、FePd ナノ粒子の規則化・配向支配因子の解明	1,900

[受託研究]

単位：千円

弘津　禎彦	科学技術振興調整費	ナノヘテロ材料局所構造の電子線精密構造解析と機能発現機構の解明	15,057
弘津　禎彦	NEDO（革新的部材産業創出プロ	高機能高精度省エネ加工型金属材料（金属ガラス）の成形加工技術	3,150

グラム)

［その他の競争的研究資金］

単位：千円

石丸　学	（財）ホソカワ粉体工学振興財団	環境半導体β-$FeSi_2$ナノ粒子の創製と周期配列化	800

金属材料プロセス研究分野

教授　　中嶋　英雄
助手　　玄　丞均、多根　正和
ＣＯＥ研究員　　中畑　拓治
大学院学生　　謝　振凱、久次米　利彦、朴　宰成
　　井手　拓哉、大西　洋史、伏屋　実、末野　秀和、杉山　真之
事務補佐員　　浅野　美紀

ａ）概要

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

融体の凝固制御法や格子欠陥制御法を駆使して、金属合金、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、それらの材料の新規物性の探索と発現機構の解明を行うと共に、応用製品化を実現する。

その１つとして、金属を水素や窒素などの高圧ガス中で溶解し一方向凝固させて孔の向きのそろったロータス（レンコン）型ポーラス金属を作製している。孔のサイズは数μｍから数 mm の大きさで孔の空隙率は最大８０％程度である。ロータス型ポーラス金属は機械加工や合金化により高強度化が可能であり、高強度材料の軽量化、孔や表面を利用した機能性材料などへの広範な用途が期待される。今年度は、連続鋳造法を用いたポーラス金属作製方法の確立、ポーラス金属間化合物・ポーラスアルミニウム・ポーラス形状記憶合金の創製、電気伝導率・制振性の特性評価を行った。

ｂ）成果

・ロータス型ポーラス金属および合金の作製

我々のグループでは、融点における金属中のガス溶解度差を利用して一方向に向きの揃った円柱状の孔を有するポーラス金属を創製している。本年度は、新たにロータス型ポーラス Ni_3Al 金属間化合物・アルミニウム・ニチノールを創製し、また連続鋳造によるポーラス金属の作製方法を確立した。

ポーラス Ni_3Al 金属間化合物においては、化学量論組成の Ni-25at.%Al および非化学量論組成 Ni-28at.%Al、Ni-31at.%Al を作製し，その引張強度特性を調べた。ポロシティはアルミニウムの濃度の増加と共に低下する傾向が見られた。ポア径の場合，Ni-25at.%Al の方がより小さくなった。これは、Ni-28at.%Al、Ni-31at.%Al より Ni-25at.%Al の組成では固液共存領域が狭くなり、成長するポアの癒着が少ないため、より細かく均一なポアが生じたことによると解釈した。ポーラスアルミニウムの場合、凝固速度を制御することにより、今まで数%であったポロシティを 20%まで増加させることができた。

・ロータス型ポーラス金属の電気伝導率

一方向性のポアを有するロータス型ポーラス金属の異方的な電気伝導率を平均場近似法に基づくモデル計算により予測する手法を考案した。考案した方法を用いて計算したロータス型ポーラスニッケルの電気伝導率は実験値と非常に良く一致し，この手法を用いてロータス型ポーラス金属の電気伝導率を定量的に予測可能であることが明らかとなった。

・ロータス型ポーラスマグネシウムの制振性

ロータス型ポーラスマグネシウムの振動減衰能を打撃振動減衰法により測定した。その結果、打撃によりロータス型ポーラスマグネシウムに励起された振動は、ノンポーラスマグネシウムに励起された振動よりも早く減衰し、ポーラス化により制振性が増加することを見出した。

・ロータス型ポーラスステンレス鋼の耐食性

ロータス型ステンレス鋼 SUS304L および SUS316L の耐食性テストを行った。ポア内表面の固溶水素により、特徴的な活性溶解ピークが見られたが、電解研磨処理または脱水素処理を施すことにより活性溶解ピークを減少させ、腐食挙動をノンポーラス試料とほぼ同等にすることができることが明らかになった。

［ 原著論文 ］

Fabrication of Lotus-type Porous Metals and their Physical Properties, H. Nakajima, T. Ikeda and S.K. Hyun: Adv. Eng. Mater., 6 [6] (2004) 377-384.

Measurement and Analysis of Effective Thermal Conductivities of Lotus-type Porous Copper, T. Ogushi, H. Chiba, H. Nakajima and T. Ikeda: J. Appl. Phys., 95 [10] (2004) 5843-5847.

Fabrication of Lotus-type Porous Iron and its Mechanical Properties, S.K. Hyun, T. Ikeda and H. Nakajima: Sci. Tech. Adv. Mater. 5 (2004) 201-205.

Heat Transfer Capacity of Lotus-type Porous Copper Heat Sink, H. Chiba, T. Ogushi, H. Nakajima and T. Ikeda: JSME Int. J. Series B-Fluids and Thermal Eng., 47 [3] (2004) 516-517.

Elastic Properties of Lotus-type Porous Iron: Acoustic Measurement and Extended Effective-mean-field Theory, M. Tane, T. Ichitubo, H. Nakajima, S.K. Hyun and M. Hirao: Acta Mater., 52 [17] (2004) 5195-5201.

Fabrication of Lotus-type Porous Silicon by Unidirectional Solidification in Hydrogen, T. Nakahata and H. Nakajima: Mater. Sci. Eng., A384 [1-2] (2004) 373-376.

Bending Properties of Porous Copper Fabricated by Unidirectional Solidification, S.K. Hyun, H. Nakajima, L.V. Boyko and V.I. Shapovalov: Mater. Lett., 58 (2004) 1082-1086.

Tracer Diffusion in Pt_3Fe Ordered Alloys, Y. Nose, T. Ikeda, H. Nakajima and H. Numakura: Z. Metalkd., 95 (2004) 904-912.

Elastic Constants of Lotus–type Porous Magnesium: Comparison with Effective-mean-field Theory, M. Tane, T. Ichitubo, M. Hirao, T. Ikeda and H. Nakajima: J. Appl. Phys., 96 (2004) 3696-3701.

Temperature Dependence of Elastic Constants of Lotus-type Porous Copper, M. Tane, T. Ichitsubo, M. Hirao, R. Takeda, T. Ikeda and H. Nakajima: Mater. Lett., 58 (2004) 1819-1824.

Characteristics of Sound Absorption in Lotus-type Porous Magnesium, Z.K. Xie, T. Ikeda, Y. Okuda and H. Nakajima: Japanese J. Appl. Phys., 43[10] (2004) 7315-7319.

Effective-mean-field Approach for Macroscopic Elastic Constants of Composites, M. Tane and T. Ichitsubo: Appl. Phys. Lett., 85 (2004) 197-199.

Titanium Coating of Lotus-type Porous Stainless Steel by Vapor Deposition Technique, T. Ikeda and H. Nakajima: Mater. Lett., 58 [29] (2004) 3807-3811.

Sound Absorption Characteristics of Lotus-type Porous Copper Fabricated by Unidirectional Solidification, Z.K. Xie, T. Ikeda, Y. Okuda and H. Nakajima: Mater. Sci. Eng., A386 [1-2] (2004) 390-393.

Measurement and Analysis of Sound Absorption of Porous Magnesium, Z.K. Xie, T. Ikeda, Y. Okuda and H. Nakajima: Mater. Sci. Forum, 449-452 (2004) 661-664.

Fabrication of Lotus-type Porous Ni-Al Intermetallics by Continuous Zone Melting Method, S.K. Hyun, M. Tane and H. Nakajima, Proc. Int. Conf. on New Frontiers of Process Sci. and Eng. in Adv. Mater., High Temperature Society of Japan, (2004) 415-418.

Elastic and Plastic Properties of Lotus-type Porous Iron, M. Tane, S.K. Hyun H. Nakajima, T. Ichitsubo and M. Hirao: Proc. Int. Conf. on New Frontiers of Process Sci. and Eng. in Adv. Mater., High Temperature Society of Japan, (2004) 86-91.

Investigation on Pore Morphology in Lotus-type Porous Nickel, H. Onishi, S.K. Hyun and H. Nakajima: Proc. Int. Conf. on New Frontiers of Process Sci. and Eng. in Adv. Mater., High Temperature Society of Japan, (2004) 116-119.

Corrosion Behavior of Lotus-type Porous SUS304L Stainless Steel, M. Fuseya, T. Nakahata, S.K. Hyun, S. Fujimoto and H. Nakajima: Proc. Int. Conf. on New Frontiers of Process Sci. and Eng. in Adv. Mater., High Temperature Society of Japan, (2004) 287-292.

Fabrication of Lotus-type Porous Carbon Steel by Continuous Zone Melting Method and its Mechanical Properties, T. Kujime, S.K. Hyun, T. Ikeda and H. Nakajima: Proc. of Modeling of Casting and Solidification Processes, (2004) 379-384.

ロータス型ポーラス Ni_3Al 金属間合物の作製、玄丞均、池田輝之、中嶋英雄：日本金属学会誌、68［2］（2004）39-42.

一方向凝固法によって作製されたロータス型ポーラス銅の吸音特性、謝振凱、池田輝之、奥田良行、中嶋英雄：日本金属学会誌、68［3］（2004）185-190.

鋳型内水分を利用したロータス型ポーラスニッケルの作製、末松佳記、玄丞均、中嶋英雄：日本金属学会誌、68（2004）257-261.

連続帯溶融法によるロータス型ポーラスステンレス鋼の作製、池田輝之、青木健、中嶋英雄：鉄と鋼、90［1］（2004）9-16.

ニッケル溶射皮膜の構造、機械的性質および熱伝導率、村上健児、松本弘司、中嶋英雄：高温学会誌、30（2004）336-341.

[解説、総説]

一方向に伸びた多数の微細孔を有するポーラス金属、玄丞均、池田輝之、中嶋英雄：マテリアルインテグレーション、17[1](2004)35-40.

ロータスマグネシウムおよびその合金と機械的性質、池田輝之、星山英男、中嶋英雄：軽金属、54[9](2004) 388-393.

ポーラス金属研究の新しい展開、中嶋英雄：生産と技術、56［1］(2004) 55-57.

ポーラス金属の開発最前線、中嶋英雄：金属、74［7］(2004) 646-647.

連続帯溶融法による一方向微細孔を有するポーラスステンレス鋼の作製、池田輝之、青木健、中嶋英雄：金属、74［7］(2004) 647-651.

ロータス型ポーラス Ni_3Al 金属間化合物の開発、玄丞均、中嶋英雄：金属、74［7］(2004) 667-670.

ロータス型ポーラス金属の作製と応用開発、中嶋英雄：銅と銅合金, 43［1］(2004) 12-16.

ロータス型ポーラス鉄鋼を用いた軽量構造材料の開発、中嶋英雄、池田輝之、村上健児、太田健一：ふぇらむ、9［11］(2004) 56-58.

[著書]

２１世紀を拓く水素の世界（分担執筆)、中嶋英雄：クバプロ、(2004) 26-37.

新時代の多孔性材料とその応用　ーナノサイエンスが　作る新材料―基礎編　第１章　１．金属系多孔性材料、(分担執筆)、中嶋英雄：シーエムシー出版、北川進　監修（2004）3-15.

[特許]

「Production Method for Porous Metal Body」中嶋英雄、中華人民共和国、登録番号 00810115.9

「Production Method for Porous Metal Body」中嶋英雄、ロシア連邦、登録番号 2217506

「金属多孔質体の製造方法」中嶋英雄、中華民国、登録番号 205795

「多孔質金属体の製造方法」中嶋英雄、中華民国、登録番号 203504

「磁性多層膜およびその製造方法ならびに光磁気記録媒体」中嶋英雄他、特許第 3559332 号

「磁性多層膜およびその製造方法ならびに光磁気記録媒体」中嶋英雄他、特許第 3559333 号

「ポーラス金属の製造方法」中嶋英雄、国際出願 PCT/JP00/04567

「多孔質体の製造方法」中嶋英雄、国際出願 PCT/JP02/08560

「多孔質金属間化合物体の製造方法」中嶋英雄、特願 2004-094180

「ヒートシンク」 中嶋英雄他、特願 2004-036788

「Method of manufacturing gas turbine part using porous metal」中嶋英雄他、アメリカ合衆国、No.US-2004-0168786-A1.

「Method of manufacturing gas turbine part using porous metal」中嶋英雄他、欧州、No.04250838.2

「工作機械」中嶋英雄他、PCT出願、PCT/2004/000632

「多孔質非金属無機材料の製造方法」中嶋英雄、特願 2004-63861

「制振ばね」中嶋英雄他、特願 2004-98040

［ 国際会議 ］

Anisotropic Fusion Zone of Lotus-type Porous Metals by Laser Welding, *T. Murakami, T. Tsumura, K. Nakata, T. Ikeda, H. Nakajima and M. Ushio, International symposium on Novel Materials Processing by Advanced Electromagnetic Energy Sources (MAPEES'04), Osaka University, Japan, Mar. 19–22, 2004.

Development of Porous Metals for Medical Devices (Poster), *T. Ikeda, S. Hyun and H. Nakajima, Second 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience", 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science, Osaka University, Japan, Jan. 13-14, 2004.

Fabrication and Properties of Porous Materials with Directional Elongated Pores (Invited), H. Nakajima, Symposium on Cellular Metals and Polymers, Furth, Germany, Oct.12-14, 2004.

Fabrication and Industrial Applications of Lotus-type Porous Materials (Poster), *M. Tane, S.K. Hyun, T. Nakahata, H. Nakajima, The 1st IMAGINE International Forum on Venture-business, Osaka, Japan, Dec. 15-17, 2004.

Effective Electrical Conductivity of Lotus-type Porous Nickel (Poster), *M. Tane, S.K. Hyun, and H. Nakajima, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004), Osaka, Japan, Dec. 6-7, 2004,

Elastic and Plastic Properties of Lotus-type Porous Iron, *M. Tane, S.K. Hyun, H. Nakajima, T. Ichitsubo, M. Hirao, International Conference on New Frontiers of Process Science and Engineering in Advanced Materials (PSEA'04), Kyoto, Japan, Nov. 24-26, 2004.

Extended Effective-mean-field Theory for Electrical Conductivity of Lotus-type Porous Nickel (Poster), *M. Tane, S.K. Hyun, H. Nakajima, International Symposium on Advanced Structural and Functional Materials Design (ASFMD 2004), Osaka, Japan, Nov. 10-12, 2004.

Fabrication and Tensile Properties of Lotus-type Porous Iron and SUS304L Stainless Steel (Poster), *S.K. Hyun, M. Tane, T. Ikeda, H. Nakajima, International Symposium on Advanced Structural and

Functional Materials Design (ASFMD 2004), Osaka, Japan, Nov. 10-12, 2004.

Vibration Damping Capacity of Lotus-type Porous Magnesium at Room Temperature (Poster), *Z.K. Xie, S.K. Hyun, Y. Okuda, H. Nakajima, International Symposium on Advanced Structural and Functional Materials Design (ASFMD 2004), Osaka, Japan, Nov. 10-12, 2004.

Fabrication and Properties of Porous Materials with Directional Elongated Pores, *H. Nakajima, S.K. Hyun, M. Tane, T. Nakahata, International Symposium on Advanced Structural and Functional Materials Design (ASFMD 2004), Osaka, Japan, Nov. 10-12, 2004.

Fabrication of Lotus-type Porous Ni-Al Intermetallics by Continuous Zone Melting Method, *S.K. Hyun, M. Tane and H. Nakajima, International Conference on New Frontiers of Process Science and Engineering in Advanced Materials (PSEA'04), Kyoto, Japan, Nov. 24-26, 2004.

Investigation on Pore Morphology in Lotus-type Porous Nickel (Poster), *H. Onishi, S.K. Hyun and H. Nakajima, International Conference on New Frontiers of Process Science and Engineering in Advanced Materials (PSEA'04), Kyoto, Japan, Nov. 24-26, 2004.

Corrosion Behavior of Lotus-type Porous SUS304L Stainless Steel (Poster), *M. Fuseya, T. Nakahata, S.K. Hyun, S. Fujimoto and H. Nakajima International Conference on New Frontiers of Process Science and Engineering in Advanced Materials (PSEA'04), Kyoto, Japan, Nov. 24-26, 2004.

Fabrication of Lotus-type Porous Carbon Steel by Continuous Zone Melting Method and its Mechanical Properties, *T. Kujime, S.K. Hyun, T. Ikeda and H. Nakajima, 6th Pacific Rim International Conference on Modeling of Casting and Solidification Processes (MCSP6), Kaohsiung, Taiwan, Aug. 8-11, 2004.

［ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ］

中嶋　英雄	Materials Letters (主席編集長)
中嶋　英雄	Fourth International Conference on Porous Metals and Metal Foaming Technology (MetFoam2005) (組織委員会委員長)
中嶋　英雄	High Temperature Materials and Progress (国際編集委員)
中嶋　英雄	Diffusion and Defect Data (編集顧問)
中嶋　英雄	Materials Science Foundations (編集顧問)
中嶋　英雄	Pacific Rim International Conference on Materials (組織委員会委員)
中嶋　英雄	International Symposium on Structural and Functional Materials Design (組織委員)
中嶋　英雄	International Conference on Advanced New Frontiers of Process Science and Engineering in Advanced Materials (組織委員)
中嶋　英雄	THERMEC'2006 Symposium on Metallic Foams (実行委員)
中嶋　英雄	International Conference on Diffusion in Materials (組織委員)
中嶋　英雄	International Symposium on Eco-Materials Processing & Design (組織委員会委員)
中嶋　英雄	The 3rd NIMS International Conference on Materials for Human Safety (国際顧問)

[国内学会]

日本金属学会	32 件
材料学会	1 件
高温学会	2 件
銅および銅合金技術研究会	1 件

[取得学位]

修士（工学）

井手　拓哉	ロータス型ポーラスステンレス鋼の圧縮特性
大西　洋史	水分を利用したロータス型ポーラスニッケルの作製とポアの形態観察
伏屋　実	ロータス型ポーラスステンレス鋼の腐食挙動

博士（工学）

謝　振凱	Sound Absorption and Vibration Damping Characteristic of Lotus-type Porous Magnesium and Copper

[科学研究費補助金]

単位：千円

萌芽研究		
中嶋　英雄	無垢の鉄より 4 倍の比強度をもつ軽量高強度鉄の創製	1,600
大学と科学公開シンポジウム		
中嶋　英雄	人体にやさしい医療材料	9,700
若手研究 B		
玄　丞均	ロータス型ポーラス金属間化合物の作製と機械的性質	2,900

[受託研究]

中嶋　英雄	超音速輸送機用推進システム技術研究組合 基盤技術研究促進事業	革新複合機能化鋳造プロセスの開発	23,000

[その他の競争的研究資金]

中嶋　英雄	文部科学省・大学等発ベンチャー創出支援制度補助金	レンコン型ポーラス金属を用いた商品開発	63,700
中嶋　英雄	日本鉄鋼協会	ポーラス金属データベース構築研究会	1,000
中嶋　英雄	森精機株式会社	工作機械部材の開発	7,000
中嶋　英雄	ホソカワ粉体工学振興財団	ポーラス金属発泡金属国際会議援助金	300
中嶋　英雄	三菱電機株式会社	ヒートシンクの開発	500
中嶋　英雄	軽金属奨学会	軽金属の開発	250
多根　正和	財団法人谷川熱技術振興基金	ロータス金属の形態制御手法の開発	300

極微プロセス研究分野

教授	川合　知二
助教授	田中　秀和
客員助教授	Michael Herrmann、李　恵りょん
助手	北浜　克熙、田中　裕行
研究員	Akther A.K.M. Hossain、柳田　剛、Bertrand Vilquin、Luca Pellegrino、唐山　英明、小嶋　薫、安立　京一、大竹　才人、鄭　浩燮、宇野　毅、金井　真樹、菅野　誉士、美甘　江利子、松浦　俊彦、吉田　祐介、川添　直輝、日下　貴生、林　希珍、水口　悟、田渕　智美
技術補佐員	高森　千恵美、神崎　佳美
大学院学生	鈴木　光治、中村　昌文、高東　智佳子、関　宗俊、大塚　洋一、大西　正敏、山本　斉、山田　郁彦、李　尚恩、柳沢　吉彦、山崎　龍二郎、片岡　誠、廣岡　誠之、仲里　卓、野島　義弘、高橋　拓也、石川　瑞恵、小林　匠
学部学生	横田　一道、田中　康則、藤川　和子
事務補佐員	藤林　乃理子、山田　由美

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る。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、および走査型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により、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る。さらに、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る。

具体的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の創成

強相関電子系強磁性酸化物を用いたナノヘテロ構造デバイスにより室温において電界で強磁性の制御ができる事を磁気光学効果を用いて直接証明した。それを踏まえて低消費電力を実現する不揮発性磁気メモリ(MRAM)の新構造を提唱した。また、放射光を用いた硬 X 線光電子分光法により界面磁性を評価する手法を開発した。さらに、既存の材料よりも高い能力を示す温度検出型の赤外線センサ材料を見出すことができた。

・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

走査型トンネル顕微鏡(STM)をもちいて、FITC 標識された DNA の高分解能可視化をおこない、FITC などの色素が DNA の標識として STM でも有効であることを見出した。一方、原子間力顕微鏡（AFM）を用いて、微量な無細胞タンパク質合成系の翻訳過程における律速段階を解析し、合成量の少ない核内受容体の翻訳効率を高めるために有用な情報をはじめて得た。さらに、生物学的な活性を保持したまま固体基板上に固定したリボソームの塩基認識機能を利用して、mRNA の塩基配列解読過程を特殊な精製なしに検出することに成功した。

・バイオチップの開発

バイオ分子が金電極上で配列する技術を確立した。特に、電子ビーム描画装置を利用して、ナノスケールで構造制御することにより、膜の破壊や凝集体の生成を防ぐことが可能になった。また人工的な生体膜である脂質二重層の表面に機能部位を修飾したバイオセンサーを実現した。今後、配列制御を行い、高性能化を目指す。

・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 ］

SNPs Feasibility of Nonlabeled Oligonucletides by using Electrochemical Sensing, H.Y. Lee, J.W. Park and T. Kawai, Electroanalysis, 16 (2004) 1999-2002.

Electrochemical Assay of Nonlabeled DNA Chip and SNOM Imaging by using Streptavidin-Biotin Interaction, HeaYeon Lee, JongWan Park, HoSup Jung, JongMin Kim, and Tomoji Kawai, J. Nanoscience and Nanotechnology, 4 (2004) 882-885.

Colossal Magnetoresistance in Spinel Type $Zn_{1-x}Ni_xFe_2O_4$, Akther A.K.M. Hossain, Munetoshi Seki, Tomoji Kawai and Hitoshi Tabata, Journal of Applied Physics, 96（2004）1273-1275.

$La_{0.7}Ce_{0.3}MnO_3$ Epitaxial Films Fabricated by a Pulsed Laser Deposition Method, T. Yanagida, T.Kanki, B.Vilquin, H.Tanaka and T.Kawai, Solid State Commu., 129 (2004) 785-790.

Metal-Insulator Transition and Ferromagnetism Phenomena of $La_{0.7}Ce_{0.3}MnO_3$ Thin Films: Formation of Ce-rich Nanoclusters, T. Yanagida, T.Kanki, B.Vilquin, H.Tanaka and T.Kawai, Phys. Rev. B, 70 (2004) 184437-1-184437-9.

Immobilization of Probe DNA on Ta_2O_5 Thin Film and Detection of Hybridized Helix DNA by Using IS-FET, Toshihito Ohtake, Chiho Hamai, Takeshi Uno, Hitoshi Tabata, Tomoji Kawai: Japan Journal of Applied Physics, 43, 9A/B (2004) L1137 - L1139.

DNA Nano-Patterning with Self-organization by using Nanoimprint, Toshihito Ohtake, Kenichiro Nakamatsu, Shinji Matsui, Hitoshi Tabata, and Tomoji Kawai: Journal of Vacuum Science and Tecnology B, Nov/Dec 22 (6) (2004) 3275-3278.

Direct Deoxyribonucleic Acid Detection Using Ion-Sensitive Field Effect Transistors Based on Peptide Nucleic Acid. Takeshi Uno, Toshihito Ohtake, Hitoshi Tabata and Tomoji Kawai: Jpn.J.Appl.Pyhs.,Vol.43,No.12B,2004,ppL1584-L1587

Origin of Metal-insulator Transition Temperature Enhancement in $La_{0.8}Ba_{0.2}MnO_3$ Thin Films as Determined by Structural Analysis, Masaki Kanai, Hidekazu Tanaka and Tomoji Kawai : Physical Review B, 70 (2004) 125109-125117

Scanning Force Microscopic Studies of Escherichia coli Ribosomes on Solid Substrate Surface, Toshihiko Matsuura, Kappei Kobayashi, Hiroyuki Tanaka, Takuya Matsumoto and Tomoji Kawai, Japanese Journal of Applied Physics 43 (2004) 4599-4601.

Sputtering and Annealing Effect of Sapphire Substrate for an Orientation of Lead Phthalocyanine Films, Satomi Tabuchi, Hitoshi Tabata and Tomoji Kawai, Surface Science: 571, (2004) 117-127.

A Simple Fabrication Method of Nanogap Electrodes for Top-contacted Geometry: Application to Porphyrin, Yoichi Otsuka, Yasuhisa Naitoh, Takuya Matsumoto, Wataru Mizutani, Hitoshi Tabata, Tomoji Kawai: Nanotechnology, 15 (2004) 1639-1644.

Nano-Scale Modification of Electrical and Magnetic Properties on a Fe_3O_4 Thin Film by AFM Lithography, Motoyuki Hirooka, Hidekazu Tanaka, Run-Wei Li, Tomoji Kawai, Applied Physics Letters, 85 (2004) 1811-1813.

High-Resolution Scanning Tunneling Microscopy and Spectroscopy of DNA and FITC, Yoshihiro Nojima, Hiroyuki Tanaka, Yuhsuke Yoshida and Tomoji Kawai, Japanese Journal of Applied Physics, 43 (2004) 5526-5527.

AFM Imaging of Nanostructure Polypyrrole Doughnuts Shapes Fabricated by Direct Electrochemical Oxidation, K. Fujikawa, H. S. Jung, J. W. Park, J. M. Kim, H. Y. Lee, and T. Kawai, Electrochem. Com., 6 (2004) 461-464.

Electronic Structures of A- and B-DNA Crystals, Masateru Taniguchi and Tomoji Kawai: Phys. Rev. E 70 (2004) 011913-011920.

Vertical Electrochemical Transistor Based on Poly(3-hexylthiophene) and Cyanoethylpullulan, Masateru Taniguchi and Tomoji Kawai: Appl. Phys. Lett. 85 (2004) 3298-3300.

電界効果トランジスタ $Pb(Zr,Ti)O_3/(La,Ba)MnO_3$ を用いた金属絶縁体転移温度の室温制御、神吉輝夫、田中秀和、川合知二、日本応用磁気学会誌, 28 (2004) 356-359.

Selective Adsorption of DNA on SiO_2 Surface in SiO_2/SiH Pattern, Shinichi Tanaka, Masateru Taniguchi and Tomoji Kawai: Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2004) 7346-7349.

Synthesis of Long Poly(dG)Poly(dC) DNA Using Enzymatic Reaction, Shinichi Tanaka, Masateru Taniguchi, Susumu Uchiyama, Kiichi Fukui, and Tomoji Kawai: Chem. Commun. (2004) 2388-2389.

Adsorption of DNA Molecule and DNA Patterning on Si Substrate, Shinichi Tanaka, Masateru Taniguchi, and Tomoji Kawai: Proc. DNA-Based Molecular Construction. (2004) AIP Conference Proceedings 725 3-8.

Kinetic and Thermodynamic Control Via Chemical Bond Rearrangement on Si(001) Surface, Chiho Hamai, Akihiko Takagi, Masateru Taniguchi, Takuya Matsumoto, Tomoji Kawai: Angew. Chem. Int.

Ed., 43 (2004) 1349-1352.

Relaxation of Nanopatterns on Nb-Doped $SrTiO_3$ Surface, Run-Wei Li, Teruo Kanki, Motoyuki Hirooka, Akihiko Takagi, Takuya Matsumoto, Hidekazu Tanaka, Tomoji Kawai, Applied Physics Letters, 84 (2004) 2670-2672.

AFM Lithography in Perovskite Manganite $La_{0.8}Ba_{0.2}MnO_3$ Films, Run-Wei.Li, Teruo Kanki, Hideaki Tohyama, Jun Zhang, Hidekazu Tanaka, Akihiko Takagi, Takuya Matsumoto, Tomoji Kawai, Journal of Applied Physics, 95 (2004) 7091-7093.

Construction of Oxide-Carbide Artificial Superlattices Using C_{60}-Assisted Pulsed-Laser-Deposition Technique, Yohei Yamamoto, Hidekazu Tanaka, Tomoji Kawai, Journal of Crystal Growth, 265 (2004) 198-203.

Electrochemical Detection of Nonlabeled Oligonucleotide DNA using the Biotin-modified DNA(ss) on Streptavidin-modified Gold Electrode. J.W.Park, HeaYeon Lee, J.M.Kim, Ryujirou Yamasaki, Takashi Kanno, Hiroyuki Tanaka, Hidekazu Tanaka, and Tomoji Kawai, Journal of Bioscience Bioengineering., 97 (2004) 29-32.

AFM Phase Lag Mapping for Protein-DNA Oligonucleotide Complexes, J.M.Kim, H.S.Jung, J.W.Park, H.Y.Lee, T.Kawai, Ana. Chim. Acta, 525 (2004) 151-157.

Stable High Ordered Protein Layers Confirmed by Atomic Force Microscopy and Quartz Crystal Microbalance, J.M.Kim, R.Yamasaki, J.W.Park, H.S.Jung, H.Y.Lee and T.Kawai, J.Biosci.Bioeng., 97(2004) 140-142.(Fig.3; A Cover of JBB vol.97, No.6).

Orthorhombic Molybdenum Trioxide Whiskers by Vapor Transport Method, Supab Choopun, Pongsri Mangkorntong, Piyanop Subjareon, Nikorn Mangkorntong, Hitoshi Tabata and Tomoji Kawai, Japanese Journal of Applied Physics, 43,（2004）L91-L93.

High-Energy Spectroscopy Study of the Ferromagnetic Diluted Magnetic Semiconductor $Zn_{1-x}V_xO$, Yukiaki Ishida, J.I.Hwang, Masaki Kobayashi, Atsushi Fujimori, Hiromasa Saeki, Hitoshi Tabata, Tomoji Kawai, Physica B, 351, (2004) 304-306.

N Doping Using N_2O and NO Sources: From the Viewpoint of ZnO, Hiroaki Matsui, Hiromasa Saeki, Tomoji Kawai, Hitoshi Tabata and Bunsho Mizobuchi, Journal of Applied Physics, 95, (2004) 5882-5888.

Characteristics of Polarity-controlled ZnO Films Fabricated Using the Homoepitaxy Technique, Hiroaki Matsui, Hiromasa Saeki, Tomoji Kawai, Atsushi Sasaki, Mamoru Yoshimoto, Masato Tsubaki, and Hitoshi Tabata, Journal of Vacuum Science and Technology B, 22 (2004) 2454-2461.

A Molybdenum Crown Cluster Forms Discrete Inorganic-Organic Nanocomposites with Metalloporphyrins, Akihiko Tsuda, Eri Hirahara, Yeong-Sang Kim, Hiroyuki Tanaka, Tomoji Kawai, and Takuzo Aida, Angew.Chem.Int.Ed 46 (2004) 6327-6331.

A Dodecametric Porphyrin Wheel, Xiaobin Peng, Naoki Aratani, Akihiko Takagi, Takuya Matsumoto, Tomoji, Kawai,In-Wook Hwang, Tae Kyu Ahn, Dongho Kim, and Atsuhiro Osuka, Journal of the American Chemical Society, 126 (2004), 4468-4469.

Directly Meso-meso Linked Porphyrin Rings: Synthesis, Characterization, and Efficient Excitation Energy Hopping, Yasuyuki Nakamura, In-Wook Hwang, Naoki Aratani, Tae Kyu Ahn, Dah Mee Ko, Akihiko Takagi, Tomoji Kawai, Takuya Matsumoto, Dongho Kim, and Atsuhiro Osuka, Journal of the American Chemical Society, 127 (2004), 236-246.

Electronic Structure of Bases in DNA Duplexes Characterized by Resonant Photoemission Spectroscopy Near Fermi Level, Hiroyuki S. Kato, Masashi. Furukawa, Maki Kawai, Masateru Taniguchi, Tomoji Kawai, Takaki Hatsui, and Nobuhiro Kosugi: Phys. Rev. Lett. 93 (2004) 086403-086406.

［ 解説、総説、翻訳 ］

Close-up　研究者紹介、田中秀和、JST News, 2 (2004) 27.

分子スケール電気伝導ーナノエレクトロニクスの視点からー, 松本卓也、谷口正輝、川合知二: 固体物理 39 (2004) 527-536.

［ 著書 ］

走査プローブ顕微鏡で測る, 松本卓也（分担執筆）、川合知二（分担執筆）: 先端化学シリーズVI「界面・コロイド、ナノテクノロジー、分子エレクトロニクス、ナノ分析」日本化学会編　(2004) 198-204.

［ 特許 ］

「リポソームの固定化方法、リポソームマイクロアレイチップおよびその創製方法」 川合　知二, H.Y.Lee, H.S.Jung, J.M.Kim, 朴　鐘完, 行政　哲男、岡　弘章 特願 2004-346720, 2004 年 11 月 30 日出願.

「薄層化学トランジスター及びその製造方法」 川合知二, 谷口正輝, 福井育生,特願 2004－251779.

「自己組織化材料または微粒子を基板上に固定化する方法、および当該方法を用いて作成した基板」 川合知二、田畑仁、大塚洋一、山田郁彦、松本卓也 特願 2004-381549.

「Tunneling Magnetoresistive Element, Semiconductor Junction Element, Magnetic Memory and Semiconductor Light Emitting Element」, Hidekazu Tanaka, Tomoji Kawai, 12480-000064/US.

「生体分子に関する形態及び情報を IS-FET を利用して検出する測定法及びシステム」 大竹才人・宇野毅・浜井知歩・田畑 仁・川合知二: 特願 2004-88133.

「自己組織化材料のパターニング方法、及び自己組織化材料パターング基板とその生産方法、並びに自己組織化材料パターニング基板を用いたフォトマスク」 大竹才人・田畑仁・川合知二・松井真二・中松健一郎 特願 2004-287549.

「アフィニティータグ付きリボソーム」　松浦俊彦, 小林括平, 田中裕行, 松本卓也, 川合知二: 特願 2004-079231.

「探針装置」 松本卓也、川合知二、特願 2004-188360.

「微小電極製造方法及びその製造方法によって作製された微小電極」 松本卓也、松井真二、中松健一郎、小嶋薫、川合知二、特願 2004-282564.

［ 国際会議 ］

DNA Based Electric and Magnetic Devices (Invited), *Tomoji Kawai, DNA-Based Molecular Electronics, Jena, Germany, 2004.5.13-15.

Nanotechnology and Nanobiodevice (Invited), *Tomoji Kawai, International Bio EXPO, Tokyo, 2004.5.19.

Nanoscience toward Bio-molecular Electronics (Invited), *Tomoji Kawai, Swiss-Japan Nanoscience Workshop, Nara, Japan 2004.6.23-25.

Nanotechnology in Japan (Invited), *Tomoji Kawai, Nano Korea 2004 International Nanotech Symposium in Korea, Korea, 2004.8.24-27.

Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience (Invited), *Tomoji Kawai, Commemorative Symposium for the Opening of Osaka University, San Francisco Office, San Francisco, USA, 2004.9.9-10.

Nanotechnology and its Impact to the Semiconductor / FPD Industry (Invited), *Tomoji Kawai, SEMI International Trade Partner's Conference 2004, Hawaii, USA, 2004.10.3-6.

Spin Electronics Materials and Devices (Invited), *Tomoji Kawai, The 5th Japan-France Nano Material Workshop, France, 2004.10.11-13.

Nano-Biochip (Invited), *Tomoji Kawai, Korean physical society, Chejudo, Korea, 2004.10.22-23.

Electronic Structure and Nano-processes of DNA on Solid Surfaces (Invited), *Tomoji Kawai, 10th DIET International Workshop, Shizuoka, 2004.11.8-11.

High Resolution Imaging of DNA by STM (Invited), *Tomoji Kawai, The First International Symposium on the Functionality of Organized Nanostructures (FON'04), Tsukuba, 2004.11.30-12.2.

Electronic Structure of the Strained (La,Ba)MnO_3 Thin Films Studied by Hard X-ray Core-Level Photoemission, *Hidekazu Tanaka, Yasutaka Takata, Koji Horiba, Munetaka Taguchi ,Tomoji Kawai, Keisuke Kobayashi, Material Material Research Society Fall Meeting, Boston, USA, 2004. 11. 30-12. 3.

Conductance Measurement of a DNA Network in Nano-scale by Point Contact Current Imaging Atomic Force Microscopy, *Hidekazu Tanaka, Ayumu Terawaki, Yoichi Otsuka, Hea Yeon Lee, Takuya Matsumoto and Tomoji Kawai, Material Material Research Society Fall Meeting, Boston, USA , 2004. 11. 30-12. 3.

Magnetic and Electrical Properties of Field Effect Transistor using Ferromagnetic $(La,Ba)MnO_3$ channel, *Hidekazu Tanaka, Teruo Kanki, Tomoji Kawai, 2nd 21st Century COE and 7th SANKEN International Symposium on "Hybridization of Chemistry, Biology and Material Science", (Osaka) 2004. 1. 13-1.

Electric-field Control of Ferromagnetism at Room Temperature by using $Pb(Zr,Ti)O_3/(La,Ba)MnO_3$ Heterostructure, *Hidekazu Tanaka, Teruo Kanki, Masatoshi Ohnishi, Tomoji Kawai, Korea Physical Society Meeting, (Korea) 2004. 10. 21-23.

Electric-Field Control of Ferromagnetism at Room Temperature by using $Pb(Zr,Ti)O_3/(La,Ba)MnO_3$ Heterostructure, *Hidekazu Tanaka, Teruo Kanki, Masatoshi Ohnishi and Tomoji Kawai, The 11th Oxide Electronics Workshop, (Hakone) 2004.10.5.

THz Characterization of DNA, *M. Herrmann, H. Tabata, M. Tonouchi, T. Kawai, The Joint 29th International Conference on Infrared and Millimeter Waves and 12th International Conference on Terahertz Electronics, Karlsruhe, Germany, 2004.09.27 - 10.01.

Terahertz Time-domain Spectroscopy of DNA, *M. Herrmann, H. Tabata, M. Tonouchi, T. Kawai, Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology, Osaka, Japan, 2004.12.06 - 07.

Nanowells Array-based Ultrasensitive Electrical Bioassay (Invited), *HeaYeon Lee and Tomoji Kawai, International workshop of Nanobioelectronic devices, 2004, 6. 21 ~ 6.23, Seoul, Korea.

New Antibody Immobilization Method via Functional Liposome layer For Specific Protein Assays, *H.Y.Lee, H.S.Jung, and T. Kawai, International Symposium on Scientific Nanotechnology (ISSIN2004), 2004, 12.6 ~ 12.7, Osaka, Japan.

Recognition of Nano-well Array Based on Electric Gene Chip, *Hea-Yeon Lee, Ho-Sup Jung, and Tomoji Kawai, Young Asian BioEngineering conference (YABEC), 2004, 9,23-9.25, Osaka, Japan.

Amperometric Immunosensor for Direct Detection Based upon Functional Lipid Vesicles Immobilized on NanoWell Array Electrode, *H.Y.Lee, H.S.Jung,and T. Kawai, MRS (Material research Society)-fall meeting, 2004. 11.19 ~ 12. 3. Boston, USA.

Specific Antibody-Antigen Interaction on a Functional Lipid-Membrane Vesicles Modified Surface, *H.Y.Lee, H.S.Jung, and T. Kawai, Korean Physical Society-2003 Fall Meeting, 2004, 10.23 ~ 10. 25, Chejudo, Korea.

Direct Measurement of Electron Transport Features in Cytochrome c via V-I Characteristics of STM Currents, *Hiroyuki Tanaka and Tomoji Kawai, NANO-8, Vevice, Italy, 2004 6.28 - 7.2.

Room Temperature Ferromagnetism in Ferroelectric $Pb(Fe,Ta)_{0.5}O_3$ and $Ba(Fe,Ta)_{0.5}O_3$ Thin films, *Akther A.K.M. Hossain, Atsuhiro Doi, Munetoshi Seki, Tomoji Kawai, Hitoshi Tabata, 11th International Workshop on Oxide Electronics, Kanagawa（Palace Hotel Hakone）, Japan, 2004.10.3-5.

Effect of Strontium Doping on Conductive $LaTiO_3$ Thin Films, *B. Vilquin, T. Kanki, T. Yanagida, H. Tanaka and T. Kawai, 12th international Conference on Solid Films and Surfaces (ICSFS-12), Hamamatsu, Japan (June 2004).

Realization of a Nanoscale Spintronic Device [in French], *B. Vilquin, T. Kanki, T. Yanagida, H. Tanaka and T. Kawai, 7th French Embassy Scientific Symposium, Tokyo, Japan (4-5 November 2004).

Fabrication of Nanoscale Oxide Device for Spin Injection Analysis, *B. Vilquin, T. Kanki, T. Yanagida, H. Tanaka and T. Kawai, International Symposium of Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan (December 2004).

Origin of Metal-insulator Transition and Ferromagnetism Phenomena of $La_{0.7}Ce_{0.3}MnO_3$ Thin Films, *T. Yanagida, T.Kanki, B.Vilquin, H.Tanaka and T.Kawai, Second 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" 7th SANKEN International Symposium, Osaka, Japan, 2004.1.13-1.14.

Phase Transition Phenomena of $La_{0.7}Ce_{0.3}MnO_3$ Thin Films, *T. Yanagida, T.Kanki, B.Vilquin, H.Tanaka and T.Kawai, American Physics Society March Meeting, Montreal, Canada, 2004.3.22-3.28.

Hall Effect in Strained $La_{0.85}Ba_{0.15}MnO_3$ Thin Films, *T. Yanagida, T.Kanki, B.Vilquin, H.Tanaka and T.Kawai, American Physics Society March Meeting, Montreal, Canada, 2004.3.22-3.28.

Ce-doped $LaMnO_3$ Thin Films and Their Transport and Magnetic Properties, *T. Yanagida, T.Kanki, B.Vilquin, H.Tanaka and T.Kawai, 12th International Conference on Solid Films and Surfaces, Hamamatsu, Japan, 2004.6.21-6.25.

Investigation on Transport Properties of Strained $La_{0.85}Ba_{0.15}MnO_3$ Thin Films using Hall Measurements, *T. Yanagida, T.Kanki, B.Vilquin, H.Tanaka and T.Kawai, 12th International Conference on Solid Films and Surfaces, Hamamatsu, Japan, 2004.6.21-6.25.

Structural, Transport and Magnetic Properties of $R_{1-x}A_xMnO_3$ (R=La, Nd, A=Ce) Thin Films Fabricated by Laser MBE Method, *T. Yanagida, T.Kanki, B.Vilquin, H.Tanaka and T.Kawai, 11th International Workshop on Oxide Electronics, Hakone, Japan, 2004.10.3-10.5.

Structural, Transport and Magnetic Properties of $R_{1-x}A_xMnO_3$ (R=La, Nd, A=Ce) Thin Films Fabricated by Laser MBE Method, *T. Yanagida, T.Kanki, B.Vilquin, H.Tanaka and T.Kawai, Material Research Society Fall Meeting, Boston, USA, 2004.11.29-12.3.

Investigation on Carrier Character of $La_{1-x}Ce_xMnO_3$ Thin Films, *T. Yanagida, T.Kanki, B.Vilquin, H.Tanaka and T.Kawai, Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, 2004.12.6-12.7.

Structural and Magnetic Properties of $Nd_{0.7}Ce_{0.3}MnO_3$ Thin Films, *T. Yanagida, T.Kanki,

B.Vilquin, H.Tanaka and T.Kawai, Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, 2004.12.6-12.7.

Self-Assembled Nanostructures in Binary Nanoparticle Systems, *T. Yanagida, T.Kanki, B.Vilquin, H.Tanaka and T.Kawai, Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, 2004.12.6-12.7.

Ordered Adlayer of PNA on Au(111) Surface, *Kaoru Ojima, Takeshi Uno, Takuya Matsumoto, Tomoji Kawai, 8th International Conference on Nanometer Scale Science and Technology, Venice, Italy, 2004.6.28-7.2.

Fabrication of Gold Electrode by Nanotransfer Printing, *Kaoru Ojima, Kenichiro Nakamatsu, Takashi Kanno, Takuya Matsumoto, Shinji Matsui, Tomoji Kawai, Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, 2004.12.6-7.

Direct Printing of Gold Electrode for Molecular-Scale Devices, *Kaoru Ojima, Kenichiro Nakamatsu, Takashi Kanno, Takuya Matsumoto, Shinji Matsui, Tomoji Kawai, The 12th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, Atagawa, Japan, 2004.12.9-11.

Incorporation of Molecules into the DNA Duplexes, *Keiichi Adachi, Masateru Taniguchi, and Tomoji Kawai, 8th SANKEN International Symposium and 3rd International Symposium an Scientific and Industrial Nanotechnology, Osaka(Osaka University), Japan, 2004. 12. 6-12. 7.

DNA Immobilization and Detection for Hybridization by using IS-FET, *Toshihito OHTAKE, Takeshi UNO, Hitoshi TABATA and Tomoji KAWAI, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka Japan, December 6-7, 2004.

DNA Nano-patterning with Self-organization by using Nanoimprint, *Toshihito OHTAKE, Ken-ichiro Nakamatsu, Shinji MATSUI, Hitoshi TABATA and Tomoji KAWAI, The Forty-eighth International Conference on Electron, Ion, and Photon Beam Technology and Nanofabrication (EIPBN2004), San Diego, California, USA , June 1st - 4th 2004.

DNA Nano-patterning by Nanoimprint and Self-organization, *Toshihito OHTAKE, Shinji MATSUI, Hitoshi TABATA and Tomoji KAWAI, Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science (HCBMS-2004), Icho Kaikan, Osaka University, Osaka Japan , 13th-14th January, 2004.

Ultrasensitive Electric DNA Recognition using Nanowells Array, *H.S.Jung, H.Y.Lee, and T. Kawai, MRS(Material research Society)-fall meeting, 2004. 11.19 ~ 12. 3. Boston, USA.

Discrimination of Tastants Using the Functional Liposomes, *Ho-Sup Jung, Hea-Yeon Lee and Tomoji Kawai, Young Asian BioEngineering conference (YABEC), 2004, 9,23-9.25, Osaka, Japan.

Direct DNA Detection using Ion-sensitive Field Effect Transistors (IS-FET) Based on Peptide Nucleic Acid, *Takeshi Uno, Toshihito Ohtake, Hitoshi Tabata and Tomoji Kawai,2004 International Coference on Solid State Device and Materials (SSDM2004), Tokyo Tower Hall

Funabori, Semptember 15-17, 2004.

Properties and Processing of Manganite-based Thin Films and Devices Prepared by PLD (Invited), *Masaki Kanai, Teruo Kanki, Takeshi Yanagida, Motoyuki Hirooka, Hidekazu Tanaka and Tomoji Kawai, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Science, 2004.12.17.

Polysomal Profiles by Atomic Force Microscopy (AFM), *Eriko Mikamo, Hideo Akiyama, Jung Giman, Hiroyuki Tanaka and Tomoji Kawai, Young Asian Biochemical Engineer's Community (YABEC) 2004; Osaka (Cosmosquare International Education And Training Center), Japan, 2004. 9. 23 - 25.

Adsorption of Ribosome onto Solid Surfaces from Solution, *Toshihiko Matsuura, Hiroyuki Tanaka, Takuya Matsumoto and Tomoji Kawai: SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004), Ibaraki, Osaka, JAPAN (December 6-7, 2004).

Single Ribosome on Substrate, *Toshihiko Matsuura, Hiroyuki Tanaka, Takuya Matsumoto and Tomoji Kawai: Young Asian Biochemical Engineers' Community 2004 (YABEC2004), Cosmosquare International Education and Training Center, Osaka, JAPAN (September 23-25, 2004).

Scanning Force Microscopic Observations of Escherichia coli Ribosomes, *Toshihiko Matsuura, Kappei Kobayashi, Hiroyuki Tanaka, Takuya Matsumoto and Tomoji Kawai: 16th International Vacuum Congress (IVC-16) / 12th International Conference on Solid Surfaces (ICSS-12) / 8th International Conference on Nanometer-Scale Science and Technology (NANO-8) / 17th Vacuum National Symposium (AIV-17), Cinema festival Palace, Venice, ITALY (June 28- July 2, 2004).

STM and STS Analysis of Single Strand DNA with FITC, *Y.Yoshida, Y.Nojima, H.Tanaka, T.Kawai, International Vacuum Conference at Venice Italy, June 28-July 2, 2004.

Photocontrol of Cluster-glass State at Room Temperature in Spinel and Garnet Ferrite Thin Films, *Munetoshi Seki, A. K. M. Akther Hossain, Katsumi Tanimura, Hitoshi Tabata, and Tomoji Kawai, 11th International Workshop of Oxide Electronics, Hakone, Japan, October, 2004.

Mechanism of Photoinduced Magnetization in Zn- and Ti-substituted $NiFe_2O_4$ Spinel Type Ferrite Thin Films, *Munetoshi Seki, A. K. M. Akther Hossain, Koji Tsuruta, Hitoshi Tabata, and Tomoji Kawai, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (ISSIN-2004), The Institute of Scientific and Industrial Research, Osaka University, December, 2004.

Fabrication of Nano-Gap Electrodes without Lithography Technique and Electrical Characteristics of Nano Structured Molecules, *Yoichi Otsuka, Yasuhisa Naitoh, Takuya Matsumoto, Wataru Mizutani, Hitoshi Tabata, Tomoji Kawai, American Physical Society Spring Meeting, Montreal, Canada,2004.3.22－26.

Fabrication Method of Nano-gap Electrodes without Wet Process and Electrical Measurement of Nano Structured Molecules, *Yoichi Otsuka, Yasuhisa Naitoh, Takuya Matsumoto, Wtaru Mizutani, Hitoshi Tabata, Tomoji Kawai, 8th Int. Conference on Nanometer Scale Science and Technology,

Venice, Italy, 2004.6.28.-7.2.

A Simple Fabrication Method of Nanogap Electrodes for Top-Contacted Geometry:Application to Porphyrin Nanorods and a DNA Network, *Yoichi Otsuka, Yasuhisa Naitoh, Takuya Matsumoto, Wataru Mizutani, Hitoshi Tabata, Tomoji Kawai, The12th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, Atagawa (Sizuoka), Japan,2004.12.9-11.

One-dimensional Assembly and Local Surface Potential Mapping of Au Nanoparticles on a DNA network (Invited), *Fumihiko Yamada, Akihiko Takagi, Yoichi Otsuka, Takuya Matsumoto, Hidekazu Tanaka and Tomoji kawai, 8th International Conference on Nanometer-Scale Science and Technology, Venice, Italy, 2004. 6. 28 - 7. 2.

Surface Potential Measurement of the DNA and Au Nanoparticles on Insulating Substrate, *Fumihiko Yamada, Akihiko Takagi, Takao Kusaka, Takuya Matsumoto, Hidekazu Tanaka and Tomoji Kawai, 8th SANKEN International Symposium & 3rd International Symposium on Scientific and Industria Nanotechnology, Osaka, Japan, 2004.12.6 - 12.7.

Surface Potential Measurement of the DNA-Au Nanoparticle Complex on Insulating Substrate, *Fumihiko Yamada, Akihiko Takagi, Takao Kusaka, Takuya Matsumoto, Hidekazu Tanaka and Tomoji Kawai, The 12th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, Shizuoka, Japan,2004.12.11 - 12.13.

Investigation of Enzymatic Activity for Lipid Bilayers Patterning by Surface Plasmon Resonance and Atomic Force Microscopy, *S.E.Lee, H.S.Jung, F. Yamada, T.Matsumoto, H.Y.Lee, T.Kawai, 8th SANKEN International Symposium & 3rd International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology (SISSIN-2004), 2004.12.6-7.

Quantitative Analysis of DNA Hybridization on Streptavidin Modified Electrode for Development of Nanobiosensor, *R.Yamazaki, H.Y.Lee, H.S.Jung, and T. Kawai, Korean physical society-2003 fall meeting, 2004, 10.23 ~ 10. 25, Chejudo, Korea.

Dependence on pH of Streptavidin for Immobilization of Probe ssDNA, *R. Yamasaki, H.S.Jung, S.E.Lee, H.Y.Lee, T.Kawai, Young Asian BioEngineering Conference (YABEC), 2004, 9,23-9.25, Osaka, Japan.

Tunneling Conduction Through Cytochrome c Molecule, *Makoto Kataoka, Takuya Matsumoto, Tomoji Kawai, 8th Int. Conference on Nanometer Scale Science and Technology, Venice, Italy, 2004.6.28.-7.2.

Conductivity Measurement Through Cytochrome c Molecules, *Makoto Kataoka, Takuya Matsumoto, Tomoji Kawai, The12th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, Atagawa (Sizuoka),Japan,2004.12.9-11.

Nano-Lithography on Transition Metal Oxides with Room Temperature Ferromagnetism using Atomic Force Microscopy, *Motoyuki Hirooka, Hidekazu Tanaka, Yoshihiko Yanagizawa, Tomoji Kawai, Korea Physical Society Meeting, (Korea) 2004. 10. 21-23.

Nano-Lithography on Transition Metal Oxides with Room Temperature Ferromagnetism using Atomic Force Microscopy, *Motoyuki Hirooka, Hidekazu Tanaka, Yoshihiko Yanagizawa, Tomoji Kawai, The 11th Oxide electronics workshop, (Hakone) 2004.10.5.

Nano-Lithography on Transition Metal Oxides with Room Temperature Ferromagnetism using Atomic Force Microscopy, *Motoyuki Hirooka, Hidekazu Tanaka, Yoshihiko Yanagisawa, and Tomoji Kawai, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2003, ISIR Sanken, 2004.12

Time-Resolved Force Detection using Dynamic-Mode Scanning Force Microscopy, *Takuya Matsumoto, Tomoji Kawai, 8th Int. Conference on Nanometer Scale Science and Technology, Venice, Italy, 2004.6.28.-7.2.

Electronic Properties of Biomolecular System: Toward the Realization of Bottom-up Molecular Scale Electronics, *Takuya Matsumoto, Tomoji Kawai, International Seminar on Organic-molecular Materials, Shizuoka, Japan, 2004.8.8-9.

Surface Potential Images of Molecular Systems on Insulating Substrates by Frequency-Mode Scanning Force Microscopy, *Takuya Matsumoto, FumihikoYamada, Akihiko Takagi,Tomoji Kawai, Seventh International Conference on non-contact Atomic Force Microscopy, Seattle, Washington U.S.A.,2004.9.12-15.

Scanning Probe Microscopy Methods for Biomolecular Electronics, *Takuya Matsumoto, Tomoji Kawai, Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004(SISSIN-2004): Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing, Osaka, Japan,2004.12.6-7.

Characteristics of Electrochemical Transistor, *Masateru Taniguchi and Tomoji Kawai: Organic Materials for Electronics and Photonics, Okinawa, Japan, 2004.11.3-6.

Fabrication and Properties of Electrochemical Transistors, *Masateru Taniguchi and Tomoji Kawai: SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, 2004.12.6-7.

Alignment of Porphyrin Chain using Solvent Templates on HOPG, *Akihiko Takagi, Naoki Aratani, Takuya Matsumoto, Atsuhiro Osuka, and Tomoji Kawai, 8th International Conference on Nanometer Scale Science and Technology, Venice, Italy, 2004.6.28-7.2.

Three Distinct Conformations of Porphyrin Wheels Adsorbed on Cu (100) Observed by Scanning Tunneling Microscope, *Akihiko Takagi, Naoki Aratani, Takuya Matsumoto, Atsuhiro Osuka, and Tomoji Kawai, 8th International Conference on Nanometer Scale Science and Technology, Venice, Italy, 2004.6.28-7.2.

Reevaluation of the Mobility in a Field-effect Transistor Based on Polymeric Insulating Layer, *Eriko Mizuno, Masateru Taniguchi, Tomoji Kawai, SANKEN International Symposium on

Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 Osaka, Japan, 12.6-7.

Electric-field Control of Ferromagnetism at Room Temperature on the $Pb(Zr,Ti)O_3/(La,Ba)MnO_3$ Heterostructure, *Teruo Kanki, Masatoshi Ohnishi, Hidekazu Tanaka and Tomoji Kawai, Fall meeting, Material Research Society(MRS), Boston in U.S.A., 2004.11.29-12.3.

Electric-field Control of Ferromagnetism at Room Temperature on the $Pb(Zr,Ti)O_3/(La,Ba)MnO_3$ Heterostructure, *Teruo Kanki, Masatoshi Ohnishi, Hidekazu Tanaka and Tomoji Kawai, 8th SANKEN International Symposium, Osaka University, 2004.12.6-7.

Adsorption of DNA Molecule and DNA Patterning on Si Substrate DNA-Based Molecular Electronics, *Shinichi Tanaka, Masateru Taniguchi, Tomoji Kawai: Institute for Physical High Technology (IPHT), Jena, Germany, 2004.5.13-15.

Adsorption of DNA Molecule and DNA Patterning on Si substrate, *Shinichi Tanaka, Masateru Taniguchi, Tomoji Kawai: Scanning Probe Microscopy in Life Sciences, University Medicine Berlin, Berlin, Germany, 2004.10.13.

Construction of ZnO Devices : Electric and Magnetic Properties, *Hitoshi Tabata, Satoshi Masuda, Hiroaki Matsui, Hiromasa Saeki and Tomoji Kawai, The 12th Gallium Arsenide and other Compound Semiconductors Application Symposium(GAAS 2004) , Amsterdam(the RAI Exhibition & Congress Centre), Netherland 2004.10.11-12.

Non-labeling Detection of DNA Hybridization by IS-FET Devices, *Hitoshi Tabata, Takeshi Uno, Ttoshihito Ohtake and Tomoji Kawai, International Workshop on Surface-Biotronics, Tokyo, Japan, 2004.10.19-20.

Spin and Dipole Glass Behaviors in Perovskite or Spinel Superlattices, *Hitoshi Tabata, Yasushi Hotta, Atsuhiro Doi, Munetoshi Seki and Tomoji Kawai, The 5th Korea-Japan-Taiwan Symposium on Strongly Correlated Electron Systems, Busan(The Westin Chosun), Korea, 2004.12.10-11.

Magnetism of Cobalt-doped ZnO Thin Films, *Hiromasa Saeki, Hiroaki Matsui, Hitoshi Tabata, Tomoji Kawai, Yoshimitsu Shiotani, G-.q.Zheng, Yoshio Kitaoka, Masaki.Kobayashi, Yukiaki Ishida, J.I.Hwang, Takashi Mizokawa, Atsushi Fujimori, Kazutoshi Mamiya, 11th International Workshop on Oxide Electronics, Kanagawa(Palace Hotel Hokone), Japan, 2004.10.3-5.

Measurements of Contactless Microwave Conductivity and Infrared Absorption in Poly(dG)-Poly(dC) and Poly(dA)-Poly(dT) DNA Molecules, *Hiroshi Matsui, Toshiori Yanagimachi, Koudai Abe, Toshihiro Suzuki, Masateru Taniguchi, Shinichi. Tanaka, Tomoji Kawai, Hasanudin, Noriyoshi Kuroda, Naoki Toyota: The 5th International Conference on Biological Physics, Gothenburg, Sweden, 2004.8.23-27.

［ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ］

川合　知二　　Nano tech 実行委員会　委員長
川合　知二　　エレクトロニクスソサイエティ編集委員会委員長
川合　知二　　IEICE Electronics Express 編集委員会編集委員

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

［ 国内学会 ］

応用物理学会	31 件
表面科学会	5 件
日本分子生物学会	4 件
日本化学会	3 件
応用磁気学会	3 件
その他	41 件

［ 取得学位 ］

修士（理学）

山崎龍二郎　　Streptavidin 処理した基板上での biotin 化 DNA の定量的解析
(The quantitative Analysis of the Interaction between Streptavidin and biotinylated DNA on the substrate modified by streptavidin)

修士（基礎工学）

片岡　誠　　電子伝達蛋白質シトクロムｃの少数分子電気伝導測定
(I-V characterization of electron-transfer metalloprotein "Cytochrome c" at a few molecular level)

廣岡　誠之　　AFM リソグラフィーによって作製されたマンガン酸化物ナノ細線の相転移現象
(The Phase Transition of Manganite Nanowires Fabricated by AFM Lithography)

博士（理学）

関　宗俊　　スピネル型およびガーネット型フェライト薄膜におけるクラスターグラス特性と光誘起磁性
(Cluster-Glass Nature and Photoinduced Magnetization in Spinel and Garnet Ferrite Thin Films)

［ 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

21 世紀 COE

川合　知二	新産業創造指向インターナノサイエンス	274,000

基盤研究（B）

田中　秀和	強相関電子酸化物ナノ構造による室温スピントロニクスデバイスの創成	5,900

特定領域研究　「分子スピン（ナノ磁石から生体スピン系まで）」

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

［ 特別研究員奨励費 ］

Bertrand Vilquin	レーザーアブレーション法による新規強誘電体薄膜材料の創成	1,200
柳田剛	界面構造制御された機能性調和人工格子による生体情報伝達システム模倣型センサの創成	1,100
関宗俊	室温光磁性材料の創成と光誘起磁化現象の解明	1,000
大塚洋一	構造と塩基配列が制御された DNA 分子のナノスケール電気輸送現象の解明	1,000
山田郁彦	プログラム自己組織化を用いたナノ磁性体配列形成と新規磁気特性の探索	1,000

A. Hossain（COE 枠）	酸化物人工格子による新規磁気材料の創成	400

［ 受託研究費 ］

川合　知二	ＮＥＤＯ　先進ナノバイオプロジェクト	[(株)島津製作所] 1 分子 DNA ナノテクノロジーの研究解析システムの研究	受入額 : 8,132
川合　知二	ＮＥＤＯ　先進ナノバイオプロジェクト	[東レ(株)] ハイスループット・タンパク質解析チップの研究開発	受入額 : 8,890
川合　知二	ＮＥＤＯ　先進ナノバイオプロジェクト	[松下電器産業(株)] 生体分子固定化技術の研究開発	受入額 : 9,240

［その他の競争的研究資金］

川合　知二	（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製	157,280
田中　秀和	科学技術振興事業団さきがけ研究 21「ナノと物性」	ナノスケール機能調和人工格子による強相関電子デバイスの創成	6,000
田中　秀和	産業科学研究所　所内分野間若手共同研究	オントロジー工学に基づく複数領域間における材料知識体系化の試み	2,000
田中　裕行	21COE 若手研究者による分野間共同研究	様々な局所電子状態を有する DNA の構築及び評価	1,000
大塚洋一	（財）産業科学研究協会資金による海外派遣助成事業	Structure and electrical property of DNA molecules immobilized on the patterned self-assembled monolayers	164

セラミック機能材料研究分野

教授	小林　光
助教授	高橋　昌男
助手	延谷　宏治、毎田　修
客員教授	岩佐　仁雄、寺川　澄雄
研究支援推進員	正司　雅美
研究員	アスハ（長山）、三浦　丈苗
大学院学生	小林　琢也、石川　幸男、劉　玥伶、任　星淳、田中　和樹、 岡藤　麻子、小林　克稔、深山　権一、服部　研作、大江　秀樹
学部学生	成田　比呂晃
事務補佐員	鈴木　裕美子、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ありません。当研究分野では、半導体の界面を高感度に観測する方法を開発し、さらに半導体界面の物性を高度に制御することによって半導体デバイスの高性能化、さらに、新しい構造を持つ半導体デバイスの開発を目指して研究を行っています。半導体デバイスとしては、(1)エネルギー問題と環境問題の解決を目指した太陽電池、(2)LSIの基本構造である金属－酸化物－半導体(MOS)デバイス、(3)液晶ディスプレイに用いられる薄膜トランジスターに関する基礎研究を行っています。また、大型コンピューターを利用した界面状態の理論計算も行っています。

b ）　成果

・化学的手法を用いたシリコンの低温創製と TFT への応用

TFT は硝子基板に堆積した多結晶シリコン上に、CVD 法を用いて SiO_2 膜を堆積する方法で製造されている。これは、硝子基板を用いるために良質の SiO_2 膜が形成できる高温熱酸化法（800℃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_2 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、堆積膜は界面特性が悪い。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℃の低温でシリコンを酸化して SiO_2 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_2 膜を約 120℃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_2 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原子が生成するために、120℃という低温でも SiO_2 厚膜が形成できる。二段階硝酸酸化法で創製した SiO_2/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。二段階硝酸酸化法で形成した SiO_2 膜は、TFT のゲート酸化膜に応用できる。硝酸酸化は直接酸化法であるため、凹凸のある表面にも均一な膜厚の SiO_2 膜が形成でき、さらに膜質も良好であることから、SiO_2 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℃の低温で SiO_2 膜が形成できるため、PET などの高分子基板上に 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。

・化学的手法を用いた SiC の低温酸化と SiC-MOS デバイスへの応用

SiC は化学的に非常に安定であり、SiC を酸化して SiO_2 膜を形成するためには、1100℃程度の高温加熱を要する。高温加熱の結果、界面特性が劣化して S iC 本来の物性から期待される良好なデバイス特性

は得られていない。

二段階硝酸酸化法を用いて SiC を約 120℃の低温で酸化して、10nm 以上の膜厚を持つ SiO_2 膜を形成することに成功した。二段階硝酸酸化法で創製した SiO_2/SiC 界面は原子レベルで平坦であることが、TEM 観測から証明された。さらに、0.5～1μm の膜厚を持つ SiO_2 膜を室温で形成する方法として、「電圧印加硝酸酸化法」を開発した。この方法では、室温でも SiC の酸化が可能である。二段階硝酸酸化法で形成した SiO_2 膜は SiC-MOS デバイスのゲート酸化膜として、また電圧印加硝酸酸化法で形成した SiO_2 膜は素子分離に応用できると期待される。

・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らずに、10^9 原子/cm^2 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が 50～80℃で使用する必要があったのに対して室温で使用でき、さらに 0.02%と極低濃度（従来の半導体洗浄液は 10%程度）でも十分に大きな洗浄効果を有する。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。

［ 原著論文 ］

Deoxidation of gallium arsenide surface via silicon overlayer: a study on the evolution of the interface state density, J. Ivanco, T. Kubota, and H. Kobayashi, J. Appl. Phys. 97 (2005) 073712.

Nitric acid oxidation of silicon at ~120 °C to form 3.5 nm SiO_2/Si structure with good electrical characteristics, Asuha, S. Imai, M. Takahashi, and H. Kobayashi, Appl. Phys. Lett. 85 (17) (2004) 3783-3785.

Control of flat-band voltage of Si-based metal-oxide-semiconductor diodes by inclusion of cesium ions in silicon dioxide, T. Kobayashi, K. Tanaka, O. Maida, and H. Kobayashi, Appl. Phys. Lett. 14 (85) (2004) 2806-2808.

Semiconductor surface and interface passivation by cyanide treatment, H. Kobayashi, M. Takahashi, O. Maida, A. Asano, T. Kubota, J. Ivanco, A. Nakajima, and K. Akimoto, Appl. Surf. Sci. 235 (2004) 279-292.

Removal of copper and nickel contaminants from Si surface by use of cyanide solution, N. Fujiwara, Y.-L. Liu, T. Nakamura, O. Maida, M. Takahashi, and H. Kobayashi, Appl. Surf. Sci. 235 (2004) 372-375.

Post-oxidation annealing treatments to improve Si/ultrathin SiO_2 characteristics formed by nitric acid oxidation method, Asuha, Y.-L. Liu, O. Maida, M. Takahashi, and H. Kobayashi, J. Electrochem. Soc. 151 (12) (2004) G824-G828.

Photoluminescence, structural and electrical properties of passivated a-Si:H based thin films and corresponding solar cells, E. Pincik, H. Kobayashi, M. Takahashi, N. Fujiwara, R. Brunner, H. Gleskova, M. Jergel, J. Mullerova, M. Kucera, C. Falcony, L. Ortega, J. Rusnak, M. Mikula, M. Zahoran, R. Jurani, and M. Kral, Appl. Surf. Sci. 235 (2004) 351-363.

Investigation of electrical, structural and optical properties of very thin oxide/a-Si:H/c-Si interfaces passivated by cyanide treatment, E. Pincik, H. Kobayashi, S. Jurecka, M. Jergel, H. Gleskova, M. Takahashi, R. Brunner, N. Fujiwara, and J. Mullerova, Inter. Soc. Optical Eng. 5774 (2004) 481-487.

X-ray and optical investigation of KCN and HCN passivated structures based on amorphous silicon, E. Pinčík, H. Kobayashi, M. Takahashi, N. Fujiwara, R. Brunner, M. Jergel, M. Kopani and J. Rusnak, Appl. Surf. Sci. 235 (2004) 364-371.

A change of photoinduced dilation of a-Si:H by cyanide treatment, Y. Sobajima, K. Mori, M. Tsukamoto, H. Kamiguchi, N. Yoshida, H. Kobayashi, and S. Nonomura, J. Non-Crystal. Solids, 338-340 (2004) 365-368.

［ 特許 ］

「半導体装置の製造方法」小林　光、米田健司、西山雅祥、特願 2004-146666.

「酸化膜の形成方法、半導体装置、半導体装置の製造方法および半導体装置の製造装置、SiC 基板の酸化方法とそれを用いた SiC-MOS 型半導体装置およびそれを用いた SiC-MOS 型集積回路、ならびに SiC-MOS 型半導体装置および SiC-MOS 型集積回路の製造装置」小林　光、特願 2005-005775.

「酸化膜の形成方法、半導体装置、半導体装置の製造方法および半導体装置の製造装置」小林　光、特願 2005-002352.

「薄膜トランジスタおよびその製造方法、表示装置、酸化膜の改質方法、酸化膜の形成方法」小林　光、特願 2005-039847

「半導体装置、太陽電池およびそれらの製造方法」小林　光、特願 2004-249386.

「太陽電池およびその製造方法」小林光、高橋昌男、特願 2005-044764.

「シリコン酸窒化膜及びその製造方法並びにそれを備えた半導体装置」小林　光、特願 2005-059342.

「光電変換半導体装置、その製造方法及び製造方法で用いる処理装置」小林　光、PCT/JP2004/005950

［ 国際会議 ］

IR spectroscopy of a-Si:H and a-SiC:H, *M. Kopáni, H. Kobayashi, M. Takahashi, M. Jergel, V. Sasinkova, V. Nádaždy, M. Zeman, E. Pinčík, Solid State Surfaces and Interfaces IV, Slovak Republic, 11.8-11, 2004.

Electronic properties of very thin native SiO_2/a-Si:H interface and their comparison with these prepared by barrier discharge oxidation at atmospheric pressure, *Martin Kráľ, Andrej Buček, Helena Glesková, Mirko Černák, Hikaru Kobayashi, Jaroslav Rusnák, Miroslav Zahoran and Emil Pinčík, Solid State Surfaces and Interfaces IV, Slovak Republic, 11.8-11, 2004.

Q-DLTS of cyanide treated very thin SiO2/a-Si:H/a-Si structures, *M. Pátek, H. Kobayashi, M. Takahashi, N. Fujiwara, J. Rusnák and E. Pinčík, Solid State Surfaces and Interfaces IV, Slovak Republic, 11.8-11, 2004.

Investigation of electrical, structural and optical properties of cyanide passivated very thin oxide/a-Si:H/c-Si interfaces, *Robert Brunner, Hikaru Kobayashi, Stanislav Jurečka, Jaroslav Rusnák, Masao Takahashi, Naozumi Fujiwara, Jarmila Mullerová and Emil Pinčík, Slovak Repoublic, Solid State Surfaces and Interfaces IV, 11.8-11, 2004.

Infrared Spectroscopy of amorphous silicon based thin layers, *M. Kopáni, H. Kobayashi, V. Sasinková, E. Pinčík, The Ninth Scientific and Business Conference SILICON 2004, Czeck Repblic, 11.2-5, 2004.

Investigation of electrical, structural and optical properties of very thin oxide/a-Si:H/c-Si interfaces passivated by cyanide treatment, *Emil Pinčík, Hikaru Kobayashi, Stano Jurečka, Matej Jergel, Helena Glesková, Masao Takahashi, Robert Brunner, Naozumi Fujiwara and Jarmila Mullerová, Fifth International Conference: THIN FILM PHYSICS AND APPLICATION, China, 5.31-6.2. 2004.

Very thin SiO_2/a-Si:H or cSi interfaces passivated by wet cyanide treatment and application of the cyanidization in thin film device production, *Emil Pinčík, Hikaru Kobayashi, Robert Brunner, Masao Takahashi, Jaroslav Rusnak, The Ninth Scientific and Business Conference SILICON 2004, Czeck Republic, 11.2-5, 2004.

Chemical oxidation of Si for the application to semiconductor devices, *Asuha, M. Takahashi, H.Kobayashi, International Symposium on Stereodynamics of Chemical Reaction 2004, Osaka, Japan, 2004.11.28-12.3

Cleaning method of Si devices by use of new chemical reaction, *Y. -L. Liu, T. Nakamura, M. Takahashi, H. Iwasa and H. Kobayashi, International Symposium on Stereodynamics of Chemical Reaction 2004, Osaka, Japan, 2004.11.28-12.3

Low-temperature formation of SiO_2 layers on Si substrates by nitric acid oxidation method, *Asuha Xin, M. Takahashi, H. Iwasa, and H. Kobayashi, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, 2004.12.6-12.7

Mechanism of Si cleaning method by use of HCN solution for removal of metallic contaminants, *Y. -L. Liu, N. Fujiwara, M. Takahashi, H. Iwasa and H. Kobayashi, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka Japan, 2004.12.6-12.7

Improvement of solar cell characteristics by use of new chemical methods, *M. Takahashi, O. Maida and H. Kobayashi, The 1st IMAGINE INTERNATIONAL FORUM ON VENTURE-BUSINESS, Osaka, Japan, 2004.12.15

New Si cleaning method by use of HCN solutions for removal of metallic contaminants and the cleaning mechanism, *Y. -L. Liu, M. Takahashi, H. Iwasa and H. Kobayashi, Third 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" International Symposium, Shiga, Japan, 2005.3.9-3.10

Room temperature electrochemical formation of silicon oxynitride layers in cyanide solutions, *Sung-Soon Im, M. Takahashi, S. Terakawa, and H. Kobayashi, Third 21st Century COE "Towards

Creating new industries based on inter-nanoscience" International Symposium, Shiga, Japan, 2005.3.9-3.10

Fabrication of the a-Si solar cell with light trapping structure by use of Al_2O_3 fine particles, *A. Okafuji, K. Kobayashi, O. Maida and H. Kobayashi, Third 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" International Symposium, Shiga, Japan, 2005.3.9-3.10

[外国雑誌の編集委員]

小林　光　　Applied Surface Science　(編集委員長)

[国内学会]

日本物理学会	5 件
応用物理学会	5 件
表面エレクトロニクス研究会	1 件
真空に関する連合講演会	1 件
吸着分子の分光学的研究セミナー	1 件

[取得学位]

修士 (理学)

岡藤　麻子　　Al_2O_3 微粒子を用いた光閉じ込め効果による a-Si 太陽電池の高効率化

博士 (理学)

小林　琢也　　Control of Band Bending of Si-based Metal-Oxide-Semiconductor Diodes and p-n Junction Si Solar Cell

[科学研究費補助金]

単位：千円

若手研究（B）

毎田　修	ゲート絶縁膜中固定電荷による MOSFET のしきい値制御	1,200

[特別研究員奨励費]

長山	SiO_2/Si 構造の低温創製とリーク電流密度の低減	1,200

[受託研究]

小林　光	科学技術振興機構	欠陥消滅機能を持つ半導体洗浄液の実用化研究	29,600
小林　光	科学技術振興機構	新規化学結合を用いる欠陥準位の消滅法とメカニズムの研究	2,500
小林　光	近畿経済産業局	硝酸酸化法を用いる新規シリコン低温酸化装置の実用化研究	74,826
高橋　昌男	科学技術振興機構	シアン処理による多結晶 Si 中のキャリア再結合の低減	500
小林　光	近畿経済産業局	非エッチング欠陥修復型新規半導体洗浄技術の実用化研究	20,000

［ その他の競争的研究資金］

小林 光	科学技術振興機構 戦略的基礎研究	新規化学結合を用いるシリコン薄膜太陽電池	54,110

セラミック構造材料研究分野

教授　　新原　晧一
助教授　　関野　徹
助手　　楠瀬　尚史、中山　忠親
博士研究員　　林　大和、Rajagopalan Ramaseshan、清野　智史、王　皓
大学院学生　　成　楽柱、金　允護、Ari Hirvonen、金　成浩、田中　典一、上野　巌、
　　趙　明濟、鵜飼　武士、岡本　拓巳、佐々木　雅啓、西條　佳孝、
　　柴田　智史、水口 創
学部学生　　板野　真也、藤原　英明
事務補佐員　　末廣　理恵

a ） 概要

科学技術を支える材料として重要なセラミックス材料に関し、結晶粒の内部や粒界の構造をナノから原子レベルまで制御するという従来の複合材料の概念とは全く異なるナノコンポジット材料技術を基礎として、バルク材料の各種性能の飛躍的改善・メカニズム解明を行うと共に、粒界・界面の性質を生かした新規ナノ複合材料の開発を目指している。この新しい材料設計コンセプトに基づいたナノ複合化技術により、セラミックスの強度・靭性や耐熱性・耐クリープ性など力学的・熱的機能の著しい改善を達成すると共に、セラミックスには無かった快削性や超塑性変形性の付与を世界に先駆けて見いだした。現在では同様の研究を更に進展させて特性の改善を図ると共に、セラミックス材料で見いだした新しい材料設計コンセプトを金属材料や高分子材料に展開すると共に、原子・分子レベルからナノ・ミクロスケールまでの各階層で等方的・異方的に構造制御し、構造− 機能相関を利用した多機能型バルク型材料やナノ材料の研究開発も遂行しており、これらの成果を基礎にして、複数機能が高次に調和して特性を発揮する高次機能和材料（インターマテリアル）に関する基礎ならびに応用・実用化研究開発を遂行している。

b ） 成果

・多機能調和型酸化物系セラミックスナノ複合材料の開発

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

・新規な非酸化物系物系セラミックスナノ複合材料の開発

Si_3N_4 セラミックスの高温での破壊強度は、焼結助剤と Si_3N_4 の表面に存在する SiO_2 に起因して粒界に生成する低融点の不純物相が高温で軟化するために、1200℃以上になると劣化することは良く知られている。本研究では Si_3N_4/SiC ナノ複合材料を種々の方法を用いて作製し、その微細組織制御法を確率すると共に、優れた耐クリープ性や超塑性変形能に関する機能発現メカニズムを解明した。また、種々の添加物や不純物を含んだ粉末を用いて高性能なナノコンポジット作製を行い、特性の改善手法とその指針を得た。

・金属分散セラミックス基ナノ複合材料の創製研究

セラミックスに新たな機能を導入することで優れた力学的性質と機能性（電気、磁気など）を兼ね備えたナノコンポジットの創製を目指した。このために、マトリックスに第２相分散相として種々の金属を添加した、セラミックス／金属ナノ複合材料の作製プロセスの検討と微細構造・界面構造の観察およ

び機械的性質の解明を行うことで、ナノサイズ金属の持つ特異な機能性を有効に利用して力学的性質と機能性を調和した材料の創成を行い。両者を共に改善した形で積極的に調和させた新規なナノ複合材料を開発した。また、これら材料の磁気的応答性が外部応力に対して良好であることを見いだし、リモートセンシングの可能性を示した。

・ナノ複合化による機能性セラミックスの高次機能調和化

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

・原子／分子レベル複合材料の設計コンセプトの構築とその開発

原子または分子レベルでのセラミックス材料の構造設計のためのコンセプトの提案を行い、これに基づいて同材料の創成を行っている。Al_2O_3 系セラミックス材料に極微量の添加物を加えることで原子、分子スケールで組成傾斜した、あるいは析出した構造の材料を得ており、その構造の詳細な観察を行うと共に、組織形成に及ぼすプロセス因子との相関関係、極微視摘変形過程の解明、また材料物性との関連を明らかにした。

・金属的な変形機構を有する高靭性セラミックスナノ複合材料の創製

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

・バルク状ラティスコンポジットの創製と構造解析

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

・ナノ複合化技術による高機能有機系ナノコンポジットの開発

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

導入し、電気的な性質の付与を目指すと共に、その微細組織との相関関係について調べることで実用化に関する検討を行った。

・ナノクラスターコンポジット磁石の開発

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

［ 原著論文 ］

Wear Properties of Alumina/Zirconia Composite Ceramics for Joint Prostheses Measured with an End-face Apparatus, Y. Morita, K. Nakata, Y.-H. Kim, T. Sekino, K. Niihara, and K. Ikeuchi, Bio-Medical Materials And Engineering, 14 [3] (2004) 263-70.

Hydrolysis of Biopex-R-allograft Cement and Osteoblasitc Response to the Cement, T. Nomoto, S. Yamaguchi, T. Sekino, and K. Niihara, J. Ceramic Processing Research, 5 [1] (2004) 76-9.

Effects of Fine Alumina Dispersion on Ionic Conductivity and Mechanical Properties of Ytterbia Stabilized Cubic Zirconia, M. Wada, T. Sekino, T. Kusunose, T. Nakayama, Y. Yamamoto, B.-S. Kim, Y.-H. Choa, and K. Niihara, Materials Research Innovation, 8 [2] (2004) 115-20.

Preparation and Corrosion Studies of Self-healing Multi-layered Nano Coatings of Silica and Swelling Clay, A. Hikasa, T. Sekino, Y. Hayashi, R. Rajagopalan, and K. Niihara, Materials Research Innovations, 8 [2] (2004) 84-88.

The Formation of Self-organized Regular Array Microstructure Derived from Structural Anisotropy of Phase M Solid Solution, Y. Yamamoto, T. Sekino, T. Kusunose, T. Nakayama, K. Niihara, Y. Morimoto, S. Miyazawa, J. Crystal Growth, 264 [1-3] (2004) 445-51.

Fabrication and Characteristics of Fine-grained $BaTiO_3$ Ceramics by Spark Plasma Sintering, W. Luan, L. Gao, H. Kawaoka, T. Sekino, and K. Niihara, Ceramics International, 30 [3] (2004) 405-10.

Influence of Size Distribution on the Magnetocaloric Effect of Superparamagnetic Gold-magnetite Nanocomposite, T. Kinoshita, S. Seino, H. Maruyama, Y. Otome, K. Okitsu, T. Nakayama, K. Niihara, T. Nakagawa, and T. A. Yamamoto, J. Alloys and Compounds, 365 [1-2] (2004) 281-5.

Fabrication of MgO Based Nanocomposites with Multifunctionality, T. Nakayama, B.-S. Kim, H. Kondo, Y.-H. Choa, T. Sekino, M. Nagashima, T. Kusunose, Y. Hayashi, and K. Niihara, J. Eur. Ceram. Soc., 24 [2] (2004) 259-64.

Preparation and Properties of TiN-Si_3N_4 Composites, L. Gao, J. Li, T. Kusunose, and K. Niihara, J. Eur. Ceram. Soc., 24 [2] (2004) 381-6.

Gelcasting Process of Al_2O_3/Ni Nanocomposites, B. -S. Kim, T. Sekino, Y. Yamamoto, T. Nakayama, T. Kusunose, M. Wada, and K. Niihara, Materials Letters, 58 [1-2] (2004) 17-20.

Sonochemical Synthesis and Characterization of Magnetic Composite Nanoparticles, Y. Mizukoshi, K. Okitsu, H. Nitani, S. Seino, T. Nakayama, K. Niihara, T. Nakagawa, and T. Yamamoto, 粉体工学会誌，41［6］（2004）440-4.

Self-organized Regular Array Microstructure of $LiNbO_3$-based Crystal Composites, Y. Yamamoto, J.-K. Chung, T. Sekino, T. Kusunose, T. Nakayama, C.-J. Kim, and K. Niihara, J. Alloys and Compounds , 385 [1-2] (2004) 252-6.

金と磁性酸化鉄が複合したナノ粒子材料のγ線による合成，山本孝夫，木下卓也，清野智史，乙メ陽平，中川 貴，興津健二，水越克彰，中山忠親，関野 徹，新原晧一，粉体および粉末冶金，51［9］（2004）680-684.

Relationship between Microstructure and Tribological Properties for Al_2O_3/SiC Nanocomposites, S.-H. Kim, S.-W. Lee, T. Sekino, T. Kusunose, T. Nakayama, and K. Niihara, J. Ceram. Soc. Japan, 112[1305] (2004) S1079-S1083.

Fabrication of Alumina/Nickel Nanocomposite Films by Aqueous Monomer Suspension Coating Method, B.-S. Kim, T. Sekino, T. Nakayama, T. Kusunose, R. Rajagopalan, and K. Niihara, J. Ceram. Soc. Japan, 112[1305] (2004) S1038-S1041.

Pressureless Sintering of Alumina Carbon Nanotubes Composites in Air Atmosphere Furnace and Their Mechanical Properties, J. Sun, M. Iwasa, T. Nakayama, K. Niihara, L. Gao, and X. Jin, J. Ceram. Soc. Japan, 112[1305] (2004) S403-S406.

Study on the Properties and Microstructure of Ferromagnetic Mullite-Based Composite, H. Wang, T. Sekino, T. Kusunose, T. Nakayama, B.-S. Kim, and K. Niihara, J. Ceram. Soc. Japan, 112[1305] (2004) S338-S342.

Gamma-ray Synthesis of Composite Nanoparticles of Noble Metals and Magnetic Iron Oxides, S. Seino, T. Kinoshita, Y. Otome, T. Maki, T. Nakagawa, K. Okitsu, Y. Mizukoshi, T. Nakayama, T. Sekino, K. Niihara, and T.A. Yamamoto, Scripta Materialia, 51 (2004) 467-72.

High-temperature Properties of a Silicon Nitride/Boron Nitride Nanocomposite, T. Kusunose, R.-J. Sung, T. Sekino, S. Sakaguchi, and K. Niihara, J. Mater. Res., 19 [5] (2004)1432-8.

Microstructural, Mechanical, and Electrical Characteristics of Alumina-Reinforced Ytterbia-stabilized Cubic Zirconia-based Composites, M. Wada, T. Sekino, T. Kusunose, T. Nakayama, and K. Niihara, J. Mater. Res., 19 [5] (2004) 1455-60.

Fabrication of Complex-shaped Alumina/nickel Nanocomposites by Gelcasting Process, K. Niihara, B.-S. Kim, T. Nakayama, T. Kusunose, T. Nomoto, A. Hikasa, and T. Sekino, J. Eur. Ceram. Soc., 24 [12] (2004) 3419-25.

Hydroxyapatite Particles as a Controlled Release Carrier of Protein, T. Matsumoto, M. Okazaki , M. Inoue , S. Yamaguchi , T. Kusunose , T. Toyonaga , Y. Hamada, and J. Takahashi, Biomaterials, Vol. 25 [17] (2004) 3807-12.

［ 解説、総説 ］

Li-Nb-Ti 系酸化物における階層的異方構造制御，山本陽、 関野徹、 楠瀬尚史、 中山忠親、 新原晧一，：マテリアルインテグレーション，17［1］(2004) 10-5.

構造用BN分散セラミックスナノ複合材料，楠瀬尚史、新原晧一 ： BOUNDARY，20［1］(2004) 19-23.

セラミックス系ナノコンポジット，林大和、新原晧一， ： 工業材料, 52 [1] (2004) 50-1.

ナノコンポジットコーティングによる残留応力制御と 力学的および熱伝導特性，関野徹、安達智彦、山本陽、新原晧一 ： セラミックス，39［4］(2004) 307-10.

セラミックス基ナノコンポジットの未来展開，中山忠親、山本 陽、新原晧一 ： 月刊 未来材料，4［12］(2004) 42-7.

［ 著書 ］

「第３編　応用編　第3節　セラミックス」中山忠親、関野徹、新原晧一（分筆） ： 創立25周年記念 新訂版・表面科学の基礎と応用，日本表面科学会編（株)NTS出版，(2004) 1100-5.

［ 特許 ］

「圧電センサ」新原晧一、関野　徹、小川克己、奥村俊明、特願2004-074498

「圧力計測装置」新原晧一、関野　徹、駒水謙二、岩瀬雅則、田中亜貴人、岡本吉久、浜端喜幸、河原宏太郎、村田亘史、特願2004-082818

「感圧導電性エラストマー」新原晧一、関野　徹、西田　弘、浜橋喜幸、河原宏太郎、村田亘史、特願 2004-175124

「複合材料の製造方法」長谷川順、伊藤みほ、新原晧一、中山忠親、 特願 2004-99742

「含窒素セラミック複合材料及びその製造方法」竹之内武義、佐々木博、新原晧一、楠瀬尚史、特許第3586784 号

［ 国際会議 ］

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

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

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

Japan, Jan. 19 – 21, 2004.

Evaluation of Photocatalytic Activity of Zinc Oxide Powders: A Proposal of the Concept of Dye Fading Factor (DFF), *T. Yamamoto, T. Sekino, T. Kusunose, T. Nakayama, K. Niihara, H. Nakamura, and E. Abe, The 5th International Symposium on Eco-Materials Processing and Design (ISEPD2004), Nagaoka Ground Hotel, Nagaoka, Niigata, Japan, Jan. 19 – 21, 2004.

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

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

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

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

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

Electrically Conductive AlN Ceramics with High Thermal Conductivity, *T. Kusunose, T. Sekino, T. Nakayama, and K. Niihara, 106th Annual Meeting & Exposition of The American Ceramic Society, Indiana Convention Center & RCA Dome, Indianapolis, Indiana, USA, Apr. 18-21, 2004.

Fabrication of Transparent Polycrystalline Silicon Nitride Ceramic, R. Sung, T. Kusunose, T. Nakayama, T. Sekino, *S. Lee, and K. Niihara, 106th Annual Meeting & Exposition of The American Ceramic Society, Indiana Convention Center & RCA Dome, Indianapolis, Indiana, USA Apr. 18-21, 2004.

Grain Boundary Phase Controlled Silicon Nitride Ceramics with Electrical Conductivity, *T. Kusunose, T. Nakayama, K. Niihara, Y. Kim, T. Sekino, and H. Kawaoka, 106th Annual Meeting & Exposition of The American Ceramic Society, Indiana Convention Center & RCA Dome, Indianapolis, Indiana, USA, Apr. 18-21, 2004.

Multifunction Integrated Nanocomposites (Key Note Lecture), *K. Niihara, Korea-Japan Joint Symposium on Nanoparticulate Materials - Syntheses and Applications -, Gyeonggi Technopark, Ansan, Korea, May 10, 2004.

Titania Nanotube - Low Dimensional Nanostructured Materials -, *T. Sekino, T. Okamoto, T.

Nakayama, T. Kusunose, T. Kasuga, and K. Niihara, Korea-Japan Joint Symposium on Nanoparticulate Materials - Synthesis and Applications -, Gyeonggi Technopark, Ansan, Korea, May 10, 2004.

Relationship between Synthesis Condition, Structure and Properties of Titanium Oxide Nanotube, *T. Sekino, T. Okamoto, T. Kasuga,Y. Hayashi, T. Nakayama,T. Kusunose, and K. Niihara, 7th International Conference on Nanostructured Materials, Wiesbaden, Germany, Jun. 20 - 24, 2004.

Gold/Iron-oxide Composite Nanoparticles for Magnetic Separation of Biomolecules (Poster), T. A. Yamamoto, T. Kinoshita, Y. Otome, T. Nakagawa, *S. Seino, T. Nakayama, T. Sekino, K. Niihara, K. Okitsu, and Y. Mizukoshi, 7th International Conference on Nanostructured Materials, Wiesbaden, Germany, Jun. 20 - 24, 2004.

Synthesis of Metastable Single Nanosized Composites by Multielement Simultaneous Evaporation (Poster), *T. Nakayama, M. Nagashima, S. Seino, T.A. Yamamoto, T. Kinoshita, S. Yamanaka, T. Shigaki, T. Kusunose, T. Sekino, and K. Niihara, 7th International Conference on Nanostructured Materials, Wiesbaden, Germany, Jun. 20 - 24, 2004.

Reaction and Application for Nano and Nanocomposite Materials by Ultrasonic Trigger (Poster), *Y. Hayashi, Y Saijo, T Sekino, K Suganuma, and K. Niihara, 7th International Conference on Nanostructured Materials, Wiesbaden, Germany, Jun. 20 - 24, 2004.

Roles of Nanocomposite Structure in Development of Multifunctional Ceramic Materials (Plenary), *K. Niihara, T. Sekino, T. Kusunose, T. Nakayama, and Y. Hayashi, 2004 International Nano Ceramics / Crystals Forum and International Symposium on Intermaterials (NCF8 & IMA8), Hanyang University Seoul, Korea, Jun. 20-23, 2004.

New AlN Based Ceramic Materials with Electrical Conductivity, *T. Kusunose, T. Sekino, H. Takano, H. Wang, and K. Niihara, 2004 International Nano Ceramics/Crystals Forum and International Symposium on Intermaterials (NCF8 & IMA8), Hanyang University Seoul, Korea, Jun. 20-23, 2004.

New Multi-functional Nanocomposites and Their Industrialization. (Invited), K. Niihara, T. Sekino, *T. Kusunose, T. Nakayama, and Y. Hayashi, International Symposium on Inorganic and Enviromental Materials 2004 (ISIEM 2004), Dorint Cocagne Hotel Eindhoven, The Netherlands, Oct. 18 – 21, 2004.

Anisotropic Design of Hierarchical Structure in Li-Nb-Ti-O Oxide System (Invited), *T. Sekino, The 1st Workshop on Anisotropic Science and Technology of Materials and Devices, Senri-Chuo, Osaka, Oct. 31-Nov.1, 2004.

Synthesis of One Dimension Nanostructure on the Nanocomposite Substrate (Poster), T. Nakayama, *B.-S. Kim, S. Seino, T. Sekino, T. Kusunose, and K. Niihara, The 1st Workshop on Anisotropic Science and Technology of Materials and Devices, Senri-Chuo, Osaka, Oct. 31-Nov.1, 2004.

Application to Nanoparticle Filtration Using Anodic Aluminum Oxide (Poster), *Y.-H. Choa, S.-H. Kim, D.-J. Park1, J.-K. Yang, T. Sekino, and K. Niihara, The 1st Workshop on Anisotropic Science

and Technology of Materials and Devices, Senri-Chuo, Osaka, Oct. 31-Nov.1, 2004.

Structure and Performance of Low Dimensional Nanostructured Oxide – Titania Nanotube- (Poster), *T. Sekino, T. Okamoto, S. Seino, Y. Osaki, Y. Wada, T. Kitamura, T. Nakayama, T. Kusunose, S. Yanagida, and K. Niihara, The 1st Workshop on Anisotropic Science and Technology of Materials and Devices, Senri-Chuo, Osaka, Oct. 31-Nov.1, 2004.

Anisotropies Lead Information Technology World Including Magnetic Materials (Poster), *K. Kugimiya, T. Yamamoto, The 1st Workshop on Anisotropic Science and Technology of Materials and Devices, Senri-Chuo, Osaka, Oct. 31-Nov.1, 2004.

Ceramic Nanocomposites Technologies - Inspiration for the Future – (Plenary), *K. Niihara, The 3rd International Symposium on the Engineering Ceramics (EnCera 04), Senri-Hankyu Hotel, Osaka, Japan, Oct. 31- Nov. 3, 2004.

Fabrication and Characterization of Zirconia-based New Ceramic Composite for Thermal Barrier Coatings, *A. T. Hirvonen, Y. Yamamoto, T. Sekino, R. Nowak, and K. Niihara, The 3rd International Symposium on the Engineering Ceramics (EnCera 04), Senri-Hankyu Hotel, Osaka, Japan, Oct. 31- Nov. 3, 2004.

Fabrication of Zirconia-Hydroxyapatite Composites for Biological Materials (Poster), B.-K. Moon, S.-W. Lee, R..-J. Sung, S.-H. Kim, and K. Niihara, The 3rd International Symposium on the Engineering Ceramics (EnCera 04), Senri-Hankyu Hotel, Osaka, Japan, Oct. 31- Nov. 3, 2004.

Fabrication of Yttria Stabilized Tetragonal Zirconia Polycrystal Containing TiNi Intermetalic Compounds (Poster), *N. Tanaka, T. Sekino, T. Kusunose, H. Wang, T. Nakayama, and K. Niihara, The 3rd International Symposium on the Engineering Ceramics (EnCera 04), Senri-Hankyu Hotel, Osaka, Japan, Oct. 31- Nov. 3, 2004.

Sintering of Cr_3C_2-CrB_2 as Carbide Advanced Composite, T. Takao, Y. Machida, K. Shimao, *J. Matsushita, M. Kawahara, K. B. Shim, K. H. Auh, and J. Hojo, The 3rd International Symposium on the Engineering Ceramics (EnCera 04), Senri-Hankyu Hotel, Osaka, Japan, Oct. 31- Nov. 3, 2004.

Sintering of Cr_3C_2-$CrSi_2$ as Carbide-Siliside Advanced Composite (Poster), K. Kudo, S. Sasano, K. Shimao, and *J. Matsushita, M. Kawahara, K. B. Shim, K. H. Auh, and J. Hojo, The 3rd International Symposium on the Engineering Ceramics (EnCera 04), Senri-Hankyu Hotel, Osaka, Japan, Oct. 31- Nov. 3, 2004.

Synthesis and Properties of Titania Nanotube Doped with Small Amount of Cations (Poster), *T. Okamoto, T. Sekino, Y. Hayashi, T. Kusunose, T. Nakayama, and K. Niihara, The 3rd International Symposium on the Engineering Ceramics (EnCera 04), Senri-Hankyu Hotel, Osaka, Japan, Oct. 31-Nov. 3, 2004.

Multifunctionalization of Natural Rubber by Sonochemical Silver Nanoparticle (Poster), *Y. Saijo, Y. Hayashi, R. Ramaseshan, T. Sekino, T. Kusunose, T. Nakayama, and K. Niihara, The 3rd International Symposium on the Engineering Ceramics (EnCera 04), Senri-Hankyu Hotel, Osaka, Japan, Oct. 31- Nov. 3, 2004.

Preparation and Electrical Properties of Carbon Nanotubes Dispersed Zirconia Nanocomposite (Poster), *T. Ukai, T. Sekino, T. Kusunose, T. Nakayama, and K. Niihara, The 3rd International Symposium on the Engineering Ceramics (EnCera 04), Senri-Hankyu Hotel, Osaka, Japan, Oct. 31-Nov. 3, 2004.

Mechanical and Thermal Properties of Silicon Nitride Ceramics with Rare-Earth Oxide Addition (Poster), *D.-H. Choi, S.-W. Lee, R.-J. Sung, S.-H. Kim, and K. Niihara, The 3rd International Symposium on the Engineering Ceramics (EnCera 04), Senri-Hankyu Hotel, Osaka, Japan, Oct. 31-Nov. 3, 2004.

Properties and Microstructure of Mullite-based Iron Nanocomposites (Poster), *H. Wang, T. Sekino, T. Kusunose, T. Nakayama, and K. Niihara The 3rd International Symposium on the Engineering Ceramics (EnCera 04), Senri-Hankyu Hotel, Osaka, Japan, Oct. 31- Nov. 3, 2004.

Tribological Properties of Al_2O_3/SiC Nanocomposites (Poster), *S.-H. Kim, T. Kusunose, T. Nakayama, T. Sekino, and K. Niihara, The 3rd International Symposium on the Engineering Ceramics (EnCera 04), Senri-Hankyu Hotel, Osaka, Japan, Oct. 31- Nov. 3, 2004.

Silicon Nitride Ceramics with Ionic and Electronic Conductivity, Y.-H. Kim*, T. Sekino, T. Kusunose, T. Nakayama, and K. Niihara, The 3rd International Symposium on the Engineering Ceramics (EnCera 04), Senri-Hankyu Hotel, Osaka, Japan, Oct. 31- Nov. 3, 2004.

Wear Behavior of Nano-sized Metal Particle Dispersed Al_2O_3 Nanocomposites (Poster), *S.-T. Oh, S.-J. Yoon, Y. H. Choa, Y.-K. Jeong, and K. Niihara, The 3rd International Symposium on the Engineering Ceramics (EnCera 04), Senri-Hankyu Hotel, Osaka, Japan, Oct. 31- Nov. 3, 2004.

Mechanical Properties of Transparent Polycrystalline Silicon Nitride (Postrer), *R. Sung, T. Kusunose, T. Nakayama, T. Sekino, S.-W. Lee, and K. Niihara, The 3rd International Symposium on the Engineering Ceramics (EnCera 04), Senri-Hankyu Hotel, Osaka, Japan, Oct. 31- Nov. 3, 2004.

Tribological Properties of TiN/DLC Nanocomposite Coatings (Poster), W. J. Yang, T. Sekino, K. B. Shim, K. Niihara, and K. H. Auh, The 3rd International Symposium on the Engineering Ceramics (EnCera 04), Senri-Hankyu Hotel, Osaka, Japan, Oct. 31- Nov. 3, 2004.

Thermal and Electrical Properties of ZrW_2O_8/Glass Composites (Poster), *T. Nakayama, T. Sawada, T. Kusunose, S. Seino, M. Nagashima, T. Sekino, and K. Niihara, The 3rd International Symposium on the Engineering Ceramics (EnCera 04), Senri-Hankyu Hotel, Osaka, Japan, Oct. 31- Nov. 3, 2004.

The Effects of Nitrogen and Annealing on the Electrical and Structure Properties of the DLC Films Deposited by RF-PECVD System (Poster), The 3rd International Symposium on the Engineering Ceramics (EnCera 04), Senri-Hankyu Hotel, Osaka, Japan, Oct. 31- Nov. 3, 2004.

Application to Nanoparticle Filteration Using Anodic Aluminium Oxide (Poster), *Y.-H. Choa, S.-H. Kim, D.-J. Park, J.-K. Yang, T. Sekino, and K. Niihara, The 3rd International Symposium on the Engineering Ceramics (EnCera 04), Senri-Hankyu Hotel, Osaka, Japan, Oct. 31- Nov. 3, 2004.

Fabrication and Applications of Nano-metal Particle Composites by Ultrasonic Eco-process (Poster),

*Y. Hayashi, Y. Saijo, T. Sekino, K. Suganuma, and K. Niihara, The 3rd International Symposium on the Engineering Ceramics (EnCera 04), Senri-Hankyu Hotel, Osaka, Japan, Oct. 31- Nov. 3, 2004.

Fabrication and Thermoelectric Properties of GeO_2-doped $NaCo_2O_4$ Ceramics (Poster), *M. Sasaki, T. Sekino, T. Kusunose, T. Nakayama, and K. Niihara, The 3rd International Symposium on the Engineering Ceramics (EnCera 04), Senri-Hankyu Hotel, Osaka, Japan, Oct. 31- Nov. 3, 2004.

Preparation and Evaluation of Metal/Ceramic Nanocomposites for High Frequency Inductor (Poster), *J.-K. Yang, D.-J. Park, J. Kim, T. Sekino, K. Niihara, and Y.-H.Choa, The 3rd International Symposium on the Engineering Ceramics (EnCera 04), Senri-Hankyu Hotel, Osaka, Japan, Oct. 31- Nov. 3, 2004.

Industrial Application of ZnO Nano-powder Topolyolefin Films (Poster), T. Yamamoto, T. Sekino, T. Kusunose, T. Nakayama, K. Niihara, and K. Kugimiya, The 3rd International Symposium on the Engineering Ceramics (EnCera 04), Senri-Hankyu Hotel, Osaka, Japan, Oct. 31- Nov. 3, 2004.

Gamma-ray Synthesis of Gold/Iron-Oxide Nanocomposite Particles for Biomedical Applications (Poster), *S. Seino, T. Kinoshita, Y. Otome, T. Nakagawa, K. Okitsu, Y. Mizukoshi, T. Nakayama, T. Sekino1, K. Niihara, and T. A. Yamamoto, The 3rd International Symposium on the Engineering Ceramics (EnCera 04), Senri-Hankyu Hotel, Osaka, Japan, Oct. 31- Nov. 3, 2004.

Electrical and Mechanical Properties of Conducting Polymer/Clay Nanocomposite Sensors, *R. Rajagopalan, T. Sekino and K. Niihara The 3rd International Symposium on the Engineering Ceramics (EnCera 04), Senri-Hankyu Hotel, Osaka, Japan, Oct. 31- Nov. 3, 2004.

The Self-regenerative “Intelligent” Catalyst for Automotive Emissions Control, *I. Tan, H. Tanaka, M. Uenishi, N. Kajita, M. Taniguchi, K. Niihara, The 3rd International Symposium on the Engineering Ceramics (EnCera 04), Senri-Hankyu Hotel, Osaka, Japan, Oct. 31- Nov. 3, 2004.

Multifunctionalization of Structural Oxide-ceramics by Microstructure and Grain Boundary Control in Nano-scale (Invited), *T. Sekino, A. Hirvonen, N. Tanaka, H. Wang, T. Nakayama, T. Kusunose, and K. Niihara, The 3rd International Symposium on the Engineering Ceramics (EnCera 04), Senri-Hankyu Hotel, Osaka, Japan, Oct. 31- Nov. 3, 2004.

Nitride Based Ceramic Nanocomposites with Multi-functionality, *T. Kusunose, T. Sekino, H. Fujiwara, H. Yotoh, T. Nakayama, and K. Niihara, The 3rd International Symposium on the Engineering Ceramics (EnCera 04), Senri-Hankyu Hotel, Osaka, Japan, Oct. 31- Nov. 3, 2004.

Fabrication of Metal/Polymer Single-nano Composite by Co-evaporation Process, *T. Nakayama, T. Shigaki, S. Seino, M. Nagashima, M. Fujikane, S. Yamanaka, T. A. Yamamoto, Y. Hayashi, T. Kusunose, T. Sekino, and K. Niihara, The 3rd International Symposium on the Engineering Ceramics (EnCera 04), Senri-Hankyu Hotel, Osaka, Japan, Oct. 31- Nov. 3, 2004.

Fabrication of Single Nano Sized Composites by Modified Vapor Deposition Technique (Invited), *T. Nakayama, T. Shigaki, S. Seino, M. Nagashima, M. Fujikane, S. Yamanaka, T. A. Yamamoto, Y. Hayashi, T. Kusunose, T. Sekino and K. Niihara, International Technical Forum Inspiring Powder Technology, 2004(ITFIPT2004), Makuhari Messe, Chiba, Japan, Nov. 10-11, 2004.

Novel Nanostructured Materials with Multi Functionality (Invited), K. Niihara, T. Sekino, R. Ramaseshan, T. Kusunose, T. Nakayama, and Y. Hayashi, International Conference on New Frontiers of Process Science and Engineering in Advanced Materials (PSEA'04), Kyoto International Conference Hall, Kyoto, Japan, November 24-26, 2004.

Fabrication and Properties of Multifunctional Ceramic/Metal Nanocomposites by Novel Gel-casting and Gel-coating Process, T. Sekino, B.-S. Kim, N. Tanaka, A. Hirvonen, T. Nakayama, T. Kusunose, and K. Niihara, International Conference on New Frontiers of Process Science and Engineering in Advanced Materials (PSEA'04), Kyoto International Conference Hall, Kyoto, Japan, November 24-26, 2004.

Electrically Conductive Aluminum Nitride with High Thermal Conductivity (Poster), *T. Kusunose, T. Sekino, T. Nakayama, and K. Niihara, 8th SANKEN International Symposium & 3rd International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology, Convention Center, Suita Campus, Osaka University, Japan, December 6-7, 2004.

Formation of 3D Charge Transfer Network in Bulk Ceramics by Carbon Nanotube Dispersion and Its Characterization (Poster), *T. Sekino, T. Okamoto, and K. Niihara, 8th SANKEN International Symposium & 3rd International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology, Convention Center, Suita Campus, Osaka University, Japan, December 6-7, 2004.

Nanocomposite Sensors for Various Engineering Applications, *T. Sekino, The 1st IMAGINE International Forum on Venture-Business, Hotel Hankyu Expo Park, Osaka, Japan, Dec. 15 - 17, 2004.

The High-performance Catalyst with the Unique Nanocomposite Structure (Poster), *T. Nakayama, The 1st IMAGINE International Forum on Venture-Business, Hotel Hankyu Expo Park, Osaka, Japan, Dec. 15 - 17, 2004.

Development and Industrial Application of the TiO_2 Nanotube (Poster), *T. Sekino, The 1st IMAGINE International Forum on Venture-Business, Hotel Hankyu Expo Park, Osaka, Japan, Dec. 15 - 17, 2004.

Development of Electrically Conductive AlN by Grain Boundary Control and Its Applications (Poster), *T. Kusunose, The 1st IMAGINE International Forum on Venture-Business, Hotel Hankyu Expo Park, Osaka, Japan, Dec. 15 - 17, 2004.

Development of Machinable Nanocomposites with Multi-functionality and Their Industrial Applications, *T. Kusunose, The 1st IMAGINE International Forum on Venture-Business, Hotel Hankyu Expo Park, Osaka, Japan, Dec. 15 - 17, 2004.

［ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ］

新原　晧一　The International Nano Ceramic Forum and The International Symposium on Internationals (NCF & IMA) （副委員長）

新原　晧一　Seminar on Core University Program between Japan and Korea（委員長）

新原　晧一　International Symposium on Eco-materials Processing and Design（委員長）

新原　晧一　The 3rd International Symposium on the Science of Engineering Ceramics（委員長）

新原　晧一　International Symposium on Nanostructured Materials（組織委員）
新原　晧一　Journal of Korean Ceramics Society（編集委員）
新原　晧一　Advances in technology of Materials and Materials Processing Journal (ATM)（編集委員）
新原　晧一　Journal of Nanoscience and Nano Technology（編集委員）
新原　晧一　Materials Integration（編集代表）
新原　晧一　Journal of the Chinese Ceramic Society（編集委員）
新原　晧一　Journal of Ceramic Processing Research（編集委員）
新原　晧一　11th International Conference on Fracture (ICF11)　（顧問委員）
新原　晧一　International Conference on Novel and Emerging Ceramics and Composites　（組織委員）
関野　徹　The 3rd International Symposium on the Science of Engineering Ceramics（組織委員）
関野　徹　International Conference on New Frontiers of Processing Science and Engineering in Advanced Materials (PSEA'04)　（顧問委員）
関野　徹　The 7th international symposium on Eco-Materials Processing and Design（学術委員）
関野　徹　11th International Conferences on Modern Materials and Technologies (CIMTEC 2006)（顧問委員）
関野　徹　Materials Integration（編集委員）
楠瀬　尚史　The 3rd International Symposium on the Science of Engineering Ceramics（運営委員）
中山　忠親　The 3rd International Symposium on the Science of Engineering Ceramics（運営委員）

［ 国内学会 ］

日本セラミックス協会	15 件
粉体粉末冶金協会	6 件
日本金属学会	1 件
ナノ学会	3 件
その他	3 件

［ 取得学位 ］

学士（工学）
板野　真也　アルミナ基ナノ複合体へのカーボンナノチューブ被覆による多機能化
藤原　英明　多機能調和型 AlN/BN ナノ複合材料の開発

修士（工学）
鵜飼　武士　強靭性と導電性が共生するカーボンナノチューブ分散ジルコニアの開発
岡本　拓巳　酸化チタンナノチューブの高次機能化
佐々木　雅啓　新規な複酸化物系熱電変換セラミックスの創製と特性評価

博士（工学）
金　成浩　アルミナ/炭化ケイ素ナノコンポジットの摩耗メカニズムに関する研究
金　允護　結晶粒界ナノ構造制御による多機能調和型窒化ケイ素
成　楽柱　透明な多結晶窒化ケイ素セラミックスの製造と評価

［ 特別研究員奨励費 ］

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

[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

中山　忠親	ナノクラスターレベル複合化による酸化物への水素貯蔵能の付与		500

[受託研究]

関野　徹	NEDO(ナノテクノロジープログラム：ナノコーティング)	in-situ 構造制御によるナノコンポジットコーティング材料の研究開発	5,565

[共同研究]

新原　晧一	日本学術振興会	拠点大学方式による学術交流事業	30,000
新原　晧一 楠瀬　尚史	株式会社トクヤマ	高靭性・高強度 AlN/BN ナノコンポジット材料の開発	3,000
楠瀬　尚史	住友電気工業株式会社	電子線または電界励起型蛍光体の開発	2,625
新原　晧一 関野　徹	住友電気工業株式会社	ナノ構造セラミックス材料に関する研究	3,000

[その他の競争的研究資金]

関野　徹	NEDO(平成 16 年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	31,850
楠瀬　尚史	NEDO(平成 13 年度産業技術研究助成事業)	多機能調和型ナノコンポジットの半導体および医療分野への応用展開	27,508
中山　忠親	NEDO(平成 14 年度産業技術研究助成事業)	新しいシングルナノ複合化による高効率触媒材料の創製	10,010
関野　徹	ホソカワ粉体工学振興財団　平成 16 年度研究助成	自己組織化酸化物ナノチューブの格子制御による高次機能化	800
関野　徹	財団法人関西エネルギー・リサイクル科学研究振興財団　平成 16 年度第 13 回研究助成	エネルギー創製材料を指向した酸化物ナノチューブの高次構造制御による機能化	2, 600

エネルギー材料研究分野

教授　　谷村　克己
助教授　　田中　慎一郎
大学院学生　　稲見　栄一、鶴田淳二
学部学生　　市橋数理、市林　拓
事務補佐員　　田辺　恵美、野澤幸代
研究支援推進員　　布垣昌伸
特任教授（COE）　池谷　元伺

a ）　概要

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

b ）　成果

Ｉ　擬１次元結晶における光誘起構造相転移機構の研究

・ジアセチレン結晶の光誘起重合の基礎過程の研究

ジアセチレン結晶の光誘起固相重合は、電子系励起を通じてのみ発現する新規物質相創製の典型例である。我々は、5,7-dodecadiyne-1,12-diol bis[phenyl carbamate] (TCDU)結晶において、分子配列の異なるモノマーが、光誘起重合によって、ＡおよびＢ相に選択的に重合することを発見したが、その選択性が、重合過程のいずれの段階で、いかに発生するかは、不明のまま残されていた。今年度、重合の各段階で形成される中間構造に対する共鳴ラマン散乱分光を行い、選択性が発生する機構を解明する研究を行った。その結果、

1) ジラジカル構造体およびジカルベン構造体の形成段階は、いずれの TCDU モノマー結晶においても、同一であること、

2）著しい違いが、オリゴマー形成過程において発生し、その後、選択的な重合が進展すること

を明らかにした。これによって、初めて、モノマー結晶の分子配列構造に起因する選択的重合過程の特徴が解明されたことになる。

・擬１次元電荷移動有機錯体結晶における光誘起相転移の動力学の研究

フェムト秒時間分解分光法を用いて、擬１次元電荷移動有機錯体結晶 tetrathiafulvalene-p-chloranil（以下 TTF-CA と略す）において発生する光誘起によるイオン性相から中性相への相転移（NI 転移）の動力学を解明する研究をおこなった。今までの我々の研究によって、光誘起相転移過程が、①前駆体生成過程、②局所的増殖過程、③中性相秩序形成過程、の 3 つの連続する基礎過程から成る事が明らかにされている。今年度は特に、励起強度に依存する相転移発生効率と動力学の変化を明らかにする事を目的に

した研究を進めた。その結果、
1）前駆体形成過程は、著しく励起強度に依存して変化し、ある臨界強度以下では、第 2 段階の局所的増殖過程が発生せず、核形成過程が本質的に重要な役割を果たしている事、
2）前駆体生成過程と局所的増殖過程の発生に伴って、コヒーレントフォノンの発生が観測され、その局所的増殖過程における復元力が著しく低下していること、
が明らかとなった。これらの研究成果は、光誘起 NI 転移機構の微視的理解に本質的寄与をなすものである。

II 半導体表面における光誘起構造変化現象の研究

・化合物半導体 GaAs および InP 表面における光誘起表面原子ボンド切断機構の研究

走査型トンネル顕微鏡による表面原子像直接観察と固体表面からの極微量の脱離中性原子種を同時かつ超高感度に検出可能なフェムト秒火共鳴イオン化分光法とを併用して、GaAs および InP 表面における光誘起原子過程の機構を解明する研究を展開した。その結果、
1）純粋な電子系の励起効果によって発生する表面構成原子である P、および In 原子のボンド切断は、結晶の価電子帯に発生した正孔が表面原子サイトで 2 正孔局在を誘起して発生する事、
2）これに応じて、フェルミ準位を異にする n 型結晶表面と p 型結晶表面では、光励起によって発生する表面Ｐ原子空孔の形態に大きな変化が現れ、n 型結晶表面では、表面正孔と負に帯電した表面Ｐ原子空孔とのクーロン引力によって空格子クラスターが優先的に発生するのに対し、p 型結晶表面では、正に帯電した表面Ｐ原子空孔と表面正孔のクーロン斥力のために孤立空格子が優先的に生ずること、
3）半導体価電子系の非平衡高密度励起状態を記述する一般的理論と 2 正孔局在理論とを整合的に融合させ、実験的に観測される光誘起表面原子ボンド切断の特徴を統一的に記述可能な理論の構築を行った。
これらの結果によって、半導体表面における光誘起構造変化機構のほぼ全貌が解明された。

・Σι(111)–(2ξ1)表面における光誘起表面構造変化機構の研究

典型的な擬 1 次元再構成構造を有する Si(111)-(2x1)表面に対する表面構造変化機構を明らかにするため、波長可変フェムト秒レーザーを用い、結晶内の光学遷移を全く誘起させず、表面固有の光学遷移のみを誘起する 2500nm 領域の赤外線光パルスを発生させ、表面電荷分布変化と表面構成原子のボンド切断過程との相関を明確にする研究を行った。その結果、表面占有電子状態発生した正孔によって、直接的に 3 配位Ｓｉ原子のボンド切断が発生することを明らかにした。この表面におけるキャリヤー動力学の研究から得られている諸パラメーターを用いて理論的解析を行い、半導体表面における光誘起構造変化機構が、表面正孔の非線形局在によるものであることを実証した。

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

励起誘起表面構造変化現象を表面ナノ構造プロセシングに適応するための基礎研究として、高分解能低エネルギー電子ビーム励起による Si(111)-(7x7)表面の構造変化に関する研究を継続して行った。その結果、
1）Si(111)-(7x7)表面を構成する adatom の選択的ボンド切断が発生し、その選択性は、レーザー光励起の場合と基本的に同一の特性を示すこと、
2）ボンド切断効率の電子エネルギー依存性の測定から、表面プラズモン励起がボンド切断に重要な寄与ｗｐする事、
3）表面プラズモンの寿命の短さに起因して、現在の励起電子強度では、電子ビーム強度にほぼ比例してボンド切断が発生すること、
が明らかとなった。今後、表面プラズモン励起がいかにして表面原子のボンド切断を誘起するかを明ら

かにする必要があると共に、光パルスと電子ビーム励起の相関を解明することが重要である。

・フェムト秒 2 光子光電子分光による表面励起動力学の研究

フェムト秒 2 光子光電子分光の手法を用いて、表面励起電子・正孔の動力学に関する研究を展開した。昨年に引き続き、Si(001)-(2x1)表面を対象とした研究の結果、

1）表面非占有状態の寿命が 10ps 程度以下ときわめて短いこと、

2）励起後 30ps 以降の表面状態占有電子数の時間的変化は、結晶伝導体内での電子の内部への拡散によって支配され、励起波長に依存する減衰特性を示すこと、

を明らかにした。これらの知見は、昨年度までに得た、従来の表面キャリヤー動力学の解釈を大きく変更させる革新的な知見を更に確固としたものにする重要な発見であり、表面励起状態の動力学的研究や、表面励起種が直接的に関与する励起誘起の表面構造変化研究に、大きなインパクトを与えるものである。

III 絶縁性固体における励起誘起原子過程の基礎に関する研究

・温度に依存するアルカリハライド結晶の価電子励起誘起格子欠陥生成効率の研究

固体内部における励起誘起の構造不安定性現象の最も典型的かつ代表的例としてのアルカリハライド結晶の価電子励起によって誘起されるフレンケル型格子欠陥生成機構は、約半世紀におよぶ研究の歴史を有する。しかし、NaCl や KI に代表される 1 群の結晶（グループ I ）の欠陥生成の微視的機構は、今まで不明なまま謎とされていた。昨年に引き続き、フェムト秒時間分解分光の手法を用いてこの機構を解明のための研究を行い、

1）全てのアルカリハライド結晶において、電子―正孔対生成からフレンケル型格子欠陥生成への遷移は、励起後数 10ps で終了する動的な電子―正孔対の緩和過程に支配される事、

2）グループ I の結晶では、温度上昇に伴う格子の非調和性に起因した格子の熱膨張によって、励起子緩和エネルギーがより効率的にフレンケル型格子欠陥生成に必要な原子の運動エネルギーに変換されるのに対し、他のｸﾞﾙｰﾌﾟの結晶では、生成効率が全温度領域でほぼ一定の値を持つこと、

を明らかにした。

これによって、アルカリハライド結晶における固体内部の励起誘起構造不安定性にかかわる最後の謎が解明され、統一的理解が達成された。

IV 励起効果を用いた非平衡材料プロセシングの研究

・荷電粒子照射及びプラズマプロセスを利用した材料改質

粒子線照射・プラズマプロセス複合工程表面直接改質法を用いて、種々の金属材料の表面の高機能セラミック化し、耐超高温性、高熱伝導性、高硬度、耐摩耗性等の高機能性付与を目標とした研究を行った。今年度は、そのプロセス化の為に、真空条件化での複合工程を実現すべく、真空チャンバー内での稼動電極装置の考案し、その試作と条件設定のための研究を展開した。更に、大容量の重イオン発生源を導入し、プロセス実用化へ大きく前進した。今後は、装置の調整を急ぎ、複合工程の実現を展開していく。

［ 原著論文 ］

Role of two-hole localization in anion-vacancy formation on the (110) surfaces of InP and GaAs at the third regime of Langmuir evaporation, K. Tanimura, Phys. Rev. B 69, (2004) 033301-1-4.

Temperature-dependent yield of Frenkel pairs generated by valence excitation in NaCl, Katsumi Tanimura and Wayne P. Hess, Phys. Rev. B 69, (2004) 155102-1-7.

Electronic bond rupture of Si dimers on the Si(001)-(2x1), J. Kanasaki, K. Katoh, Y. Imanishi, and K. Tanimura, Appl. Phys. A, 79, (2004) 865-868.

Photoinduced structural instability of the InP(110)-(1x1) surface, T. Gotoh, S. Kotake, K. Ishikawa, J. Kanasaki, and K. Tanimura, Phys. Rev. Lett. 93, (2004) 117401-1-4.

Femtosecond time-resolved reflection spectroscopy of photoinduced ionic-to-neutral phase transition in tetrathiafulvalen-p-chloranil crystals, Katsumi Tanimura, Phys. Rev. B 70, (2004) 144112-1-11.

［ 解説、総説 ］

レーザービームによる半導体表面原子結合の局所的切断、金崎順一、谷村克己、応用物理学会誌, 第 73 巻、(2004)　485-489.

Si(001)(2x1)表面における励起電子動力学：時間分解フェムト秒２光子光電子分光法による研究、田中慎一郎、谷村克己、真空、第 47 巻、(2004) 308-314.

［ 著書 ］

Time-resolved spectroscopy of the dynamics of photoinduced ionic-to-neutral phase transition in the trathiafulvalen-p-chloranil crystals, K. Tanimura, “Photoinduced Phase Transition”, edited by K. Nasu, (World-Scientific, Singapore, 2004), 71-115.

[国際会議]

Ultrafast time-resolved spectroscopic study on photo-induced structural phase transitions in quasi one-dimensional organic crystals (Invited), K. Tanimura, 6th International Conference on Excitonic Processes in Condensed Matter, Cracow, Poland, July 2004.

Ultrafast Dynamics of Excitation-Induced Atomic Processes in Insulating Solids (Invited), T.Tanimura, 15th International Conference on Defects in Insulating Crystals, Riga, Lativia, July 2004.

Surface carrier dynamics and excitation-induced structural instability on semiconductor surfaces (Invited), K. Tanimura, Gordon Research Conference on Laser Interactions with Materials, Andover, USA, August 2004.

Time-resolved two-photon photoelectron spectroscopy on the Si(001)-(2x1) surface, S.Tanaka, 10th International Workshop on Desorption Induced by Electronic Transitions, Susono, Japan, November 2004.

Photoinduced structural instability on Si(111)-(2x1), E. Inami and K. Tanimura, 10th International Workshop on Desorption Induced by Electronic Transitions, Susono, Japan, November 2004.

Structural instability of Si(111)-(7x7) induced by low-energy electron irradiation, Y. Sugita, J. Kanasaki, and K. Tanimura, 10th International Workshop on Desorption Induced by Electronic

Transitions, Susono, Japan, November 2004.

[国内学会]

物理学会　12 件

[取得学位]

学士

市橋数理	シリコン表面の励起誘起構造制御の研究
市林　拓	波長可変フェムト秒レーザーを用いた 2 光子光電子分光システムの構築と Si 表面におけるキャリヤー超高速動力学の研究

[科学研究費補助金]

(代表者として配分されたもの)　単位：千円

基盤研究（B）(2)

谷村　克己	時間分解ラマン散乱分光による擬 1 次元有機結晶の光誘起構造相転移の研究	5,300

基盤研究（C）(2)

田中慎一郎	フェムト秒時間分解 2 光子光電子分光による半導体表面における励起電子の動力学の研究	3,200

[受託研究]

谷村克己	数物系科学分野に関する学術動向の調査・研究	3,500

機能分子科学研究部門

概要

本研究部門は有機金属化合物研究分野(平成 16 年 7 月精密制御化学研究分野に変更)、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

・側鎖に金属-ポルフィリンをもつらせん状ポリイソシアニドの合成
・側鎖にフェロセニル基をもつ電場応答性のらせんキラルポリイソシアニドの合成
・アレニルアルコールのカルボニル化によるラクトンおよびラクタムの選択的合成法を開発
・面不斉シクロペンタジエニルテニウム錯体の立体選択的反応の開発
・自己組織化による遷移金属イオン- ビピリジン系超分子錯体の合成
・クロスリンカーとしてのエポキシドを持つペプチドミミックライブラリーの構築
・分岐型ナノ共役化合物の合成と自己集合性を利用した分子エレクトロニクスへの応用
・外部刺激応答機能をもつイミダゾリウム含有共役分子ワイヤの構築
・絶縁性の嵩高い置換基で完全被覆した分子ワイヤの開発
・分子機械“分子筋肉”および“分子バルブ”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
・新規不斉配位子の開発と応用
・不斉触媒能を有する球状粒子の合成
・有機反応の解析と設計
・分子機能材料の極微量試料、高感度測定法などの分析
・機能分子、機能材料の機能発現の基礎概念の確立

精密制御化学研究分野

助教授　　鬼塚　清孝
助手　　周　大揚
教務職員　　武井　史恵

a ）　概要

当分野では、新しい有機金属化合物を合成し、その性質や反応性を検討する基礎的な研究だけでなく、有機金属化合物を触媒や反応剤として精密有機合成・精密高分子合成・環境低負荷型物質合成に利用する研究や有機金属化合物の特徴を生かした機能性材料の開発研究などが行われている。特に、面不斉やヘリカル不斉などをもつ新規な光学活性有機金属錯体の合成研究、省資源・省エネルギーを目指した高選択的かつ効率的な触媒反応の開発、水を水素源とする有機合成や一酸化炭素を用いる有用複素環化合物の合成など環境にやさしい合成プロセスの開発研究、リビング重合を中心とした高分子の精密合成法の開発と単分子機能性材料を目指したナノサイズの有機金属巨大分子の開発研究に重点が置かれている。

b ）　成果

・面不斉シクロペンタジエニル錯体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(Cp')-ルテニウム錯体の合成と反応について検討しているが、今年度は不斉触媒反応を開発するための基礎研究として、錯体反応レベルでの立体選択性について検討した。まず、面不斉 Cp'基によって誘起された金属中心不斉の安定性を調べるために、ルテニウム上のアセトニトリル配位子とヨウ素配位子との交換反応を行ったところ、高立体選択的にヨード錯体が得られた。この反応では、生成物の立体化学は原料のルテニウム上での立体配置に全く依存せず、生成するジアステレオマー間の熱力学的な安定性の差によって決定されていることがわかった。また、プロキラルなジエンとの反応では、配位面選択的な配位子交換が起こり、高立体選択的にジエン錯体が生成した。さらに、塩化アリルの酸化的付加反応を行ったところ、立体選択的にアリル錯体を与えることを見出した。この反応は、面不斉 Cp' ルテニウム錯体による触媒的アリル位アミノ化及びアルキル化反応の素反応と見なすことができる。生成するアリル錯体の立体選択性は速度論的な支配によって決定されており、アリル錯体にアミンを反応させるとアリル基への求核攻撃が選択的に起こることも確認した。

・有機遷移金属化合物を用いる精密重合

２核金属アセチリド錯体を開始剤に用いるイソシアニドのリビング重合反応を開発しているが、今年度は本重合系の特徴を利用して、スター型ポリイソシアニドを合成するための多点重合開始剤を設計した。２点或いは３点活性開始剤を用いてもイソシアニドのリビング重合が進行し、分子量分布の狭いポリマーが定量的に得られた。すべての活性点で重合反応が進行していることは、速度論的な検討だけでなく、スター型ポリマーから各ポリイソシアニド鎖を切り出すことによって確認した。

・錯体触媒を用いる新規な高選択的有機合成反応の開発

遷移金属錯体触媒による不飽和炭化水素の新しいカルボニル化反応の開発を行っているが、本年度はロジウムカルボニル錯体触媒によるカルボニル化反応について検討した。水性ガスシフト反応条件下でノルボルネンを反応させると低分子量ながらも一酸化炭素との交互共重合体を与え、その片方の末端はフラノン環を形成してることを明らかにした。一方、同様の条件下でオルト-(アミノメチル)フェニルアセチレンを反応させると、７員環ラクタムが選択的に得られた。さらに、ロジウムカルボニル錯体存在下でアゾベンゼンを反応させると、オルト位 C-H 結合活性化を経由して環化カルボニル化生成物を与え

た。

・有機遷移金属高分子錯体の合成と性質

白金アセチリド錯体を構成ユニットとする有機デンドリマーのコンバージェント法による合成法を開発した。デンドリマーのコアには白金三核アセチリド錯体だけでなく、テトラヘドラル構造を有する白金四核アセチリド錯体を用いることができ、分子内に 60 個の白金原子を含む第３世代デンドリマーの合成に成功した。

［ 原著論文 ］

Rhodium-Catalyzed Carbonylation of Norbornene under Water-Gas-Shift Reaction Conditions. Selective Formation of Co-dimeres with Lactone Terminus, D.-Y. Zhou, S.-W. Zhang, K. Onitsuka and S. Takahashi: Chem. Lett., 33 (2004), 70–71.

Stereoselective Ligand-Exchange Reaction of Planar-Chiral Cyclopentadienyl-Ruthenium Complexes: Thermodynamic Control of Configuration at a Stereogenic Metal Center, Y. Matsushima: K. Onitsuka and S. Takahashi: Dalton Trans., (2004), 547–553.

Rhodium-Catalyzed Carbonylation of 2-Alkynylbenzylamine: A New Route to the Synthesis of Benzazepinones, T. Shiba, D.-Y. Zhou, K. Onitsuka and S. Takahashi: Tetrahedron Lett., 45 (2004), 3211–3213.

Enantioface-Selective Coordination of Prochiral 1,3-Dienes to Planar-Chiral Cyclopentadienyl-Ruthenium Complexes, Y. Matsushima, K. Onitsuka and S. Takahashi: Organometallics, 23 (2004), 2439–2446.

Quasi-Octahedral Complexes of Pentamethylcyclopentadienyliridium(III) Bearing Bis(diphenylphosphinomethyl)phenylphosphine (dpmp), Y. Yamamoto, Y. Kosaka, Y. Tsutsumi, Y. Sunada, K. Tatsumi, F. Takei and S. Takahashi: Dalton Trans., (2004), 2969–2978.

Rhodium-Catalyzed Cyclocarbonylation of Azobenzene, D.-Y. Zhou, T. Koike, S. Suetsugu, K. Onitsuka and S. Takahashi: Inorg. Chim. Acta, 357 (2004), 3057–3063.

Diastereoselective Oxidative Addition of Allyl Chloride to Planar-Chiral Cyclopentadienyl-Ruthenium Complexes, Y. Matsushima, K. Onitsuka and S. Takahashi: Organometallics, 23 (2004), 3763–3765.

Rapid Exciton Migration and Fluorescent Energy Transfer in Helical Polyisocyanides with Regularly Arranged Porphyrin Pendants, M. Fujitsuka, A. Okada, S. Tojo, F. Takei, K. Onitsuka, S. Takahashi and T. Majima: J. Phys. Chem. B., 108 (2004), 11935–11941.

Di- and Trifunctional Initiators Containing Pt–Pd μ-Ethynediyl Units for Living Polymerization of Aryl Isocyanides: K. Onitsuka, K. Yabe, N. Ohshiro, A. Shimizu, R. Okumura, F. Takei and S. Takahashi: Macromolecules, 37 (2004), 8204–8211.

Unexpected Formation of Vinyl-Phosphonio Complex $[CpRu(PPh_3)(C_6H_4PPh_2CH{=}CH_2)][PF_6]$ from Vinylidene Complex via Nucleophilic Addition and *ortho*-Metalation of Triphenylphosphine, K. Onitsuka, M. Nishii, Y. Matsushima and S. Takahashi: Organometallics, 23 (2004), 5630–5632.

Convergent Synthesis of Platinum-Acetylide Dendrimers, K. Onitsuka, M. Fujimoto, H. Kitajima, N. Ohshiro, F. Takei and S. Takahashi: Chem. Eur. J., 10 (2004), 6433–6446.

［ 解説、総説 ］

ヘリカルポリイソシアニド － 新触媒の発見、精密重合への展開、そして新たな機能の創出へ，高橋成年，鬼塚清孝，武井史恵：未来材料，4(8)（2004），8-15.

ポリイソシアニドのらせん構造，鬼塚清孝：高分子，53（2004），922-925.

［ 著書 ］

「有機金属超分子錯体の合成 第５版実験化学講座 21 巻 有機遷移金属化合物･超分子錯体 第 12 章」(日本化学会編），高橋成年，鬼塚清孝，丸善（2004）417-460.

［ 国際会議 ］

Stereoselective Reactions of Planar-Chiral Cyclopentadienyl–Ruthenium Complexes (Poster), *K. Onitsuka and S. Takahashi, XXIst International Conference on Organometallic Chemistry, The University of British Columbia, Vancouver, Canada, July 25-30, 2004.

Novel Redox-Active Organometallic Dendrimers Composed of Ruthenium-Acetylide Units (Poster), *K. Onitsuka, N. Ohara, F. Takei and S. Takahashi, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004) -Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing-, Osaka, Japan, Dec. 6-7, 2004.

Cyclic Aminocarbonylation of Alkynylimines with Cobalt-Catalyst (Poster), *D.-Y. Zhou, S. Suetsugu, K. Onitsuka and S. Takahashi, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004) -Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing-, Osaka, Japan, Dec. 6-7, 2004.

Synthesis and Electrochemical Behavior of Organo-Ruthenium Dendrimers with Tri(4-ethynylphenyl)amine Bridges (Poster), *K. Onitsuka, N. Ohara, F. Takei and S. Takahashi, 21st Century COE “Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience” Third International Symposium 2005, Shiga, Japan, Mar. 9-10, 2005.

［ 国内学会 ］

日本化学会春季年会	1 件
高分子討論会	1 件
有機金属化学討論会	2 件

［ 科学研究費補助金 ］

（代表者として配分されたもの） 単位：千円

若手研究(B)

武井　史恵	らせん構造を持つイソシアニドポリマーの合成と機能	1,500

医薬品化学研究分野

教授	加藤　修雄
助手	新田　孟、河野　富一
教務職員	田島　直人
博士研究員	Bulbule, Vivek
大学院学生	平岡　正光、梶谷　恵梨香、加治屋　仁、竹田　明展、谷野　佳美、吉野　貴彦
学部学生	穴田　雅英
事務補佐員	中島　美佳子、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、天然有機化合物を含む有機低分子化合物を用いたタンパク質の機能解析と、その結果に基づく創薬を目指し、特に、細胞内信号伝達経路上にあって重要な役割を担うタンパク質のリン酸化－脱リン酸化過程の制御を主たる研究標的としている。また、生理活性化合物の立体選択的合成・コンビナトリアル合成手法の開発・生体分子型人工超分子の創製についても研究を展開している。

b ）　成果

・ジテルペン配糖体・コチレニン（CN）とインターフェロン-αとの併用効果

CN が interferon-α（IFN-α）との併用により、各種癌細胞にアポトーシスを誘導し、増殖を顕著に阻害することを見出した。その併用効果は卵巣癌に対して特に顕著で、培養細胞のみならず、実際に患者から採取した細胞に対しても増殖抑制効果を示した。さらに、一般的な化学療法剤であるシスプラチン（CDDP）やタキソール（paclitaxel）に対して抵抗性の培養細胞に対しても、CN/IFN-α の併用は有効であった。

・抗癌活性を有するフシコクシン（FC）誘導体の創製

FC は CN と酷似した構造を有するものの、急性骨髄性白血病細胞（HL-60）に対する分化誘導活性は著しく弱い。そこで、CN との活性の相違と化学構造の相違の関係を明らかにすべく、数種の FC 誘導体を合成した。その結果、CN 様活性を有する誘導体を得ることに成功し、同時に活性発現に必須な化学構造要素を特定するなど、今後の研究展開の基盤となる成果を得た。

・化学的に安定なバクテリア個体間情報伝達物質 AI-2 アゴニストの創製

バクテリアの quorum sensing に係る情報伝達物質のうち、AI-2 は化学的に極めて不安定であるため、AI-2 による遺伝子発現の等の詳細を研究することは困難であった。そこで、AI-2 の化学構造を合理的に簡略化することを検討し、化学的に安定でかつ AI-2 活性を保持したアゴニストを得ることに成功した。

・生体分子型超分子の構造特性を活かした機能性分子の構築

コラーゲン型の三重らせん構造をとる超分子錯体の構造特性を活かして新しい機能性分子を構築すべく、末端にオレフィン部をもつ三重らせん超分子を合成し、その ring-closing metathesis 反応を検討したところ、最大で 228 員環の大環状化合物の合成に成功した。

［ 原著論文 ］

Semi-wet peptide/protein array using supramolecular hydrogel, S. Kiyonaka, K. Sada, I. Yoshimura, S. Shinkai, N. Kato, and I. Hamachi: Nature Materials, 3 (2004) 58-64.

Effects of benzoyl group substituents on the mesomorphic properties of 5-alkoxy-2-benzoylamino-tropones, A. Mori, K. Uno, K. Kubo, N. Kato, H. Takeshita, K. Hirayama, and S. Ujiie: Liquid Crystals, 31 (2004) 285-294.

Novel Fusicoccins R and S, and Fusicoccin S Aglycone (Phomopsiol) from *Phomopsis amygdali* Niigata 2-A, and Their Seed Germination-stimulating Activity in the Presence of Abscisic Acid, N. Tajima, M. Nukina, N. Kato, and T. Sassa: Biosci. Biotechnol. Biochem., 68 (2004) 1125-1130.

Identification of (+)-Phyllocladene, (-)-Sandracopimaradiene, and (+)-Kaurene as New Fungal Metabolites from Fusicoccin-producing *Phomopsis amygdali* F6, H. Kenmoku, M. Tanaka, K. Ogiyama, N. Kato, and T. Sassa: Biosci. Biotechnol. Biochem., 68 (2004) 1574-1577.

Fusicocca-3(16),10(14)-diene, and β- and δ-Araneosenes, New Fusicoccin Biosynthesis-related Diterpene Hydrocarbons from *Phomopsis amygdali*, T. Sassa, H. Kenmoku, K. Nakayama, and N. Kato: Biosci. Biotechnol. Biochem., 68 (2004) 1608-1610.

Erinacol (Cyatha-3,12-dien-14β-ol) and 11-*O*-Acetylcyathin A3, New Cyathane Metabolites from an Erinacine Q-Producing *Hericium erinaceum*, H. Kenmoku, K. Tanaka, K. Okada, N. Kato, and T. Sassa: Biosci. Biotechnol. Biochem., 68 (2004) 1786-1789.

［ 国際会議 ］

Indole Sensing Mechanisms that Control Growth Phase-dependent Expression of Xenobiotic Exporter Genes (Poster), *H. Hirakawa, A. Kobayashi, T. Hirata, H. Nitta, N. Kato and A. Yamaguchi, 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" Third International Symposium 2005, Shiga, Japan, Mar. 9-10, 2005.

Synthesis of a Stable Analogue of Autoinducer-2 in Bacterial Quorum-Sensing (Poster), *M. Hiraoka, Y. Yano, T. Kawano, H. Hirakawa, A. Kobayashi, T. Hirata, A. Yamaguchi, and N. Kato, 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" Third International Symposium 2005, Shiga, Japan, Mar. 9-10, 2005.

Fusicoccane Diterpenoids Having Differentiation-inducing Activity on Human Myeloid Leukemia Cells: Studies on Structural Requirements (Poster), *V. Bulbule, T. Yoshino, H. Nitta, N. Tajima, Y. Honma, T. Sassa, and N. Kato, 21st 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" Third International Symposium 2005, Shiga, Japan, Mar. 9-10, 2005.

［ 国内学会 ］

日本癌学会	2 件
日本血液学会	1 件
日本農芸化学会	1 件

［ 科学研究補助金 ］

(代表者として配分されたもの)　　単位：千円

基盤研究 (B) (2)

加藤修雄	細胞内信号伝達経路の解明と制御に対する Chemogenomic アプローチ	3,300

(分担者として配分されたもの)　　単位：千円

基盤研究 (A) (1)　（代表者：佐々武史）

加藤修雄	微生物・植物テルペノイド生合成遺伝子クラスター取得と利用による物質生産と開発	1,600

有機物性化学研究分野

教授	安蘇　芳雄
助教授	兼田　隆弘
助手	家　　裕隆
教務員	朝野　芳織
博士研究員	韓　　愛鴻
大学院学生	根岸　伸和、山本　若奈、川端　徹郎、津田　進
学部学生	石岡　節子、遠藤　克
研究生	馮　　柳
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および分子エレクトロニクスへの応用を目的に、新規な拡張共役系を有する電子／光機能分子材料、本格的分子ワイヤを志向したナノスケールπ共役分子材料の設計・合成と物性化学の研究を行っている。また、超分子構造を主体とする有機化合物の新しい物性を構造物性相関の観点から理解を深め、さらなる新規物性を発現する有機超分子材料を設計および開発する研究を行っている。具体的には次のような研究課題に取り組んでいる。

（1）分子エレクトロニクス素子に適したナノスケール機能分子材料の開発を目的として、スイッチ機能や自己集合性を付与した拡張共役化合物の合成と物性評価を行う。

（2）次世代分子配線材料としての応用を目指して、電導性をもつオリゴチオフェンを絶縁性の嵩高い置換基で被覆した分子ワイヤを合成し、分子ワイヤ１本の電導性を評価する。

（3）ある制限域内で自由な可動性を保証する“機械的結合”によって構築される高次組織化超分子は、次世代分子デバイスへの応用が期待されている。そのような超分子あるいは超分子機械を目指して、シクロデキストリン骨格にアゾベンゼン、スチルベン、トラン誘導体を共有結合で連結した分子内１対１ホスト-ゲスト連結系の自己会合現象を研究する。

b ）　成果

・分子エレクトロニクス材料の開発

スイッチ機能を有する機能性置換基を導入したπ共役化合物の合成および分子ワイヤとしての物性・機能評価について研究を進めている。機能性置換基としてイミダゾリウム塩を導入した新規π共役化合物を遷移金属錯体による触媒反応で合成し、物性及びスイッチ機能の評価を行った。イミダゾリウム塩のカウンターアニオンの影響によりπ共役化合物の酸化電位がシフトすることから、共役系の電子状態を外部刺激により制御可能であることが明らかとなった。

オリゴチオフェンをベンゼン環の 1,3,5 位で連結した分岐型オリゴチオフェンの合成とその物性評価を行った。複数の分岐点によって連結されたオリゴチオフェンは、重クロロホルム中での核磁気共鳴スペクトル測定において、芳香族領域のケミカルシフトに会合に起因する顕著な濃度および温度依存性を示した。また MALDI-TOF MS において分子イオンピークとともに多量体に相当する顕著なピークが同時に観測され、多分岐オリゴチオフェン化合物は溶液中でスタック構造をとっている可能性が示唆された。

・分子ワイヤの開発

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、β位をプロピレン基でブロックし嵩高い置換基として t- ブチルジフェニルシリル基を導入したモノマーユニットを開発して、被覆型オリゴチオ

フェン分子ワイヤの合成を行った。4 量体オリゴマーの X 線結晶構造解析から、期待通りの高い平面性とシリル置換基による完璧な共役系の被覆が明らかとなった。また、オリゴチオフェン分子ワイヤのシリコン電極接合の条件検討を目的として、比較的容易に合成が可能なジヘキシル置換オリゴチオフェン 4 量体を基本骨格として、末端エチニル置換オリゴチオフェン 4 量体と 8 量体、さらには両末端エチニル置換 24 量体（分子長約 10 nm）の合成に成功した。

・超分子材料の開発

プロトタイプの分子機械である“分子筋肉”と“分子バルブ”を構築することができた。

［ 原著論文 ］

α,ω-Bis(quinquethienyl)alkanes as a π-Dimer Model of Polythiophenes, T. Satou, T. Sakai, T. Kaikawa, K. Takimiya, T. Otsubo, and Y. Aso: Org. Lett., 6 [6] (2004) 997-1000.

Vapour Deposited Films of Quinoidal Biselenophene and Bithiophene Derivatives as Active Layers of n-Channel Organic Field-Effect Transistors, Y. Kunugi, K. Takimiya, Y. Toyoshima, K. Yamashita, Y. Aso, and T. Otsubo: J. Mater. Chem., 14 [9] (2004) 1367-1369.

Synthesis and Photovoltaic Effects of Oligothiophenes Incorporated with Two [60]Fullerenes, N. Negishi, K. Takimiya, T. Otsubo, Y. Harima, and Y. Aso: Chem. Lett., 33 [6] (2004) 654-655.

Molecular Modifications of Methylenedithio-Tetraselenafulvalene (MDT-TSF) and Methylenedithio-Diselenadithiafulvalene (MDT-ST) for Superior Electron Donors, K. Takimiya, Y. Kataoka, Y. Nakamura, Y. Aso, and T. Otsubo: Synthesis, [9] (2004) 1315-1320.

Ruthenium- and Rhodium-Catalyzed Direct Carbonylation of the Ortho C-H Bonds in the Benzene Ring of N-Arylpyrazoles, T. Asaumi, T. Matsuo, T. Fukuyama, Y. Ie, F. Kakiuchi, and N. Chatani: J. Org. Chem., 69 [13] (2004) 4433-4440.

Photoinduced Electron Transfer in Porphyrin-Oligothiophene-Fullerene Linked Triads by Excitation of a Porphyrin Moiety, T. Nakamura, M. Fujitsuka, Y. Araki, O. Ito, J. Ikemoto, K. Takimiya, Y. Aso, and T. Otsubo: J. Phys. Chem. B, 108 [30] (2004) 10700-10710.

Dendrimer-Encapsulated Oligothiophenes, T. Otsubo, S. Ueno, K. Takimiya, and Y. Aso: Chem. Lett., 33 [9] (2004) 1154-1155.

An Ambipolar Organic Field-Effect Transistor Using Oligothiophene Incorporated with two [60]Fullerenes, Y. Kunugi, K. Takimiya, N. Negishi, T. Otsubo, and Y. Aso: J. Mater. Chem., 14 [19] (2004) 2840-2841.

Synthesis and Photophysical Properties of Ferrocene-Oligothiophene-Fullerene Triads, H. Kanato, K. Takimiya, T. Otsubo, Y. Aso, T. Nakamura, Y. Araki, and O. Ito: J. Org. Chem., 69 [21] (2004) 7183-7189.

Pressure-Induced Superconductivity in (MDT-TS)(AuI2)(0.441) [MDT-TS=5H-2-(1,3-diselenol-2-ylidene)-1,3,4,6-tetrathiapentalene]: A New Organic Superconductor Possessing an Incommensurate Anion Lattice, K. Takimiya, M. Kodani, N. Niihara,

Y. Aso, T. Otsubo, Y. Bando, T. Kawamoto, and T. Mori: Chem. Mater., 16 [24] (2004) 5120-5123.

Photoinduced Charge Separation and Charge Recombination of Oligothiophene-Viologen Dyads in Polar Solvent, Y. Araki, H. X. Luo, T. Nakamura, M. Fujitsuka, O. Ito, Y. Aso, and T. Otsubo: J. Phys. Chem. A, 108 [48] (2004) 10649-10655.

［ 解説、総説 ］

含セレン有機伝導体の最近の進歩：新合成法，新物質，新伝導体，瀧宮和男、大坪徹夫、安蘇芳雄：有機合成化学協会誌，62 [2] (2004) 150-161.

［ 特許 ］

「有機化合物およびその製造方法」安蘇芳雄、家　裕隆、特願 2005-65946

「ヘテロ環化合物」安蘇芳雄、家　裕隆、韓　愛鴻、特願 2005-65947

［ 国際会議 ］

Synthesis and Properties of Phosphorodithiophene-Based π-Conjugated System (Poster), *Y. Ie, T. Kaneda, M. Fujitsuka, S. Tojo, T. Majima, and Y. Aso, Sixth International Symposium on Functional π-Electron Systems, New York, USA, June 14-18, 2004.

Oligothiophene-fullerene Linkage Molecules As High Performance Photovoltaic Matarials (Poster), *N. Negishi, K. Takimiya, T. Otsubo, Y. Harima, and Y. Aso, The International Conference on Synthetic Metals 2004, Wollongong, Australia, June 28-July 2, 2004.

Synthesis and Optical Properties of Phosphorodithiophene and Its-Based π-Conjugated System (Poster), *Y. Ie, T. Kaneda, M. Fujitsuka, S. Tojo, T. Majima, and Y. Aso, International Symposium on Integrated Synthesis 2004 Ingenuity in Organic Synthesis, Hyogo, Japan, July 4-5, 2004.

Synthesis of Long-Oligothiophene/Multifullerene Linkage Molecules and Their Photophysical Properties (Poster), *N. Negishi, Y. Aso, K. Takimiya, T. Otsubo, and Y. Harima, International Symposium on Integrated Synthesis 2004 Ingenuity in Organic Synthesis, Hyogo, Japan, July 4-5, 2004.

Oligothiophene-Fullerene Linkage Molecules as Active Photovoltaic Materials (Invited), *Y. Aso, The Third International OLED and PLED Workshop on Advanced Functional Materials, Hsinchu, Taiwan, November 18-19, 2004.

Synthesis and Optical Properties of Phosphorus-Bridged Bithiophenes and Their π-Conjugated Systems (Poster), *Y. Ie, T. Kaneda, T. Tanaka, M. Fujitsuka, S. Tojo, T. Majima, and Y. Aso, 8th SANKEN International Symposium & 3rd International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing, Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Synthesis of Long-Oligothiophene/Multifullerene Linkage Molecules and Their Photophysical Properties (Poster), *N. Negishi, Y. Aso, K. Takimiya, T. Otsubo, and Y. Harima, 8th SANKEN International Symposium & 3rd International Symposium on Scientific and Industrial

Nanotechnology SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing, Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Synthesis of Dimeric and Pentameric Supermolecules by Self-Assembly of a Cyclodextrin Derivative (Poster), *S. Ishioka, S. Tsuda, Y. Aso, and T. Kaneda, 8th SANKEN International Symposium & 3rd International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing, Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Synthesis of a [5]Supercyclodextrin Composed of a Permethylated α-CD-Bisazophenol Host-Guest Pair (Poster), *T. Kaneda and Y. Aso, 8th SANKEN International Symposium & 3rd International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing, Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Nanoscale Oligothiophenes as Molecular Electronics Materials (Invited), *Y. Aso, The 6th RIES-Hokudai Symposium "超", Sapporo, Japan, December 13-14, 2004.

Synthesis and Optical Properties of Phosphorus-Bridged Bithiophene and Their π-Conjugated Systems (Poster), *Y. Ie, T. Kaneda, T. Tanaka, M. Fujitsuka, S. Tojo, T. Majima, and Y. Aso, 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" Third International Symposium 2005, Shiga, Japan, March 9-10, 2005.

Synthesis and Properties of Thiophene-Based Oligomers Bearing an Imidazolium Salt. (Poster), *Y. Ie, T. Kawabata, T. Kaneda, and Y. Aso, 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" Third International Symposium 2005, Shiga, Japan, March 9-10, 2005.

Long-Oligothiophene/Multifullerene Linkage Molecules As Efficient Photovoltaic Materials (Poster), *N. Negishi, Y. Aso, K. Takimiya, T. Otsubo, and Y. Harima, 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" Third International Symposium 2005, Shiga, Japan, March 9-10, 2005.

Synthesis of Blanched Oligothiophenes (Poster), *N. Negishi, Y. Ie, T. Kaneda, and Y. Aso, 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" Third International Symposium 2005, Shiga, Japan, March 9-10, 2005.

［ 国内学会 ］

日本化学会	１１件
基礎有機化学連合討論会	１件
高分子学会年次大会	１件
高分子討論会	１件
ヘテロ原子化学討論会	２件

[科学研究費補助金]

（代表者として配分されたもの）　　単位：千円

基盤研究 (B)

安蘇　芳雄	オリゴチオフェンを基盤とする機能集積拡張共役系の創製と新機能開拓	9,700

特定領域研究 (2)

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	2,200

[受託研究]

安蘇　芳雄	化学技術振興機構	被覆型分子ワイヤの構築	871

励起分子化学研究分野

教授	真嶋　哲朗
助教授	藤塚　守
助手	藤乗　幸子、川井　清彦
非常勤研究員	蔡　喜臣(2004.11.15 まで)
研究支援推進員	原　道寛
21COE 研究員	立川　貴士
外国人博士研究員	蔡　喜臣(2004.11.16 から)
特別研究員	高田　忠雄(2004.10.1 から)
大学院学生	高田　忠雄、中山　公志、木村　巧、坂本　雅典、大関　陽介、上垣　真介、佐守　真悟、吉田　浩子、小阪田　泰子、内藤　一也、王 杭祥
学部学生	麻野井　祥明
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、２波長２レーザー２段階励起法により生じる高励起３重項状態からの３重項エネルギー移動と電子受容体分子への電子移動を見出し、その反応機構について明らかにするとともに、高励起３重項状態に特有の反応としてω位の C-O 結合の解離反応を見出した。さらに、高励起３重項状態の寿命をピコ秒レーザーを用いることで直接観測することに成功し、３波長３レーザー３段階励起法を用いて、分子内の２つの C-O 結合を逐次的に解離できることを見出した。また、シクロデキストリン中や、デンドリマー中の芳香族化合物のレーザー共鳴二光子イオン化によるラジカルカチオンの生成と減衰から、一電子酸化、ホール移動、二分子反応過程の機構を明らかにした。

・光触媒

高効率・高選択的光触媒反応系を構築することを目的に、TiO_2光触媒による有機化合物の分解反応の重要な初期過程である一電子酸化反応について、パルスレーザーを用いてTiO_2を選択的に光励起し、生成した反応活性種と基質との反応によって生成した短寿命反応中間体を過渡吸収法により観測する方法で研究を行っている。本年度は、ギ酸イオンを価電子帯ホールにより一電子酸化して強い還元力を有する$CO_2^{\bullet-}$を生成し、基質としてメチルビオロゲン（MV^{2+}）を一電子還元して$MV^{\bullet+}$を生成することに成功した。SおよびCを担持した（S^{4+}およびCO_3^{2-}という化学種で担持した）可視光応答型TiO_2光触媒の光照射によって生成した電子とホールの動的挙動について拡散反射型過渡吸収法により検討した。無担持TiO_2およびSおよびC担持TiO_2への355 nmレーザー光照射によって生成したホールはすぐに捕捉剤であるメタノールと反応するが、430 nmのレーザー光をSおよびC担持TiO_2に照射すると、アセトニトリル中とメタノール中でほぼ等しい吸収スペクトルが観測され、十分な電荷分離が起こるが、生成したホールはメタノールを酸化できないことがわかった。すなわち、SおよびC担持TiO_2への可視光照射では酸化電位の低いミッドギャップレベルにホールが生成していることが示唆された。

・DNAの光化学

光線力学療法（PDT）の高効率化法の開発、および光増感DNA損傷に基づく老化・発ガンの防止を目指し、光増感DNA損傷機構をより詳細に理解することを目的とし研究を行なっている。今年度は、光増感剤をDNAに共有結合で結合した修飾DNAを合成し、レーザー照射により生じる電荷分離寿命の測定を行った。DNA内に生じた正電荷（ホール）の移動は、一次元構造のDNAをホール輸送材料へと応用する点から興味が持たれており、ナノスケールの分子素子へと応用するため近年様々な分野で盛んに研究されている。いったんDNA内に生じたホールは、核酸塩基のπ－スタックアレイを通じて、数百Åの長距離を移動することが以前から知られていたが、そのホールが長距離を移動する過程を実時間で観測した例はこれまで報告されていなかった。DNAをホール輸送材料へと応用するためには、その動的過程を解明することが必要不可欠である。我々は、レーザー時間分解過渡吸収測定法を用いて、DNAを流れるホールの移動過程を実時間で観測することに成功した。すなわち、DNA中の高速A-hoppingによるホール移動が起こり、DNA中の100 Å以上の長距離ホール移動と、長寿命電荷分離状態の生成を直接観測することに初めて成功した。

［ 原著論文 ］

Oxidation processes of aromatic sulfides by hydroxyl radicals in colloidal solution of TiO_2 during pulse radiolysis, S. Tojo, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima: Chem. Phys. Lett., 384 (2004) 312-316.

Effects of interaction of photosensitizer with DNA and stacked G bases on photosensitized one-electron oxidation of DNA, T. Takada, K. Kawai, S. Tojo, and T. Majima: J. Phys. Chem. B., 108 (2004) 761-766.

Formation Efficiency of Radical Cations of Stilbene and Methoxy-substituted Stilbenes during Resonant Two-Photon Ionization with a XeCl Excimer Laser, M. Hara, S. Tojo, and Majima: J. Photochem. Photobiol. A 162 (2004) 121-128.

Charge Separation in DNA via Consecutive Adenine Hoppings, T. Takada, K. Kawai, X. Cai, S. Tojo, A. Sugimoto, M. Fujitsuka, and T. Majima: J. Am. Chem. Soc., 126 (2004)1125-1129.

One-electron Attachment Reaction of B- and Z-DNA Modified by 8-Bromo-2'-deoxyguanosine on,

T. Kimura, K. Kawai, S. Tojo, and T. Majima: J. Org. Chem., 69 (2004) 1169-1173.

Photochemistry of Halogenated Anilines Studied by Time-variation of Micro-wave Dielectric Absorption, M. Hara, T. Sunagawa, Y. Oseki, and T. Majima: J. Photochem. Photobiol. A, 162 (2004) 121-128.

Fluorescence properties of 2-Aminopurine-cytidine-7-deazaguanine (5'-ApCdzG-3') trimer in B- and Z-DNA, T. Kimura, K. Kawai, and T. Majima: Chem. Commun., (2004) 268-269.

Direct observation of oxidation processes of aromatic sulfides in TiO_2 colloidal solution by laser flash photolysis, S. Tojo, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima: Phys. Chem. Chem. Phys., 6 (2004) 960-964.

Inhibition of one-electron oxidation of 1-pyrenesulfonate included in cyclodextrin by sulfate radical anion, M. Hara, S. Tojo, and T. Majima: Chem. Phys. Lett., 387 (2004) 283-286.

Photocatalytic One-electron Oxidation of Biphenyl Derivatives Strongly Coupled with TiO_2 Surface, T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima: Langmuir, 20 (2004) 2753-2759.

X Quenching Processes of Aromatic Hydrocarbons in the Higher Triplet Excited States –Energy Transfer vs Electron Transfer, Cai, M. Sakamoto, M. Hara, S. Tojo, K. Kawai, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima: Phys. Chem. Chem. Phys. 6 (2004) 1735-1741.

Formation of dimer radical cation of 1,1-dianisylethylene through two-step hole transfer processes during TiO_2 photocatalytic reactions, T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima: Tetrahedron Lett., 45 (2004) 3753-3756.

Formation of Dimer Radical Cation of Aromatic Sulfides on the TiO_2 Surface during Photocatalytic Reactions, T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima: Langmuir (Commun.), 20 (2004) 4327-4329.

Two-color two-laser damaging DNA, K Kawai, X. Cai, A. Sugimoto, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima: Angew. Chem. Int. Ed. Eng., 116 (2004) 2460-2463.

Structural Arrangement of Two DNA Double Helixes Using Cross-Linked Oligonucleotide Connectors, M. Endo and T. Majima: Chem. Commun., (2004) 1308–1309.

Fluorescence Properties of 2-Aminopurine in Human Telomeric DNA, T. Kimura, K. Kawai, M. Fujitsuka, and T. Majima: Chem. Commun., (2004) 1438-1439.

Formation and Decay of Pyrene Radical Cation and Pyrene Dimer Radical Cation in the Absence and Presence of Cyclodexitrins during Resonant Two-Photon Ionization of Pyrene and Sodium 1-Pyrene Sulfonate, M. Hara, S. Tojo, K. Kawai, and T. Majima: Phys. Chem. Chem. Phys., 6 (2004) 3215 – 3220.

Influence of Adsorption on TiO_2 Photocatalytic One-electron Oxidation Kinetics of Aromatic

Sulfides Studied by Time-resolved Diffuse Reflectance Spectroscopy, T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima: J. Phys.Chem.B., 108 [19] (2004) 5859-5866.

Manipulation of the Dimer Interface for Photochemical Regulation of the Activity and Function of an Endonuclease BamHI, M. Endo, K. Nakayama, and T. Majima: J., Org. Chem. 69 [13] (2004) 4292-4298.

Direct observation of the cascade hole transfer giving free radical cations of trans-stilbenes during TiO_2 photocatalytic reactions, T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima: Chem. Phys. Lett., 392 [1-3] (2004) 50-54.

Relationship between Formation Yield of Radical Cation and Laser Intensity during Resonant Two-Photon Ionization of Substituted Stilbenes Using a 25-ns XeCl Excimer Laser, M. Hara, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima: Chem. Phys. Lett., 393 (2004) 338-342.

Stepwise Photocleavage of Two C-O Bonds of 1,8-Bis[(4-benzoylphenoxy)-methyl]naphthalene with Three-Step Excitation Using Three-Color, Three-Laser Flash Photolysis, Xichen Cai, Masanori Sakamoto, Michihiro Hara, Sachiko Tojo, Akihiko Ouchi, Kiyohiko Kawai, Masayuki Endo, Mamoru Fujitsuka, and Tetsuro Majima: J. Am. Chem. Soc.; 2004; 126(24) 7432 – 7433.

Influence of Metal ion on the Charge Recombination Processes during TiO_2 Photocatalytic One-Electron Oxidation Reactions, T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima: J. Phys. Chem. B., 108 [30] (2004) 11054-11061.

Intermolecular Electron Transfer from Naphthalene Derivatives in the Higher Triplet Excited States, M. Sakamoto, X.Cai, M. Hara, M. Fujitsuka, and T. Majima: J. Am. Chem. Soc., 126 [31] (2004) 9709-9714.

Rapid Exciton Migration and Fluorescent Energy Transfer in Helical Polyisocyanides with Regularly Arranged Porphyrin Pendantss, M. Fujitsuka, A. Okada, S. Tojo, F. Takei, K. Onitsuka, S. Takahashi, and T. Majima: J. Phys. Chem. B., 108 [32] (2004) 11935-11941.

First Direct Observation of the Higher Triplet Excited State of Substituted Oligothiophenes by Two-color Two-laser Flash Photolysis, M. Fujitsuka, Y. Oseki, M. Hara, X. Cai, A. Sugimoto, and T. Majima: Chem. Phys. Chem., 5 (2004) 1240-1242.

Formation of Pyrene Dimer Radical Cation at the Internal Site of Oligodeoxynucleotides, K. Kawai, H. Yoshida, T. Takada, S. Tojo, and T. Majima: J. Phys. Chem. B., 108 [35] (2004) 13547-13550.

Rate constant measurement of bimolecular triplet energy transfer from chrysene in the higher triplet excited states, X. Cai, M. Sakamoto, M. Hara, S. Tojo, K. Kawai, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima: J. Phys. Chem. A, 108 [35] (2004) 7147-7150.

Visualization of Fuel Vapor in Inter-Droplet Space by Excited-Molecular Fluorescence, Y. Tanaka, F. Akamatsu, S.-M. Kim, M. Katsuki, and T. Majima: J. High Temp. Soc., 30 [4] (2004) 213-219.

Direct Observation of Hole Transfer through double helical DNA over 100 Å, T. Takada, K. Kawai, M. Fujitsuka, and T. Majima: Proc. Nat. Acad. Sci. U.S.A., 101 (2004) 14002-14006.

Evaluation of the Efficiency of the Photocatalytic One-Electron Oxidation Reaction of Aromatic Compounds Adsorbed on TiO_2 Surface, T. Tachikawa, A. Yoshida, S. Tojo, A. Sugimoto, M. Fujitsuka, and T. Majima: Chem. Eur. J., 10 (2004) 5345-5353.

Design and Synthesis of Photochemically Controllable Caspase-3, M. Endo, K. Nakayama, Y. Kaida, and T. Majima: Angew. Chem. Int. Ed. Eng., 43 [42] (2004) 5643-5645.

Transient Absorption Spectra and Lifetimes of Ketyl Radicals in the Excited State, M. Sakamoto, X. Cai, M. Hara, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima: J. Phys. Chem. A. (Commun.), 108 [40] (2004) 8147-8150.

Direct Observation of the One-Electron Reduction of Methyl Viologen Mediated by CO_2 Radical Anion during TiO_2 Photocatalytic Reactions, T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima: Langumir. (Commun.), 20 [22] (2004) 9441-9444.

Photochemical regulation of the activity of an endonuclease BamHI using an azobenzene moiety incorporated site-selectively into the dimer interface, K. Nakayama, M. Endo, and T. Majima: Chem. Commun., (2004) 2386 - 2387.

Lifetime Regulation of Charge-Separated State in DNA by Modulating the Oxidation Potential of Guanine in DNA through Hydrogen-Bonding, K. Kawai, Y. Osakada, T. Takada, M. Fujitsuka, and T. Majima: J. Am. Chem. Soc., 126 [40] (2004) 12843-12846.

Higher Triplet Excited State of Oligophenylenes by Two-color Two-laser Flash Photolysis, Y. Oseki, M. Hara, A. Sugimoto, M. Fujitsuka, and T. Majima: J. Phys. Chem. B., 108 [43] (2004) 16727-16731.

Transient phenomena of polyphenyls in the higher triplet excited states, X. Cai, M. Sakamoto, M. Hara, S. Tojo, K. Kawai, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima: J. Phys. Chem. A., 108 [43] (2004) 9361-9364.

Effects of benzyl-ether type dendrons as hole-harvesting and shielding for the neutralization of stilbene core radical cations with chloride ion during two-photon ionization of stilbene dendrimers having the stilbene core and benzyl-ether type dendrons, M. Hara, S. Samori, X. Cai, S. Tojo, T. Arai, A. Momotake, J. Hayakawa, M. Uda, K. Kawai, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima: J. Am. Chem. Soc., 126 [43] (2004) 14217-14223.

Photocatalytic Oxidation Reactivity of Holes in the Sulfur- and Carbon-doped TiO_2 Powders Studied by Time-Resolved Diffuse Reflectance Spectroscopy, T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, K. Kawai, M. Endo, T. Ohno, K. Nishijima, Z. Miyamoto and T. Majima: J. Phys. Chem. B., 108 [50] (2004) 19299-19306.

Competitive Marcus-Type Electron Transfer and Energy Transfer from the Higher Triplet Excited

State, M. Sakamoto, X. Cai, M. Hara, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima: J. Phys. Chem. A., 108 [50] (2004) 10941-10948.

［ 解説、総説 ］

DNA ナノテクノロジーーDNA の超分子集合からナノ構造を組み立てる，遠藤政幸、真嶋哲朗，：化学，59 (2004) 70-71.

Two-color two-laser DNA oxidative damage, K. Kawai, X. Cai, M. Fujitsuka, and T. Majima: Photomedicine and Photobiology, 26 (2004) 75-76.

［ 著書 ］

“Applications to Reaction Mechanism Studies of Organic System”in "Charged Particle and Photon Interactions with Matter: Chemical, Physicochemical, and Biological Consequences with Applications", T. Majima: ed by A.Mozumder and Y. Hatano, Marcel Dekker, Inc., New York, NY, (2004) 645-696.

“Hole Transfer through DNA by Monitoring the Transient Absorption of Radical Cations of Organic Molecules Conjugated to DNA” in “Electron Transfer in DNA for Topics in Current Chemistry”, K. Kawai and T. Majima: ed by G. B. Schuster, Springer-Verlag, Inc., Berlin, 236, (2004) 117-137.

［ 特許 ］

「光電流による高感度一塩基多型の検出方法」真嶋哲朗、高田忠雄、川井清彦、藤塚守、特願 2004-159237.

「蒸気濃度計測方法」松野伸介、赤松史光、香月正司、真嶋哲朗、特願 2004-233697.

［ 国際会議 ］

Long distance hole transfer in DNA (Invited), *T. Majima, 14th International Congress on Photobiology, Chuju, Korea, June 10-15, 2004.

Kinetics of Long-Distance Hole Transfer in DNA, *T. Takada, K. Kawai, M. Fujitska, and T. Majima, 14th International Congress on Photobiology, Chuju, Korea, June 10-15, 2004.

One-electron oxidation of DNA (Invited), K. Kawai, T. Takada, M. Fujitsuka, and *T. Majima, CREST International Symposium on Radical Ion Reactivity (ISRIR 2004), Hyogo, Japan, June 20-24, 2004.

One-electron Oxidation of Aromatic Compounds during TiO_2 Photocatalytic Reactions (Poster), T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, and *T. Majima, CREST International Symposium on Radical Ion Reactivity (ISRIR 2004), Hyogo, Japan, June 20-24, 2004.

One-electron Oxidation of Pyrene Included in Cyclodextrin during Pulse Radiolysis and Resonant Two-Photon Ionization (Poster), M. Hara, S. Tojo, and *T. Majima, CREST International Symposium on Radical Ion Reactivity (ISRIR 2004), Hyogo, Japan, June 20-24, 2004.

Photosensitized one-electron oxidation of DNA (Invited), *T, Majima, the XX IUPAC Symposium on Photochemistry, Granada, Spain, July 17-22, 2004.

Mechanistic Study on Hole Transfer in Double Helical DNA, *T. Takada, K. Kawai, M. Fujitsuka, and T. Majima, the XX IUPAC Symposium on Photochemistry, Granada, Spain, July 17-22, 2004.

Hole transfer in DNA (Invited), K. Kawai, T. Takada, M. Fujitsuka, and *T. Majima, 11th Symposium of Intelligent Electrophotonic Materials and Molecular Electronics (SIEMME'11), Kunming, China, November 5-8, 2004.

DNA Supramolecular Chemistry (Invited), M. Endo and *T. Majima, 11th Symposium of Intelligent Electrophotonic Materials and Molecular Electronics (SIEMME'11), Kunming, China, November 5-8, 2004.

The observation of conformational transition on high-order DNA structure by 2-aminopurine (Poster), *T. Kimura, K. Kawai, M. Fujitsuka, and T. Majima, 11th Symposium of Intelligent Electrophotonic Materials and Molecular Electronics (SIEMME'11), Kunming, China, November 5-8, 2004.

Photochemistry and Nanotechnology of DNA (Invited), *T. Majima, 2004 Korea-Japan Symposium on Frontier Photoscience "Photochemsitry and Nanotechnology", Daejeon, Korea, November 20-23, 2004.

Hole transfer in DNA (Poster), K. Kawai, T. Takada, and *T. Majima, 2004 Korea-Japan Symposium on Frontier Photoscience "Photochemsitry and Nanotechnology", Daejeon, Korea, November 20-23, 2004.

Photochemical control of the protein activity by manipulating the dimer interface (Poster), M. Endo, K. Nakayama, and *T. Majima, 2004 Korea-Japan Symposium on Frontier Photoscience "Photochemsitry and Nanotechnology", Daejeon, Korea, November 20-23, 2004.

One electron oxidation during TiO_2 photocatalytic reaction (Poster), T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, and *T. Majima, 2004 Korea-Japan Symposium on Frontier Photoscience "Photochemsitry and Nanotechnology", Daejeon, Korea, November 20-23, 2004.

Rapid cleavage of naphthylmethyl-oxygen bond in the higher triplet excited states (Poster), *M. Fujitsuka, X. Cai, M. Sakamoto, M. Hara, and T. Majima, 2004 Korea-Japan Symposium on Frontier Photoscience "Photochemsitry and Nanotechnology", Daejeon, Korea, November 20-23, 2004.

Higher Triplet Excited States of Oligomers of Conjugated Polymers (Poster), *M. Fujitsuka, Y. Oseki, X. Cai, M. Hara, and T. Majima, 2004 Korea-Japan Symposium on Frontier Photoscience "Photochemsitry and Nanotechnology", Daejeon, Korea, November 20-23, 2004.

Intermolecular Electron Transfer from Naphthalene Derivatives in the Higher Triplet Excited States

(Poster), *M. Sakamoto, X. Cai, M. Hara, M. Fujitsuka, and T. Majima, 2004 Korea-Japan Symposium on Frontier Photoscience “Photochemsitry and Nanotechnology”, Daejeon, Korea, November 20-23, 2004.

Transient Absorption Spectra and Lifetimes of Benzophenone Ketyl Radicals in the Excited State (Poster), *M. Sakamoto, X. Cai, M. Hara, M. Fujitsuka, and T. Majima, 2004 Korea-Japan Symposium on Frontier Photoscience “Photochemsitry and Nanotechnology”, Daejeon, Korea, November 20-23, 2004.

Hole Transfer through Double Helical DNA (Invited), *T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004), Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Intermolecular Electron Transfer from Naphthalene Derivatives in the Higher Triplet Excited States (Poster), *M. Sakamoto, X. Cai, M. Hara, M. Fujitsuka, and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004), Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Transient Absorption Spectra and Lifetimes of Benzophenone Ketyl Radicals in the Excited State (Poster), *M. Sakamoto, X. Cai, M. Hara, M. Fujitsuka, and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004), Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Lifetime Regulation of Charge-Separated State in DNA through Hydrogen-Bonding (Poster), K. Kawai, Y. Osakada, M. Fujitsuka, and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004), Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Direct Observation of Long-Distance Hole Transfer in DNA (Poster), *K. Kawai, T. Takada, M. Fujitsuka, and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004), Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

The observation of conformational transition on high-order DNA structure by 2-aminopurine (Poster), *T. Kimura, K. Kawai, M. Fujitsuka, and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004), Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Rapid Cleavage of Naphthylmethyl-Oxygen Bond in the Higher Triplet Excited States (Poster), *M. Fujitsuka, X. Cai, M. Sakamoto, M. Hara, and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004), Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Resonant Two-photon Ionization of Stilbene Derivative using Two-color Two-pulse Laser Flash Photolysis (Poster), *M. Fujitsuka, M. Hara, S. Samori, X. Cai, and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004), Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Construction of supramolecular structures using DNA-porphyrin conjugates (Poster), *M. Endo, T. Shiroyama, M. Fujitsuka, and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004), Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Photochemical regulation of caspase-3 activity (Poster), M. Endo, K. Nakayama, Y. Kaida, and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004), Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Photochemical control of the activity of the enzyme using the dimer interface (Poster), *M. Endo, K. Nakayama, and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004), Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Higher Triplet States of Oligothiophenes and Oligo(p-phenylenevinylene)s (Poster), *Y. Oseki, M. Fujitsuka, M. Hara, X. Cai, A. Sugimoto, and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004), Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

One-electron Oxidation of Aromatic Sulfides during TiO_2 Photocatalytic Reactions: Time-resolved Diffuse Reflectance Measurements (Poster), *S. Tojo, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004), Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Hole Transport to Non-adsorbed Organic compounds During TiO_2 Photocatalytic Reactions (Poster), *S. Tojo, T. Tachikawa, M. Fujitsuka, and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004), Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Direct Observation of Hole Transfer through Double Helical DNA over 100 Å (Invited), *T. Majima, Fourth Asian Photochemistry Conference (APC-2005), Taipei, Taiwan, January 5-10, 2005.

Transient Absorption Measurement of One Electron Oxidation during TiO_2 Photocatalytic Reaction (Poster), T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, and *T. Majima, Fourth Asian Photochemistry Conference (APC-2005), Taipei, Taiwan, January 5-10, 2005.

Higher Triplet Excited States of Oligomers of Conjugated Polymers (Poster), M. Fujitsuka, Y. Oseki, X. Cai, M. Hara, and *T. Majima, Fourth Asian Photochemistry Conference (APC-2005), Taipei, Taiwan, January 5-10, 2005.

Photochemical Regulation of the Activity of an Endonuclease BamHI Using an Azobenzene Moiety Incorporated into the Dimer Interface (Poster), *K. Nakayama, M. Endo, and T. Majima, Fourth Asian Photochemistry Conference (APC-2005), Taipei, Taiwan, January 5-10, 2005.

Photochemical Control of Caspase-3 Activity for Induction of Apoptosis (Poster), *K. Nakayama, M. Endo, and T. Majima, Fourth Asian Photochemistry Conference (APC-2005), Taipei, Taiwan, January 5-10, 2005.

Photochemistry of Higher Triplet Excited States Studied by Two-Color Two-Laser Flash Photolysis, *M. Fujitsuka, X. Cai, M. Hara, M. Sakamoto, Y. Oseki, and T. Majima, International Symposium on "Chemistry, Biological Chemistry, and Material Science towards Creating New Science and Industry based on Inter-Nanoscience" 2005 (CBMS2005), Osaka, Japan, February 22-23, 2005.

TiO_2 Photocatalytic One-Electron Oxidation of Aromatic Compounds, *T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima, International Symposium on "Chemistry, Biological Chemistry, and Material Science towards Creating New Science and Industry based on Inter-Nanoscience" 2005 (CBMS2005), Osaka, Japan, February 22-23, 2005.

Stepwise Photocleavage of C-O Bonds of substituted-methylnaphthalenes by Two-Color Two-Laser and Three-Color Three-Laser Irradiations, *X. Cai, M. Sakamoto, M. Hara, S. Tojo, A. Ouchi, A. Sugimoto, K.o Kawai, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima, International Symposium on "Chemistry, Biological Chemistry, and Material Science towards Creating New Science and Industry based on Inter-Nanoscience" 2005 (CBMS2005), Osaka, Japan, February 22-23, 2005.

Hole transfer in DNA and photosensitized DNA damage, *K. Kawai, Y. Osakada, M. Fujitsuka and T. Majima, International Symposium on "Chemistry, Biological Chemistry, and Material Science towards Creating New Science and Industry based on Inter-Nanoscience" 2005 (CBMS2005), Osaka, Japan, February 22-23, 2005.

Photochemical Activation of Caspase-3, *M. Endo, K. Nakayama, Y. Kaida, and T. Majima, International Symposium on "Chemistry, Biological Chemistry, and Material Science towards Creating New Science and Industry based on Inter-Nanoscience" 2005 (CBMS2005), Osaka, Japan, February 22-23, 2005.

Importance of Properties of the Lowest and Higher Singlet Excited States on the Resonant Two-photon Ionization of Stilbene and Substituted Stilbenes using Two-color Two-lasers, *M. Hara, M. Fujitsuka, and T. Majima, International Symposium on "Chemistry, Biological Chemistry, and Material Science towards Creating New Science and Industry based on Inter-Nanoscience" 2005 (CBMS2005), Osaka, Japan, February 22-23, 2005.

Transient Absorption Spectra and Lifetimes of Benzophenone Ketyl Radicals in the Excited State, M. Sakamoto, X. Cai, M. Hara, M. Fujitsuka, and *T. Majima, International Symposium on "Chemistry, Biological Chemistry, and Material Science towards Creating New Science and Industry based on Inter-Nanoscience" 2005 (CBMS2005), Osaka, Japan, February 22-23, 2005.

The observation of conformational transition on high-order DNA structure by 2-aminopurine, *T. Kimura, K. Kawai, M. Fujitsuka, and T. Majima, International Symposium on "Chemistry, Biological Chemistry, and Material Science towards Creating New Science and Industry based on Inter-Nanoscience" 2005 (CBMS2005), Osaka, Japan, February 22-23, 2005.

Photochemical Regulation of the Activity of a Restriction Enzyme BamHI Using an Azobenzene Moiety Incorporated into the Dimer Interface (Poster), *M. Endo, K. Nakayama, and T. Majima, International Symposium on "Chemistry, Biological Chemistry, and Material Science towards Creating New Science and Industry based on Inter-Nanoscience" 2005 (CBMS2005), Osaka, Japan, February 22-23, 2005.

DNA Supramolecules Using Cross-linked Oligonucleotides (Poster), M. Endo, *S. Uegaki and T. Majima, International Symposium on "Chemistry, Biological Chemistry, and Material Science

towards Creating New Science and Industry based on Inter-Nanoscience" 2005 (CBMS2005), Osaka, Japan, February 22-23, 2005.

Direct observation of long-range hole transfer in DNA (Poster), *K. Kawai, T. Takada, M. Fujitsuka and T. Majima, International Symposium on "Chemistry, Biological Chemistry, and Material Science towards Creating New Science and Industry based on Inter-Nanoscience" 2005 (CBMS2005), Osaka, Japan, February 22-23, 2005.

Lifetime regulation of the charge-separated state in DNA by bromocytosine (Poster), *Y. Osakada, K. Kawai, M. Fujitsuka, and T. Majima, International Symposium on "Chemistry, Biological Chemistry, and Material Science towards Creating New Science and Industry based on Inter-Nanoscience" 2005 (CBMS2005), Osaka, Japan, February 22-23, 2005.

DNA Dynamics Studied by Formation of Pyrene Dimer Radical Cation (Poster), *H. Yoshida, K. Kawai, S. Tojo, M. Fujitsuka and T. Majima, International Symposium on "Chemistry, Biological Chemistry, and Material Science towards Creating New Science and Industry based on Inter-Nanoscience" 2005 (CBMS2005), Osaka, Japan, February 22-23, 2005.

Cascade Hole Transfer giving Free Radical Cations of Aromatic Compounds during TiO_2 Photocatalytic Reactions (Poster), S. Tojo, T. Tachikawa, *M. Fujitsuka and T. Majima, International Symposium on "Chemistry, Biological Chemistry, and Material Science towards Creating New Science and Industry based on Inter-Nanoscience" 2005 (CBMS2005), Osaka, Japan, February 22-23, 2005.

Single-Molecule Fluorescence Imaging of the Remote TiO_2 Photocatalytic Oxidation (Poster), *K. Naito, T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima, International Symposium on "Chemistry, Biological Chemistry, and Material Science towards Creating New Science and Industry based on Inter-Nanoscience" 2005 (CBMS2005), Osaka, Japan, February 22-23, 2005.

Efficient Energy Transfer in Helical Polyisocyanides with Regularly Arranged Porphyrin Pendants (Poster), *M. Fujitsuka, F. Takei, K. Onitsuka, S. Takahashi, and T. Majima, International Symposium on "Chemistry, Biological Chemistry, and Material Science towards Creating New Science and Industry based on Inter-Nanoscience" 2005 (CBMS2005), Osaka, Japan, February 22-23, 2005.

Important Factors for the Formation of Radical Cation of Stilbene and Substituted Stilbenes during Resonant Two-Photon Ionization with a 266- or 355-nm Laser (Poster), *S. Samori, M. Hara, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima, International Symposium on "Chemistry, Biological Chemistry, and Material Science towards Creating New Science and Industry based on Inter-Nanoscience" 2005 (CBMS2005), Osaka, Japan, February 22-23, 2005.

Two-color Two-laser Flash Photolysis of Oligothiophenes and Oligo(p-phenylenevinylene)s (Poster), *Y. Oseki, M. Fujitsuka, M. Hara, X. Cai, A. Sugimoto, and T. Majima, International Symposium on "Chemistry, Biological Chemistry, and Material Science towards Creating New Science and Industry based on Inter-Nanoscience" 2005 (CBMS2005), Osaka, Japan, February 22-23, 2005.

Efficient Energy Transfer in Helical Polyisocyanides with Regularly Arranged Porphyrin Pendants, M. Fujitsuka, F. Takei, K. Onitsuka, S. Takahashi, and *T. Majima, Third 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" International Symposium, Shiga, Japan, March 9-10, 2005.

Modulation of the Lifetime of the Charge-Separated State in DNA through Hydrogen-Bonding, K. Kawai, Y. Osakada, M. Fujitsuka, and *T. Majima, Third 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" International Symposium, Shiga, Japan, March 9-10, 2005.

Importance of Properties of the Lowest and Higher Singlet Excited States on the Resonant Two-photon Ionization of Stilbene and Substituted Stilbenes using Two-color Two-lasers, M. Hara, M. Fujitsuka, *T. Majima, Third 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" International Symposium, Shiga, Japan, March 9-10, 2005.

Direct Observation of Long-Distance Hole Transfer through DNA Duplex, T. Takada, K. Kawai, M. Fujitsuka, and *T. Majima, Third 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" International Symposium, Shiga, Japan, March 9-10, 2005.

Photochemical Regulation of the Activity of a Restriction Enzyme BamHI Using an Azobenzene Moiety Incorporated into the Dimer Interface, *K. Nakayama, M. Endo, and T. Majima, Third 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" International Symposium, Shiga, Japan, March 9-10, 2005.

The observation of conformational transition on high-order DNA structure by 2-aminopurine, *T. Kimura, K. Kawai, M. Fujitsuka, and T. Majima, Third 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" International Symposium, Shiga, Japan, March 9-10, 2005.

Transient Absorption Spectra and Lifetimes of Benzophenone Ketyl Radicals in the Excited State, *M. Sakamoto, X. Cai, M. Hara, M. Fujitsuka, and T. Majima, Third 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" International Symposium, Shiga, Japan, March 9-10, 2005.

Two-color Two-laser Flash Photolysis of Oligothiophenes and Oligo(p-phenylenevinylene)s, Y. Oseki, M. Fujitsuka, M. Hara, X. Cai, A. Sugimoto, and *T. Majima, Third 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" International Symposium, Shiga, Japan, March 9-10, 2005.

TiO_2 Photocatalytic One-Electron Oxidation of Aromatic Compounds, *T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, and T. Majima, Third 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" International Symposium, Shiga, Japan, March 9-10, 2005.

Development and Characterization of Noble-Metal/Titania Composite Nanoparticles for Effective Photocatalysts, T. Nakagawa, T. Tachikawa, S. Seino, T. Kinoshita, T. A. Yamamoto, S. Tojo, M. Fujitsuka, and *T. Majima, Third 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on

Inter-Nanoscience" International Symposium, Shiga, Japan, March 9-10, 2005.

Photochemical Regulation of the Activity of a Restriction Enzyme BamHI Using an Azobenzene Moiety Incorporated into the Dimer Interface, *K.Nakayama, M. Endo, and T. Majima, 229th ACS National Meeting, U.S.A. March 13-17, 2005.

Photochemical Control of Caspase-3 Activity for Induction of Apoptosis, *K. Nakayama, M. Endo, and T. Majima, 229th ACS National Meeting, U.S.A. March 13-17, 2005.

Intermolecular electron transfer from naphthalene derivatives in the higher triplet excited states, *M. Sakamoto, X. Cai, M. Hara, M. Fujitsuka, and T. Majima, 229th ACS National Meeting, U.S.A. March 13-17, 2005.

［ 国際会議の組織委員］

真嶋　哲朗　14th International Congress on Photobiology（セッション組織委員長）
真嶋　哲朗　11th Symposium of Intelligent Electrophotonic Materials and Molecular Electronics (SIEMME'11)（組織委員）
真嶋　哲朗　2004 Korea-Japan Symposium on Frontier Photoscience "Photochemsitry and Nanotechnology"（組織委員長）

［ 国内学会 ］

光化学討論会	14 件
放射線化学討論会	2 件
基礎有機化学連合討論会	3 件
日本光医学･光生物学会	1 件
放射線影響学会	1 件
日本化学会第 85 春季年会	12 件

［ 取得学位 ］

博士（工学）

高田　忠雄	DNA 内電荷分離および電荷移動機構に関する研究
中山　公志	タンパク質構造の光化学的制御による機能発現に関する研究

修士（工学）

上垣　真介	架橋型オリゴヌクレオチドを用いた DNA 超分子
佐守　真悟	スチルベン誘導体の共鳴２光子イオン化
吉田　浩子	ピレンダイマーラジカルカチオンによる DNA ダイナミクス

［ 科学研究費補助金 ］

（代表者として配分されたもの）　　単位：千円

基盤研究（Ａ）(2)

真嶋哲朗	修飾ＤＮＡの機能化による分子デバイス	1,300

特定領域研究（A）(2)

真嶋哲朗	光機能界面における有機物の反応機構の解明	10,600

基盤研究（C）(2)

藤乗幸子	光触媒を用いる有機環境汚染物質の新しい分解法の開発―光触媒・多重光励起法－	900

若手研究（B）(2)

川井清彦	２波長２レーザー照射による高効率ＤＮＡ切断	1,000

外国人特別研究員奨励費

蔡 喜臣	マルチレーザー化学の分子素子、医療、環境への展開	1,000

特別研究員奨励費

高田忠雄	DNA 内高効率・長寿命電荷分離状態の生成と DNA 分子デバイスへの応用	1,000

分子合成化学研究分野

教授	笹井　宏明
助手	市原　潤子、Doss Jayaprakash
特任助手	Mahesh L. Patil、松井　嘉津也
学振博士研究員	Chinnasamy Muthiah
大学院学生	丸林　千能、米澤　浩司、川瀬　敬啓、Cilamkoti Venkat Laxman Rao、Priti Koranne、辻原　哲也、吉田　友和、渡口　桂吾、井上　直人、田中　浩一、原　敬司、廣田　朝子、余語　純一
学部学生	片山　智美
研究生	Rashid N. Nadaf
事務補佐員	中島　美佳子、丹野　美鈴

a ）　概要

不斉触媒は極微量の使用で、医薬品や液晶材料の原料となる光学活性有機化合物を大量供給可能とする。実用的な高活性不斉触媒を開発することは、限りある資源を有効に活かし環境汚染物質の排出を最小限にとどめるために重要である。当研究分野では、新しい触媒的不斉合成法の開発とその反応メカニズムの解明に積極的に取り組み、酵素的な作用機序で働く多機能な不斉触媒の開発に成功している。既存の触媒の不斉化と異なり、新しい反応活性化機構に基づく新規反応の開拓的研究である。現在、これら多機能不斉触媒の固定化、強固な不斉骨格を有する新規光学活性配位子および有機分子触媒のデザインを重点的に推進している。

b ）　成果

・新規多機能不斉触媒の開発

不斉ホモカップリング反応のような同一種の二分子の基質の活性化に有効な二重活性化機構を有する触媒の開発に成功した。*R* 体のジホルミルビナフトールとアミノ酸である *tert*-(*S*)-ロイシンから導かれるジイミン体に対し四当量の酸化硫酸バナジウム（$VOSO_4$）を添加することで新規バナジウム二核錯体を合成した。本触媒は、空気雰囲気下、2-ナフトールのカップリング反応において、光学収率 94%でカップリング体を与えた。本反応の二重活化機構は、反応速度解析等から支持された。また、ナフチルフェニル、ビフェニル、およびビテトラリン骨格から成るバナジウム二核錯体においても二重活性化能を発現させることに成功した。

ルイス塩基助触媒を複合金属触媒に添加することで、α，β-不飽和カルボニル化合物とアルデヒドとの付加反応であるMorita-Baylis-Hillman(MBH)反応に有効な触媒が調製可能なことを見出した。LiBH(*s*-Bu)$_3$(L-Selectride)とBINOLをTHF中1:1で混合し調製したboron-lithium-mono(binaphthoxide)触媒とルイス塩基触媒*n*-Bu_3Pとを用いると高エナンチオ選択的にMBH反応が進行する。ルイス酸(boron)、ルイス塩基（*n*-Bu_3P）、およびブレンステッド塩基（Li-O）の三種とも必須である。

・コンビナトリアル合成による新規スピロ型配位子の開発

ジエチルマロネートと多様なホモアリルハライド等とのコンビナトリアル合成により、スピロ環式、置換基、金属に対する配位能のそれぞれ異なる新規スピロ型配位子の効率的構築に成功した。Pd(II)と合成した新規スピロ型配位子との錯体は、アルケニルアルコールの触媒的不斉ワッカー型環化反応やタンデム環化反応において高い不斉触媒活性を示すことが分かった。イソオキサゾリンとイソオキサゾールの特異な配位能と剛直なスピロ骨格が形成する不斉環境の有用性を明らかにした。

・光学活性な新規イオン性液体と有機分子触媒の開発

環境低負荷型不斉反応プロセス開発に重要な光学活性イオン性液体と有機分子触媒のデザインおよび

合成を行った。スピロ骨格にイミダゾリウム塩、ピリジニウム塩およびアンモニウム塩を導入した新規有機塩を創製した。合成したイミダゾリウム塩の中に、室温で液化する有機塩を見いだすことが出来た。BINOL の 3 位にルイス塩基として機能するピリジルアミノメチルあるいはジフェニルホスフノフェニル部位を導入した有機分子触媒の合成に成功した。α，β－不飽和カルボニル化合物類とトシルアルドイミン誘導体との不斉 aza-Morita-Baylis-Hillman 反応に、本触媒を用いると高収率、高選択的に付加体を与えることを見出した。

・機能性球状粒子の効率的合成法の開発と機能評価

表層に不斉触媒能を有する球状粒子の効率的構築法の開発を検討した。界面活性モノマーの形成する球状ミセルを水中で重合反応により固定した。得られた球状ポリマーに BINOL を担持した結果、有機溶媒中で合成した直鎖型ポリマーよりも配位子の担持率は高く、その触媒活性も高かった。一方、金と硫黄の親和力を利用して、金属クラスター担持触媒を調製し、金属クラスターが固相触媒として十分機能することを明らかにした。これは金属クラスター担持 BINOL の初めての合成及び反応例である。現在、開発した不斉有機分子触媒の球状ナノ粒子表層への固定化を検討している。

・グリーンケミストリーを指向した、有機溶媒を用いない固相系触媒反応の開発

アパタイトは環境への負荷が小さいバイオマテリアルである。グリーンケミストリーを考慮して、有機溶媒を用いず、アパタイトを固体分散相とする新しい固相系触媒反応プロセスの開発を行ってきた。アルケンやアルケニルアルコールのエポキシ化反応に対して、ドデカタングステン酸セチルピリジニウム塩触媒/urea-H_2O_2/フッ素アパタイトを用いた固相系システムを Green Reaction System としてすでに開発した。さらに、この固相系システムにおいて触媒としてリンモリブデン酸テトラブチルアンモニウム塩を用いることにより、スルフィドからスルホキシド、スルホンへの選択的酸化に成功した。穏和な条件下、ソルベントフリーの固相状態で反応を行うことができ、しかも回収した固相触媒相は選択性が低下することなくリサイクル使用できた。固相系システムではポリ酸クラスター骨格を保持した新規活性種が作用することを固体ＮＭＲによって明らかにした。

［ 原著論文 ］

Dual Activation in a Homolytic Coupling Reaction Promoted by an Enantioselective Dinuclear Vanadium(IV) Catalyst, H. Somei, Y. Asano, T. Yoshida, S. Takizawa, H. Yamataka, and H. Sasai : Tetrahedron Lett., 45 [9] (2004) 1841-1844.

Development of Novel Chiral Spiro Ligand Bearing Oxazolines, T. Kato, K. Marubayashi, S. Takizawa, and H. Sasai : Tetrahedron: Asymmetry, 15 [23] (2004) 3693-3697.

Enantioselective Aldol-type Reaction Using Diketene, T. Kawase, S. Takizawa, D. Jayaprakash, and H. Sasai : Synth. Commun., 34 [24] (2004) 4487-4492.

Spiro Bis(isoxazole) as a New Chiral Ligand, K. Wakita, M. A. Arai, T. Kato, T. Shinohara, and H. Sasai : Heterocycles, 62 [1] (2004) 831-838.

Tetrabutylammonium Phosphomolybdate on Fluorapatite: an Efficient Solid Catalyst for Solvent-free Selective Oxidation of Sulfides, Y. Sasaki, K. Ushimaru, K. Iteya, H. Nakayama, S. Yamaguchi, and J. Ichihara : Tetrahedron Lett., 45[52] (2004) 9513-9515.

Formation of Fluoridated Hydroxyapatite by Competitive Attack of OH- and F- Ions onto α- or

β-tricalcium bis(orthophosphate), K. Sakamoto, S. Yamaguchi, J. Ichihara, M. Okazaki, Y. Tsunawaki, and J. C. Elliott : J. Ceram. Soc. Jpn. 112[1] (2004) 6-12.

The Use of Apatite as Green Disperse-phase for Solvent-free Epoxidation, Y. Sasaki, J. Ichihara, K. Sakamoto and S. Yamaguchi : Phosphorus Research Bull., **17** (2004) 215-218.

Solvent-free Catalytic Oxidation System Using Apatite Disperse Phase, J. Ichihara, K. Iteya, A. Kambara, S. Yamaguchi, and Y. Sasaki : Catalysts & Catalysis, **46** (2004) 57-59.

［ 解説、総説 ］

Asymmetric Ligands Bearing Spiro Skeleton and their Applications to Enantioselective Catalysis, S. Takizawa, D. Jayaprakash, M. L. Patil, C. Muthiah, and H. Sasai : Materials Integration, 17 [5] (2004) 3-6.

Development of Novel Immobilization Methods for Multifunctionl Asymmetric Catalysts, S. Takizawa and H. Sasai : 生産と技術，56 [4] (2004) 43-45.

Trend in the Development of Novel Chiral Ionic Liquids, M. L. Patil, S. Takizawa, and H. Sasai : Chemical Industry, 55 [11] (2004) 877-880.

スピロビスイソオキサゾリン配位子（SPRIXs）の創製と触媒的不斉合成への応用，荒井緑、篠原俊夫、荒井孝義、笹井宏明 ： 有機合成化学協会誌，62 [1] (2004) 59-69.

［ 著書 ］

「Lanthanide Complexes in Asymmetric Two-center Catalysis」（M. Beller, C. Bolm 編集），柴崎正勝、笹井宏明、吉川直樹，In *Transition Metals for Organic Synthesis*, Vol. 1, Wiley-VCH出版，(2004) 363-378.

［ 特許 ］

「スピロキラリティーを有する第４級アンモニウム塩およびその製造法、並びに該アンモニウム塩を用いた不斉触媒反応」下元愛、米澤浩司、滝澤忍、笹井宏明、特願 2004-261766

「新規スピロ構造化合物とその製造法」マヘッシュ　エル　パティル、シラムコッティ　ベンカットラクシュマンラオ、滝澤忍、笹井宏明、特願 2004-259127

「光学活性スピロビスイソオキサゾリン誘導体とその製造方法およびその金属錯体を用いた不斉触媒反応」笹井宏明、脇田和彦、加藤孝浩、荒井緑、特願 2004-263647

「スピロ骨格を持つキラルな相関移動触媒およびその製造法、並びにそれを用いた不斉触媒反応」米澤浩司、下元愛、滝澤忍、笹井宏明、特願 2004-258567

「光学活性スピロビスイソオキサゾール誘導体およびその製造方法、並びにその金属錯体を用いた不斉触媒反応」笹井宏明、脇田和彦、加藤孝浩、荒井緑、特願 2004-262328

「光学活性二核錯体と該錯体が触媒するカップリング反応」笹井宏明、滝澤忍、特開 2005-75774

「ビナフトール誘導体ならびに該誘導体を用いた光学活性ビナフトール金属錯体触媒」笹井宏明、滝澤忍、特開 2005-75770

「固体高分子電解質及びその製造方法」笹井宏明、滝澤忍、阿部悟、特開 2005-50778

「不斉合成用触媒の製造方法」柴崎正勝、笹井宏明、田原義博、特願 2004-168628

「不斉合成用触媒の製造方法」柴崎正勝、笹井宏明、田原義博、特願 2004-300332

［ 国際会議 ］

Effect of fluorapatite as a solid-disperse-phase on solvent-free catalytic epoxidation (Poster), *J. Ichihara, K. Iteya, K. Ushimaru, and Y. Sasaki, International Conference in Fluorine Chemistry (ICFC ’04) Kyoto, Japan, May 9-11, 2004.

Design and Synthesis of Novel Spiro-type Ligands (Poster), *T. Tsujihara, K. Wakita, T. Kato, A. Shimomoto, M. L. Patil, C. V. L. Rao, T. Shinohara, M. A. Arai, S. Takizawa, and H. Sasai, 17th French-Japanese Symposium on Medicinal and Fine Chemistry (FJS-2004), Miyagi, Japan, May 17-20, 2004.

Dual Activation in a Homolytic Coupling Reaction Promoted by an Enantioselective Dinuclear Vanadium(IV) Catalyst (Poster), H. Somei, Y. Asano, *T. Yoshida, S. Takizawa, H. Yamataka, and H. Sasai, 17th French-Japanese Symposium on Medicinal and Fine Chemistry (FJS-2004), Miyagi, Japan, May 17-20, 2004.

The aza-Morita-Baylis-Hillman Reaction Catalyzed by Chiral Phosphine-Binol as an Organocatalyst, *K. Matsui, S. Takizawa, and H. Sasai, 16th International Symposium on Chirality (ISCD 16), New York, USA, July 11-14, 2004.

Development of Novel Chiral Spiro-type Ligands, *H. Sasai, K. Wakita, T. Kato, Y. Honda, M. A. Arai, T. Shinohara, C. Muthiah, T. Tsujihara, and S. Takizawa, The 36th International Conference on Coordination Chemistry (ICCC-36), Mérida Yucatán, México, July 18-23, 2004.

Dual Activation in a Homolytic Coupling Reaction Promoted by an Enantioselective Dinuclear Vanadium(IV) Catalyst (Poster), H. Somei, Y. Asano, *T. Yoshida, S. Takizawa, H. Yamataka, and H. Sasai, 15th International Conference on Organic Synthesis (ICOS-15), Aichi, Japan, Aug. 2-6, 2004.

The aza-Morita-Baylis-Hillman (aza-MBH) Reaction Promoted by Chiral Phosphine-BINOL as an Organocatalyst (Poster), *K. Matsui, S. Takizawa, and H. Sasai, 15th International Conference on Organic Synthesis (ICOS-15), Aichi, Japan, Aug. 2-6, 2004.

Novel Bifunctional Asymmetric Organocatalysts for aza-Morita-Baylis-Hillman (aza-MBH) Reaction, *K. Matsui, S. Takizawa, and H. Sasai, The 7th IUPAC International Conference on Heteroatom Chemistry (ICHAC-7), Shanghai, China, Aug. 20-25, 2004.

Catalytic Enantioselective Direct Henry Reaction, S. Takizawa, K. Murai, K. Wataguchi, T. Hara,

and *H. Sasai, Rare Earths ’04 in Nara, Nara, Japan, Nov. 7-12, 2004.

Novel Bifunctional Organocatalysts for Enantioselective aza-Morita-Baylis-Hillman (aza-MBH) Reaction (Poster), *K. Matsui, S. Takizawa, and H. Sasai, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004)-Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing-, Osaka, Japan, Dec. 6-7, 2004.

Development and Application of Novel Immobilization Method for Multicomponent Asymmetric Catalysts (Poster), S. Takizawa, K. Marubayashi, *N. Inoue, and H. Sasai, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004)-Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing-, Osaka, Japan, Dec. 6-7, 2004.

Environmentally benign solid-phase-reaction-system for aerobic oxidative dehydrogenation (Poster), *J. Ichihara, K. Iteya and Y. Sasaki, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004)-Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing-, Osaka, Japan, Dec. 6-7, 2004.

Dual Activation in a Homolytic Coupling Reaction Promoted by an Enantioselective Dinuclear Vanadium Catalyst (Poster), T. Yoshida, *T. Katayama, H. Somei, Y. Asano, S. Takizawa, and H. Sasai, THE INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON DYNAMIC COMPLEX (ISDC-2005), Nagoya, Japan, Jan. 9-10, 2005.

Development of Novel Spiro-type Ligands, T. Tsujihara, P. Koranne, C. Muthiah, K. Wakita, J. Yogo, S. Takizawa, and *H. Sasai, THE INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON DYNAMIC COMPLEX (ISDC-2005), Nagoya, Japan, Jan. 9-10, 2005.

Development and Application of a Novel Method for the Immobilization of Multicomponent Asymmetric Catalysts (Poster), *K. Marubayashi, S. Takizawa, and H. Sasai, 21st Century COE “Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience” Third International Symposium 2005, Shiga, Japan, Mar. 9-10, 2005.

Development of Artificial Enzymes with Relevance to Bioluminescence (Poster), *T. Kawase, D. Jayaprakash, S. Takizawa, and H. Sasai, 21st Century COE “Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience” Third International Symposium 2005, Shiga, Japan, Mar. 9-10, 2005.

Design and Synthesis of Novel Chiral Spiro Ligands and Ionic Liquids (Poster), *C. V. L. Rao, M. L. Patil, S. Takizawa, and H. Sasai, 21st Century COE “Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience” Third International Symposium 2005, Shiga, Japan, Mar. 9-10, 2005.

Study of Novel Chiral Ligands Bearing Spiro Skeleton and their Applications to Asymmetric Cyclizations (Poster), *C. V. L. Rao, M. L. Patil, S. Takizawa, and H. Sasai, 21st Century COE “Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience” Third International Symposium 2005, Shiga, Japan, Mar. 9-10, 2005.

Development of Novel Chiral Spiro-type Ligands (Poster), *T. Tsujihara, P. Koranne, K. Wakita, C. Muthiah, J. Yogo, S. Takizawa, and H. Sasai, 229th ACS National Meeting, San Diego, CA, USA, Mar. 13-17, 2005.

[国内学会]

有機合成若手セミナー	2 件
日本化学会年会	12 件
ナノ超分子触媒の将来展望	2 件
反応と合成の進歩シンポジウム	1 件
有機金属化学討論会	1 件
有機合成シンポジウム	1 件
有機反応懇談会	5 件
複素環化学討論会	1 件
材料技術研究協会討論会	1 件

[取得学位]

修士（理学）

辻原　哲也　　触媒的不斉アミノカルボニル化反応の開発

吉田　友和　　二重活性化能を有する不斉二核金属触媒の開発と応用

渡口　桂吾　　スピロ構造を有する光学活性イオン性液体の開発

博士（理学）

丸林　千能　　不斉触媒担持ナノ粒子の創製

[科学研究費補助金]

（代表者として配分されたもの）　　単位：千円

特定領域研究 (2)

笹井　宏明	触媒活性部位での多元的協調作用を活用する人工酵素の開発	2,000

[特別研究員奨励費]

笹井　宏明	概念的に新しい触媒的不斉合成の開発	400

分子材料解析研究分野

教授、兼任　　真嶋　哲朗
助手　　高井　嘉雄

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。同時に、材料解析センターの支援業務にも寄与する。

b ） 成果

・固体高分解能 NMR 測定による二酸化チタン光触媒反応機構の解明

励起分子化学研究分野との共同研究として、固体高分解能 NMR を使用して TiO_2 光触媒反応について検討した。すなわち、TiO_2 表面に吸着したカテコール類の ^{1}H および ^{13}C 固体高分解能 NMR 測定を行い、吸着状態に関する知見を得た。さらに、TiO_2 表面に吸着したカテコール類の CT 吸収帯の光励起による光触媒反応を、^{1}H および ^{13}C 固体高分解能 NMR 測定によって追跡した。結果として、^{1}H および ^{13}C 固体高分解能 NMR 測定によって、TiO_2 表面に吸着させた分子を検出することが可能なこと、その光触媒反応による表面吸着分子の変化を追跡できることがわかった。

・ESI マススペクトロメトリーによるキラル分析

材料解析センターとの共同研究として、ESI マススペクトロメトリーによるキラルカルボン酸のエナンチオマー過剰度決定法について検討し、±2%の定量レベルで可能なことを明らかにした（材料解析センターの成果と同様)。

［ 原著論文 ］

材料解析センターとの共同研究論文は材料解析センターの項を参照

［ 国際会議 ］

材料解析センターとの共同研究発表は材料解析センターの項を参照

［ 国内学会 ］

材料解析センターとの共同研究発表は材料解析センターの項を参照

知能システム科学研究部門

概要

膨大な情報がディジタル化され，ネットワークを通じ世界中を飛び交うようになった今日の高度情報化社会では，知的情報処理は日常生活を含む社会のあらゆる局面で必要不可欠な要素となりつつある．本研究部門は人間の知能を科学し，高度な知識情報処理機能を計算機に付与し広く工学的諸問題の解決や知的活動支援全般へ応用することを目指した，互いに有機的に関連する４研究分野で構成されている．研究内容はオントロジー工学，知識の共有，再利用の研究（知識システム分野），多元的な情報の利用と多角的な処理の研究（複合知能メディア分野），人間と計算機との理想的な相互作用の形態を追求したインターフェイスおよびエージェントの研究（知能アーキテクチャ分野），データマイニング，知識発見，機械学習の研究（高次推論方式分野）など，人間の知的活動の根源に関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的な適用課題についての示唆を受けるなどの形で，相互に協調性を図りながら研究を進めている．

成果

・分散オントロジー開発環境
・オントロジー工学に基づく機能的知識の体系化とその実証
・高度ナレッジマネジメントと学習支援
・協調学習インタラクション分析とメタ認知モデル構成
・ オーサリングタスクオントロジーの開発と革新的オーサリングシステムアーキテクチャ
・ 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
・ 全方位監視システムと人物行動解析
・ 構成的適応インタフェースへの時系列データの導入
・ 間隔不定な時系列データの解析手法
・ 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-based Learning 支援環境
・ 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
・ 専門家からの知識獲得に関する研究
・ グラフ構造データからの知識発見に関する研究
・ 多様なデータ形式を対象とする検索手法に関する研究
・ 数値データからの時間依存法則式の発見に関する研究
・ 数値属性を有するデータに対する相関規則の導出に関する研究

知識システム研究分野

教授　　溝口　理一郎
助教授　　來村　徳信
助手　　稲葉　晶子（１月３１日まで)、笹嶋　宗彦（１月１日より）
ポスドク研究員　Daniele Allard　（１１月２８日より）
大学院学生　　Jonathan Touitou、砂川　英一、武内　雅宇、小路　悠介，田中　庸平、垂水　晋也
学部学生　　Mesbahy Houda、吉川　正太、鷲尾　尚哉
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。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失われ、人間からみて従来型のソフトウェアと本質的な差異を認めることができないという問題がおこっている。この問題は，知識ベースの共有・再利用の困難さや、人間からみたソフトウェアの振る舞いの「硬さ」といった問題に通じている。これは、人間が知識ベースシステムを「作る」、あるいは「使う」ときのための基礎的理論が確立していないことに原因がある。オントロジーに関する理論は、人間の対象に対する認識の世界とソフトウェアの中に作り出される世界を明確に対応づけながら知識工学的成果を積み重ね、それに基づいて現実の問題に応用するための必要不可欠な基礎理論である。オントロジー構成論に関して当分野では、オントロジー研究の意義、機能と役割、研究すべき課題などを整理した「オントロジー工学序説」「オントロジー研究の基礎と応用」「オントロジー工学基礎論」と題する啓蒙的な論文を公表するなど我が国において先導的立場で研究を行って来た。まず基礎となる理論を確立すべく、人間が認識する概念の成り立ちを独自の観点で分析し、その結果を新しい基礎理論として定式化し公表し、「知識」に関する情報科学的に重要な疑問に解答を与え始めている。さらに、基礎論から実践的研究への展開に向けて、既存の情報基盤技術との連携技術について重点的に検討している。これらの成果は当分野で開発したオントロジー工学研究の基盤ツール「法造」におけるオントロジーエディタ、技術ドキュメントからのオントロジー抽出過程を支援する概念工房、そしてオントロジーサーバーとして実装した。本年度は、法造の実用ツールへ向けた強化とセマンティックウェブを指向した分散環境でのオントロジー開発支援システムを開発した。

・工学的知識体系化の枠組みの開発とその知識記述・共有における利用

昨今の工業社会において大きな役割を果たしている工学的知識の中で、数値や形状に関する詳細なデ

ータレベルの知識は計算機ネットワークの発達に伴い共有されるようになってきたが、機能などの概念レベルの工学的知識は属人的かつ暗黙的になっており、明示化されたとしても領域固有で一般性が低く、一貫性もないことが多い。共有・再利用可能な知識を記述するためには、共通の一貫した視点に基づいて知識を捉え、知識に用いられる概念を統一することが必要である。本研究では、人工物の概念レベルモデルの成り立ちを深く考察し、工学的知識の枠組みを与える概念体系（オントロジー）の構築を目標としている。本年度まででは、工業製品や生産工程における機能的な知識を対象として、それらを捉える際の概念体系として物理的対象を「装置」という観点から捉える視点を提供するデバイスオントロジーと、機能的知識の語彙を提供する機能概念オントロジーを構築した。本枠組みはある大手製造業企業において生産装置・工程に関する知識共有に実用されており、大きな成果を上げている。本年度は企業におけるさまざまな既存の知識表現形式に現れる知識を統合するために，オントロジーに基づいて機能を中心とした知識を変換する枠組みを開発した．また，セマンティックウェブ環境における機能に関するメタデータ記述について考察を行った.

・学習支援システムの構築方法論

学習支援システムに関する研究領域では、教育という人間の知的活動を部分的に計算機システムに代行させることを目的として、様々な方面から基礎と応用の両面から研究がなされてきている。しかし、残念ながらその知見は散発的で、工学的な方法論の確立には集約していないというのが実状である。このような状況を打開するためには、基礎理論とシステム構築方法論の対応関係を明確にするための枠組みが必要である。その中核となる技術として我々が提唱しているのがオントロジー工学である。オントロジーは、対象に関して人間が持っている専門的知識と、それを埋め込んだソフトウェアの構造や振る舞いとの対応関係を、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会わせた包括的なオントロジーに基づいた新しいオーサリング環境を実現している。また、これまでの成果を踏まえて企業内の人的資源開発・管理を包括的に支援する枠組みへと展開するための基礎研究として、能力概念のオントロジーと、それを基礎においたツール群の開発も行っている。本年度は、オーサリングタスクオントロジーとそれに基づく革新的なオーサリングシステムのオントロジー、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た。

・知識の継承・創造支援のための情報基盤

人間の社会は、長い歴史の中で知識を生み出し・継承し，洗練することで成長している。そのための媒体として書物が永く使われてきたが、近年は情報インフラが整備され、ネットワークで有機的に結合されたコンピュータが主な媒体として定着しつつある。本研究では、組織論・経営学の知見を参照しながら情報基盤を基礎とした組織知識の成長のモデルを提示し、それを核にした情報基盤の全体構想の構築と情報システムの開発を進めている。この研究テーマは、オントロジー工学と教育情報システムという本分野が世界的に先駆けている２つの領域の専門性を複合して初めて可能になる独創的なものである。この構想の基礎として本年度までに様々な方向からアプローチし、協調学習支援システム、組織知メモリ、知識創造コミュニティの形成支援システムを実現している。本年度は、学習と実践の双方に適した協調場設計支援システム、協調場設計意図説明機能、ナレッジマネジメントシステムを指向した外部発信システムの開発を行った.

［ 原著論文 ］

Ontology-based systematization of functional knowledge, Y. Kitamura, and R. Mizoguchi: Journal

of Engineering Design, 15[4] (2004), 327-351.

Deployment of an Ontological Framework of Functional Design Knowledge, Y. Kitamura, M. Kashiwase, M. Fuse, R. Mizoguchi: Advanced Engineering Informatics, 18[2] (2004) 115-127.

A Design Environment to Articulate Design Intention of Learning Contents, Y. Hayashi, M. Ikeda, and R. Mizoguchi: International Journal of Continuing Engineering Education and Life Long Learning, 14[3] (2004) 276-296.

Le role de l'ingenierie ontologique dans le domaine des EIAH, R. Mizoguchi (Translated by: J. Bourdeau) : Sciences et Technologies de l'Information et de la Communication pour l'Education et la Formation,11 (2004).

［ 解説、総説 ］

工学ドメインオントロジー，來村徳信：人工知能学会誌 19[2]（2004）179-186.

Tutorial on ontological engineering - Part 2: Ontology development, tools and languages, R. Mizoguchi: New Generation Computing 22[1] (2004) 61-96.

Tutorial on ontological engineering - Part 3: Advanced course of ontological engineering, R. Mizoguchi: New Generation Computing 22[2] (2004) 193-220.

［ 著書 ］

Leaner Model Ontology and leaner Model Agent, W. Chen, and R. Mizoguchi: Cognitive Support for Learning - Imagining the UnknownP. Kommers, Ed, IOS Press, (2004) 189-200.

［ 招待講演 ］

Essentials of Ontological Engineering, Riichiro Mizoguchi, the Acfas Congress, Montreal Canada, May 11-12, 2004.

A Success Story of Ontological Engineering in a Japanese Company - Engineering Knowledge Management Based on Functional Ontology, R. Mizoguchi, KEST04, Beijin, P.R.China, September 17-19, 2004

Ontological Engineering and ITS Research, Riichiro Mizoguchi, ITS2004, Maceio, Brazil, Aug.30-Sept.3, 2004.

［ 国際会議 ］

A Success Story of Ontological Engineering in a Japanese Company - Engineering Knowledge Management Based on Functional Ontology (Invited), *R. Mizoguchi, KEST04, Beijin, P.R.China, September 17-19, 2004

Ontological integration ofdata models for cell signaling pathways, *T. Takai-Igarashi, and R.

Mizoguchi, GIW2004, Tokyo, Dec.13-15, 2004.

Ontology-based Functional-Knowledge Modeling Methodology and its Deployment, *Kitamura, Y., Mizoguchi, R., The 14th International Conference on Knowledge Engineering and Knowledge Management EKAW 2004, Whittlebury Hall, Northamptonshire, UK, Oct. 5-8, 2004.

Coping with Unintended Behavior of Users and Products: Ontological Modelling of Product Functionality and Use Wilfred van der Vegte, *Y. Kitamura, Y. Koji, R. Mizoguchi, CIE 2004: ASME 2004 Design Engineering TechnicalConferences and Computers in Engineering Conference, Salt Lake City, Utah, Sep. 28 – Oct. 2, 2004.

Towards Modeling Design Rationale of Supplementary Functions in Conceptual Design, *Y. Koji, Y. Kitamura, and R. Mizoguchi, Tools and Methods of Competitive Engineering - TMCE 2004 (TMCE2004), Lausanne, Switzerland, Apr. 13-17, 2004.

Learning Design Palette: An Ontology-aware Authoring System for Learning Design, *A. Inaba, and R. Mizoguchi, International Conference on Computers in Education (ICCE2004), Melbourne, Australia, Nov. 30-Dec. 3, 2004.

EASE: Evolutional Authoring Support Environment, *L. Aroyo, A. Inaba, L. Soldatova, and R. Mizoguchi, The seventh International Conference on Intelligent Tutoring Systems (ITS2004), Alagoas, Brazil, Aug. 30-Sep. 3, 2004.

Learners' Roles and Predictable Educational Benefits in Collaborative Learning - An Ontological Approach to Support Design and Analysis of CSCL, *A. Inaba and, R. Mizoguchi, The seventh International Conference on Intelligent Tutoring Systems (ITS2004), Alagoas, Brazil, Aug. 30-Sep. 3, 2004.

Towards Shared Understanding of Metacognitive Skill and Facilitating Its Development , *M. Kayashima, A. Inaba, and R. Mizoguchi, The seventh International Conference on Intelligent Tutoring Systems (ITS2004), Alagoas, Brazil, Aug. 30-Sep. 3, 2004.

What is Metacognitive Skill? - Collaborative Learning Strategy to Facilitate Development of Metacognitive Skill, *M. Kayashima, A. Inaba, and R. Mizoguchi, The sixteenth World Conference on Educational Mutimedia, Hypermedia & Telecommunications (ED-MEDIA 2004), Lugano, Switzerland, Jun. 21-26, 2004.

Development of a System that Provides Teachers with Useful Resources from Various Viewpoints Based on Ontology, *T. Kasai, H. Yamaguchi, K. Nagano, and R. Mizoguchi, The sixteenth World Conference on Educational Mutimedia, Hypermedia & Telecommunications (ED-MEDIA 2004), Lugano, Switzerland, Jun. 21-26, 2004.

Ontological Knowledge Base Reasoning with Sort-Hierarchy and Rigidity, *K. Kaneiwa, and R.

Mizoguchi, The Ninth International Conference on the Principles of Knowledge Representation and Reasoning (KR2004), Canada, 278-288, June, 2004.

Intellect Transmission Support Based On Organizational Intellect Model, *M. Ikeda, Y. Hayashi, Y. Tanaka, M. Takeuchi, R. and Mizoguchi, SW-EL'04: Applications of Semantic Web Technologies for E-Learning, Hiroshima, Japan, Nov. 8, 2004.

A SW-based Framework for Disclosure of Organizational Knowledge to the Outside World (Poster), Y. Tanaka, Y. Hayashi, M. Takeuchi, M. Ikeda, and R. Mizoguchi, 3rd International Semantic Web Conference (ISWC2004), Hiroshima, Japan, Nov. 7-11, 2004.

[国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員]

溝口理一郎	The 3rd International Semantic Web Conference(ISWC2004)（組織委員長）
溝口理一郎	European Project on SEKT, (Steering committee 委員)
溝口理一郎	International Conference on Intelligent Tutoring Systems(ITS2004)（プログラム委員会委員）
溝口理一郎	The 9th Ibero-American Conference on Artificial Intelligence IBERAMIA'04（プログラム委員会委員）
溝口理一郎	European Semantic Web Conference (ESWC2004)（プログラム委員会委員）
溝口理一郎	The Fifth International Symposium on Tools and Methods of Competitive Engineering (TMCE 2004) （プログラム委員会委員）
溝口理一郎	Workshop on Applications of Semantic Web Technologies for E-learning（副議長）
溝口理一郎	The 2004 IFIP International Conference on Intelligence in Communication Systems (INTELLCOMM 04)（プログラム委員）
溝口理一郎	The World Congress on Computers, AIAI2004（プログラム委員）
溝口理一郎	European KAW Conference(EKAW2004)（プログラム委員）
溝口理一郎	Secretary of International Artificial Intelligence in Education Society（国際学会前会長）
溝口理一郎	Asia-Pacific Society for Computers in Education(APSCE) （理事）
溝口理一郎	International Journal of Applied Ontology（編集委員）
溝口理一郎	International Journal of Advanced Engineering Informatics （編集委員）
溝口理一郎	International Journal of Artificial Intelligence in Education（編集委員）
溝口理一郎	International Journal of Web Semantics（編集委員）
溝口理一郎	International Journal of Computer and Engineering Management （編集委員）
溝口理一郎	International Journal of Web Engineering and Technology （編集委員）
稲葉晶子	The Third International Semantic Web Conference 2004(ISWC2004) （広報委員長）

[国内学会]

人工知能学会	7 件
教育システム情報学会	1 件

[取得学位]

修士（工学）

田中　庸平	知の創造・継承活動モデルに基づく組織知発信支援機能の設計と開発
垂見　晋也	ナノテク材料設計支援のための機能・製造プロセス知識統合的記述システムの開発

[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

基盤研究（A）（２）

溝口理一郎	Theory-Aware オーサリングワークベンチの開発	15,600

特定研究（２）

溝口理一郎	機能オントロジーに基づく設計・製造知識コンテンツ管理と活用	4,900
稲葉晶子	インストラクショナルデザインのための「先人の知」リポジトリの構築	3,600

若手研究（B）

來村徳信	機能的設計知識の共有のための機能オントロジーに関する研究	1,200
稲葉晶子	協調学習におけるインタラクションのモデル化	1,100

特別研究員奨励

溝口理一郎	オントロジー工学を用いた言語学習における文化差要因のモデル化と日本人のための英語学習支援システムの開発	500

（分担者として配分されたもの）

基盤研究（A）（１）

溝口理一郎	人間中心の（ヒューマンセンタード）セマンティック Web	2,640

[受託研究]

溝口理一郎	（株）ギャラクシーエクスプレス	IT を活用した大規模システムの運用支援システムの構築	1,050

[共同研究]

溝口理一郎	（社）化学工学会ナノマテリアセンター	材料技術の知識の構造化プロジェクト　研究項目③「知識基盤プラットフォームの開発」ナノテクオントロジーの研究とオントロジーサーバーの開発	5,250
溝口理一郎	㈱エヌ・ティ・ティ・ドコモ	モバイルユーザーの実世界コンテキスト理解に向けたオントロジの研究	3,000
溝口理一郎	宇宙航空研究開発機構	衛星設計・運用支援へのオントロジー技術適用の研究	2,501
溝口理一郎	住友電気工業（株）	技術体系化ツールの開発	1,260

複合知能メディア研究分野

教授	八木　康史
助教授	向川　康博
助手	佐川　立昌
特任研究員	越後　富夫
大学院学生	小原　ゆう、前田　卓志、青木　伸也、近藤　一晃、ヴ ハイ、羽下　哲司、 栗田　尚樹、上田 健介、スチット ポンヌムクン、高辻 誠也、野口 裕之
学部学生	大澤　奈々穂、万波 秀年、小嶋　裕一郎
事務補佐員	家村　雅子、安井　紀子、大西　彩子、中澤　優子

a ）　概要

本研究分野では，コンピュータビジョンとメディア処理に関する基礎から応用の研究を行っている．計算機や知能ロボットのための知覚機能の研究として，外界情報を獲得するためのセンシング技術からその情報から実世界を認識し行動するための視覚情報処理技術，さらにこれらの技術を統合した知能システムの研究を行っている．特に，周囲 360 度を一度に撮影できる全方位カメラに関する研究を中心に，デジタルアーカイブ，セキュリティシステム，人物行動解析，知能移動ロボットやマイクロロボットの研究をしている．

b ）　成果

・全方位物体検出のための複合球面鏡ステレオ

本研究では，複合球面鏡を用いてステレオ視を行い，近接物体を検出するシステムを提案する．本システムは複数の球面鏡と単一のカメラから構成され，容易に携帯，装着できる小型軽量のセンサである．各々の球面鏡にはそれぞれ観測対象が投影されるため，反射光学系を用いたステレオ視により，観測対象までの距離が計算可能である．提案手法では，まず事前に，無限遠に物体があると仮定し，物体が各々の鏡へ投影される点についての対応点の参照表を作成する．物体がセンサに十分接近すると，物体が投影される点が無限遠における対応点とは異なるため，それぞれの鏡に投影される対応点の輝度値の差を取ることによって，近接物体の検出が可能である．この手法は対応点の探索を伴わないため，実時間で近接物体の検出が可能となった．最後に開発したセンサを用いた近接物体の検出実験によって本手法の有効性を確認した．

・複眼全方位センサによる奥行き検出能力の評価

観測の全方位性と携帯性，処理の実時間性を兼ね備えたセンサとして，複合球面鏡を用いてステレオ視を行い，近接物体を全方位に検出する複眼全方位センサシステムが提案されている．このシステムは複数の球面鏡と単一のカメラから構成され，容易に携帯できる小型のセンサである．しかし，このセンサを用いて近接物体を検出するためには，鏡の形状や位置をモデル化する必要があり，これを正確に行うことが難しいためシステムの校正は困難であった．そこで本研究では，無限遠においた点光源を観測することによって複眼全方位センサを校正する手法を提案する．また，複眼全方位センサの各画素における検出距離のみを考えることで，複合球面鏡の奥行き検出能力を求めた．この結果より，複合球面鏡の中央付近では検出できる距離が長く，端に行くに従い検出距離が短くなることが確認された．

・移動ロボットによる環境認識のための実時間距離画像位置合わせ

移動ロボットによる環境認識ではロボットの自己位置を推定すると同時に 3 次元環境モデルを作成する必要がある(SLAM 問題). そこで，実時間レンジセンサから得られる距離画像を位置合わせすることにより，3 次元環境モデリングとロボットの自己位置推定を同時に行う手法を提案する．本手法では，センサから得られる時系列距離画像を用いることで，外部センサや手動に頼ることなく実時間で距離画像

の位置合わせを行う．位置合わせには Iterative Closest Point (ICP)法の派生法を用いるが，ここにセンサ精度を考慮した重み関数を導入し，精度による誤差を軽減する手法を提案する．実験では，センサの性能と位置推定の精度についての分析を行った．また，実際に移動ロボットにレンジセンサを搭載し，実時間環境モデリングとセンサ軌道の推定を行った．

・透過型液晶フィルタリング方式によるカメラの広ダイナミックレンジ化

本研究では透過型液晶フィルタを用いた広ダイナミックレンジ画像の生成を目的とする．撮像面の前方に配置した液晶フィルタを適応的に制御することで，受光面に届く光量を調節する手法が提案されているが，このように撮影された画像から広ダイナミックレンジ画像を生成するには，フィルタの制御と受光面が受ける光量の関係が必要である．本手法では，フィルタの制御による透過率の変化をあらかじめ調べておき，さらに液晶フィルタのボケをモデル化することによって，調節された光量から実際の光量を算出する．液晶フィルタによる光量の調節を実現するシステムを試作し，明暗の差が激しいシーンを対象とした実験により，広ダイナミックレンジ画像が取得できることを確認した．

［ 原著論文 ］

Real-time Omnidirectional Image Sensors, Y. Yagi, M. Yachida, International Journal of Computer Vision, 58[3] (2004) 173-207.

変化領域内の動きの時空間特徴に着目した屋外情景における歩行者の検出，羽下哲司，鷲見和彦，八木康史，電子情報通信学会論文誌, J87-DII [5] (2004) 1104-1111.

画像の線形化による光学現象の解析，向川康博，石井育規，尺長健，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, 45[SIG8 (CVIM9)] (2004) 40-52.

Super Wide Viewing for Tele-operation, H. Nagahara, Y. Yagi, M. Yachida, Transaction on Circuits and Systems, 3[3] (2004) 693-608.

映像の意味的重要度に基づく配信制御-SemanticQoS-，益満健，越後富夫，吉村健，栄藤稔，電子情報通信学会論文誌，J87-DII[2]（2004）534-543.

［ 著書 ］

Image Processing Technologies: Algorithms, Sensors, and Applications, Y Yagi, Marcel Dekker Inc, (2004) Chapter 5, 116-141.

［ 特許 ］

「内視鏡および内視鏡システム」八木康史，越後富夫，佐川立昌，特願 2004-041209

「全方位撮像システム」八木康史，越後富夫，特願 2004-043320

「内視鏡アタッチメント」八木康史，越後富夫，佐川立昌，特願 2004-197355

［ 国際会議 ］

Walking Person Identification Dealing With Resolution and Appearance Changes, *Y. Ohara, R. Sagawa, T. Echigo, Y. Yagi: Korea-Japan Joint Workshop on Frontiers of Computer Vision, Fukuoka, Japan, Feb. 3-4, 2004.

Gait Volume : Spatio-Temporal Analysis of Walking, *Y. Ohara, R. Sagawa, T. Echigo, Y. Yagi: The fifth Workshop on Omnidirectional Vision, Camera Networks and Non-classical cameras, Prague, Czech, May 16, 2004.

Evaluation of Iconic Memory-based ORP Navigation, *Y. Yagi, K. Tsuji, M. Yachida: 2004 IEEE International Conference on Robotics & Automation, New Orleans, USA, Apr. 26-May. 1, 2004.

Super Wide Viewing for Tele-operation, *H. Nagahara, Y. Yagi, M. Yachida: International Conference Instrumentation, Measurement, Control, Circuits and Systems, Miami, Florida, USA, Apr. 21-23, 2004.

Compound Catadioptric Stereo Sensor for Omnidirectional Object Detection, *R. Sagawa, N. Kurita, T. Echigo, Y. Yagi: IEEE/RSJ International Conference on Intelligent Robots and Systems, Sendai, Japan, Sep. 28-Oct. 2, 2004.

Immersive Head Mounted Display, *H. Nagahara, Y. Yagi, M. Yachida: International Conference Virtual System and Multimedia, Gifu, Japan, Nov. 17-19, 2004.

Human Detection in Outdoor Scene Using Spatio-Temporal Motion Analysis, *T. Haga, K. Sumi, Y. Yagi: 17th International Conference on Pattern Recognition, Aug. 23-26, 2004.

SpaceRelighter -Recording and Reproducing Illumination in a Real Scene-, *Y. Mukaigawa, H. Nagai, Y. Ohta: International Conference on Virtual Systems and Multimedia (VSMM2004), Nov.17-19, 2004.

Virtual Photometric Environment using Projector, *Y. Mukaigawa, M. Nishiyama, T. Shakunaga: International Conference on Virtual Systems and Multimedia (VSMM2004), pp.544-553, Nov. 17-19, 2004.

Free Viewpoint Browsing of Live Soccer Games, *Y. Kameda, T. Koyama, Y. Mukaigawa, F. Yoshikawa, Y. Ohta: IEEE International Conference on Multimedia and Expo (ICME2004), Taipei, Taiwan, Jun. 27-30, 2004.

［ 国際会議の組織委員，外国雑誌の編集委員 ］

八木　康史	OMNIVIS'04 The fifth Workshop on Omnidirectional Vision, Camera Networks and Non-classical cameras (プログラム委員)
八木　康史	OMNIVIS'05 The Six Workshop on Omnidirectional Vision, Camera Networks and Non-classical cameras (プログラム委員)
八木　康史	Robotics: Science and Systems（プログラム委員）
八木　康史	Computer Vision and Pattern Recognition 2005 (プログラム委員)
八木　康史	The International Journal of Automation and Computing (編集委員)
八木　康史	IEEE International Conference on Robotics and Automation 2004 (論文賞選考委員)
八木　康史	IEICE Transaction on Information and Systems, special section on **“Life-like Agent and its**

	Communication” （ゲストエディタ）
八木　康史	International Journal of Computer Vision, special issue on “Research in Japan on Omni-Directional Sensors and Their Applications”, （ゲストエディタ）
向川　康博	Computer Vision and Pattern Recognition 2005 (プログラム委員)

[国内学会]

情報処理学会	9 件
電子情報通信学会	6 件
日本ロボット学会	1 件
計測自動制御学会	1 件

[取得学位]

博士（情報科学）

前田　卓志　バイオメトリクスにおける検索照合のためのマトリクス検索法に関する研究

修士（情報科学）

栗田　尚樹　複眼全方位ステレオの提案

[科学研究費補助金]

（代表者として配分されたもの）　　単位：千円

基盤研究 (B) (2)		
八木　康史	タスク指向型全方位視覚センサに関する基礎研究	3,700
若手研究 (B)		
向川　康博	実物体の反射特性を再現する仮想光学環境の実現	1,100
佐川　立昌	不定形管状物体の 3 次元モデリング技術の研究開発	1,800

[その他の競争的研究資金]

八木　康史	JST 大学発ベンチャー創出推進事業	全方位ビジョンを用いた医療技術の開発	35,100
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	1,950

知能アーキテクチャー研究分野

教授	沼尾　正行
助教授	栗原　聡（１０月１日から）
助手	Cholwich Nattee
研究員	Sukree Sinthupinyo
大学院学生	Roberto Legaspi、清水　健二，橋本　雄弥，福井　健一，山下　長義
特別研究生	佐藤　慶宜，菅原　智，中山　英樹，本山　真也
研究生	Md. Nazmul Huda
事務補佐員	三木　真由美

ａ）　概要

パソコンを初めとする情報環境が普及するにつれて、インタフェースの悪さに起因するテクノストレスや、スパムメール、多量データによる情報洪水の問題に社会の関心が集まっている。本研究部門では、これらの原因がコンピュータシステムの柔軟性の欠如にあることを早くから指摘し、その対策として適応能力を持ったコンピュータの開発を提唱してきた。心理実験と高度な機械学習技術の組合せにより、こうした課題の克服を目指している。具体的な研究課題は、以下の通りである。

【研究課題】

１．構成的適応インタフェース

２．Web-based Learning 支援環境

３．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て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はなく、新たなコンテンツを構成する手法の研究を行っている。その技術を背景として、極めてユニークな研究テーマとして、感性獲得機構を提案し、ユーザの個性と感情に適応して自動作曲を行うシステムを開発した。

・Web-based Learning 支援環境

Web は，従来の学習・教育環境では困難であった学習活動を可能とするプラットフォームとして注目を集めている．Web の特徴を活かした主要な学習活動として，(a) 既存の学習向けコンテンツ（学習リソース）の活用，(b) 情報発信による自己表現と知識共有，(c) 自発的な学習コミュニティの形成，などをあげることができる．いずれの学習活動においても，学習者の主体性が大きいほど高い効果を期待することができる．本研究では，この中でも (a) を取り上げ，主体的学習を効果的に支援する環境について検討している．本年度は，特に学習リソースが提供するハイパー空間での主体的・構成的学習の難しさに着目して、ハイパー空間におけるメタ認知支援に関する検討を行った．

(1) 適応的ナビゲーションプラニング支援

Web における既存の学習リソースは、通常複数の Web ページとページ間を連結するリンクからなるハ

イパー空間を学習者に提供する。学習者は、この空間内をナビゲーションしながら、学ぶべきページおよびその順序（ナビゲーションパス）を主体的に決め、学習リソースが提供する学習内容を順次理解していくことができる。しかしながら、ページ内容の理解に加えて、そのメタ認知的活動として、ナビゲーションパスの見通しを立てる（ナビゲーションプラニング）ことを同時並行的に行う必要がある．しかしながら，ハイパー空間が複雑すぎたり、ページ内容の理解に注意が奪われると、モニタリングを維持・継続することは容易ではなくなり、しばしばナビゲーションに行き詰まりが生じる．そこで、本研究では、ハイパー空間での学習を，ページ内容の理解とナビゲーションプラニングに明確に区別し，プラニングの文脈に合わせてナビゲーションパスのプレビューを与える手法について検討した．本支援では、ページプレビューによる適応的なページコンテンツの概要表示機能、パスプレビューによる学習パス表示機能、マップによるハイパー空間の構造表示機能を実現した。これらの機能によって、学習者はナビゲーションプラニングに注意を向けることができ、またナビゲーション過程の見通しが良くなるためナビゲーション効率の向上が期待できる。

(2) 適応的リフレクション支援

ハイパー空間では、主体的に学ぶべきページおよびナビゲーションパスを決め，訪れたページごとに学んだ内容を関係づけて知識を構成していくことができる．しかしながら、ナビゲーションが進むにつれて、何を・何故探究してきたのかが不明瞭になり、知識の積み上げに失敗することがしばしば起こる。そこで、本研究では、ハイパー空間において学習者が得てきた知識のリフレクションを支援するために Adaptive Postviewer，ナビゲーションプロセス履歴（インタラクティブヒストリーによって生成される履歴）比較メカニズム，および知識外化環境を開発した。Adaptive Postviewer では、これまでに開発してきたインタラクティブヒストリーによって生成されるナビゲーションプロセス履歴および知識マップをベースに、学習者が訪問した Web ページで学んだコンテンツを推定・表示する。特に、ナビゲーション文脈に対して適応的に学んだ内容を同定することができるようになっている。さらに、本研究では、リフレクションへの動機付けを与えるために、他の学習者のナビゲーションプロセス履歴との比較を行う機能、および知識マップを学習者自身に書かせる知識外化環境に関する検討も行った。

・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 ］

Inductive Logic Programming for Multiple-Part Data: Applications on Structure-Activity Relationship Studies, *C. Nattee, S. Sinthupinyo, and M. Numao: Transaction of Japanese Society for Artificial Intelligence. 20 (3). 2005. pp. 159--166.

［ 国際会議 ］

Learning First-order Rules from Data with Multiple Parts: Applications on Mining Chemical Compound Data, *C. Nattee, S. Sinthupinyo, M. Numao, and T. Okada: the 21st International Conference on Machine Learning (ICML 2004). Alberta, Canada. July 2004.

Inductive Logic Programming for Structure-Activity Relationship Studies on Large Scale Data, *C. Nattee, S. Sinthupinyo, M. Numao, and T. Okada: International Workshop on Computer Intelligence for Exabyte Scale Data Explosion (CIESDE'05) in conjunction with the 2005 International Symposium on Applications and the Internet. Trento, Italy. January 2005.

A Category-based Self-improving Planning Module, *R. Legaspi, R. Sison, and M. Numao: the 7th International Conference on Intelligent Tutoring System (ITS2004). Alagoas, Brazil. August 2004.

A Multifaceted Self-improving Planner, *R. Legaspi, R. Sison, and M. Numao: the International Conference on Computers in Education (ICCE2004). Melbourne, Australia. November 2004.

Combining Partial Rules and Winnow Algorithm: Results on Classification of Dopamine Antagonist Molecules, S. Sinthupinyo, *C. Nattee, M. Numao, T. Okada, and B. Kijsirikul: the 3rd International Workshop on Active Mining (AM 2004). Kanazawa, Japan. 2004.

MSIP: Agents Embodying a Category-based Learning ess for the ITS Tutor to Self-improve Its Instructional Plans, *R. Legaspi, R. Sison, and M. Numao: the 8th Pacific Rim International Conference on Artificial Intelligence (PRICAI2004). Auckland, New Zealand. August 2004.

Multiple-Instance Learning Based Heuristics for Mining Chemical Compound Structure, *C. Nattee, S. Sinthupinyo, M. Numao, and T. Okada: Joint Workshop of Vietnamese Society of AI, SIGKBS-JSAI, ICS-IPSJ, and IEICE-SIGAI on Active Mining. Hanoi, Vietnam. December 2004.

Partial Rule Weighting Using Single-Layer Perceptron, *S. Sinthupinyo, C. Nattee, M. Numao, T. Okada, and B. Kijsirikul: Joint Workshop of Vietnamese Society of AI, SIGKBS-JSAI, ICS-IPSJ, and IEICE-SIGAI on Active Mining. Hanoi, Vietnam. December 2004.

Preprocessing Planning for Data Mining, *A. Shiro, M. Numao, and C. Nattee: Joint Workshop of Vietnamese Society of AI, SIGKBS-JSAI, ICS-IPSJ, and IEICE-SIGAI on Active Mining. Hanoi, Vietnam. December 2004.

SBSOM: Self-Organizing Map for visualizing structure in the time series of hot topics, *K. Fukui, K. Saito, M. Kimura , and M. Numao: Joint Workshop of Vietnamese Society of AI, SIGKBS-JSAI, ICS-IPSJ, and IEICE-SIGAI on Active Mining. Hanoi, Vietnam. December 2004.

Self-improving Instructional Plans on the Level of Student Categories. *R. Legaspi, R. Sison, and M. Numao: the 4th IEEE International Conference on Advanced Learning Technologies (ICALT2004). Joensuu, Finland. August 2004.

Using Neural Network to Weight the Partial Rules: Application to Classification of Dopamine Antagonist Molecules, *S. Sinthupinyo, C. Nattee, M. Numao, T. Okada, and B. Kijsirikul: Pacific Rim Knowledge Acquisition Workshop (PKAW04). Auckland, New Zealand. 2004.

Multi-Agent Human-Environment Interaction Framework for the Ubiquitous Environment, *S. Kurihara, K. Fukuda, T. Hirotsu, S. Aoyagi, T. Takada, and T. Sugawara: International Workshop on Massively Multi-Agent Systems (MMAS2004).

[国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員]

沼尾　正行	New Generation Computing (エリアエディター)
沼尾　正行	8th Annual Symposium on Japanese-American Frontiers of Science (プランニング･グループ主査)
沼尾　正行	7th Annual Symposium on Japanese-American Frontiers of Science（プランニング・グループ・メンバー）
沼尾　正行	The 4th International Joint Conference on Autonomous Agents and Multi Agent Systems（プログラム委員）
沼尾　正行	The Ninth Pacific-Asia Conference on Knowledge Discovery and Data Mining（プログラム委員）
沼尾　正行	The IEEE/WIC/ACM International Conference on Web Intelligence/Intelligent Agent Technology (プログラム委員)
沼尾　正行	The Nineteenth International Joint Conference on Artificial Intelligence (査読委員)
沼尾　正行	The 8th Pacific Rim International Conference on Artificial Intelligence (プログラム委員)
沼尾　正行	The 22nd International Conference on Machine Learning (プログラム委員)
栗原　聡	The First International Workshop on Agent Network Dynamics and Intelligence (プログラム委員長)
栗原　聡	The Second International Workshop on Biologically Inspired Approaches to Advanced Information Technology (プログラム委員)
栗原　聡	The IEEE/WIC/ACM International Conference on Web Intelligence (プログラム委員)
栗原　聡	The Second International Workshop on Networked Sensing Systems (プログラム委員)
栗原　聡	International Workshop on Massively Multi-Agent Systems (プログラム委員)

[国内学会]

人工知能学会	5 件
電子情報通信学会	1 件

[取得学位]

修士（工学）

佐藤　慶宜	ILP を用いた医療データからの知識発見
菅原　智	旋律に対する個人感性獲得機構

本山　真也　　間隔不定な時系列データからの知識発見
清水　健二　　Web 教材におけるメタ空間での適応的なナビゲーション支援

［ 科学研究費補助金 ］

（代表者として配分されたもの）　　単位：千円

特定領域研究(2)

沼尾　正行	多段階学習方式によるデータ収集と前処理の自動化	8,300

基盤研究(B)(2)

沼尾　正行	データマイニングにおけるデータ収集過程の見習い獲得手法	2,100

高次推論方式研究分野

教授　　元田　浩
助教授　　鷲尾　隆
助手　　大原　剛三
博士研究員　　Chien Phu Nguyen、Alexandre Termier
大学院学生　　足立　史宜、藤本　敦、光永　悠紀、茂木　明
研究生　　陸　洪涛
学部学生　　高林　健登、中西　耕太郎
事務補佐員　　小八木　香奈、岡田　拡子

a ）　概要

推論能力は人間の知的活動の基本である。人間は外在する事実、過去の知見、経験を知識として内的資源に取り込み、推論や学習により新たなものを創造する。しかし、人間の情報処理能力には認知的・生理的な限界がある。そのため少量のデータであれば意味理解などの高度な知的処理が可能であるが、非常に大量のデータから短時間に有意な情報を汲み取ることは不可能に近い。当分野では、一般的な数学的制約や統計的組み合わせ探索機構を用いて、大量データが示す規則性を知識として効率よく発見する手法の研究を行なっている。今年度は専門家とデータからの知識獲得に関する研究、グラフ構造データからの知識発見に関する研究、多様なデータ形式を対象とする検索手法に関する研究、数値データからの時間依存法則式の発見に関する研究、数値属性を有するデータに対する相関規則の導出に関する研究に関し、以下の成果を得た。

b ）　成果

・専門家とデータからの知識獲得に関する研究

一般に、自分が問題解決に使った知識を明示的に記述することは難しいが、具体的な事例に関し、その正当性や非正当性を的確に指摘することは容易である。人間のこのような認知的な特徴を活かした知識獲得法にリップルダウンルール法(RDR)がある。この手法は知識ベースを逐次的に構築する方法で、知識の追加によって新しい問題が解けるようになると同時に、新たな知識の追加によって前に正しく解けた問題が解けなくなるということがないことを保証する。この手法の有効性を高めるため、昨年度までに、以下の主要成果を得ている。

1) すべての知識を使っても答えが出ない場合に使うデフォルト知識に何を選定すべきかについて、最小記述量最大化の原理を提案し、これが種々の知識ベースの構築に有効であることを確認した。
2) 環境変化によって正しくなくなった知識を、知識ベースから効果的に削除する手法について検討し、知識の正しさが刻々変化する動的環境下においても、RDR が知識獲得の有用な手段であることを確認した。
3) 専門家からの知識獲得に加え、多量に蓄積されるデータからの知識獲得手法をも利用可能なように、性質の違う知識獲得法を統合化する手法を新たに開発した。これにより、異種の知識源からの効果的な知識獲得が可能となった。
4) データが来るのを受動的に待つだけではなく、積極的に RDR の方から専門家に質問する機能を追加し、知識獲得の効率化を一層促進する手法を検討し、専門家には生成された事例に対する RDR の判断の是非のみを依頼するだけで自動的に知識ベースに知識を追加する手法を提案した。精度評価を実施した結果、専門家が直接知識ベースに知識を追加する場合と同等の予測精度が得られることを確認した。
5) 環境変化への対応と人間の専門家とデータの両方からの逐次的な知識獲得を統合した解析を実施し、より現実的な状況へ適用可能であることを実証した。
6) 不要な知識の削除機能に加え、汎化能力の向上のための知識の枝刈り機能を追加し、多くのデータ

で、性能を検証した。

本年度は知識源の変更、環境変化への対応の多様な組み合わせに対し、専門家とデータの両方からの知識獲得が可能な場合に、専門家を完全に信用する場合と専門家の知識をデータから得られる情報で修正する場合の効果を比較検討し、後者の方が一般的に良好な性能が得られることを確認した。これで本研究は一段落したものと考える。

・グラフ構造データからの知識発見に関する研究

近年、データ発掘に関して多くの研究があるが、多くは通常の関係データベースを念頭においたものである。複雑なデータ構造に対しても有効な手法はなく、当研究室では、数年前から、一般の知識や概念はグラフ構造で記述できることに注目し、グラフ構造データからの知識発見を種々の観点から試みている。グラフ構造の共起相関に関する厳密解を求める問題は、数学的に非多項式時間でしか解けない難解なものであることが分かっている難しい問題である。昨年度までの成果を以下に要約する。

1) 有向グラフ中に頻繁に現われる特徴的なパターンを隣接する２つのノードを逐次チャンクすることによって発見するグラフに基づく帰納推論 GBI を提唱して来た。この手法を、有向グラフの根ノードを予測するための分離規則の発見が可能なように拡張し、ユーザインターフェイスの一機能であるコマンド予測とWWWサイトのブラウジングログデータ中に頻繁に現われるブラウジングパターンの発見に適用し、良好な結果を得ている。この手法は過剰学習を避けるため枝刈り機能も有している。
2) 記号間の共起相関関係を分析するバスケット分析手法のデータ前処理を工夫することによってサブグラフノードの共起相関関係を分析する手法を開発した。この手法はよく知られている Apriori アルゴリズムに何ら変更を加えることなくグラフ構造データを扱う簡便な手法であるが、各ノードにはそれぞれ別のラベル付けが必要との強い制約がある。
3) グラフを隣接行列で表現し、同型なグラフを正準形に変換するアルゴリズムを考案することにより、上の制約を取り除き、さらに非連結誘導部分グラフ間の共起相関を扱うことができるようにした、新たな手法 AGM を開発した。この手法は、ノードやリンクがラベルを有し自己ループリンクも含むようなもっとも汎用な有向、無向グラフを扱うことができ、かつ GBI のような近似解を求めるのではなく、厳密解を効率よく探索することができる。
4) GBI の汎用性をさらに高めるため、各ノードが多入力多出力で、ループ（自己ループも含む）構造を許す任意のグラフ構造中の特徴パターンを発見できるよう手法を拡張し、人工データで手法の妥当性を確認した。逐次チャンクは近似解法であるため、最適解を保証しないが、グラフの大きさにほぼ比例した計算時間で処理できる特徴がある。
5) AGM のさらなる高速化を図るため、グラフを計算機内部で表現する際のコード表現の拡張、正準形の定義の変更、探索手法の改良など、データ構造やアルゴリズム上の無駄を省く改良を行い、計算速度を数十倍から数百倍に向上させた。実際、これまでの AGM では発ガン性や変異原性を有する化学物質の構造式グラフの分析に膨大な計算時間を費やしていたが、この改良によりある程度実用レベルの時間で処理を行うことができるようになった。
6) GBI の利点を損なうことなく、さらなる性能向上を図るため、チャンキングに用いる指標と更新されたグラフから部分構造を取り出す指標を区別し、非単調性に関する問題を克服した。また、履歴が違うチャンキングの同型性判定を AGM と同様、正準形を用い厳密に評価するようにした。これにより無向グラフ、有向グラフの取扱上の区別を不要にした。さらに、探索にビーム法を採用することにより探索空間を拡大し、重要なパターンの探索もれを減少させた。
7) GBI を肝炎データ解析に適用し、前処理、グラフへの変換、特徴部分グラフの抽出、専門医による評価のサイクルを繰り返し、その中で、チャンキングの方向にバイアスをかけるなど、現場での解析から生じたニーズを組み上げ、手法をさらに改良した。
8) GBI を決定木の各ノードの属性構築に再帰的に使用する、グラフ構造データ向きの決定木構築法(DT-GBI)を提案し、肝炎データの予備解析を実施した。

9) AGM 内部の基本的グラフ表現である隣接行列の要素を、グラフのエッジのラベルを陽に表現可能なように拡張を行った。これによって、グラフノードのみでなくグラフエッジに多様なラベルが付いたグラフの多頻度パターンマイニングを一般的枠組みで高速かつ完全に行うことが可能となった。
10) AGM が多頻度グラフ候補を探索する際に用いる結合探索において、バイアスと呼ぶ制約を加えることによって、誘導部分グラフのみならず、一般部分グラフ及び連結部分グラフの多頻度パターンもマイニング可能な AcGM を開発した。特に連結部分グラフのマイニングは非常に高速な探索を可能にし、実用上のニーズも高い多くの化学物質の生理活性相関解析に適用して有用な成果を得た。
11) AGM の上記バイアスをさらに拡張し、部分グラフのみならず、部分順序木、部分非順序木、部分経路、部分系列などの多頻度パターンマイニングが可能な B-AGM を開発した。これにより、AGM の適用領域が飛躍的に拡大した。
12) AGM をグラフの各ノードの３次元座標を反映した多頻度立体部分グラフ構造を完全探索できるよう拡張した。これにより、３次元分子構造と物性の相関関係などの解析が可能となった。
13) 上記 AcGM 及び B-AGM のアルゴリズムを改良し、一層高速なデータマイニングが可能なように改良した。これにより世界最速級のデータマイニングツールを得た。
14) AcGM をオープンフリーソフトとして公開し、社会的成果還元を行った。
15) 複雑なグラフ構造データを柔軟に表現可能な XML 表現言語のサブセット規格である PMML(Predictive Model Markup Language)の標準規格を提案した。現状の各種グラフマイニングツールは、それぞれ固有のグラフ表現を用いており、データや結果共有が困難であった。しかし、この標準規格の提案により、多くのツールやシステムを結合した強力なグラフマイニング環境の実現が可能となった。
16) DT-GBI を用いて肝炎データを解析し、安価で患者に苦痛を与えない血液検査の結果のみから、ある程度の高い精度で、肝硬変の程度の予測、B 型肝炎と C 型肝炎の分類、およびインターフェロンが効くか効かないかの予測に成功した。
17) 部分グラフ同型問題を近似的に解くアルゴリズムを提案した。

本年度は、GBI の問題点であった、１）部分的に重複する複数のパターンの抽出ができない、２）１）に起因して部分グラフが存在するにも関らずチャンキングの順番によっては見つけられないことがある、の２点を解決した、Chunkingless Graph-Based Induction (Cl-GBI) を提案した。また、Cl-GBI を GBI の代わりに用いた決定木構築手法 (DT-ClGBI) を提案し、肝炎データの解析に適用した。一方、上記 B-AGM における部分グラフ探索に関する理論的考察を行い、その一般的完全性を保証する定理証明を得た。また、PMML の標準規格に基づき、グラフ表現言語 GML(Graph Markup Language)を設計し、それに基づいてグラフデータの表現、変換、AGM 解析を行うためのツールをオープンフリーソフトとして公開し、社会的成果還元を行った。

・多様なデータ形式を対象とする検索手法に関する研究

近年の情報革命の中で、計算機内やインターネットにはテキスト文書ばかりでなく、映像や音声、暗号化データ、各アプリケーションプログラムに特化したデータなど、多種多様な形式の膨大なデータが蓄積されるようになっている。この状況の中で、サーチエンジンに代表されるデータ検索システムの多くは、未だに単語キーワードをベースにしたテキスト文書の検索に留まっている。映像や音声など、個々のデータ形式に特化した検索手法も提案されているが、日々生まれる新たなデータ形式に検索手法の開発が追いつけない状態が続いている。当研究室では、テキスト文書に限らず多様なデータを対象に、指定した条件に近いデータファイルを検索する汎用検索手法を開発している。これまでに以下の成果を得ている。

1) 検索対象情報にある種の変換を施すことにより、多様なデータ形式について同じ原理で検索を実行できる枠組みを開発した。
2) 上記変換としては、検索対象情報のバイト列のある程度の変形に関して変換結果が影響を受けにく

い、変換不変性を有する数学的変換として高速フーリエ変換を適用した。

3) この検索原理を、テキストデータファイルを検索対象とするキーワード検索のみならず、バイナリーデータ変換されたワードプロセッサーファイルに対する検索にも適用し、良好な検索性能を確認した。

4) データ検証範囲をより多種類のバイナリーデータ文書ファイルに広げると共に、検索プログラムの更なる高速化改良を行った。類似する数理変換結果を有する部分の冗長な検索を極力省くアルゴリズムを実装することにより検索速度の１桁向上が得られ、実用性を確保できた。

5) 画像など２次元バイナリーデータに関しても同様な原理による検索を行えるように、プログラムの一部を拡張した。本来、汎用な検索手法であるためプログラムの一部の拡張だけで容易に２次元バイナリーデータの検索を良好な性能で実行可能であることを確認した。

今年度も引き続き、上記手法の実用化研究として、大量の不定形文章として送りつけられてくるスパムメールのみを膨大なメールデータから検索し、除去する応用手法の開発実装を産学共同として行った。

・ **数値データからの時間依存法則式の発見に関する研究**

観測値として得られる大量の数値データからデータ間の関係を支配する第一原理法則を、対象領域に依存しない数学的知識のみを用いて発見する方法を追求している。昨年までに、以下の主要成果を得ている。

1) 測定量の尺度の性質や恒等性に関する制約を用いて測定データ間に許される関係式を一般的に求めることに成功し、幾つかの重要な定理を証明し、これに基づき表現された関係式の範囲の中から実験操作可能な系について実際に得られた観測データを説明できる具体的な関係式を求めるアルゴリズムを開発し、それを実装した科学的知識発見システムを構築した。

2) 実験操作系ではなく受動的な観測しか許されない系に関しても第一原理法則式を発見可能な手法を確立している。

3) 同一現象に関する異なる数量の観測データと各観測数量が有するスケールタイプの情報から、より信憑性の高い法則式を求める手法の開発を行った。

4) 受動的な観測しか許されない場合に、観測データから連立方程式で表される複雑な法則式モデルを発見する手法の開発を行った。連立方程式の制約構造が有する数学的不変性、対称性、束構造を明らかにし、データだけから対象が何本の方程式で表され、かつ何れの数量が何れの方程式に現れるかを知ることのできる原理を確立した。その原理に基づいて、計算機が自動的にデータから連立方程式法則モデルを導くアルゴリズムの確立、実装を行った。そして、プロセスプラントや社会現象から得られるデータを用いて、実際に正しいモデルを発見できる能力を確認した。

以上の研究は、すべて時間情報を含まない瞬間的な対象状態に成立する法則式の発見手法である。これに対して、今年度は時系列観測データなど対象の時間依存ダイナミクス情報を含むデータから、それを支配する法則式として満たすべき数学的制約に従う微分方程式を発見する手法の開発に取り組んだ。微分法則方程式の条件、その探索原理の検討を行い、原理的見通しを得た。

・ **数値属性を有するデータに対する相関規則の導出に関する研究**

従来、記号属性のみからなるデータ中で共起する記号組合せパターンやそれら相互の生起関係を表す相関規則を効率的かつ完全に探索する手法として、バスケット分析が用いられている。しかしながら、現実の多くのデータは記号属性に留まらず数値属性データやその記号属性との混合によって構成されている。そのため、数値属性も含めてデータ中で共起する組合せパターンやそれら相互の生起関係を表す相関規則を効率的かつ完全に探索できれば、バスケット分析の適用範囲は飛躍的に拡大し、かつそこから多くの実際的成果が得られると期待される。この問題に関連するものとして、昨年度までに以下の成果を得ている。

1) 数値属性の値を離散化して記号属性とする前処理を施し、データ全体を記号属性データのみからな

るものに変換し、それに従来のバスケット分析を適用する。この前処理の開発によって、数値属性が含まれるデータに関しても、一定の粗さの下でデータ中で共起する組合せパターンやそれらの相関規則を導出できることを確認した。

2) 上記の方法では、数値属性を前処理で離散化することによって、数値本来が持つ詳細な情報が本解析の前に粗視化されてしまい、解析精度の低下や本来存在するはずの相関規則を見逃してしまうという問題点があった。そこで、数値属性を離散化せずに、そのまま数値属性データの共起関係を探索可能なように、属性空間の次元増加に対して単調にデータ数が減少するデータ密度基準により相関規則を導出するバスケット分析手法の原理を確立した。

今年度は、上記の単調データ密度基準に基づく相関規則導出をプログラム実装し、定量的相関規則を導出するバスケット分析ツールを開発し、その性能検証を実施した。更にこの定量的相関規則を用いて、データクラスの高精度分類予測が可能な分類学習手法を開発し、そのプログラム実装及び性能検証も行った。これらの結果、数値属性を有するデータに対する相関規則の導出、分類手法の高い実用性が確認された。

［ 原著論文 ］

Adaptive Ripple Down Rules method based on minimum description length principle, T. Yoshida, T. Wada, H. Motoda and T. Washio: Intelligent Data Analysis, 8 (2004)239-265.

多頻度グラフマイニング手法の一般化，猪口明博，鷲尾　隆，元田　浩：人工知能学会論文誌，19[5]（2004）368-378.

記述長に基づく適応的 Ripple Down Rules 法，吉田哲也，和田卓也，元田　浩，鷲尾　隆：人工知能学会論文誌，19[6]（2004）460-471.

Density-Based Spam Detector, K. Yoshida, F. Adachi, T. Washio, H. Motoda, T. Homma, A. Hakashima, H. Fujikawa and K. Yamazaki: IEICE Trans. Inf. & Syst., E87-D[12] (2004) 2678-2688.

A selective sampling approach to active feature selection, H. Liu, H. Motoda and L. Yu: Artificial Intelligence, 159[1-2] (2004) 49-74.

［ 解説、総説 ］

データマイニング実践家達の声：第１回　データマイニング実用化：概観と展望，鷲尾　隆：人工知能学会誌，19[3] (2004) 373-375.

［ 国際会議 ］

Compact Dual Ensembles for Active Learning, A. Mandvika, H. Liu and *H. Motoda, The 8th Pacific-Asia Conference on Knowledge Discovery and Data Mining (PAKDD-04), Sydney, Australia, May 26-28, 2004.

Preliminary Analysis of Interferon Therapy by Graph-Based Induction, *T. Yoshida, W. Geamsakul, A. Mogi, K. Ohara, H. Motoda, T. Washio, H. Yokoi and K. Takabayashi, The Third International Workshop on Active Mining (AM-2004), Kanazawa, Japan, Jun.1, 2004.

Application of DT-GBI to Promoter and Hepatitis Datasets, *H. Motoda, T. Yoshida, K. Ohara, W. Geamsakul, T. Washio, H. Yokoi and K. Takabayashi, Workshop on Knowledge Discovery in BioMedicine, Auckland, New Zealand, Aug.10, 2004.

Constructing Compact Dual Ensembles for Efficient Active Learning, A. Mandvika, H. Liu and *H. Motoda, The 2004 Pacific Knowledge Acquisition Workshop, Auckland, New Zealand, Aug.9-10, 2004.

Density-based spam detector, *K. Yoshida, F. Adachi, T. Washio, H. Motoda, T. Homma, A. Nakashima, H. Fujikawa and K. Yamazaki, The 10th ACM SIGKDD International Conference on Knowledge Discovery and Data Mining (KDD-2004), Seattle, USA, Aug.22-25, 2004.

Analysis of Hepatitis Dataset by Decision Tree Graph-Based Induction, *K. Ohara, T. Yoshida, W. Geamsakul, H. Motoda, T. Washio, H. Yokoi and K. Takabayashi, Discovery Challenge 2004, Workshop held in conjunction with the 8th European Conference on Principles and Practice of Knowledge Discovery in Databases (PKDD-2004), Pisa, Italy, Sep.20, 2004.

Using a Hash-Based Method for Apriori-Based Graph Mining , *P. C. Nguyen, T. Washio, K. Ohara and H. Motoda, The 8th European Conference on Principles and Practice of Knowledge Discovery in Databases (PKDD2004), Pisa, Italy, Sep.20-24, 2004.

Consumer Behavior Analysis by Graph Mining Technique, *K. Yada, H. Motoda, T. Washio and A. Miyawaki, The 8th International Conference on Knowledge-Based Intelligent Information and Engineering Systems, Wellington, New Zealand, Sep.22-24, 2004.

Constructive Inductive Learning based on Meta-Attributes, *K. Ohara, Y. Onishi, N. Babaguchi and H. Motoda, The 7th International Conference on Discovery Science, Padova, Italy, Oct.2-5, 2004.

Analysis of Hepatitis Dataset by Using Cl-GBI, A. *Mogi, P. C. Nguyen, K. Ohara, H. Motoda and T. Washio, Joint Workshop of Vietnamese Society of AI, SIGKBS-JSAI, ICS-IPSJ and IEICE-SIGAI on Active Mining, Hanoi, Vietnam, Dec.4-7, 2004.

Cl-GBI: A Novel Strategy to Extract Typical Patterns from Graph Data, *P. C. Nguyen, K. Ohara, H. Motoda and T. Washio, Joint Workshop of Vietnamese Society of AI, SIGKBS-JSAI, ICS-IPSJ and IEICE-SIGAI on Active Mining, Hanoi, Vietnam, Dec.4-7, 2004.

Knowledge Discovery from Consumer Behavior in an Alcohol Market by Using Graph Mining Technique, *M. Kuroda, K. Yada, H. Motoda and T. Washio, Joint Workshop of Vietnamese Society of AI, SIGKBS-JSAI, ICS-IPSJ and IEICE-SIGAI on Active Mining, Hanoi, Vietnam, Dec.4-7, 2004.

Extension of Basket Analysis and Quantitative Association Rule Mining, *T. Washio, A. Fujimoto and H. Motoda, Joint Workshop of Vietnamese Society of AI, SIGKBS-JSAI, ICS-IPSJ and IEICE-SIGAI on Active Mining, Hanoi, Vietnam, Dec.4-7, 2004.

Scientific Discovery of Dynamic Hidden States and Differential Law Equations, *F. Adachi, T. Washio and H. Motoda, Joint Workshop of Vietnamese Society of AI, SIGKBS-JSAI, ICS-IPSJ and IEICE-SIGAI on Active Mining, Hanoi, Vietnam, Dec.4-7, 2004.

［ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ］

元田　浩　Intelligent Data Analysis: An International Journal（編集委員）
元田　浩　Advanced Engineering Informatics（編集委員）
元田　浩　International Journal of Human-Computer Studies（編集委員）
元田　浩　Knowledge and Information Systems: An International Journal（編集委員）
元田　浩　Discovery Science Conference（運営委員会委員長）
元田　浩　Algorithmic Learning Theory Conference（運営委員会委員）
元田　浩　Pacific-Asia Conference on Knowledge Discovery & Data Mining（運営委員会委員長）
元田　浩　Pacific Rim International Conference on Artificial Intelligence（運営委員会委員）
元田　浩　The 8th International Conference on Discovery Science（会議長）
元田　浩　The 9th Pacific-Asia Conference on Knowledge Discovery & Data Mining（会議長）
元田　浩　The 15th International Conference on Inductive Logic Programming（プログラム委員）
元田　浩　The 5th IEEE International Conference on Data Mining（プログラム委員）
元田　浩　The 11th ACM SIGKDD International Conference on Knowledge Discovery and Data Mining（プログラム委員）
元田　浩　The 10th International Conference on Rough Sets, Fuzzy Sets, Data Mining, and Granular Computing（プログラム委員）
元田　浩　The 16th European Conference on Machine Learning ECML（プログラム委員）
元田　浩　The 9th European Conference on Principles and Practice of Knowledge Discovery in Databases PKDD（プログラム委員）
元田　浩　The 22nd International Conference on Machine Learning（プログラム委員）
元田　浩　The Symposium on Abstraction, Reformulation and Approximation（プログラム委員）
元田　浩　The 9th Pacific-Asia Conference on Knowledge Discovery & Data Mining（プログラム委員）
元田　浩　International Workshop on Feature Selection for Data Mining Interfacing Machine Learning with Statistics（プログラム委員）
鷲尾　隆　Special Issue on Mining Graphs, Trees and Sequences (MGTS), Journal of Fundamental Informatica（編集委員）
鷲尾　隆　The 2004 Pacific Rim Knowledge Acquisition Workshop (PKAW2004)（プログラム委員）
鷲尾　隆　Second International Workshop on Mining Graphs, Trees and Sequences (MGTS-2004)（プログラム委員長）
鷲尾　隆　3rd Workshop on Multi-Relational Data Mining(MRDM04)（プログラム委員）
鷲尾　隆　The Fourth Asia-Pacific Conference on Web Intelligence (WI-2004)（プログラム委員）
鷲尾　隆　Joint Workshop of Vietnamese Society of AI, SIGKBS-JSAI, ICS-IPSJ and IEICE-SIGAI on Active Mining（プログラム委員長）

［ 国内学会 ］

人工知能学会	7 件
日本行動計量学会	1 件
日本薬学会	1 件

[取得学位]

修士（工学）

藤本　敦　　数値バスケット分析手法の開発に関する研究

[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

特定領域研究

元田　浩	「情報洪水時代におけるアクティブマイニングの実現」の推進と評価	11,400
元田　浩	構造データからのアクティブマイニング	13,400

基盤研究（B）（２）

元田　浩	複雑な知識構造を有すデータからの有意属性の帰納的構築手法の開発	6,700
鷲尾　隆	３次元グラフ構造マイニング手法とそれに基づく生理活性分子部位同定システムの開発	6,700

萌芽研究

鷲尾　隆	多様な形式データからの特徴抽出に基づく一元的検索手法の開発	900

若手研究（B）

大原　剛三	個人適応に基づく領域適応型データマイニングシステムの開発	1,600

特別研究員奨励費

A. Termier	構造データからのパタン発見に関する効率的で大規模化可能なアルゴリズムに関する研究	1,200

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

- トパキノン含有銅アミン酸化酵素の触媒機構：還元的半反応におけるプロトントンネリングの実証
- 心肥大化シグナル伝達機構に関わる ENH1-PKCε-PKD1 複合体の分子細胞生物学的研究
- 神経軸索誘導関連タンパク質 FEZ1 と同ホモログ FEZ2 の構造と機能に関する研究
- ピンポイントドラッグデリバリーを目指した中空バイオナノ粒子の開発
- 微小凹凸構造上への巨大リポソームの吸着特性の解明
- V-型 ATPase の分化に伴う細胞内局在のダイナミクス
- V-型 ATPase のインスリン分泌における機能の研究
- トランスポゾンと相同組換えを利用した遺伝子改変マウス作成の高効率化
- 大腸菌主要異物排出トランスポーターAcrB の X 線結晶構造決定
- 異物排出装置の作動機構解明に向けた AcrB の結晶構造に基づく系統的部位特異変異導入と解析
- 大腸菌のインドールによる異物排出蛋白質誘導機構の解明
- Quorum sensing を中心とした異物排出蛋白質制御ネットワークの全貌解明
- 新規 ABCA ファミリー遺伝子 ABCA5 ノックアウトマウスの解析
- 血小板からのスフィンゴシン１リン酸排出機構の立証と、血小板特異的に発現する排出トランスポーターのクローニング
- マウス新規 RND 型トランスポーターの探索とクローニング

生体触媒科学研究分野

教授　　谷澤　克行
助教授　　黒田　俊一
助手　　立松　健司
学振特別研究員　　鈴木　健二、Andrés D. Maturana、山田　忠範
博士研究員（受託）山崎　智子、植田　淳子、鄭　周姫
研究支援員（COE）出射　真奈
研究支援員（JST）長尾　節子、前川　圭美、松下　葉子
大学院学生　　岩田　美紀、良元　伸男、小野　和利、朴井　伸行、生田　潤子、村川　武志、
　　三浦　健（2004.7 まで）、石田　麻沙美、粕谷　武史、谷　美濃生
事務補佐員　　村田　真由美

a ） 概要

当研究分野では、広く生化学、分子生物学、細胞生物学などの立場から、生命現象を担う種々の生体機能分子の構造と機能の相関を分子レベルで解明することを目指して研究を行っている。物質代謝やエネルギー代謝を担う生体触媒“酵素”を対象として、活性部位構造や立体構造、触媒反応機構を明らかにするべく研究を展開している。特に、銅アミン酸化酵素のトパキノン補酵素をはじめとして、最近相次いで発見されているアミノ酸残基由来の新規な共有結合型補酵素（いわゆるペプチド・ビルトイン型補酵素）の構造と触媒機能、タンパク質翻訳後修飾による生合成機構の解明に力を注いでいる。一方では、細胞内情報伝達機構において中心的な役割を果たすプロテインキナーゼ群と相互作用する新規なタンパク質の同定とその構造と機能の解析を通じて、シグナル伝達分子の細胞内ネットワークの解明を目指している。また、生体認識分子を提示する中空バイオナノ粒子を用いる細胞及び組織特異的な遺伝子導入法やドラッグデリバリー法の開発を行っている。

b ） 成果

・トパキノン含有銅アミン酸化酵素の触媒機構：還元的半反応におけるプロトントンネリング

銅アミン酸化酵素は自己触媒的な Tyr 残基の自動酸化反応により生成するペプチド・ビルトイン型補酵素、トパキノン（TPQ）と 2 価銅イオンを活性部位に含有し、種々の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、基質アミンによる TPQ の 2 電子還元過程（還元的半反応と呼ぶ）と分子状酸素による還元型 TPQ の再酸化過程（酸化的半反応と呼ぶ）からなる ping-pong 機構で進行する。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を求核攻撃し、カルビノールアミンを経て脱水縮合し、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α-炭素からプロトンが引き抜かれ、生成物-TPQ シッフ塩基（PSB）が形成される。この PSB の加水分解により第一の生成物であるアルデヒドが脱離する。同時に、基質由来のアミノ基がキノン環に結合したアミノレゾルシノール型 TPQ が生成する。この後、還元型 TPQ と分子状酸素との反応により、過酸化水素とアンモニアが生じ、酸化型 TPQ が再生される。このように還元的半反応では、TPQ は SSB を形成することにより基質のα-位炭素周りの電子密度を下げて触媒塩基によるプロトン引抜きを助けていることから、B_6酵素における PALP 補酵素と同様な機能をもつ。一方、酸化的半反応においては、還元型 TPQ から分子状酸素（三重項）へ 2 段階の 1 電子移動が起こるという点で、TPQ はフラビン酵素における FAD と類似の機能をもつと考えることができる。本研究では、土壌細菌 *Arthrobacter globiformis* 由来の銅アミン酸化酵素とその変異型酵素、並びに金属置換型酵素、及びそれらと基質との複合体の結晶構造に基づき、本酵素の触媒機構の解明を目指している。今年度は、還元的半反応の機構をさらに詳細に明らかにするため、α-位水素を立体特異的に重水素化したフェニルエチルアミン、およびチラミンを基質として用い、前定常状態の反応速度定数をストップトフロー法により求めた。嫌気条件下での反応過程を追跡し、この時のスペクトル変化をグローバル解析することにより、各反応素過程

の速度定数を算出した。既に明らかにしているように、還元的半反応における SSB から PSB への変換過程では、基質アミンの pro-*S* のα-位水素が立体特異的に引き抜かれるが、基質の種類（フェニルエチルアミン、チラミン）によってこの過程の重水素同位体効果が大きく異なることが判明した。フェニルエチルアミンの場合には温度依存的に 2～5 の値であったが、チラミンの場合には温度非依存的で 10 以上の大きな値を示した。このような大きな重水素同位体効果は、古典的遷移状態理論だけでは説明できず、チラミンの SSB からのα-位プロトンの引き抜き過程においては、量子力学的プロトントンネリングにより反応が進行する確率が高いと考えられた。このような反応機構の違いは、基質の種類により SSB のα-位水素と活性部位の水素引き抜きを行う塩基（Asp298）との距離が異なることに起因すると推定された。そこで、触媒活性が 10^6 分の 1 に低下した D298A 変異型酵素を用いてフェニルエチルアミンとチラミンに由来する SSB の結晶構造解析を行い、野生型酵素の構造と比較したところ、SSB のα-位水素と Asp298 のカルボキシル基との距離はフェニルエチルアミンよりもチラミンの方が約 0.8 Å 短いことが判明した。従って、酵素に結合した SSB のコンフォメーションのわずかな違いによって生じたこの 0.8 Å の違いが、大きな同位体効果の差に現れたのではないかと考えられる。

・心肥大化シグナル伝達機構に関わる ENH1-PKCε-PKD1 複合体の分子細胞生物学的研究

心筋細胞の肥大化を惹き起こすシグナル伝達経路にはプロテインキナーゼ C（PKC）が深く関与すると考えられており、欧米では PKC 阻害剤は心不全治療薬として臨床応用が検討されている。1996 年に当グループは酵母 Two-Hybrid 法により PKC 結合タンパク質として PDZ-3LIM タンパク質 ENH1（Enigma homologue 1）を同定した。ENH1 mRNA は、ラット成体において心臓および骨格筋特異的に著量発現し、マウス胎仔では発生初期の heart tube に多く発現していた。また、ENH 1 は PDZ ドメインを介して α-actinin と相互作用し、肥大化心筋細胞のサルコメア Z-disc 上に局在した。ENH1 の LIM ドメインは各種 PKC サブタイプと相互作用し、そのリン酸化活性を亢進した。哺乳類 PKC には約 10 種類のサブタイプが存在し、様々な刺激により細胞内の異なる部位で各種基質をリン酸化すると考えられ、その複雑な時空間的制御には PKC 結合タンパク群が重要と考えられている。これらのことから、本研究では心筋細胞の肥大化機構における ENH1 と PKC の相互作用の意義を検討した。まず、酵母 Two-Hybrid スクリーニングにより、ENH1 結合タンパク質としてプロテインキナーゼ D1（PKD1，別名 PKCμ）を見出した。欠失変異体解析では ENH1 の LIM ドメインと PKD1 の触媒領域が強く相互作用した。そこで、ラット新生仔由来心筋細胞を用いて蛍光抗体法により PKD1 の局在を調べたところ、心筋細胞で著量存在し、PKC 活性化剤であるホルボールエステルや、7 回膜貫通型レセプターに作用する心肥大化試薬（アンジオテンシン II、ノルエピネフリン、エンドセリン 1 等）の刺激により、活性化された PKD1 は ENH1 と共に細胞質から Z-disc に移行した。しかし、gp130 レセプターを介する心肥大化試薬（LIF（Leukemia inhibitory factor）等）では PKD1 の活性化と Z-disc 移行は観察されなかった。次に、7 回膜貫通型レセプターから GTP 結合タンパク質 Gq を経てホスホリパーゼＣβを介したリン酸化シグナルによって PKC が活性化する事、*in vitro* で幾つかの PKC サブタイプによって PKD1 が活性化される事が既に知られていたので、心筋細胞ではどの PKC によって PKD1 が活性化されているのか調べるため、ノルエピネフリンで刺激した心筋細胞における PKD1 の活性を PKC 阻害剤及び PKC 不活性型変異体を用いて検討した結果、PKCεが PKD1 を活性化する事が判明した。次に、蛍光抗体法と免疫沈降法により、活性化 PKCε と PKD1 が ENH1 と複合体を形成して Z-disc 上に移行する事を明らかにした。また、心筋細胞に PKD1 不活性型変異体を導入し、心肥大化マーカーである ANF（atrial natriuretic factor）の発現量による肥大化傾向の解析を試みたところ、LIF を除くほとんどの心肥大化シグナルが遮断された。さらに PKCε常活性型変異体または PKD1 常活性型変異体を導入した心筋細胞は肥大化傾向を示した。既に他の研究者により、活性型 PKCεは Z-disc に移行すること、並びに心肥大疾患患者の心臓において PKCεの活性化が顕著であることが報告されており、ENH1-PKCε-PKD1 複合体は、大部分の心肥大化シグナルが関与する極めて重要なシグナル複合体であると考えられた。

・神経軸索誘導関連タンパク質 FEZ1 と同ホモログ FEZ2 の構造と機能に関する研究

プロテインキナーゼζ（PKCζ）結合タンパク質としてラット脳から単離された FEZ1（Fasciculation and Elongation protein kinase Zeta 1）は約 45 kDa のコイルドコイルタンパク質で、線虫の軸索誘導関連タンパク質 UNC-76 と約 63%の同一性を示し、線虫の *unc-76* 変異（行動異常、神経束形成不全）を機能相補することから、UNC-76 の哺乳類オルソログと考えられている。また、FEZ1 と常活性変異型 PKCζを強制発現させた PC12 細胞は有意に神経様突起を伸長することから、FEZ1 は PKCζと協調して哺乳類神経軸索誘導機構において重要な役割を果たすと考えられている。また、FEZ1 は PC12 細胞の神経様突起上でミトコンドリアと共局在することが判明しており、RNAi 実験により FEZ1 は神経様突起の伸長に関与していることも明らかになった。一方、我々はほぼ全ての臓器に存在する約 42 kDa のコイルドコイルタンパク質で、FEZ1 と約 50%、UNC-76 と約 29%の同一性を示す FEZ1 ホモログ FEZ2 を単離同定している。本研究では、FEZ1 と FEZ2 の構造と機能を比較し、両タンパク質の生理的意義の解明を目指している。線虫 *unc-76* 変異株に FEZ2 を強制発現させたところ、FEZ1 と同様に *unc-76* 変異を不完全ではあるが機能相補した。また、PC12 細胞に FEZ2 と常活性変異型 PKCζを発現させると、FEZ1 と同様にＮＧＦ非存在下で神経様突起を伸長させた。さらに、FEZ2 も FEZ1 と同様に PKCζ,α,βI および tubulin、KIF5B（Kinesin superfamily protein 5B）と結合し PKCζによってリン酸化された。以上から、FEZ1 と FEZ2 は生化学的には極めて類似するタンパク質であり、FEZ1 は神経系細胞において PKCζと相互作用して神経束形成・軸索伸長に関与し、FEZ2 はほぼ全ての細胞において類似した機構で細胞の増殖及び分化の制御に関与すると考えられた。

・ピンポイントドラッグデリバリーを目指した中空バイオナノ粒子の開発

遺伝子治療並びにドラッグデリバリーの分野において、標的臓器のみへのデリバリーが非常に重要な課題となっている。このことは副作用の低減といった点で患者の QOL の改善に大きな意味を持つと考えられる。我々はピンポイント遺伝子及び薬剤デリバリーを目指し、新規ベクターである B 型肝炎ウイルス表面抗原粒子に関する研究を行っている。既に、この粒子を用いた個体内におけるヒト肝細胞へのターゲッティングに成功している。そこで、肝細胞以外のさまざま細胞へも導入可能な粒子の開発を検討した。今回は、ヒト肝細胞への認識部位を削除した欠失変異導入粒子を作成し、新たな特異性を付与するために上皮増殖因子(EGF)を提示した粒子の作製を行った。B 型肝炎ウイルスの L タンパク質を遺伝子改変し、3 種類の欠失変異導入タンパク質（Δ21-153, Δ33-153, Δ50-153）並びに、EGF 提示タンパク質の発現プラスミドを構築した。L タンパク質の C 末端部位には、タンパク質薬剤のモデルとして緑色蛍光タンパク質（GFP）を融合し、粒子を可視化した。構築した遺伝子を動物細胞 COS-7 に形質転換することで欠失変異導入粒子、EGF 提示粒子を作製した。次に、得られた粒子をヒト肝癌細胞 NuE 及び EGF レセプターを過剰発現しているヒト上皮癌細胞 A431 に添加し、各粒子のトロピズムを調べた。その結果、50-153 アミノ酸残基を欠損させた粒子において明確にその特異性の改変が認められた。このことより、上皮系細胞へのドラッグデリバリーの可能性が示唆され、さらには、遺伝子治療への応用も可能となると考えられた。

・微小凹凸構造上への巨大リポソームの吸着特性

近年、脂質二分子膜がポーラスアルミナ表面の直径 50nm 程度の穴を“覆う”現象が報告された。この現象は、黒膜（Black Lipid Membrane）に代わる新たなタイプの固定化脂質二分子膜を得るための新原理として注目されている。本研究では、蛍光顕微鏡を用いて微細加工基板上への巨大リポソームの吸着現象を研究した。その結果、数マイクロメーターレベルの比較的巨大な穴でも同様の現象が起こることが明らかとなった。

［ 原著論文 ］

Identification of a Tissue-non-specific Homologue of Axonal Fasciculation and Elongation Protein Zeta-1 (FEZ1), T. Fujita, J. Ikuta, J. Hamada, T. Okajima, K. Tatematsu, K. Tanizawa, and S.

Kuroda: *Biochem. Biophys. Res. Commun.*, 313 (2004) 738–744.

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

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

Expression of Fasciculation and Elongation Protein Zeta-1 (FEZ1) in the Developing Rat Brain, A. Honda, K. Miyoshi, K. Baba, M. Taniguchi, Y. Koyama, S. Kuroda, T. Katayama, and M. Tohyama: *Brain Res. Mol. Brain Res.*, 122 (2004) 89–92.

Over-Expression System for Secretory Phospholipase D by *Streptomyces lividans*, C. Ogino, M. Kanemasu, Y. Hayashi, N. Shimizu, A. Kondo, S. Tokuyama, Y. Tahara, S. Kuroda, K. Tanizawa, and H. Fukuda: *Appl. Microbiol. Biotechnol.*, 64 (2004) 823–828.

［ 解説、総説 ］

Molecular Function of Axonal Guidance-related Proteins, UNC-76/FEZ1/FEZ2, T. Fujita, J. Ikuta, A. Maturana, T. Okajima, K. Tatematsu, K. Tanizawa, and S. Kuroda: *Recent Res. Devel. Biophys. Biochem.*, 4 (2004) 313–320.

Novel Tissue and Cell Type-Specific Gene Delivery System Using Surface Engineered Hepatitis B Virus Nanoprotein Particles, T. Yamada, A. Kondo, M. Ueda, M. Seno, K. Tanizawa, and S. Kuroda: *Current Drug Targets: Infectious Disorders*, 4 (2004) 163–167.

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

中空バイオナノ粒子を用いたピンポイントドラッグデリバリーシステム，山田忠範，妹尾昌治，近藤昭彦，上田政和，谷澤克行，黒田俊一：高分子論文集，61 (2004) 606–612.

［ 特許 ］

「中空ナノ粒子を用いたセンシングツールおよびそれを用いたセンシング方法」谷澤克行、黒田俊一、鄭　基晩、秋山英雄、信正　均：特願 2004-104702.

「レセプター結合性物質のスクリーニング方法」近藤昭彦、黒田俊一、植田充美、石井純、福田秀樹、立松健司、山崎智子：特願 2005-96184（特願 2003-417482 の追加出願）.

［ 国際会議 ］

ENH1 Scaffolds PKD1 and PKCε at Z-Discs, Forming a Signaling Complex that Participates in the Cardiac Hypertrophy (Poster), *M. Iwata, A. Maturana, T. Fujita, K. Tatematsu, T. Okajima, J. Van Lint, K. Tanizawa, and S. Kuroda, 12th International Conference on Second Messengers and Phosphoproteins, Montreal, Canada, August 3–7, 2004.

Interaction of a RING-IBR Protein RBCK1 with Its Splicing Variant RBCK2 (Poster), *N.Yoshimoto, K. Tatematsu, T. Koyanagi, K. Tanizawa, and S. Kuroda, FASEB Conference:

Transcriptional Regulation During Cell Growth, Differentiation and Development, Saxtons River, Vermont, U.S.A., August 14–19, 2004.

Development of Novel Bio-Nanoparticles for Human Tissue-Specific Delivery of Genes and Drugs (Invited), *K. Tanizawa, T. Yamada, A. Kondo, H. Tada, M. Seno, M. Ueda, and S. Kuroda, 17th FAOBMB Symposium / 2nd IUBMB Special Meeting / 7th A-IMBN Conference "Genomics and Health in the 21st Century", The Imperial Queen's Park Hotel, Bangkok, Thailand, November 22–26, 2004.

High Throughput Screening System for Agonist of Human G Protein-coupled Receptor on Yeast Cell Surface (Oral), *K. Tatematsu, T. Yamazaki, J. Ishii, K. Tanizawa, A. Kondo, and S. Kuroda, 3rd Japan-Korea Workshop on Molecular Display, Kobe University, Kobe, Hyogo, July 22, 2004.

Mechanism of α-Proton Abstraction in the Catalytic Intermediate of Bacterial Copper Amine Oxidase (Oral), *T. Okajima and K. Tanizawa, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN 2004), Suita, Osaka, December 6–7, 2004.

Structure-function Studies on a Neuronal Axon Guidance Related Protein FEZ1 and its Homologue FEZ2 (Poster), *J. Ikuta, T. Fujita, A. Maturana, T. Okajima, K. Tatematsu, K. Tanizawa, and S. Kuroda, 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" Third International Symposium 2005, Oku-Biwako Makino Prince Hotel, Shiga, March 9–10, 2005.

Interaction of a RING-IBR Protein RBCK1 with Its Splice Variant RBCK2 (Poster), *N. Yoshimoto, K. Tatematsu, T. Koyanagi, T. Okajima, K. Tanizawa, and S. Kuroda, 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" Third International Symposium 2005, Oku-Biwako Makino Prince Hotel, Shiga, March 9–10, 2005.

Molecular Analysis of Hepatitis B Virus (HBV) Infection Using the L Envelope Protein Fused to Green Fluorescent Protein (GFP) (Poster), *T. Kasuya, A. Uyeda, T. Yamada, T. Okajima, K. Tatematsu, K. Tanizawa, and S. Kuroda, 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" Third International Symposium 2005, Oku-Biwako Makino Prince Hotel, Shiga, March 9–10, 2005.

Mechanism of α-Proton Abstraction in the Catalytic Intermediate of Bacterial Copper Amine Oxidase (Poster), *T. Murakawa, T. Okajima, M. Uchida, Y. Yamamoto, H. Hayashi, K. Tatematsu, S. Kuroda, and K. Tanizawa, 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" Third International Symposium 2005, Oku-Biwako Makino Prince Hotel, Shiga, March 9–10, 2005.

Involvement of a Hypothetical [Fe-S]-binding Protein in the Biogenesis of Quinohemoprotein Amine Dehydrogenase (Poster), K. Ono, M. Tani, T. Okajima, and *K. Tanizawa, 4th European-Japanese Bioorganic Conference (EJBC-4), Hotel Limani, Ushimado, Setouchi, Okayama, March 15–19, 2005.

Spectrophotometric, Kinetic, and Structural Characterization of Catalytic Intermediates of Copper/TPQ-dependent Amine Oxidase (Invited), T. Murakawa, Y.-C. Chiu, Y. Yamamoto, H.

Hayashi, T. Okajima, and *K. Tanizawa, 4th European-Japanese Bioorganic Conference (EJBC-4), Hotel Limani, Ushimado, Setouchi, Okayama, March 15–19, 2005.

［ 国内学会 ］

日本生化学会大会	2 件
日本分子生物学会年会	4 件
日本生物工学会大会	1 件
日本生物物理学会年会	1 件
日本化学工学会	1 件
コロイドおよび界面化学討論会	1 件
ビタミンＢ研究委員会	1 件

［ 取得学位 ］

博士（理学）

岩田　美紀　　心肥大化シグナル伝達機構に関わる ENH1-PKCε-PKD1 複合体の分子細胞生物学的研究

［ 科学研究費補助金 ］

（代表者として配分されたもの）　　単位：千円

特定領域研究（C）（２）

黒田　俊一	標的化分子を提示した中空バイオナノ粒子によるがん特異的遺伝子治療法の開発	6,000

基盤研究（B）（２）

黒田　俊一	神経冠由来細胞分化に関係する２種類の NELL タンパク質のシグナル伝達機構の解明	6,500

特別研究員奨励費

山田　忠範	バイオナノ粒子を用いた遺伝子治療法及びドラッグデリバリーシステムの確立	1,200
Andrés D. Maturana	心肥大化シグナルカスケードにおける PDZ-3LIM タンパク質 ENH1 を含むシグナル分子複合体の役割	1,200
鈴木　健二	表面微細構造を用いた脂質二重層膜の安定化と膜タンパク質の分離精製への応用	1,100
良元　伸男	バイオミサイル分子を用いる細胞内病因タンパク質の選択的除去システムの開発	900

（分担者として配分されたもの）

21 世紀 COE 研究

岩田　美紀	プロテインキナーゼD1とPDZ-LIM蛋白質ENH1が制御する心肥大機構の解明とPKC活性調節蛋白質ENH2を用いた心肥大治療法の開発	500
村川　武志	酵素触媒機構におけるプロトントンネリングのメカニズムの解明	500
生田　潤子	神経軸索誘導関連タンパク質FEZ1ホモログFEZ2の構造と機能に関する研究	500

［ 厚生労働科学研究費補助金（萌芽的先端医療技術推進研究事業）］

（分担者として配分されたもの）

黒田　俊一	ピンポイントデリバリー用バイオナノキャリアの開発とがん遺伝子治	5,000

療への応用

[共同研究]

立松　健司	株式会社バイオリーダースジャパン	乳酸経口ワクチン及び酵母発現用ベクター開発に関する研究	369

[受託研究]

谷澤　克行	農林水産技術会議	キノン型ビルトイン補酵素含有酵素の構造と機能の解析及びデノボデザイン	3,047
谷澤　克行	日本学術振興会	生物学分野に関する学術動向の調査・研究ーポストゲノム時代のバイオサイエンスの新しい潮流を探るー	2,000
谷澤　克行	三菱電機株式会社（NEDO 基盤技術研究促進事業）	ゲノム研究成果産業利用のための細胞内シグナル網羅的解析技術	4,712
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	10,000
黒田　俊一	文部科学省	脳・神経系の総合プロテオミクスプロジェクト（タンパク 3000 プロジェクト）	3,000
黒田　俊一	大阪科学技術センター (経済産業省中小企業地域新生コンソーシアム事業)	コンビバイオによるプロテオーム創薬システムの開発	1,785
黒田　俊一	科学技術振興機構 プラザ大阪育成研究事業	実験動物各臓器や培養細胞に対して遺伝子・タンパク質・薬剤をピンポイントに送達する中空バイオナノ粒子の開発	40,000

[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に関する研究	350
黒田　俊一	財団法人　医科学応用研究財団	ウイルス並みの効率で肝臓特異的に遺伝子や薬剤を送達する事ができる中空バイオナノ粒子を用いたウイルス性肝炎の新しい治療法の開発	1,000
黒田　俊一	財団法人　持田記念医学薬学振興財団	感染細胞及び組織を標的化する中空バイオナノ粒子によるウイルス性疾患治療法の開発	1,000
立松　健司	稲盛財団研究助成金	ユビキチンタンパク質を応用した病原性タンパク質の細胞内分解システム「バイオミサイル」の開発	1,000
藤田　敏次	財団法人　持田記念医学薬学振興財団	神経分泌細胞のホルモン分泌時における遺伝子発現および細胞内シグナル伝達機構の解明	500

生体膜分子学研究分野

助教授　　和田　洋
助手　　孫　戈虹
大学院生　　細川　浩之、加賀田　繁
学部学生　　Eviryanti Agung
技術員　　青山　美奈子、矢澤　千佳子

a ） 概要

哺乳動物は、多種の高度に分化した細胞により構築されている。これらの細胞は形態・機能がそれぞれ特殊に分化し、その細胞に託された機能を協調して遂行することによって、高等生物が示す高次の個体機能を実現している。エンドソーム・リソソーム系のオルガネラは、これらの分化形質の発現に直接的に関与する。これらのエンドソーム・リソソーム系のオルガネラに特異的に局在し、内部を酸性化するプロトンポンプのイソフォーム特異性を解析し、大きな成果を得た。これらのイソフォームの果たす個体レベルでの生理的役割を明らかにするには遺伝子改変生物の創出が必須となる。当研究室で長年培ってきた微生物遺伝学の研究手法を応用することにより、遺伝子改変マウスの作成の高効率化を追求している。

b ） 成果

リソソーム局在型 *a*3 イソフォームが，V-ATPase 複合体のまま，細胞形質膜に局在を変化する「リソソームの分泌」と言うべき現象を発見した．これは，極めて興味深い研究成果であり，破骨細胞などの機能を解明する上で重要な知見である。

遺伝子改変マウス作成の効率化を進めてきた．①大腸菌・ES 細胞両方に薬剤耐性を与える遺伝子カセットの開発：ES 細胞内駆動用 PGK promoter と大腸菌内用の EM7 promoter とのキメラプロモーターを作成し，さらに，ES 細胞内で Neo^r を選択的に除去できるように *flp* recombinase の認識サイトを両端にもつ遺伝子カセットを作成した．②ネガティブセレクションマーカーベクターの改良：ベクターに稀少制限酵素サイトを導入し，ES 細胞に導入する際に直鎖化するのに便利な形に最適化した．③BAC クローンのコピー数のコントロールおよび大腸菌内相同組み換えの活用:これにより 1-2 ヶ月で floxed allele を組み込んだターゲティングベクターを複数構築することができる系を確立した.

［ 原著論文 ］

Regulatory Elements directing Gut-Specific Expression of *GATA6* Gene during Mouse Early Development, G.-H. Sun-Wada, Y. Kamei, Y. Wada, and M. Futai: *J. Biochem.* 135, (2004) 165-169.

［ 解説、総説 ］

Diverse and Essential Roles of Mammalian Vacuolar-Type Proton Pump ATPase: Toward the Physiological Understanding of Inside Acidic Compartments, G. -H. Sun-Wada, Y. Wada and M. Futai: *Biochim Biophys Acta*. 1658 (2004) 106-114.

Proton Pumping ATPases and Diverse Inside-Acidic Compartments, M. Futai, Y. Wada and G. -H. Sun-Wada: Yakugaku Zasshi. 124 (2004) 243-260.

［ 著書 ］

Proton Translocating ATPase: Unique Enzyme Coupling Catalysis and Proton Translocation by Mechanical Rotation, M. Futai, G. -H. Sun-Wada, and Y. Wada, in ATPase Handbook, eds. M. Futai, J. H. Kaplan, J., and Y. Wada, *STM Books, Wiley VCH*, (2004) 235-260.

Vacuolar-Type Proton ATPases:Subunit Isoforms and Tissue-Specific Functions, G. -H. Sun-Wada, Y. Wada, and M. Futai, in ATPase Handbook, eds. M. Futai, J. H. Kaplan, and Y. Wada, *STM Books, Wiley VCH*, (2004) 379-394.

［ 国際会議 ］

Subcellular Localization of V-ATPase Subunit Isoforms (invited). Y. Wada, Experimental Biology 2004, Washington DC, U.S.A., April 16-22, 2004.

Vacuolar-Type Proton Pump ATPases (V-ATPases) and Inside Acidic Organelles/Compartments: Rotational Mechanism and Diverse Physiology (invited), *M. Futai, G-H Sun-Wada, and Y. Wada, Herbsttagung der Gesellschaft fur Biochemie und Molekular Biologie, Munnster, Germany, Sept.19-22, 2004.

Vacuolar-Type Proton ATPase in Osteoclasts: Its Unique Composition, Expression and Localization (invited). *Y. Wada, 1st Meeting of Bone Biology Forum, Shizuoka, Oct. 22-23, 2004.

Multiple Isoforms of Mammalian V-ATPase: Their Specific Subcellular Localization and Function (poster), *Y. Wada, G-H. Sun-Wada, and M. Futai, 17th FAOBMB symposium, Bangkok, Thailand, Nov.22-27, 2004

Simple Strategy to Create Complex Mammalian Targeting Constracts (poster), G.-H. Sun-Wada, M. Aoyama, M. Futai, and Y. Wada, Sanken International Symposium of Scientific and Industrial Nanotechnology -2004, Osaka, Dec. 6-7, 2004

Vacuolar-Type Proton ATPases, Their Unique Roles in Highly Differentiated Cells (poster), *Y. Wada, G-H Sun-Wada, and M. Futai, Sanken International Symposium of Scientific and Industrial Nanotechnology --2004, Osaka, Dec. 6-7, 2004

［ 国内学会 ］

日本生化学会	2 件
日本生化学会近畿支部会	1 件
日本細胞生物学会	1 件
日本生体エネルギー研究会	1 件

［ 取得学位 ］

修士（工学）

細川　浩之　　ATP 合成酵素の回転機構

修士（理学）

加賀田　繁　　酵母液胞変異株を用いた rab7 新規変異アレルの機能解析

［ 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

和田　洋	発生・分化を担うエンドソーム・リソソームのメンブレンダイナミクス	23,800

萌芽研究

和田　洋	マウス遺伝子改変の高効率化：ターゲティングベクターの正確、かつ迅速な構築法	1,500

若手研究（A）

孫　戈虹	プロトンポンプの高次細胞機能の発現と疾病に関する研究	6,890

（分担者として配分されたもの）

特定領域研究（B）（2）

孫　戈虹	生物ナノ・モーターポンプ ATPase の作動	1,000

［ 受託研究 ］

和田　洋	科学技術振興事業団	高効率ナノモーターとしてのプロトンポンプの分子機構解明	530

［ その他の競争的研究資金 ］

和田　洋	科学技術振興事業団	戦略的基礎研究 高効率ナノモーターとしてのプロトンポンプの分子機構解明	5,300

生体情報制御学研究分野

教授	山口　明人
助教授	村上　聡
助手	平田　隆弘
CREST 研究員(PD)	松本　崇
さきがけ専任研究員	西　毅
21 世紀 COE 研究員(PD)	西　晶子
大学院学生	田村　憲久、小林　伸好、平川　秀忠、石橋　史旭、稲角　嘉彦、小林　直木、橋本　聡文、正木　猛、岩田　歩、大東　穂、小林　あすか、柴田　紗貴子
学部学生	千田　靖子、久野　悠
技術員	竹中　ちえみ、佐藤　玲子
技術補佐員	米光　愛子
事務補佐員	西田　真理

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ことが近年注目されてきている。本研究課題では、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、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。その研究内容は大きく３つに区分される。（１）異物排出タンパクの結晶構造解析：異物排出タンパクは、化学構造の大きく異なる幅広い化合物を認識し排出する。そのようなことを可能にする異物認識の分子機構が、基質認識部位のどのような分子構造に支えられているのかはきわめて興味深い未解決のテーマである。この解明は究極的には分子の立体構造を決定することによってしかなされない。私たちは一昨年、細菌の AcrB 多剤排出蛋白質の立体構造決定に世界に先駆けて成功した。これは、異物排出蛋白質として初めてかつプロトン共役型の輸送体としても初の原子レベル立体構造の決定である。１６年度は、立体構造情報に基づいて部位特異変異導入やキメラタンパク質の構築と解析を進め、基質認識部位の同定に向かって前進した。（２）細菌異物排出タンパク遺伝子資源の解析と異物排出タンパク機能と構造に関する分子生物学的解析：我々は推定される異物排出タンパク候補遺伝子の全強制発現クローニングライブラリをもとに、二成分情報伝達系による発現調節ネットワークの解析を進めてきた。１６年度は、とくに細胞間情報伝達と異物排出遺伝子発現調節に注目し、インドールが大腸菌の細胞間情報伝達に重要な働きをしていることを発見すると共に、その異物排出遺伝子発現制御と病原性発現について解析を行った。また、いわゆる Quorum sensing の AI-2 分子の安定誘導体を合成し、AI-2 による異物排出遺伝子発現調節を調べた。さらに、異物排出遺伝子発現抑制因子の探求も行った。（３）動物細胞情報伝達物質分泌輸送系の検索とノックアウトマウスによる解析：エキソサイトーシスによって分泌されるのでない、脂質メディエーターなどの情報伝達物質はどのような経路で分泌されているのか全く不明である。私たちは、これらの情報伝達物質も、異物排出タンパクに近縁の ABC 輸送体によって排出されているに違いないと考え、脳および血小板を材料に新規排出タンパク遺伝子の検索を進め、ノックアウトマウスを作成してそれら遺伝子の生理的役割の解明を目指している。１６年度はノックアウトマウスに関する第一報を出版することができた。

b ）　成果

・異物排出タンパク AcrB の結晶構造解析、AcrB の部位特異的及びランダム変異導入による重要アミノ酸の解析

私たちは一昨年、異物排出タンパク AcrB の結晶構造解析に成功した。これは、異物排出タンパクで初めての結晶構造決定であるのみならず、プロトン輸送と共役する膜輸送タンパク質では初めての構造

決定である。この構造決定によって、初めて溶質の膜輸送が具体的な分子機構に基づいて理解することが可能になり、構造情報と分子生物学的手法による蛋白工学とを組み合わせて輸送機構の全貌解明を目指している。本年度は、AcrB と極めてホモロジーが高いにもかかわらず、基質特異性がやや狭く、代わりに酸性基が一つ多いペニシリン誘導体に高い排出能を示す AcrD とのキメラタンパク質を作成し、AcrB が AcrD 様の性質に転換するために必要な最低限のアミノ酸残基が、一個の Asp→Gly への変換と、３個の Arg 残基の挿入にあることを突き止めた。ところが、驚くべきことに、これらの残基は構造上から当初推定されていた central cavity にはなく、個々のモノマー頭部内部のフェニルアラニンクラスター領域に存在した。これにより、vestibule→central cavity→pore→funnel というこれまでの想定経路ではなく、vestibule から入った基質は、フェニルアラニンクラスター領域で認識され、ポア上部に合流するという経路が有力となった。

基質結合型 AcrB 結晶の構造解析はま成功していないが、少なくとも Yu らが２００３年に Science に報告した central cavity への結合を示す構造は間違っている。私たちの研究室で追試できないだけでなく、M. Poss らもまた独立に 2.7Å解像度で基質結合型結晶の central cavity には基質はないことを示している。当研究室では、部分的に結合基質が見えてきており、それによるとやはり、フェニルアラニンクラスターである可能性が高い。

・細菌の情報伝達による異物排出蛋白質の発現制御ネットワークの解明

我々は、大腸菌のゲノム上にコードされている推定異物排出遺伝子すべての網羅的強制発現クローニングを行い、２０種類が実際に何らかの既存の薬物・毒物を排出する膜輸送タンパク質であることを明らかにした。大腸菌はこのように多数の異物排出遺伝子を持っているにもかかわらず、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 を含む２～３個にすぎない。すなわち、大部分は発現していないか、発現レベルが極めて低い。にもかかわらず、これらのオペロンに隣接して転写抑制遺伝子の存在が確認されているのはわずかに３個に過ぎない。私たちはこれらの異物排出遺伝子が、細菌の環境感知応答システムである二成分情報伝達系により発現誘導されてくることを見出し、発現制御ネットワークを報告している。

本年度はとくに、（１）細胞間情報伝達と異物排出遺伝子発現制御の関連、および（２）異物排出遺伝子発現抑制因子の探索という２つの方向で研究を展開した。まず、（１）細胞間情報伝達については、昨年度インドールが異物排出遺伝子発現を誘導することを見出したが、その制御機構について詳しく解析した。その結果、二成分系を介する誘導と、二成分系とは独立の経路の２通り存在することがわかった。また、インドールによる制御は、菌の生育段階に応じた発現制御、言い換えると定常期での発現を誘導することがわかった。大腸菌には定常期での細胞間情報伝達を担うホモセリンラクトンという情報伝達分子が欠けており、これに代わってインドールが Quorum sensing の第３のオートインデューサーとして働くことが示唆された。もうひとつの対数増殖期で働くオートインデューサー２に関しては、きわめて不安定な物質であるため、その研究が大幅に遅れていたが、私たちはこの安定誘導体を合成し、作用を確認した。それを用いて、オートインデューサー２も異物排出遺伝子制御に関連することを見出した。

（２）異物排出遺伝子抑制因子に関しては、トランスポゾンを用いたランダムノックアウト法で検索を行い、きわめて興味深い遺伝子を発見した。鉄の代謝に関連する遺伝子の発現抑制因子 furR である。この遺伝子を欠損すると、異物排出遺伝子のうち AcrD, MdtABC が特に大きく発現誘導される。また、鉄欠乏状態でも発現誘導されることがわかった。

・脳に発現する新規 ABC 輸送体 ABCA5 のクローニングとノックアウトマウスの解析

我々はマウス脳に発現する新規 ABC 輸送体 ABCA5 をクローニングし、その臓器発現を調べ、脳、精巣に主に発現していることを明らかにしている。その脳における機能を調べるため、ノックアウトマウス作成に成功した。ノックアウトマウスは発育不良であり、多頻度で拡張型心筋症を引き起こして１０から１２週令以降に高頻度で致死となる。心臓以外には甲状腺の崩壊も生じ、また脂肪の蓄積や肝の肥大、

眼球突出などの異常も観察された。ラットリンパ節法により抗マウス ABCA5 モノクローナル抗体を作成し蛋白レベルでの発現解析に成功した。ABCA5 が強制発現細胞内ではリソゾームに局在し、組織においては、脳、肺、心臓、甲状腺で検出され、特に脳内ではオリゴデンドロサイトに分布していることを明らかにした。１６年度はこの成果を Molecular & Cellular Biology に投稿し受理された。

・血小板におけるスフィンゴシン１リン酸の放出輸送体の同定

血小板は、S1P の開裂酵素が欠損しスフィンゴシンのリン酸化酵素の活性が高いため S1P が多量に蓄積している。無刺激時に蓄積されている S1P はトロンビンなどの刺激により血小板の外へと放出される。我々はこの放出反応を詳しく解析し、開口放出によってではなく、膜輸送体により分泌されていることを明らかにした。

［ 原著論文 ］

Effects of Efflux Transporter Genes on Susceptibility of *Escherichia coli* to Tigecycline (GAR-936), T. Hirata, A. Saito, K. Nishino, N. Tamura and A. Yamaguchi: Antimicrob. Agents Chemother., 48 (2004) 2179-2184.

Membrane Protein Crystallization Using Laser Irradiation, H. Adachi, S. Murakami, A. Niino, H. Matsumura, K. Takano, T. Inoue, Y. Mori, A. Yamaguchi and T. Sasaki: Japanese Journal of Applied Physics, 43 (2004) L1376-L1378.

創晶プロジェクト～新しいタンパク質結晶育成技術の開発～、安達宏昭、新納愛、北野博史、村上聡、高野和文、松村浩由、井上豪、森勇介、佐々木孝友、構造生物、10（2004）1-18.

Role of Histone-Like Protein H-NS in Multidrug Resistance of *Escherichia coli*, K. Nishino and A. Yamaguchi: J. Bacteriol., 186 (2004) 1423-1429.

Extramembrane Central Pore of Multidrug Exporter AcrB in *Escherichia coli* Plays an Important Role in Drug Transport, S. Murakami, N. Tamura, A. Saito, T. Hirata and A. Yamaguchi: J. Biol. Chem., 279 (2004) 3743-3748.

［ 解説、総説 ］

精巧な仕組みを持つプロトンポンプ、V 型 ATPase（総説）、横山謙、西毅、蛋白質・核酸・酵素、49（2004）2035-2043.

薬剤排出タンパク質の構造と機能　薬剤耐性化の克服を目指して（総説）、 村上聡、山口明人、 バイオサイエンスとインダストリー、 62（2004）11-16.

［特許］

「高分子結晶の製造方法及び高分子結晶育成装置」北野博史、安達宏昭、特願2004-261541

「温度調節装置およびそれを用いたタンパク質結晶化装置」安達宏昭、佐々木孝友、森勇介、高野和文、井上豪、松村浩由、村上聡、特願 2004-011704

［ 国際会議 ］

Structure and Mechanism of a Multidrug Exporter (Invited), *S. Murakami and A. Yamaguchi, Third 21st Century COE “Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience” International Symposium 2005, Oku-Biwako Makino Prince Hotel, Shiga, Japan, March 9-10, 2005.

Miniaturized Quorum-Sensing Assay of *Pseudomonas aeruginosa* LasR-LasI in *Escherichia coli* system and the Evaluation of 3-oxo-C_{12}-Homoserine Lactone Analogues (Poster), *T. Hirata, A. Kobayashi, H. Hirakawa, M. Horikawa, M. Ishiguro and A. Yamaguchi, Third 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" International Symposium 2005, Oku-Biwako Makino Prince Hotel, Shiga, Japan, March 9-10, 2005.

Analysis of the Mechanism of Proton Translocation through the Integral Vo Domain of the Vacuolar (H^+)-ATPases (Poster), *S. Kawasaki-Nishi, T. Nishi and A. Yamaguchi, Third 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" International Symposium 2005, Oku-Biwako Makino Prince Hotel, Shiga, Japan, March 9-10, 2005.

Indole Sensing Mechanisms that Control Growth phase-dependent Expression of Xenobiotic Exporter Genes (Poster), *H. Hirakawa, A. Kobayashi, T. Hirata, H. Nitta, N. Kato and A. Yamaguchi, Third 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" International Symposium 2005, Oku-Biwako Makino Prince Hotel, Shiga, Japan, March 9-10, 2005.

Structure and Mechanism of Multidrug Efflux Transport Nano-machine (Invited), *S. Murakami and A. Yamaguchi, Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004), ISIR, Osaka Univ., Osaka, Japan, Dec. 6-7, 2004.

Direct Interaction of Multidrug Efflux Transporter AcrB and Outer Membrane Channel TolC Detected by Site-directed Disulfide Cross-linking (Poster), *N. Tamura, S. Murakami and A. Yamaguchi, Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004), ISIR, Osaka Univ., Osaka, Japan Dec. 6-7, 2004.

Studies on the Substrate-recognition Site of Multidrug Efflux Transporter AcrB using AcrB/AcrD Chimera (Poster), *N. Kobayashi, N. Tamura, S. Murakami and A. Yamaguchi, Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004), ISIR, Osaka Univ., Osaka, Japan Dec. 6-7, 2004.

N-Acetylglucosamine as an Inducer for the Expression of Bacterial Multidrug Exporter Genes (Poster), *Y. Inazumi, H. Hirakawa, T. Hirata and A. Yamaguchi, Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004), ISIR, Osaka Univ., Osaka, Japan Dec. 6-7, 2004.

Indole Signaling Induces the Expression of Xenobiotic Efflux Nano-machine via Two-component system-dependent and Independent Pathways (Poster), * H. Hirakawa, T. Hirata and A. Yamaguchi, Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004), ISIR, Osaka Univ., Osaka, Japan Dec. 6-7, 2004.

X-ray Crystallographic Analysis of Multi-drug Efflux Transporter (Invited), *S. Murakami, R. Nakashima, T. Matsumoto, E. Yamashita and A. Yamaguchi, The 8th International Conference on Biology and Synchrotron Radiation (BSR2004), the Egret Himeji, Hyogo, Japan, Sep. 7-11, 2004.

Structure, Function and Regulation of Bacterial Xenobiotic Exporters (Invited), *A. Yamaguchi, Gordon Research Conferences (Bacterial Cell Surfaces), Colby-Sawyer College New London, NH, June 27-July 2, 2004.

Structure of Bacterial Multidrug Efflux Transporter AcrB (Invited), *S. Murakami, R. Nakashima, T. Matsumoto, E. Yamashita and A. Yamaguchi, The Sixth Conference of the Asian Crystallographic Association, Hong Kong University of Science and Technology, Hong Kong, China, June 27-30, 2004.

Up-Regulation of a Drug Exporter Gene, mdtEF, by N-acetyl-D-glucosamine in *Escherichia coli*. (Poster), Y. Inazumi, H. Hirakawa, K. Nishino, *T. Hirata and A. Yamaguchi, American Society for Microbiology 104 general Meeting, Ernest N. Morial Convention Center, New Orleans, LA, United States, May 24-27, 2004.

Regulation of Drug Exporter Genes by Intercellular Signal Molecules in *Escherichia coli*. (Poster), *H. Hirakawa, Y. Inazumi, T. Hirata and A. Yamaguchi, American Society for Microbiology 104 general Meeting, Ernest N. Morial Convention Center, New Orleans, LA, United States, May 24-27, 2004.

Crystal Structure of Bacterial Efflux Protein AcrB (Invited), S. Murakami, *R. Nakashima, E. Yamashita and A. Yamaguchi, International Workshop on Structural Chemical Biology of Membrane Protein Complex Functions. Center for Advanced Science and Technology, Hyogo, Japan, April 19-20, 2004.

［ 国内学会 ］

第77回日本細菌学会総会	3 件
「医療に向けた自己組織化等の分子配列制御による機能性材料・システムの創製」第1回領域シンポジウム	1 件
理研シンポジウム構造生物学(X)	1 件
第77回日本生化学会大会	9 件
第26回生体膜と薬物の相互作用シンポジウム	6 件
第8回SPring-8シンポジウム	1 件
日本結晶学会平成16年度年会	1 件
さきがけライブ2004“たんぱく質関連領域”合同シンポジウム	6 件
21世紀COEプログラム学生若手研究者セミナー	4 件
第27回日本分子生物学会年会	4 件
第42回日本生物物理学会年会	1 件
日本生体エネルギー研究会（JBEG）第30回討論会「膜と輸送とエネルギーと」	3 件
日本薬学会第125年会	3 件

［ 取得学位 ］

学士（薬学）

千田　靖子	大腸菌二成分情報伝達系 EvgSA による遺伝子発現調節機構
久野　悠	外膜チャネル TolC と共役する MFS 型異物排出蛋白 EmrB のトポロジー決定

修士（薬学）

石橋　史旭	大腸菌異物排出蛋白質 AcrB 膜貫通領域への部位特異的変異導入による機能解析
稲角　嘉彦	大腸菌異物排出蛋白質 MdtEF の発現誘導物質探索と発現誘導機構の解析
小林　直木	大腸菌異物排出蛋白質 AcrB/AcrD キメラを用いた基質認識部位の探索
橋本　聡文	新規マウス RND 型膜タンパク質の検索と解析

博士（薬学）
田村　憲久　　異物排出タンパク質の構造と機能に関するタンパク工学的研究

[科学研究費補助金]

（代表者として配分されたもの）　　単位：千円

特定領域研究（B）

山口　明人	アンチポーター型有機物質排出トランスポーターのナノ構造と作動機構	28,900

基盤研究（S）

山口　明人	細菌異物排出タンパク遺伝子資源のポストゲノム解析と新しい耐性機構の解明	26,000

21 世紀 COE

山口　明人	新産業創造指向インターナノサイエンス（異物排出蛋白結晶構造解析）	10,000

特別研究員奨励費

田村　憲久	ポリトピック型膜タンパク質トポロジー形成原理の解明	1,000
小林　伸好	グラム陰性菌初の ABC 型薬剤排出輸送体 MacAB の構造	900
平川　秀忠	環境感知応答システムによる異物排出蛋白質発現制御ネットワークの解明	1,000

[研究助成金]

村上　聡	株式会社リガク		100
西　晶子	上原記念生命科学財団研究奨励金（助成金）	神経細胞での V-ATPase の役割の解明	2,000

[受託研究]

山口　明人	科学技術振興機構 CREST（受託）	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	6,500
村上　聡	科学技術振興機構 さきがけ研究 21(受託)	薬剤耐性化問題の克服を目指した多剤排出蛋白質の薬剤認識機構の解明とその応用	1,300
平田　隆弘	農業技術研究機構（受託）	大腸菌の薬剤耐性獲得に関する分子制御機構解明	3,000
西　毅	科学技術振興機構 さきがけ研究 21(受託)	組織特異的なアイソフォームの関与する新しい細胞内ネットワークの解明	1,000
村上　聡	文部科学省・タンパク 3000 プロジェクト	蛋白質の個別的解析プログラム（脳・神経系）	1,600

（上記の他に分担者として配分されたもの）

山口　明人	科学研究費補助・COE 形成基礎研究費	高次機能調和材料創成の原子・分子プロセッシング	850

[その他の競争的研究資金]

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	62,500
村上　聡	科学技術振興機構 さきがけ研究 21	薬剤耐性化問題の克服を目指した多剤排出蛋白質の薬剤認識機構の解明とその応用	15,450
西　毅	科学技術振興機構 さきがけ研究 21	組織特異的なアイソフォームの関与する新しい細胞内ネットワークの解明	8,840
村上　聡	産業技術総合開発機構 「NEDO」産業技術研究助成金事業	フェムト秒レーザーによる膜蛋白質の結晶化とその加工システムの開発	3,000

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、γ線や自由電子レーザーなどの光量子ビームと、電子線、陽電子線、ミューオンビームやイオンビームなどの荷電粒子ビーム、ならびに中性子ビーム等多くの種類がある。量子ビーム科学は放射線科学から発展して来た研究領域であるが、近年著しく発展しつつある新しい高輝度・高品質の量子ビームの発生・制御・計測の研究と、この新しい量子ビームが物質中で引き起こす基礎過程の研究、ならびにこの量子ビーム誘起現象の正確な理解に基づいた物質科学への応用に関する研究を行う。

量子ビーム科学研究部門は、量子ビーム発生科学研究分野と量子ビーム物質科学研究分野より構成される。量子ビーム発生科学研究分野では量子ビーム発生の主要な装置である加速器に関する研究とそれに基づいた新しい量子ビームの発生や制御ならびに計測の研究を行い、量子ビーム物質科学研究分野では量子ビーム誘起現象を解明する基礎研究と、その物質科学への応用、すなわち新しい機能性材料や極限材料等の物質創製と応用に関する基礎研究を行う。両者は量子ビームの発生とその物質科学への応用という観点で密接な関係を持ち研究を進める。さらに当部門は放射線実験所との密接な協力のもとに国立研究所等とは視点の異なる大学の特徴を活かした先端的な研究を行う。また、近年、新しい種類の高輝度・高品質ビームの発生や物質科学へのビーム応用が行える多くの加速器が国内外で開発・建設されているが、これらの新しい加速器を開発するための共同研究や加速器からのビームを利用した研究も積極的に進めていく。

成果

- L バンド電子ライナックの大規模改修後、大幅な性能向上を確認、共同利用を再開した。
- エッジ集束ウイグラーと名付けた強い集束力を持つウイグラーの試作機を作製してその特性を評価する研究を行っている。
- タイの放射光光源加速器システム（Siam Photon Source）の性能向上を目指した研究を行っている。四極磁石のコイルに問題が有るのが分かり、状態の悪い 4 個のコイルを交換してビーム寿命をのばすことに成功した。
- 代表的な高分子材料の放射線化学反応を初めて初期過程から系統的に明らかにした。
- フェムト秒電子線パルスとフェムト秒レーザーを同期させた新規のパルスラジオリシスを用いて、2 ピコ秒の時間領域で初めて放射線化学反応を直接観測するのに成功した。
- 半導体の超微細加工の主反応である高感度レジストの光・放射線反応機構を解明した。
- 新規材料であるσ共役系π共役系高分子の物性解明と量子ビームによる高機能化を行った。
- 高分子のイオン照射効果の実験に基づいて、架橋・分解の理論の見直しを行った。
- 低速陽電子を用いて、高分子材料の機能発現機構の解明と高機能化の研究を行った。

量子ビーム発生科学研究分野

教授　　磯山　悟朗
助教授　　加藤　龍好
助手　　池田　稔治、柏木　茂
大学院学生　　井合　哲也、岡本　主税、野田　孝典、古林　健司、楳園　秀士
学部学生　　金光　崇徳

a ） 概要

粒子加速器は基礎科学から産業まで広く利用されている。当研究分野は、高輝度電子ビームや光、陽電子ビームなど量子ビームの発生という観点から加速器をとらえて研究している。加速器は人工物であるが、極限性能を追求すると非線形性や集団運動などの興味有る物理の基本問題が現れる。新しい量子ビームは人が見る事の出来る世界を広げるので基礎研究から応用まで広い範囲の利用が期待できる。具体的には、電子線形加速器による高エネルギー・高輝度電子ビームの発生とそれに伴う電子ビームのダイナミクスの研究や線形加速器からの電子ビームを用いて赤外からミリ波までの自由電子レーザー（FEL）の実用化へ向けての開発研究、X 線レーザーを実現する有力な手法と期待されている SASE（Self-Amplified Spontaneous Emission）の赤外領域での基礎研究を行っている。これに加えてタイ国立放射光科学研究所と光源加速器に関する共同研究を行っている。

b ） 成果

・L バンド電子ライナックの立上げ

平成 14 年度に始めた L バンド電子ライナックの大規模改修が完了した後、平成 15 年 10 月から本格的な試験運転を行なってきた。平成 16 年度まで残された課題のうち最も深刻な問題は、クライストロンから出力される RF パワーに細かい不規則な変動が観測されることであった。この原因を究明するためクライストロンを含むマイクロ波の全回路を調べたが、原因を特定することが出来なかった。平成 16 年度当初に、新しいマイクロ波源とタイミングシステムの準備が出来て、従来使用していたシステムと交換したところ、RF パワーの変動は無くなった。これより、原因が古いマイクロ波源に有ったことが分り、この問題は解決した。マイクロ波の立体回路で、従来から放電の問題があったバンチャー用移相器を新たに製作した物と交換した。加速器用計算機制御システムの機能と性能向上を目指した改良を引き続き行なった。その結果、L バンドライナックの立上げと停止を含む運転を専門家でない一般の利用者が出来る基盤が整った。L バンドライナックの大規模改修で目指した性能の幾つかは未だ実現されていないが、電子ビームの安定性と運転の再現性が改造前と比べ格段に向上した。L バンド電子ライナックの立上げが終了し、共同利用実験を開始した。

・遠赤外領域での SASE の基礎研究

高エネルギー電子がウイグラー中で発生する自発放射を種として、増幅型自由電子レーザーを用いて大パワーのコヒーレント光を発生する過程を SASE (Self-Amplified Spontaneous Emission)と呼ぶ。光共振器を使用しない FEL であるので、X 線レーザーを実現する有力な候補と考えられている。我々は、L バンドライナックで加速する大強度の単バンチビームと既存の FEL 装置を用いて SASE の基礎研究を赤外線領域で行っている。産研の SASE は、光パワーがウイグラーの周期数に対し指数関数的に増大する領域で動作している。この指数関数領域では SASE のパワーは電子ビームの変動に対して非常に敏感である。他方、SASE のパワーは、電子バンチ内に発生するコヒーレントフォトンの数が少ないために、原理的に統計変動する。新生 L バンドライナックを用いて SASE の発生実験を行い、自己回帰モデルを用いて SASE 固有の変動と、電子ビームの変動に起因する変動を分離する研究を開始した。改造前のライナックを用いた実験では、電子ビームの変動が SASE パワーの変動に大きく寄与していたことが分った。

・SASE 用高性能ウイグラーの開発研究

電子ビームに強い集束力を与えてビームサイズを絞り、SASE の増幅率を高める新しい型のウイグラーを高エネルギー加速器研究機構の挿入光源グループと共同で開発している。このウイグラーは磁石のエッジ集束を利用した Halbach 型ウイグラーであり、エッジ集束ウイグラーと名付けた。5 周期のモデルウイグラーを試作して、磁場測定を行いその特性を評価した。ウイグラーの磁場分布を、ウイグラー磁極ギャップを変えて測定し、測定した磁場分布から電子ビームに集束力を与える磁場勾配を計算で求めた。ウイグラーのピーク強度を含む磁場分布は、3 次元磁場計算値とよく一致した。これによりエッジ集束ウイグラーのアイデアを実証することが出来た。磁場勾配の計算値は、ウイグラー周期長の半分の周期長で変動するが、測定値は、更にこの倍の周期長、即ちウイグラー周期長での強度変動が観測され、計算値と比べた相対変動範囲も±10 %近い。しかし、ビーム軸に沿った積分磁場勾配は、計算値とよく一致する。この特異現象は、全てのウイグラー周期に同様に現れているので、系統的な事項が原因と考えられるが、現在のところ原因不明である。

・放射光光源の開発研究

Siam Photon Source と名付けられた放射光光源加速器システムの性能向上に関する研究をタイの国立放射光研究所と共同で進めている。SORTEC より寄贈されたストレージリング四極磁石のコイルに製造上の欠陥があるのが分り、16 台の四極磁石のコイル 64 個を全て新たに製作して交換することにした。ストレージリングから四極磁石を一つ一つ取り外し、コイルを交換した後に再び元の場所に設置し、精密に位置を調整した。コイルの交換後、ストレージリングを問題なく立上げに成功した。ストレージリングのベータトロン関数とエネルギー分散関数を測定して、これらの対称性が回復したのを確認した。その結果、入射効率と貯蔵電流、ビーム寿命が大幅に改善し、最大電流は 200 mA を越え、寿命も 100 mA で 7 時間まで延びた。これをもって、当初の目的である放射光光源加速器の設置と性能向上の研究を達成した。

［ 原著論文 ］

Development of the Edge-Focusing Wiggler for SASE, S. Kashiwagi, A. Mihara, R. Kato, G. Isoyama, S. Yamamoto and K. Tsuchiya: Nucl. Instr. Meth. A528 (2004) 203-207.

Stability Analysis of the RF Linac Based on an AR Model, R. Kato, S. Isaka, H. Sakaki, S. Kashiwagi and G. Isoyama: Nucl. Instr. Meth. A528 (2004) 244-248.

Beam Test of Multi-Bunch Energy Compensation System in the Accelerator Test Facility at KEK, S. Kashiwagi, H. Hayano, K. Kubo, T. Korhonen, S. Nakamura, T. Naito, K. Oide, S. Takeda, N. Terunuma, J. Urakawa: Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2004) 5617-5622.

Bunch Length Monitor Using Two-Frequency Analysis for RF Gun System, Ryunosuke Kuroda, Shigeru Kashiwagi, Kazuyuki Sakaue, Masakazu Washio, Hitoshi Hayano and Junji Urakawa: Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2004) 7747-7752.

［ 解説、総説 ］

逆コンプトン散乱をもちいた X 線発生，黒田隆之助，柏木茂，鷲尾方一：放射線化学会誌 77 (2004) 41-45.

［ 著書 ］

New Synchrotron Radiation Sources, M. Watanabe and G. Isoyama, In X-Ray Spectrometry: Recent Technological Advances, K. Tsuji, J. Injuk, and R.Van Grieken (editors), John Wiley & Sons, Ltd,

(2004) 29-47.

［ 国際会議 ］

The Recent Progress of Siam Photon Laboratory, (Invited) *R. Apiwatwaja, P. Songsiriritthigul, W. Pairsuwan, T. Ishii, G. Isoyama, The 3rd Asian Particle Accelerator Conference, March 22-26, 2004, Gyeongju, Korea, WEM-104.

Beam Stability Improvement of the Siam Photon Source, (Poster) *R. Apiwatwaja, S. Rugmai, S. Rujirawat, N. Sa-nguansak, G. G. Hoyes, W. Pairsuwan, T. Ishii, G. Isoyama, The 3rd Asian Particle Accelerator Conference3, March 22-26, 2004, Gyeongju, Korea, THP-16017.

Upgrade of the L-band Linac at ISIR, Osaka University for Higher Operational Stability, (Oral) *G. Isoyama, Y. Honda, S. Kashiwagi, R. Kato, T. Kozawa, S. Seki, S. Suemine, S. Tagawa, T. Yamamoto, Y. Yoshida, The 3rd Asian Particle Accelerator Conference3, March 22-26, 2004, Gyeongju, Korea, TUM-204.

Femto-second Bunch Length Measurement using the RF Deflector, (Poster) *S. Kashiwagi, K. Kobayashi, R. Kato, G. Isoyama, A. Saeki, Y. Matsui, J. Yang, N. Kudo, M. Washio, H. Hayano, M. Kuriki, The 9th European Particle Accelerator Conference, July 2004, Lucerne, Switzerland, pp.2691-2693.

Present Status of Photo-cathode RF Gun System and its Applications at Waseda University, (Poster) *R. Kuroda, D. Ueyama, M. Kawaguchi, N. Kudo, T. Kuribayasi, T. Saito, K. Sakaue, S. Minamiguchi, R. Moriyama, Y. Hama, K. Hidume, H. Hirama, M. Washio, S. Kashiwagi, J. Urakawa, H. Hayano, X.J. Wang, The 9th European Particle Accelerator Conference, July 2004, Lucerne, Switzerland, pp.2685-2687.

Beam Diagnostics for a Photocathode RF-gun System, (Poster) *K. Sakaue, R. Kuroda, N. Kudo, M. Washio, S. Kashiwagi, J. Urakawa, H. Hayano, The 9th European Particle Accelerator Conference, July 2004, Lucerne, Switzerland, pp.2688-2690.

Analysis of Intensity Fluctuations of SASE using the AR Model, (Poster) *R. Kato, S. Kashiwagi, S. Isaka, C. Okamoto, T. Yamamoto, S. Suemine, G. Isoyama, H. Sakaki, The 26th International Free Electron Laser Conference and 10th FEL Users Workshop, August 29 - September 3, 2004, Trieste, Italy, pp.167-170 (MOPOS30).

First Model of the Edge-Focusing Wiggler for SASE, (Poster) *S. Kashiwagi, K. Kobayashi, T. Noda, R. Kato, G. Isoyama, S. Yamamoto, K. Tsuchiya, The 26th International Free Electron Laser Conference and 10th FEL Users Workshop, August 29 - September 3, 2004, Trieste, Italy, pp.458-461 (TUPOS25).

Upgrade of the L-Band Linac at ISIR, Osaka University for a Far-Infrared FEL, (Poster) *R. Kato, G. Isoyama, S. Kashiwagi, S. Suemine, T. Yamamoto, The 26th International Free Electron Laser Conference and 10th FEL Users Workshop, August 29 - September 3, 2004, Trieste, Italy, pp.462-465 (TUPOS26).

Development of Compact Soft X-ray Source Based on Laser Undulator, (Poster) *R. Kuroda, D. Ueyama, T. Saito, S. Minamiguchi, K. Hidume, M. Washio, S. Kashiwagi, J. Urakawa, H. Hayano, The 26th International Free Electron Laser Conference and 10th FEL Users Workshop, August 29 - September 3, 2004, Trieste, Italy, pp.466-469 (TUPOS27).

Soft X-ray Imaging in a Water Window Region using High Activation Energy Positive Photoresist, (Poster) *R. Kuroda, D. Ueyama, K. Hidume, T. Oka, Y. Hama, M. Washio, S. Kashiwagi, K. Ushida, H. Hayano and J. Urakawa, The 6th International Symposium on Ionizing Radiation and Polymers, September 25-30, 2004, Houffalize, Belgium.

Development of Picosecond Pulse Radiolysis System at Waseda University, (Poster) *M. Kawaguchi, K. Ushida, S. Kashiwagi, R. Kudora, T. Kuribayashi, M. Kobayashi, Y. Hama and M. Washio, The 6th International Symposium on Ionizing Radiation and Polymers, September 25-30, 2004, Houffalize, Belgium.

Present Status of High Quality Beam Facility at Waseda University, (Poster) *M. Washio, H. Kawai, Y. Hama, N. Kudo, M. Kobayashi, T. Kuribayashi, M. Kawaguchi, R. Kuroda, K. Maeda, F. Nagasawa, D. Ueyama, K. Hizume, X. J. Wang, H. Hayano, J. Urakawa and S. Kashiwagi, The 7th Biennial Trombay Symposium on Radiation & Photochemistry, January 7-12, 2004, Mumbai, India.

Operational Stability of the L-band Linac at ISIR, Osaka University, (Poster) *R. Kato, S. Kashiwagi, T. Yamamoto, S. Suemine, G. Isoyama, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, December 6-7, 2004, Osaka, Japan, p.92 (P003).

Development of Edge-Focusing Wiggler for X-ray SASE, (Poster) *Shigeru Kashiwagi, Kenji Kobayashi, Takanori Noda, Ryukou Kato, Goro Isoyama, Shigeru Yamamoto, Kimichika Tsuchiya, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, December 6-7, 2004, Osaka, Japan, p.96 (P007).

[国内学会]

日本加速器学会	10 件
日本放射線安全管理学会	1 件
日本放射光学会	2 件
放射線科学討論会	2 件
日本物理学会	2 件

[取得学位]

修士（理学）

野田　孝典　　SASE に用いる強集束アンジュレーターの開発研究

修士（工学）

岡本　主税　　遠赤外 SASE の出力測定と自己回帰モデルによる出力変動解析

［ 科学研究費補助金 ］

（代表者として配分されたもの）　　単位：千円

萌芽研究

磯山　悟朗	新しい手法による放射光光源加速器の高輝度化	900

量子ビーム物質科学研究分野

教授　　田川　精一
助教授　　山本　幸男
助手　　小林　一雄、佐伯　昭紀
事務補佐員　　木藤　穂 (7 月まで）小嶋　薫（8 月から）
大学院学生　　中野　温郎、佃　諭志、小泉　美子、山本　洋揮、紫垣　匠、土井　雄介、
　　山上　隆平
学部学生　　菅原　秀和
学振特別研究員　寺島　孝武、Anjali ACHARYA

a ）　概要

量子ビーム物質科学研究分野は放射線化学初期過程や照射効果における線質効果の研究、高機能性高分子、マイクロエレクトロニクス用高分子、生体分子に対する光・放射線反応についての研究、及びこれら高分子材料応用のための物性研究を行っている。現在の研究の中心は、１）放射線化学初期過程や照射効果における線質効果　２）非炭素骨格を持つ高分子やπ共役高分子等の高機能性高分子の設計・合成や、量子ビームを用いた電子構造解析・物性評価、放射線誘起反応の研究　３）半導体プロセス中で使用される高分子材料であるレジスト材料の反応解明・制御　４）生体における放射線損傷過程の解明として、活性酸素やラジカル種と生体分子との反応中間体の挙動、電子移動過程　等について研究を進めている。

b ）　成果

・放射線化学初期過程の解明

放射線化学初期過程は、放射線と物質の相互作用の出発点であり、放射線化学反応全体を知る上でも重要である。放射線実験所との共同で、レーザー同期ピコ秒パルスラジオリシス法により、有機凝縮相中におけるラジカル、励起状態、電子などの生成に伴う過渡吸収分光を行い、世界で初めてサブピコ秒の時間領域で起こる反応のダイナミクスを直接観測することに成功した。高分子材料等の過渡活性種の挙動についての研究が進行している。

・芳香族分子の放射線誘起反応の研究

芳香族系高分子は放射線に対する高いエッチング耐性を示し、多くのレジストにおいてベース樹脂として利用されている。このような芳香族系高分子の放射線誘起反応機構を理解することは、次世代ナノリソグラフィ用レジストの開発指針を得るために重要であると考えられる。本研究ではベンゼン、トルエン等の芳香族分子をモデル化合物としてとらえ、ナノ・ピコ・サブピコ秒パルスラジオリシス法、低温マトリクス法により、これらの芳香族分子の放射線誘起反応を解明した。また分子科学的にも重要であるラジカルカチオン種に着目し、このダイナミクスの解明を行った。

・主鎖共役高分子についての研究

飽和高分子ながら分子内に広がった共役系を有すると考えられるポリシラン・ポリゲルマンは、１次元らせん骨格構造をとると考えられ、このらせんの「巻き」を制御することにより、主鎖共役系がダイナミックに変化することを明らかにした。光伝導性や高分子反応等の物理的特性・物理化学反応過程が大きく変化し、高分子骨格のミクロ構造と物性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。

・化学増幅型レジストの反応機構

次世代電子線・X線用レジストとして開発が進められている化学増幅型レジストの放射線反応過程を

パルスラジオリシス法およびX線露光後の分光分析により調べ、酸発生機構におけるイオン分子反応の役割を明確にした。また次世代のリソグラフィー技術であるエキシマレーザー暴露に伴う反応を追跡し放射線による反応との違いを明確にした。

・イオンビーム照射効果の基礎過程

荷電粒子ビームの全く新しい応用形態として、これらビームによる高密度エネルギー付与・励起を利用し、新しいナノスケール素子の形成手法を提案した。特に高分子中にイオンビームが入射した際、飛跡に沿ってトラック構造と呼ばれる非常に高密度の反応中間体集合が形成され、ここでの特殊な物理化学反応から、トラック外部には全く影響を与えずに元の形質を維持したまま、非常に微細な空間領域にのみ新しい微細構造体を形成すると同時に、極めて高度にサイズ・構造制御されたナノ構造集合体の形成に成功した。

・放射線照射による遺伝子損傷の研究

DNA 放射線損傷には直接の DNA のイオン化による直接効果と、溶媒である水分子から生じるラジカルと DNA との反応による間接効果に分類される。実際の細胞に low LET の放射線照射した時、DNA におこる変化の約 40-50 % は直接の DNA のイオン化と考えられており、また直接イオン化により生じることが予想される cluster 化した DNA 損傷は放射線生物にとってきわめて重要と考えられる。しかしながら直接効果における DNA 損傷における特徴（DNA 主鎖の切断、DNA 塩基化学修飾）についてよく分っていない。そこで直接効果のモデル反応として、プラスミドを DNA 試料として用い、乾燥させたプラスミドにγ-線照射し、アガロース電気泳動法により DNA 鎖切断を、HPLC 法電気化学検出法により 8-オキソグアニンの生成を定量した。一重鎖切断および二重鎖切断の G 値は間接効果のそれと比較して大きいことが分った。また DNA の放射線損傷における直接効果におけるモデル反応として、有機溶媒に可溶な DNA の調製法を確立させ、アントラキノンの光増感により DNA 塩基上にホールを生成させその電荷移動過程を時間分解マイクロ波吸収法により測定した。

［ 原著論文 ］

Thermally Dehydration of a Poly(vinyl alcohol) Film Promoted by Diphenyliodonium Trifluoromethanesulfonate: Absorption Spectra and elemental Analysis Results, Y. Yamamoto, and S. Tagawa: Bull. Chem. Soc. Jpn. 77 (2004) 591.

Delocalization of Positive and Negative Charge Carriers on Oligo- and Poly-fluorenes Studied by Low-Temperature Matrix Isolation Technique, Y. Koizumi, S. Seki, A. Acharya, A. Saeki, and S. Tagawa: Chem. Lett. 33 (2004) 1290.

Formation of benzene trimer radical cation in γ-irradiated low temperature 2-methylpentane matrices: M. Todo, K. Okamoto, S. Seki, S. Tagawa: Chem. Phys. Lett.399 (2004) 378

Dynamics of Positive Charge Carriers on Si Chains of Polysilanes, S. Seki, Y. Koizumi, T. Kawaguchi, H. Habara, S. Tagawa: J. Am. Chem. Soc. 126 (2004) 3521.

Activation of SoxR-dependent Transcription in Pseudomonas Aeruginosa, K. Kobayashi and S. Tagawa: J. Biochem. 136 (2004) 607.

Polarized Coloration of Stretched Poly(vinyl alcohol) Films by Heat Treatment. Y. Yamamoto and S. Tagawa: J. Mater. Sci. 39 (2004) 653.

157 nm-Induced Resist Outgassing Studied by Films Thickness Loss and in-situ Quadrupole Mass Spectrometer, Y. Matsui, S. Seki, S. Tagawa, S. Kishimura, and M. Sasago: J. Photopolym. Sci. Technol. 17 (2004) 671.

Adjacent Effect on Positive Charge Transfer from Radical Cation of n-Dodecane to Scavenger Studied by Picosecond Pulse Radiolysis, Statistical Model, and Monte Carlo Simulation. A. Saeki, T. Kozawa, Y. Yoshida, and S. Tagawa: J. Phys. Chem. A 108 (2004) 1475.

Fabrication of Nanowires Using High-Energy Ion Beams. S. Tsukuda, S. Seki, M. Sugimoto, A. Idesaki, S. Tanaka, A. Oshima, and S. Tagawa: J. Phys .Chem. B 108 (2004) 3407.

Dependence of Acid Generation Efficiency on the Protection Ratio of Hydroxyl Groups in Chemica lly Amplified Electron Beam, X-ray and EUV Resists. H. Yamamoto, T. Kozawa, A. Nakano, K.Okamoto, S. Tagawa, T. Ando, M. Sato, and H. Komano: J. Vac. Sci. Technol. B 22 (2004) 3522.

Modelling and Simulation of Chemically Amplified Electron Beam, X-ray and EUV Resist Processes, T. Kozawa, A. Saeki and S. Tagawa: J. Vac. Sci. Technol. B 22 (2004) 3489.

Pulse Radiolysis Study on Proton and Charge Transfer Reactions in Solid Poly(methyl methacrylate), A. Nakano, K. Okamoto, T. Kozawa and S. Tagawa: Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2004) 4363

Effects of Ester Groups on Proton Generation and Diffusion in Polymethacrylate Matrices. A. Nakano, K. Okamoto, T. Kozawa and S. Tagawa: Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2004) 3981.

Proton Dynamics in Chemically Amplified Electron Beam Resists, H. Yamamoto, T. Kozawa, A. Nakano, K. Okamoto, Y. Yamamoto, T. Ando, M. Sato, H. Komano and S. Tagawa: Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2004) L849.

Polymer Screening Method for Chemically Amplified Electron Beam and X-Ray Resists. H. Yamamoto, A. Nakano, K. Okamoto, T. Kozawa and S. Tagawa: Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2004) 3971.

Precise Control of Nanowire Formation Based on Polysilane for Photoelectronic Device Application, S. Tsukuda, S. Seki, A. Saeki, T. Kozawa, S. Tagawa, M. Sugimoto, A. Idesaki, S. Tanaka: Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2004) 3810.

Study of Interfaces in Polymer Bilayers by Slow Positron Beam, Y. Terashima, S. Seki, K. Miyamoto, M. Tashiro, Y. Honda, S. Tagawa: Mater. Sci. Forum 445 (2004) 349.

Inhomogeneous Distribution of Crosslinks in Ion Tracks in Polystylene and Polysilanes, S. Seki, S. Tsukuda, K. Maeda, Y. Matsui, A. Saeki, and S. Tagawa: Phys. Rev. B 70 (2004) 144203

Radiolytically prepared poly(vinyl alcohol) hydrogel containing α-cyclodextrin, Y.

Yamamoto, S. Tagawa: Radiat. Phys. Chem.69 (2004) 347.

Formation of Defect Structures in Au-Polysilane Interfaces Probed by Low Energy Positron Beams, Y. Terashima, S. Seki, M. Tashiro, Y. Honda, S. Tanaka: Solid State Commun. 132 (2004) 641.

［ 総説、解説 ］

ＤＮＡ放射線損傷ー放射線照射直接効果のモデル化ー，放射線化学，小林　一雄、田川　精一：77（2004）25-35.

［ 国際会議 ］

Transient Spectroscopy of Radical Cations of a Variety of Substituted Polysilanes, *S. Seki, T. Koizumi, T. Kawaguchi, H. Habara, and S. Tagawa: 37th Silicon Symposium, Philadelphia, USA, May 20-22, 2004.

Cross-Linked Silicon Based Polymer Nanowire Formation by High Energy Charged Particles, S. Tsukuda, S. Seki, S. Tagawa, and M. Sugimoto: 37th Silicon Symposium, Philadelphia, USA, May 20-22, 2004.

The Dependence of Acid Generation Efficiency on the Protection Ratio of Hydroxy Groups in Che mically Amplified Electron Beam, X-ray and EUV Resists, *H. Yamamoto, A. Nakano, K. Okamoto, T. Kozawa, S. Tagawa, T. Ando, M. Sato, and H. Komano: 48th EIPBN, Sandiego, USA, June 1-4, 2004.

Radiolysis Studies of Benzene: Pico-and Subpicosecond Pulse Radiolysis and γ-Radiolysis at Low Tempaerature, *K. Okamoto, M. Todo, A. Saeki, T. Kozawa, S. Seki, Y. Yoshida, and S. Tagawa: 2004 Gordon Research Conference, Colby College, ME, USA, June 20-25, 2004.

Delocalization of Positive and Negative Charge Carriers on Oligo- and Poly-Fluorenes Studied by Low Temperature Matrix Isolation Technique, *Y. Koizumi, S. Seki, Anjali Acharya, A. Saeki, and S. Tagawa: 2004 Gordon Research Conference, Colby College, ME, USA, June 20-25, 2004.

Charge and Energy Transfer In the Presence of High Concentrated Additives, 2004, A. Saeki, S. Seki, T. Kozawa, S. Tagawa Gordon Research Conference, Colby College, ME, USA, June 20-25, 2004.

Dynamics of Positive Charge Carriers on Si Chains of Polysilanes, *S. Seki, Y. Koizumi, T. Kawaguchi, H. Habara, and S. Tagawa: 2004 Gordon Research Conference, Colby College, ME, USA, June 20-25, 2004.

Nanostructure Fabrication Processes in the Combination of Radiation Chemistry and Nanotechnology (Invited), S. Tagawa*: 2004 Gordon Research Conference, Colby College, ME, USA, June 20-25, 2004.

Present Status of Linac Facility at Osaka University, A. Saeki, S. Seki, T. Kozawa, S. Tagawa, International Symposium on Ultrafast A ccelerators for Pulse Radiolysis, New York, USA, June 25-28, 2004.

Beam Application to Nanotechnology Based On Subpicosecond Pulse Radiolysis, S. Tagawa International Symposium on Ultrafast Accelerators for Pulse Radiolysis, New York, USA, June 25-28, 2004.

Dependence of Acid Yield on Acid Generator in Chemically Amplified Resist for Post-optical Lithography, *A. Nakano, K. Okamoto, Y. Yamamoto, T. Kozawa, S. Tagawa, T. Kai, and H. Nemoto, Microprocess and Nanotechnology Conference2004, Osaka, Japan, October 26-29, 2004.
Potential Cause of Inhomogeneous Acid Distribution, *H. Yamamoto, T. Kozawa, A. Nakano, K. Okamoto, S. Tagawa, T. Ando, M. Sato and H. Komano, Microprocess and Nanotechnology Conference2004, Osaka, Japan, October 26-29, 2004.

Formation of Nanowires Based on π-Conjugated Polymers by High-Energy ion Beam Irradiation, S. Tsukuda, S. Seki, M. Sugimoto, S. Tagawa, Microprocess and Nanotechnology Conference2004, Osaka, Japan, October 26-29, 2004.

Conductivity Measurement of Nano-Structures by Microwave Technique (Poster), *A. Saeki, Y. Ohno, S. Seki, K. Matsumoto, and S. Tagawa: JapanNano 2005, February 21-22, 2005.

Deprotonation Mechanism of Poly(4-hydroxystyrene) and its Derivative (Poster), *A. Nakano, K. Okamoto,Y.Yamamoto, T. Kozawa, T. Kai, H. Nemoto, T. Shimokawa, S. Tagawa: SPIE30th, San Jose, CA, USA, February 27-March 4, 2005.

Basic Aspects of Acid Generation Processes in Chemically Amplified Resists for Electron-Beam Lithography, T. Kozawa and S. Tagawa: SPIE30th, San Jose, CA, USA, February 27-March 4, 2005.

Outgassed Species from Various Triphenylsulfonium Salts during 157 nm, Y. Matsui, S. Seki, S. Tagawa, S. Irie, T. Itani: 4th International Symposium on 157 nm Lithography, Tokyo, Japan, Aug. 25-28, 2003.

Transport Properties of Charge Carries in Single-Walled Carbon Nanotubes by Flash-Photolysis Time-Resolved Microwave Conductivity Technique, Y. Ohno, K. Maehashi, K. Inoue, K. Matsumoto, A. Saeki, S. Seki, S. Tagawa: *Proc. ICPS*-, **27**, 2004

Outgassing Characteristics of Acetal Resists for 157 nm Lithography Investigated by Time-Resolved Measurement, Y. Matsui, S. Seki, S. Matsui, S. Tagawa, S. Irie, T. Itani: Proc. SPIE 5376 (2004) 178.

［ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ］

田川　精一　　13th Microprocess and Nanotechnology Conference (組織委員)
田川　精一　　International Nuclear Conference ’02 (組織委員)

［ 国内学会 ］

日本放射線化学会　　14 件
応用物理学会　　3 件

日本化学会	2 件
日本原子力学会	1 件
日本高分子学会	1 件
リニアック技術研究会	7 件
加速器科学研究会	9 件
日本生化学会	1 件
日本生物物理学会	1 件

[取得学位]

修士（工学）

小泉　美子	オリゴ・ポリフルオレンの合成と骨格上の電荷挙動の鎖長依存性
山本　洋揮	ナノリソグラフィ用化学増幅型レジストの開発研究 ー反応機構に基づいたアプローチー

[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（A）（２）

田川 精一	フェムト秒パルスラジオリシス法によるナノ構造内反応機構の解明	7,200

特定領域研究 (B)（２）

小林 一雄	短寿命活性種をシグナルとするセンサー蛋白質の構造と機能	5,900

若手研究（B）（２）

佐伯 昭紀	電子線加速器を用いた孤立高分子主鎖上での電荷キャリア移動度測定と高機能化	1,300

特別研究員奨励費

寺島　孝武	低速用電子ビームによる高分子薄膜材料中のナノ空隙評価	900
Anjali ACHARYA	マトリックス中に孤立した生体高分子単一分子鎖の伝導特性評価	1,100

[受託研究]

田川 精一	原子力安全基盤調査研究	放射線化学の最先端の研究を基盤とした安心安全の確保のための目に見える線量計材料の開発
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
田川 精一	半導体先端テクノロジー	液浸リソグラフィ用液浸液に関する研究

〔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　　岩崎　裕
事務補佐員　　長谷　真奈美

概要

産業科学ナノテクノロジーセンターは、原子・分子を積み上げ材料を創成するボトムアップナノテクノロジー、材料を極限まで削りナノデバイスを作製するトップダウンナノテクノロジー、ナノスケールデバイス・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リケーションやナノ空間・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、そして平成 16 年度から新たに加わった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。

付属実験室は、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、オープンラボラトリーがあり、プロセスファウンドリーが設置されている。

ナノマテリアル・デバイス研究部門

概要

ナノレベルで機能が調和し、巧みな情報変換・伝達を行い、自らが判断する知能を有する“人工生体情報ナノマテリアル”を創成する。

有機、無機、金属といった従来の枠組みにとらわれず、個々の物質の持つ機能を最大限に利用する方法を確立する。量子効果が支配的となるナノスケールでの物質の性質を評価すること、エネルギー・情報変換、伝達機構を明らかにすること、ナノテクノロジーの１つである原子・分子層制御人工格子形成技術などのボトムアップ技術を駆使し、空間的、エネルギーレベル的に最適な配置・組み合わせを考慮した原子・分子配列を有する材料創製を目指す。

単一分子の物性計測を可能とする合成・測定技術を開発し、単一・少数分子系の新規物理化学現象を開拓する。分子スケールエレクトロニクスを見据えて、単一分子機能が発現する自己組織的デバイス構築に必要な要素技術の確立を行う。

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

タンパク質を中心とする生体素子やその集合体をナノバイオデバイスと位置付け、それらのナノ構造と機能の解析を行う。さらに、ナノバイオデバイスを用いる超高感度バイオセンサーの開発や分子モーターを含むナノマシーンの創製に関する研究などを行う。

成果

・原子・分子層制御結晶成長による生体情報材料人工格子の制御形成
・ナノスケール構造と物性相関の評価
・ナノスケール有機／無機／界面制御
・新規ボトムアップ材料形成装置の開発
・学習・判断機能をもつ脳型メモリ素子の創成
・分子自己集積現象を利用したデバイス形成の研究
・表面化学修飾による選択的微細加工プロセスの開発
・単一分子物性計測
・走査プローブ顕微鏡／走査電子顕微鏡複合装置の開発
・修飾ＤＮＡの合成と組織化によるＤＮＡ分子ワイヤの分子設計
・バイオイメージング用光化学プローブ分子の合成と機能化
・人工タンパクの創製と光による機能制御
・自己組織化によるナノ粒子の創製
・機能性高分子合成と機能化による分子デバイス創製
・ナノバイオデバイスの構造と機能の解析
・超高感度バイオセンサーの開発
・薬剤排出分子ポンプを含むナノマシーンの創製

人工生体情報ナノマテリアル分野

教授　　田畑　仁
助手　　佐伯　洋昌
特任助教授　　Michael Herrmann
特任助手　　松井　裕章
大学院学生　　土井　敦裕、水野　江里子
学部学生　　北川　祐一、鶴田　浩二、爲國　和也
事務補佐員　　池田　恵

a ） 概要

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

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

b ） 成果

・ワイドギャップ酸化物半導体(ZnO)によるスピンエレクトロニクスの開拓

近年、伝導キャリアのみを用いて動作させている半導体に、スピン自由度を付加し、半導体材料のスピン依存伝導に関して、基礎的及び応用的観点から幅広く研究が進んでいる。本研究では、遷移金属(Co)を添加した ZnO の基礎的性質の解明やそのヘテロ構造を作製し、その磁気伝導制御を行うことを目標にしている。強磁性の起源を特定する上で、磁気光学効果を評価することは重要である。Spring-8 BLSU23 で評価した 20K での高エネルギーCoL2,3 端の XMCD（東大・藤森研共同）スペクトルによると、添加した Co 原子は、詳細な計算結果とのフィッティングに基づき４面体の Zn サイト上に２価で置換している。XMCD の結果は、Co 添加 ZnO 薄膜が Co 金属等の他の強磁性不純物相ではなく、４面体に位置付けられた Co^{2+}に起因していることを示唆している。可視･紫外領域における MCD スペクトルによると、1.8eV 付近に Co^{2+}を起源とする d 軌道の中心内遷移が見られ、また、ZnO のバンド端(3.4eV 付近)に強い MCD ピークを観測し、そのピークはヒステリシスの磁場応答性を示した。両者の結果から、Co 添加 ZnO の強磁性の起源は不純物相等ではなく本質的であることを明らかにした。

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

・リラクサー誘電材料から強誘電・強磁性（マルチフェロイック）材料へ展開

緩慢な温度特性及び周波数分散という誘電特性はリラクサー現象と呼ばれ、近年、誘電体材料の分野において基礎的及び応用的観点から注目を集めている。これまでに、本研究グループでは $BaTiO_3$ の Ti^{4+}

サイトを同一価数のZr^{4+}で置換した$Ba(Zr_xTi_{1-x})O_3$におけるリラクサーの誘電特性の研究を遂行してきた。今年度は、同一価数を有する元素置換に起因したリラクサー現象を詳細に探るべく、Ti^{4+}サイトを Hf^{4+}に置換した $Ba(Hf_xTi_{1-x})O_3$ を比較材料として取り上げた。

$Ba(Hf_xTi_{1-x})O_3$ のセラミックスの Hf の添加濃度に対する誘電率の温度依存性は、過去に報告した$Ba(Zr_xTi_{1-x})O_3$ と同様の結果を示した。$BaTiO_3$ への同一価数の元素置換は、リラクサー現象の発現に対して重要な役割を果たす。

次に、リラクサー誘電性に強磁性特性を付加した材料（マルチフェロイック）は、新規な素子や記憶媒体への応用が期待できる。過去の報告から $PbFe_{0.5}(Ta_xNb_{1-x})_{0.5}O_3$ において、リラクサー現象が観測されている。本研究において、環境、人体への配慮から非 Pb 系として、$Ba(Fe,Ta)_{0.5}O_3$-$Ba(Fe,Nb)_{0.5}O_3$ 系を提案する。$Ba(Fe,Ta)_{0.5}O_3$ 薄膜の磁気特性によると、300K で測定した飽和磁化は、薄膜の結晶性と密接に関連し、X 線回折における回折パターンの半値幅の増大に伴い磁化が減少した。これはペロブスカイト構造の B サイトを Fe イオンが不均一に占有していることに関連しており、スピンキャント機構が弱強磁性の起源にあると思われる。一方、誘電測定からリラクサー的な振る舞いも観測された。この結果は、材料探索への足掛かりとして位置付けられる。

・スピネル型およびガーネット型フェライト薄膜における光誘起磁性

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

Al_2O_3(0001)基板上に作製されたスピネル型フェライト $Ni_{0.7}Zn_{0.3}Fe_{1.7}Ti_{0.3}O_4$ 薄膜の磁化－温度曲線によると、スピン凍結温度(230K)以下において光照射に伴うグラス相の融解が観測された。また、この光誘起による磁化の増大は、Ti 濃度に依存している。更に、励起エネルギースペクトルから、Ti^{4+}と Fe^{2+}間の光誘起電荷移動にあることが示唆された。つまり、$Ni_{0.7}Zn_{0.3}Fe_{1.7}Ti_{0.3}O_4$ 薄膜の光誘起磁性は、光照射による Fe イオンの価数変化が、母体の局所的な磁気異方性に影響を与え、クラスターグラスの融解が発現したと考えられる。

次に、$Y_3Al_5O_{12}$(111)基板上に成長させたガーネット型フェライト $Y_3(Fe,Al)_5O_{12}$ 薄膜において、組成や酸素分圧および成膜速度の成長条件の最適化により、室温以上でのスピン凍結温度(400K)を実現した。また、$Y_3(Fe,Al)_5O_{12}$ へ Si^{4+}を添加することによって、光誘起磁性の増大を観測した。これは、Si^{4+}添加によって生成した Fe^{2+}が光照射に伴い再配列し、磁場方向に平行な磁化容易軸を有する一軸異方性を引き起こした。これは、磁化－磁場曲線の測定結果から示唆されている。

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

・IS-FET を利用した DNA センサ

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

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

に起因する現象と考えられる。（本件は JST-CREST 研究の一環として川合教授 G との共同で実施された。）

・DNA ナノパターニング

最近 DNA の様々な物性研究が盛んに行われ、バイオナノデバイスへの DNA の利用が考えられるようになった。この実現のためには DNA を用いてナノパターニングを行う必要がり、そのためのプロセス開発が望まれている。本研究では Poly-L-Lysine のナノパターニングを、ナノインプリント技術を用いて行うことで、自己組織化的 DNA ナノパターニングプロセスの開発を行った。

Poly-L-lysine コートガラス基板上に EB リソグラフィーによってナノパターニングされた $Si0_2$/Si モールドを用いて、6 MPa, 120 ℃, 5 min にてインプリントを行った。その後、100μl（1 μg/μl）の鮭白子 DNA を滴下・乾燥させて UV クロスリンクを行い、このガラス基板を水洗して得た。蛍光色素 YO-PRO-1 にて DNA を染色した後、蛍光顕微鏡にて DNA 観察を行った。

本プロセスにより約 700nm の DNA ナノパターニングを得た。この DNA ナノパターンは、モールドの凸型パターンに沿って得られていることが分かる。これはナノインプリントの高温・高圧条件下において、Poly-L-Lysine が改質されることに起因すると思われる。本プロセスを利用することで、モールドパターンに従った様々な DNA ナノパターンを自己組織化により得ることができる。（本件は JST-CREST 研究の一環として川合教授 G との共同で実施された。）

・トップコンタクト型電極によるナノ構造体材料の電気特性評価

ナノスケールの材料における電気特性の測定を試みている。これまで直流(DC)方法を利用して、ナノギャップ電極及びSPMを利用して調べる方法が行われてきた。 我々は新しい測定技術である、傾斜蒸着法により作製されたナノギャップ電極によって、ナノ構造体材料であるTPPSナノロッドおよびDNAネットワークの電気伝導性測定を試みた。

ナノギャップ電極の使用により、材料の詳細な電気特性を得ることが可能となる。 通常、ナノ-ギャップ電極は電子ビーム(EB)リソグラフィーまたは光リソグラフィーによって作られる。今回我々は産業技術総合研究所の水谷・内藤グループおよび川合研究室の松本グループらにより開発された手法を元に、EBリソグラフィーなしでナノギャップ電極を作製した。基板は、酸化シリコンかサファイアにより角度で制御された蒸着装置を使用した。 本手法により、我々は再現性よくギャップが100nm程度の電極を作成した。

本手法によりトップコンタクト型電極が作製されるため、基板上の構造を維持した状態でその材料の電気特性評価を行うことが可能になった。

［ 原著論文 ］

DNA Nano-Patterning with Self-organization by Using Nanoimprint, T. Ohtake, K. Nakamatsu, S. Matsui, H. Tabata and T. Kawai：J. Vac. Sci. Technol. B, 22 (2004) 3275-3278.

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

Sputtering and Annealing Effect of Sapphire Substrate for an Orientation of Lead Phthalocyanine Films, S. Tabuchi, H. Tabata and T. Kawai : Surface Science, 571 (2004) 117-127.

A Simple Fabrication Method of Nanogap Electrodes for Top-contacted Geometry: Application to Porphyrin Nanorods and a DNA Network, Y. Otsuka, Y. Naitoh, T. Matsumoto, W. Mizutani, H. Tabata and T. Kawai : Nanotechnology, 15 (2004) 1639-1644.

Structural and Multiferroic Properties of $BiFeO_3$ Thin Films at Room Temperature, K. Y. Yun, M.

Noda, M. Okuyama, H. Saeki, H. Tabata, K. Saito : J. Appl. Phys., 96 (2004) 3399-3403.

Immobilization of Probe DNA on Ta_2O_5 Thin Film and Detection of Hybridized Helix DNA by Using IS-FET, T.Ohtake, C. Hamai, T. Uno, H. Tabata and T. Kawai : Jpn. J. Appl. Phys., 43 (2004) L1137-L1139.

Colossal Magnetoresistance in Spinel Type $Zn_{1-x}Ni_xFe_2O_4$, A. K. M. Akther Hossain, M. Seki, T. Kawai and H. Tabata : J. Appl. Phys., 96（2004）1273-1275.

High-Energy Spectroscopy Study of the Ferromagnetic Diluted Magnetic Semiconductor $Zn_{1-x}V_xO$, Y. Ishida, J. I. Hwang, M. Kobayashi, A. Fujimori, H. Saeki, H. Tabata, T. Kawai : Physica B, 351 (2004) 304-306.

Orthorhombic Molybdenum Trioxide Whiskers by Vapor Transport Method, S. Choopun, P. Mangkorntong, P. Subjareon, N. Mangkorntong, H. Tabata and T. Kawai : Jpn. J. Appl. Phys., 4 (2004）L91-L93.

N Doping Using N_2O and NO Sources: From the Viewpoint of ZnO, H. Matsui, H. Saeki, T. Kawai, H. Tabata and B. Mizobuchi : J. Appl. Phys., 95 (2004) 5882-5888.

Characteristics of Polarity-controlled ZnO Films Fabricated Using the Homoepitaxy Technique, H. Matsui, H. Saeki, T. Kawai, A. Sasaki, M. Yoshimoto, M. Tsubaki and H. Tabata : J. Vac. Sci. Technol. B, 22 (2004) 2454-2461.

［ 解説、総説 ］

DNA 自己組織化を利用したナノパターン制御形成　～ボトムアップ半導体ナノテクノロジー～, 田畑仁：SEAJ Journal、92　(2004)　24-27.

DNA と半導体　ナノテクノロジーと融合, 田畑　仁：Bio Clinica、20(1)　(2005)　47-52.

［ 特許 ］

「生体分子に関する形態及び情報を IS-FET を利用して検出する測定法及びシステム」,大竹才人、宇野毅、浜井知歩、田畑　仁、川合知二, 特願 2004-88133

「自己組織化材料または微粒子を基板上に固定化する方法、および当該方法を用いて作製した基板」川合　知二、田畑　仁、大塚　洋一、山田　郁彦、松本　卓也, 特願2004-381549

「自己組織化材料のパターニング方法、及び自己組織化材料パターング基板とその生産方法、並びに自己組織化材料パターニング基板を用いたフォトマスク」大竹才人・田畑仁・川合知二・松井真二・中松健一郎, 特願 2004-287549

［ 国際会議 ］

Relaxor Superlattices. -Ordered-Disordered Control of B-site Ions- (Invited), *H. Tabata, Y. Hotta and A. Doi, The 16th International Symposium on Integrated Ferroelectrics(ISIF 2004), Gyeongju, Korea, Apr. 5-8, 2004

Electric and Magnetic Properties of Hetero and Homo Epitaxial ZnO Films on Sapphire and Polarity Controlled ZnO Single Crystals (Invited), *H. Tabata, AFOSR Zinc Oxide Workshop, Hawaii, USA, May 17-20, 2004

Transparent Magnetic Semiconductors Based on ZnO (Invited), *H. Tabata, H. Matsui and H. Saeki, International Conference on Nanospintronics Design and Realization (ICNDR), Kyoto, Japan, May 24-28, 2004

Strain Effect and Ordered-Disordered Control in $BaTiO_3$-$BaZrO_3$ Relaxor Superlattices, Y. Hotta and *H. Tabata, 5th Korea-Japan Conference on Ferroelectricity, Seoul, Korea, Aug. 18-21, 2004

Construction of ZnO Devices : Electric and Magnetic Properties (Invited), *H. Tabata, S. Masuda, H. Matsui, H. Saeki and T. Kawai, The 12th Gallium Arsenide and other Compound Semiconductors Application Symposium(GAAS 2004), Amsterdam, Netherland, Oct. 11-12, 2004

Non-labeling Detection of DNA Hybridization by IS-FET Devices (Invited), *H. Tabata, T. Uno, T. Ohtake and T. Kawai, International Workshop on Surface-Biotronics, Tokyo, Japan, Oct. 19-20, 2004

Spin and Dipole Glass Behaviors in Perovskite or Spinel Superlattices (Invited), *H. Tabata, Y. Hotta, A. Doi, M. Seki and T. Kawai, The 5th Korea-Japan-Taiwan Symposium on Strongly Correlated Electron Systems, Busan, Korea, Dec. 10-11, 2004

Growth and Impurities Doping of Zn-polar Homoepitaxial ZnO Films on (0001) ZnO, *H. Matsui, H. Saeki and H. Tabata, International Conference on Nanospintronics Design and Realization (ICNDR), Kyoto, Japan, May 24-28, 2004

DNA Nano-patterning with Self-organization by Using Nanoimprint, *T. Ohtake, K. Nakamatsu, S. Matsui, H. Tabata and T. Kawai, 48th International Conference on Electron, Ion, Photon Beam Technology and Nanofabrication（EIPBN 2004）, California, USA, Jun. 1-4, 2004

Fabrication of Nano-gap Electrodes Without Lithography Technique and Electrical Characteristics of Nano Structured Molecules, *Y. Otsuka, Y. Naitoh, T. Matsumoto, W. Mizutani, H. Tabata and T. Kawai, NANO-8(8th International Conference on Nanometer-Scale Science and Technology) , Venice, Italy, Jun. 28-Jul. 2, 2004

Direct DNA Detection Using Ion-sensitive Field Effect Transistors (IS-FETs) Based on Peptide Nucleic Acid, *T. Uno, T. Ohtake, H. Tabata and T. Kawai, The 2004 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM 2004), Tokyo, Japan, Sep. 15-17, 2004

THz Characterization of DNA, *M. Herrmann, H. Tabata, M. Tonouchi, T. Kawai, The Joint 29th International Conference on Infrared and Millimeter Waves and 12th International Conference on Terahertz Electronics(IRMMW 2004/THz 2004), Karlsruhe, Germany, Sep. 27-Oct. 1, 2004

Single Crystalline N-doped Anatase TiO_2 Films on Lattice-matched $LaAlO_3$ (100) Substrates:Co-supplement of Nitrogen and Oxygen Atoms Through NO Source, *H. Matsui, B. Mizobuchi, N. Hasuike, H. Harima and H. Tabata
11th International Workshop on Oxide Electronics, Kanagawa, Japan, Oct. 3-5, 2004

Magnetism of Cobalt-doped ZnO Thin Films,(Poster) *H. Saeki, H. Matsui, H. Tabata, T. Kawai, Y. Shiotani, G-.q.Zheng, Y. Kitaoka, M. Kobayashi, Y. Ishida, J. I. Hwang, T. Mizokawa, A. Fujimori, K. Mamiya, 11th International Workshop on Oxide Electronics, Kanagawa, Japan, Oct. 3-5, 2004

Dielectric Properties of Ba(Zrx Ti1-x)O_3 Bulk,(Poster) *A. Doi, Y. Hotta, H. Tabata, 11th International Workshop on Oxide Electronics, Kanagawa, Japan, Oct. 3-5, 2004

Room Temperature Ferromagnetism in Ferroelectric $Pb(Fe,Ta)_{0.5}O_3$ and $Ba(Fe,Ta)_{0.5}O_3$ Thin Films,(Poster) *A. K. M. Akther Hossain, A. Doi, M. Seki, T. Kawai, H. Tabata, 11th International Workshop on Oxide Electronics, Kanagawa, Japan, Oct. 3-5, 2004

Photocontrol of Cluster Glass State at Room Temperature in Spinel and Garnet Ferrite Thin Films,(Poster) *M. Seki, A. K. M. Akther Hossain, K. Tanimura, T. Kawai and H. Tabata, 11th International Workshop on Oxide Electronics, Kanagawa, Japan, Oct. 3-5, 2004

Magnetism of Cobalt-doped ZnO Thin Films, *H. Saeki, H. Matsui, H.Tabata, The 3rd International Workshop on ZnO and Related Materials, Sendai, Japan, Oct. 5-8, 2004

Polar and Non-polar Growth in ZnO Homoepitaxy,(Poster) *H. Matsui and H.Tabata, The 3rd International Workshop on ZnO and Related Materials, Sendai, Japan, Oct. 5-8, 2004

Structure and Electrical Property of DNA Molecules Immobilized on the Patterned Self-assembled Monolayers, *Y. Otsuka, K. Ojima, T. Matsumoto, H. Tabata and T. Kawai, 2005 APS March Meeting, Los Angeles, USA,　Mar. 21-25, 2005

［ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ］

田畑　仁	2004 年　International Conference on Solid State Devices and Materials　論文委員
田畑　仁	2005 年　International Conference on Solid State Devices and Materials　論文委員
田畑　仁	2005 年　International Conference on Solid State Devices and Materials　実行委員
田畑　仁	12th International Conference on Solid Films and Surfaces (ICSFS-12)　プログラム委員
田畑　仁	The 5th Korea-Japan Conference on Ferroelectricity　論文出版委員
田畑　仁	11th International Workshop on Oxide Electronics　International Committee
田畑　仁	SPIE International Symposium “Smart Materials, Nano-, and Micro-Smart Systems　プログラム委員

［ 国内学会 ］

応用物理学会	19 件
日本物理学会	2 件
その他	2 件

［ 科学研究費補助金 ］

（代表者として配分されたもの）　単位：千円

特定領域研究（２）「半導体ナノスピントロニクス」

田畑　仁	極限界面・結晶成長制御による室温スピントロニクスデバイスの研究	2,400

基盤研究（B）（2）

田畑　仁	対称性が破れた強誘電体リラクサー人工格子形成と脳型メモリ創成		9,100

[産学連携等研究費]

田畑　仁	科学技術振興調整費 先導的研究等の推進	酸化物磁性半導体ベースのデバイス創製に関する研究	23,954
田畑　仁	近畿経済産業局　地域新生コンソーシアム研究開発事業	LIPS 法の開発と次世代超小型タッチパネルへの適用	1,186.5

[その他の競争的研究資金]

田畑　仁	住友精化（株）	可視光応答型光触媒の研究	2,100
田畑　仁	川崎重工業（株）	機能性材料研究	500

単分子素子集積デバイス分野

教授　　川合　知二
助教授　　松本　卓也
助手　　谷口　正輝
研究員　　高木　昭彦

a ）　概要

単分子の物性計測を可能とする合成・測定技術を開発し、単一・小数分子系の新規物理化学現象を開拓する。分子スケールエレクトロニクスを見据えて、単一分子機能が発現する自己組織的デバイス構築に必要な要素技術の確立を行う。

次世代の新しいエレクトロニクスの担い手として、分子スケールデバイスが注目されている。分子の機能を引き出すには、分子を組織化することが必要である。この視点から 0.4nm 間隔のアドレスを持つ DNA 分子に着目し、その電子物性、構造をナノスケールで制御することで、ボトムアップ方式により分子エレクトロニクスデバイスへの展開を行っている。

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

b ）　成果

・バイオ分子を基礎としたネットワーク型分子デバイスの構築

個々の分子の特性が現れる自己組織化型デバイスとして、DNA をはじめとするバイオ分子の自己組織的構造形成機能に着目して、ネットワーク型分子デバイスの構築を行っている。現在、自己組織化、少数分子の電子物性、電極作製方法の開発、プローブ顕微鏡による計測手法の開発など、自己組織化型分子デバイスに必要となる各要素の研究を進めている。

・DNA を用いた金微粒子の配列

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

・ポルフィリン単分子の SPM 観察

分子エレクトロニクスにおける能動素子として、ポルフィリン関連物質に注目している。直鎖および環状の巨大ポルフィリンポルフィリンアレイが固体表面上に吸着したときのコンホメーションを超高真空走査トンネル顕微鏡を用いて明らかにした。

・電子移動蛋白シトクロムｃの電子物性

ポルフィリンは電子的に優れた機能を持つが、デバイスとして利用するには、外部との接続をうまく行う必要がある。生体内の電子移動を担うシトクロムｃでは、まわりの絶縁層の構造が決まってるので、よく定義された単電子機能素子としての動作が期待される。そこで、チトクロムｃの電子デバイスとしての動作を明らかにするために、微細加工電極、サンドイッチ型デバイス、原子間力顕微鏡の各方法でシトクロムｃの電子物性計測を試みた。金属電極とチトクロムｃの間に自己組織化膜を置くことで、少数あるいは単分子のチトクロムｃの電気特性を得ることに成功した。

・DNA／ポルフィリン会合体

ＤＮＡは様々なイオン性複合体を形成する。酸塩基反応を利用してＤＮＡのまわりにポルフィリンを結合すると、電流を導く会合体が得られることがわかった。

・ナノトランスファープリンティングによる電極作製

分子の自己組織化構造をデバイスとしては機能させるには、外部への配線手段が必要になる。ナノトランスファープリンティングにより、紫外線や電子線を使わず、かつ室温で分子の自己組織化構造の上から電極を形成することに成功した。この方法を使って、抵抗が十分低い金配線および電極－分子間の良好な接続を実現した。

・傾斜蒸着法による電極形成と電気伝導度計測

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

・絶縁体上ナノ構造の電荷状態計測

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

・多探針 SPM の開発

ナノサイズの局所構造に複数の針を接触して、電気的特性を計ることのできる、超高真空多探針走査プローブ顕微鏡の開発を行っている。位置決めのために、多探針ＳＰＭに電子顕微鏡を組み合わせるのが一般的であるが、電子線に耐えない有機分子系には適用できない。そこで、有機分子を破壊する心配のない光学顕微鏡を用いて、位置決めを行うシステムを開発している。超高倍率のレンズ系を組み合わせ、対物レンズが試料ぎりぎりまで接近できる特殊な真空チャンバーを開発した。

・プログラムされた分子ワイヤの電気伝導

分子ワイヤの電気伝導測定は、化学とナノテクノロジーを融合してはじめてなされるものである。これまで、いくつかの分子の伝導が報告されているが、その多くは、求める機能を有し、かつ電気伝導が測定出来るような適切な分子設計がなされていない。そのため、分子と電極の接合状態や分子の状態等が不明瞭であった。また、分子の電気伝導測定では、置換基を変えた場合の電気伝導性の変化や金と結合させた分子のＵＶ-Vis スペクトル、あるいは分子軌道計算といった化学的なアプローチがほとんどなされていないのが現状である。我々は、３つの機能部分に分けて設計した分子ワイヤを合成し、分子の性質を調べ、その電気伝導測定を行った。

分子ワイヤの合成は、鈴木カップリング反応を用いて合成した。超遠心質量分析とＡＦＭ観察の結果、合成した分子の長さは 22nm であると考えられる。合成した分子の電気伝導を測定するために、電子線リソグラフィーを用いて電極間距離が 20nm のナノ電極を作製し、交流電場を印加して分子をナノ電極間に架橋した。真空、遮光の条件下、室温で測定したところ、原点に対称な電流―電圧曲線が得られ、1V で 2nA の電流値が得られた。±0.5Ｖ付近で *I-V* 曲線の傾きが変わっているが、電流の電圧に対する微分を計算すると電流値の揺らぎが大きいためか明確なギャップは見られなかった。次に、77K まで冷却して、*I-V* 曲線を測定したところ、原点に対照的な *I-V* 曲線が得られたが、1V での電流値は室温の 10 分の 1 の 0.1nA 程度であった。77K における *dI/dV* を計算すると±0.5Ｖ付近でギャップが開いていることが確認された。しかし、低温にすると電流値が減少し、また分子軌道計算から HOMO の電子密度が分子の中央部分に局在する結果を考慮すると、HOMO と電極の電子状態は化学結合により接続されているものの、伝導機構はトンネリングよりホッピング伝導が支配的であると考えられる。

・両極性有機電界効果トランジスタ

銅フタロシアニンと高誘電ポリマーをゲート絶縁膜とした有機電界効果トランジスタにおいて、酸化物では実現出来なかった有機半導体の極性反転が、ゲート絶縁膜のヒステリシスを用いることにより可能となった。ゲート絶縁膜が 1mHz 以下で 1.6 μC/cm^2 の自発分極を持ち、このトランジスタのホールと電子の電界効果移動度は、4.1 x 10-3 cm^2/Vs 、3.5 x 10-6 cm^2/Vs であった。移動度の温度依存性から伝導機構はホッピングであった。両極性トランジスタは、ペーパーディスプレーや電子ペーパーの駆動素子を担うインバータ回路に向けた一歩を意味する。

［ 原著論文 ］

Kinetic and Thermodynamic Control Via Chemical Bond Rearrangement on Si(001) Surface, Ch. Hamai, A. Takagi, M. Taniguchi, T. Matsumoto and T. Kawai : Angew. Chem. Int. Ed., 43 (2004) 1349-1352.

Relaxation of Nanopatterns on Nb-Doped $SrTiO_3$ Surface, Run-Wei Li, T. Kanki, M. Hirooka, A. Takagi, T. Matsumoto, H. Tanaka and T. Kawai : Appl. Phys. Lett., 84 (2004) 2670-2672.

A Dodecameric Porphyrin Wheel as a Light-Harvesting Antenna, Xiaobin Peng, N. Aratani, A. Takagi, T. Matsumoto, T. Kawai, In-wook Hwang, Tae kyu Ahn, Dongho Kim and A. Osuka : J. Am Chem. Soc., 126 (2004) 4468-4469.

Scanning Force Microscopic Studies of Escherichia Coli Ribosomes on Solid Substrate Surface, T. Matsuura, K. Kobayashi, H. Tanaka, T. Matsumoto and T. Kawai : Jpn. J. Appl. Phys., 43 (2004) 4599-4601.

AFM Lithography in Perovskite Manganite $La_{0.8}Ba_{0.2}MnO_3$ Films, R.Li, T. Kanki, H. Tohyama, J.Zhang, H. Tanaka, A. Takagi, T. Matsumoto and T. Kawai : J. Appl. Phys., 95 (2004) 7091-7093.

A Simple Fabrication Method of Nanogap Electrodes for Top-Contacted Geometry : Application to Porphyrin, Y. Otsuka, Y. Naitoh, T. Matsumoto, W. Mizutani, H. Tabata and T. Kawai : Nanotechnology, 15 (2004) 1639-1644.

DNA-Templated Assembly of Au Nanoparticles Via Step-By-Step Binding Reaction, F. Ymada, Y. Sacho, T. Matsumoto, H. Tanaka and T. Kawai : e-Journal of Surface Science and Nanotechnology 2, (2004) 222-225.

Electronic Structures of *A*- and *B*-DNA Crystals, M. Taniguchi and T. Kawai : Phys. Rev., E 70 (2004) 011913-011920.

Electronic Structure of Bases in DNA Duplexes Characterized by Resonant Photoemission Spectroscopy, Near Fermi Level, Hiroyuki S. Kato, M. Furukawa, M. Kawai, M. Taniguchi, T. Kawai, T. Hatsui, and N. Kosugi : Phys. Rev. Lett., 93 (2004) 086403-086406.

Selective Adsorption of DNA on SiO_2 Surface in SiO_2/SiH Pattern, S. Tanaka, M. Taniguchi and T. Kawai : Jpn. J. Appl. Phys., 43 (2004) 7346-7349.

Vertical Electrochemical Transistor Based on Poly(3-hexylthiophene) and Cyanoethylpullulan, M. Taniguchi and T. Kawai : Appl. Phys. Lett., 85 (2004) 3298-3300.

Synthesis of Long Poly(dG)Poly(dC) DNA Using Enzymatic Reaction, S. Tanaka, M. Taniguchi, S. Uchiyama, K. Fukui, and T. Kawai : Chem. Commun., 21 (2004) 2388-2389.

Adsorption of DNA Molecule and DNA Patterning on Si Substrate, S. Tanaka, M. Taniguchi and T. Kawai : Proc. DNA-Based Molecular Construction. (2004) AIP Conference Proceedings., 725 (2004) 3-8.

［解説、総説，　翻訳］

分子スケール電気伝導 ーナノエレクトロニクスの視点からー, 松本卓也、谷口正輝、川合知二 ： 固体物理 39［8］(2004) 527-536.

［著書］

走査プローブ顕微鏡で測る, 松本卓也・川合知二 ： 先端化学シリーズVI「界面・コロイド、ナノテクノロジー、分子エレクトロニクス、ナノ分析」日本化学会編　(2004) 198-204.

［特許］

「探針装置」松本卓也、川合知二、特願 2004-188360

「微小電極製造方法及びその製造方法によって作製された微小電極」松本卓也、松井真二、中松健一郎、小嶋薫、川合知二、特願 2004-282564

「アフィニティータグ付きリボソーム」松浦俊彦、小林括平、田中裕行、松本卓也、川合知二、特願 2004-079231

「薄層化学トランジスター及びその製造方法」川合知二、谷口正輝、福井育生、特願 2004-251779

「自己組織化材料または微粒子を基板上に固定化する方法、および当該方法を用いて作成した基板」川合知二、田畑仁、大塚洋一、山田郁彦、松本卓也、特願 2004-381549

［国際会議］

Fabrication of Nano-Gap Electrodes Without Lithography Technique and Electrical Characteristics of Nano Structured Molecules, *Y. Otsuka, Y. Naitoh, T. Matsumoto, W. Mizutani, H. Tabata and T. Kawai, American Physical Society Spring Meeting, Montreal, Canada, Mar. 22-24, 2004.

Adsorption of DNA Molecule and DNA Patterning on Si Substrate DNA-Based Molecular Electronics, *S. Tanaka, M. Taniguchi and T. Kawai, Institute for Physical High Technology (IPHT), Jena, Germany, May. 13-15, 2004.

Time-Resolved Force Detection Using Dynamic-Mode Scanning Force Microscopy, *T. Matsumoto and T. Kawai, 8th Int. Conference on Nanometer Scale Science and Technology, Venice, Italy, Jun. 28-Jul.2, 2004.

Alignment of Porphyrin Chain Using Solvent Templates on HOPG, *A. Takagi, N. Aratani, T. Matsumoto, A. Osuka and T. Kawai, 8th Int. Conference on Nanometer Scale Science and Technology, Venice, Italy, Jun. 28-Jul.2, 2004.

Three Distinct Conformations of Porphyrin Wheels Adsorbed on Cu (100) Observed by Scanning Tunneling Microscopy, *A. Takagi, N. Aratani, T. Matsumoto, A. Osuka and T. Kawai, 8th Int. Conference on Nanometer Scale Science and Technology, Venice, Italy, Jun. 28-Jul.2, 2004.

Ordered Adlayer of PNA on Au(111) Surface, *K. Ojima, T. Uno, T. Matsumoto and T. Kawai, 8th Int. Conference on Nanometer Scale Science and Technology, Venice, Italy, Jun. 28-Jul.2, 2004.

Scanning Force Microscopic Observations of Escherichia Coli Ribosomes, *T. Matsuura, K. Kobayashi, H. Tanaka, T. Matsumoto and T. Kawai, 8th Int. Conference on Nanometer Scale Science and Technology, Venice, Italy, Jun. 28-Jul.2, 2004.

One-Dimensional Assembly and Local Surface Potential Mapping of Au Nanoparticles on a DNA Network (Invited), *F. Yamada, Y. Otsuka, A. Takagi, T. Matsumoto, H. Tanaka and T. Kawai, 8th Int. Conference on Nanometer Scale Science and Technology, Venice, Italy, Jun. 28-Jul.2, 2004.

Tunneling Conduction Through Cytochrome c Molecule, *M. Kataoka, T. Matsumoto and T. Kawai, 8th Int. Conference on Nanometer Scale Science and Technology, Venice, Italy, Jun. 28-Jul.2, 2004.

Fabrication Method of Nano-Gap Electrodes without Wet Process and Electrical Measurement of Nano Structured Molecules, *Y. Otsuka, Y. Naitoh, T. Matsumoto, W. Mizutani, H. Tabata and T. Kawai, 8th Int. Conference on Nanometer Scale Science and Technology, Venice, Italy, Jun. 28-Jul.2, 2004.

Electronic Properties of Biomolecular System: Toward the Realization of Bottom-Up Molecular Scale Electronics (Invited), *T. Matsumoto and T. Kawai, International Seminar on Organic-molecular Materials, Shizuoka, Japan, Aug. 8-9, 2004.

Measurements of Contactless Microwave Conductivity and Infrared Absorption in Poly(dG)-Poly(dC) and Poly(dA)-Poly(dT) DNA Molecules, *H. Matsui, T. Yanagimachi, K. Abe, T. Suzuki, M. Taniguchi, S. Tanaka, T. Kawai, Hasanudin, N. Kuroda and N. Toyota, The 5th International Conference on Biological Physics, Gothenburg, Sweden, Aug. 23-27, 2004.

Surface Potential Images of Molecular Systems on Insulating Substrates by Frequency-Mode Scanning Force Microscopy, *T. Matsumoto, F. Yamada, A. Takagi and T. Kawai, Seventh International Conference on Non-Contact Atomic Force Microscopy , Seattle, Washington U.S.A., Sep. 12-15, 2004.

Adsorption of DNA Molecule and DNA Patterning on Si Substrate, *S. Tanaka, M. Taniguchi and T. Kawai, Scanning Probe Microscopy in Life Sciences, University Medicine Berlin, Berlin, Germany, Oct.13, 2004.

Characteristics of Electrochemical Transistor, *M. Taniguchi and T. Kawai, Organic Materials for Electronics and Photonics, Okinawa, Japan, Nov. 3-6, 2004.

Conductance Measurement of a DNA Network in Nano-Scale by Point Contact Current Imaging Atomic Force Microscopy, *H. Tanaka, A. Terawaki, Y. Otsuka, H. Y. Lee, T. Matsumoto and T. Kawai, Material Material Research Society Fall Meeting, Boston, USA , Nov.30-Dec.3, 2004.

Scanning Probe Microscopy Methods for Biomolecular Electronics (Invited), *T. Matsumoto and T. Kawai, Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004(SISSIN-2004):Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing, Osaka, Japan, Dec. 6-7, 2004.

Investigation of Enzymatic Activity for Lipid Biulayers Patterning by Surface Plasmon Resonance and Atomic Force Microscopy, *S. E. Lee, H. S. Jung, F. Yamada, T. Matsumoto, H.Y. Lee and T. Kawai, Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004(SISSIN-2004):Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing ,Osaka, Japan, Dec. 6-7, 2004.

Fabrication of Gold Electrode by Nanotransfer Printing,*K. Ojima, K. Nakamatsu, T. Kanno, T. Matsumoto, S. Matsui and T. Kawai, Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004(SISSIN-2004):Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing, Osaka, Japan, Dec. 6-7, 2004.

Surface Potential Measurement of the DNA and Au Nanoparticls on Insulating Substrate, *F. Yamada, A. Takagi, T. Kusaka, T. Matsumoto, H. Tanaka and T. Kawai, Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004(SISSIN-2004):Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing, Osaka, Japan, Dec. 6-7, 2004.

Adsorption of Ribosomes Onto Solid Surfaces from Solution, *T. Matsuura, H. Tanaka, T. Matsumoto and T. Kawai, Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004(SISSIN-2004):Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing, Osaka, Japan, Dec. 6-7, 2004.

Incorporation of Molecules Into the DNA Duplexes, *K. Adachi, M. Taniguchi and T. Kawai, Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing, Osaka, Japan, Dec. 6-7, 2004.

Reevaluation of the Mobility in a Field-Effect Transistor Based on Polymeric Insulating Layer, *E. Mizuno, M. Taniguchi and T. Kawai, Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing, Osaka, Japan, Dec. 6-7, 2004.

Fabrication and Properties of Electrochemical Transistors, *M. Taniguchi and T. Kawai, Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing, Osaka, Japan, Dec. 6-7, 2004.

A Simple Fabrication Method of Nanogap Electrodes for Top-Contacted Geometry:Application to Porphyrin Nanorods and a DNA Network, *Y. Otsuka, Y. Naitoh, T. Matsumoto, W. Mizutani, H. Tabata and T. Kawai, The 12th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, Atagawa (Sizuoka),Japan, De. 9-11, 2004.

Surface Potential Measurement of the DNA-Au Nanoparticle Complex on Insulating Substrate, *F. Yamada, A. Takagi, T. Kusaka, T. Matsumoto, H. Tanaka and T. Kawai, The 12th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, Atagawa (Sizuoka),Japan, Dec. 9-11, 2004.

Conductivity Measurement Through Cytochrome c Molecules, *M. Kataoka, T. Matsumoto and T. Kawai, The 12th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, Atagawa (Sizuoka),Japan, Dec. 9-11, 2004.

Direct Printing of Gold Electrode for Molecular-Scale Devices, *K. Ojima, K. Nakamatsu, T. Kanno, T. Matsumoto, S. Matsui and T. Kawai, The 12th International Colloquium on Scanning

Probe Microscopy, Atagawa (Sizuoka),Japan, Dec. 9-11, 2004.

[国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員]

松本　卓也　第４回表面科学国際会議プログラム委員会委員

松本　卓也　第１３回ＳＴＭ／ＳＴＳ技術および関連技術国際会議／第１３回ＳＰＭ国際コロキウム組織委員会プログラム委員

[国内学会]

応用物理学会	17 件
表面科学会	5 件
日本化学会	2 件
その他	9 件

[科学研究費補助金]

（代表者として配分されたもの）　単位：千円

基盤研究 (B) (2)

松本　卓也	ストロボスコピック・プローブ顕微鏡の開発と光電子移動の単分子レベル時間分解画像化	6,100

萌芽研究

松本　卓也	時間分解フォース検出による過渡的電荷生成のイメージング	2,200

若手研究(B)

谷口　正輝	プログラムされた分子ワイヤの合成とナノ電極による電気伝導測定	1,900

[　受託研究　]

松本　卓也	独立行政法人科学技術振興機構	巨大ポルフィリンアレーメゾスコピック構造デバイス	1,300

[その他の競争的研究資金]

松本　卓也	独立行政法人科学技術振興機構、戦略的基礎研究	巨大ポルフィリンアレーメゾスコピック構造デバイス	11,300
谷口　正輝	信越化学工業株式会社	ポリマーFET の開発	2,000
	関西エネルギー・リサイクル科学研究振興財団	インクジェットプロセスによる高移動度ポリマー電界効果トランジスタの開発	1,000

超分子プロセス分野

教授　　笹井　宏明（兼）
助手　　遠藤　政幸、滝澤　忍

a ）　概要

実用的な高活性不斉触媒を開発することは、限りある資源を有効に活かし環境汚染物質の排出を最小限にとどめるために重要である。当研究分野では、新しい触媒的不斉合成法の開発とその反応メカニズムの解明に積極的に取り組み、酵素的な作用機序で働く多機能な不斉ナノ触媒の開発研究を行っている。現在、これら多機能不斉触媒の固定化、強固な不斉骨格を有する新規光学活性配位子および有機分子触媒のデザインを重点的に推進している。
また、生体分子の持つ超分子としての性質を利用し、DNA の自己組織化能を利用した新規な超分子構造及びナノ構造の構築や分子集合の制御及び新機能の創出といった新たな分野の開拓、並びに酵素活性を光反応によって操作できる生体内分子スイッチの構築も行っている。

b ）　成果

・金属架橋型高分子触媒

触媒の回収や再利用が容易となる固定化触媒の開発は、環境調和型プロセスを構築する重要な研究課題となっている。しかし、例えば、複数の配位子を含む触媒をポリマー上に固定化するには、配位子の相対配置を適切に制御する新規な方法論が必要となる。そこで、複数の配位子を有する触媒の汎用性に富む固定化法として、金属架橋型高分子不斉触媒の開発研究を行っている。高分子の金属部位は、高分子構造の架橋部位と不斉触媒の活性中心の二つの機能を有する。有機溶媒に可溶な配位子からの金属錯体形成により触媒は固定化されるため、配位子間の距離及び相対配置は、均一系触媒と同一構造となり、高活性な固定化触媒が構築できる。実際、(*R,R*)-6,6’-bi(BINOL)と $LiAlH_4$ との反応により Al と Li を含む金属架橋型高分子不斉触媒を調製した。得られた金属架橋型高分子は、各種溶媒に不溶な固定化不斉触媒として機能し、再利用も可能であった。現在、より汎用性の高い多機能不斉固定化触媒の開発を行っている。

・球状ナノ粒子の効率合成とその機能化

表層に不斉触媒能を有するデンドリマー様ナノ粒子の効率的構築法の開発を検討している。界面活性モノマーの形成する球状ミセルを水中で重合反応により固定し、得られた球状ポリマーに配位子を担持することで高活性ナノ粒子触媒が得られることを見出した。
また、金と硫黄の親和力を利用して、金属クラスター担持触媒を調製し、金属ナノクラスターが高活性固定触媒の固相として十分機能することを明らかにした。現在、更なる高次機能を持つ球状機能ナノ粒子の合成と応用を検討している。

・DNA ナノ構造の構築と機能化

分子集合によって機能性分子を正確に操作する技術はボトムアップ型のナノテクノロジーに必要不可欠であり、人為的な情報にしたがって分子から組み上げる方法の確立が必要である。DNA 自己集合を利用して、規則的でかつ熱力学的に安定した DNA ナノ構造を構築するため、枝分かれ構造を持つ DNA ユニットを合成し DNA 集合体の構造を制御した。ポルフィリンから 4 本の DNA 鎖を伸ばし、相補鎖の配列によって、ポルフィリンと Zn-ポルフィリンをホモ及びヘテロに集合させることを可能にした。このことは DNA 配列のプログラムによって異なるポルフィリンを 1 次元アレイ状に配置することが可能であることを示している。また、DNA の分子集合のみでマイクロメータースケールの DNA 構造の構築を実現するため、ポルフィリンから 4 本の DNA 鎖伸ばした DNA コネクター分子と 2 次元シート構造を形成する DNA タイルを用いて自己集合させた。この DNA 構造を原子間力顕微鏡によって解析すると、20μm を超える

ファイバー状の構造が得られ、詳細に構造を検討すると、DNA はチューブ構造を形成したことが明らかとなった。これらの方法を用いることで、DNA 超分子構造からのナノ構造の構築及びさらに 3 次元的な DNA の自己組織化を操作することが可能となった。

・光機能性人工酵素の構築

本研究では光機能性分子と光反応を用いて、タンパク内に導入した光反応性分子を、光照射による構造変化やペプチド鎖の切断を制御するスイッチとして働かせ、光反応後にタンパクを活性型の構造に誘導し、タンパクの持つ酵素活性の発現及び光反応による生体内反応の制御を検討している。DNA を特異的配列で加水分解する制限酵素 BamHI の２量化を光機能性分子によって操作した。光照射を行わないと全く活性を示さなかったが、光照射を行うことで酵素活性を回復できることを見出した。また、光異性化分子を導入し光照射を行うと不活性な状態から活性化可能であることを見出した。このことは生体分子であるタンパクの２分子間の相互作用を詳細に検討し光機能化することで、光化学反応と２分子間の相互作用で酵素活性を操作できることを示している。生体中の細胞内情報伝達及び機能発現を光反応によって操作するため、アポトーシスの誘導に重要な caspase-3 の酵素活性の光制御を行った。Capsase-3 の特異的な切断位置に光分解性アミノ酸を導入すると、この光機能性酵素は基質に対して、全く活性を示さないが、光照射により容易に活性を回復することを見出した。アポトーシス情報伝達に関わる酵素の活性の制御が光反応によって可能となり、細胞内での光照射による生体機能の操作を行うことを検討している。

［ 原著論文 ］

Dual Activation in a Homolytic Coupling Reaction Promoted by an Enantioselective Dinuclear Vanadium(IV) Catalyst, H. Somei, Y. Asano, T. Yoshida, S. Takizawa, H. Yamataka, and H. Sasai : Tetrahedron Lett., 45 [9] (2004) 1841-1844.

Development of Novel Chiral Spiro Ligand Bearing Oxazolines, T. Kato, K. Marubayashi, S. Takizawa, and H. Sasai : Tetrahedron: Asymmetry, 15 [23] (2004) 3693-3697.

Enantioselective Aldol-type Reaction Using Diketene, T. Kawase, S. Takizawa, D. Jayaprakash, and H. Sasai : Synth. Commun., 34 [24] (2004) 4487-4492.

Spiro Bis(isoxazole) as a New Chiral Ligand, K. Wakita, M. A. Arai, T. Kato, T. Shinohara, and H. Sasai : Heterocycles, 62 [1] (2004) 831-838.

Design and Synthesis of Photochemically Controllable Caspase-3, M. Endo, K. Nakayama, Y. Kaida, and T. Majima : Angew. Chem. Int. Ed., 43 [42] (2004) 5643-5645.

Photochemical Regulation of the Activity of an Endonuclease BamHI Using an Azobenzene Moiety Incorporated Site-selectively into the Dimer Interface, K. Nakayama, M. Endo, and T. Majima : Chem. Commun., [21] (2004) 2386-2387.

Effects of Benzyl-ether Type Dendrons as Hole-harvesting and Shielding for the Neutralization of Stilbene Core Radical Cations with Chloride Ion During Two-photon Ionization of Stilbene Dendrimers Having the Stilbene Core and Benzyl-ether Type Dendrons, M. Hara, S. Samori, X. Cai, S. Tojo, T. Arai, A. Momotake, J. Hayakawa, M. Uda, K. Kawai, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima : J. Am. Chem. Soc., 126 [43] (2004) 14217-14223.

Transient Phenomena of Polyphenyls in the Higher Triplet Excited States, X. Cai, M. Sakamoto, M. Hara, S. Tojo, K. Kawai, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima : J. Phys. Chem. A, 108 [43] (2004) 9361-9364.

Photocatalytic Oxidation Reactivity of Holes in the Sulfur- and Carbon-doped TiO_2 Powders Studied by Time-Resolved Diffuse Reflectance Spectroscopy, T. Tachikawa, S. Tojo, M. Fujitsuka, K. Kawai, M. Endo, T. Ohno, K. Nishijima, Z. Miyamoto, and T. Majima : J. Phys. Chem. B, 108 [50] (2004) 19299-19306.

Design and Synthesis of Photochemically Controllable Restriction Endonuclease BamHI by Manipulating the Salt-Bridge Network in the Dimer Interface, M.Endo, K. Nakayama, and T. Majima : J. Org. Chem., 69 [13] (2004) 4292-4298.

Structural Arrangement of two DNA Double Helices Using Cross-linked Oligonucleotide Connectors, M. Endo and T. Majima : Chem. Commun., [11] (2004) 1308-1309.

Rate Constant of Bimolecular Triplet Energy Transfer from Chrysene in the Higher Triplet Excited States, X. Cai, M. Sakamoto, M. Hara, S. Tojo, K. Kawai, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima : J. Phys. Chem. A, 108 [] (2004) 7147-7150.

Unnatural Base Pairs Mediate the Site-specific Incorporation of an Unnatural Hydrophobic Component into RNA Transcripts, M. Endo, T. Mitsui, T. Okuni, M. Kimoto, I. Hirao, and S. Yokoyama : Bioorg. Med. Chem. Lett., 14 [10] (2004) 2593-2596.

Site-specific Incorporation of a Photo-crosslinking Component into RNA by T7 Transcription Mediated by Unnatural Base Pairs, M. Kimoto, M. Endo, T. Mitsui, T. Okuni, I. Hirao, and S. Yokoyama : Chem. Biol., 11 [1] (2004) 47-55.

Stepwise Photocleavage of Two C-O Bonds of 1,8-Bis[(4-benzoylphenoxy)-methyl]naphthalene with Three-Step Excitation Using Three-Color, Three-Laser Flash Photolysis, X. Cai, M. Sakamoto, M. Hara, S. Tojo, A. Ouchi, K. Kawai, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima : J. Am. Chem. Soc., 126 [24] (2004) 7432-7433.

Quenching Processes of Aromatic Hydrocarbons in the Higher Triplet Excited States-energy Transfer vs. Electron Transfer, X. Cai, M. Sakamoto,M. Hara, S. Tojo, K. Kawai, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima : Phys. Chem. Chem. Phys., 6 [8] (2004) 1735-1741.

［ 解説、総説 ］

Asymmetric ligands bearing spiro skeleton and their applications to enantioselective catalysis, S. Takizawa, D. Jayaprakash, M. L. Patil, C. Muthiah, and H. Sasai : Materials Integration, 17 [5] (2004) 3-6.

Development of Novel Immobilization Methods for Multifunctionl Asymmetric Catalysts, S. Takizawa and H. Sasai : 生産と技術, 56 [4] (2004) 43-45.

Trend in the Development of Novel Chiral Ionic Liquids, M. L. Patil, S. Takizawa, and H. Sasai :

Chemical Industry, 55 [11] (2004) 877-880.

スピロビスイソオキサゾリン配位子（SPRIXs）の創製と触媒的不斉合成への応用，荒井緑、篠原俊夫、荒井孝義、笹井宏明 ： 有機合成化学協会誌，62［1］(2004) 59-69.

DNA ナノテクノロジー，遠藤政幸、真嶋哲朗、化学、59［10］(2004) 70-71.

［ 著書 ］

「Transition Metals for Organic Synthesis, Vol. 1」（M. Beller, C. Bolm　編集），柴崎正勝、笹井宏明、吉川直樹，Wiley-VCH出版，(2004) 363-378.

［ 特許 ］

「スピロキラリティーを有する第４級アンモニウム塩およびその製造法、並びに該アンモニウム塩を用いた不斉触媒反応」下元愛、米澤浩司、滝澤忍、笹井宏明、特願 2004-261766

「新規スピロ構造化合物とその製造法」マヘッシュ　エル　パティル、シラムコッティ　ベンカット　ラクシュマンラオ、滝澤忍、笹井宏明、特願 2004-259127

「光学活性スピロビスイソオキサゾリン誘導体とその製造方法およびその金属錯体を用いた不斉触媒反応」笹井宏明、脇田和彦、加藤孝浩、荒井緑、特願 2004-263647

「スピロ骨格を持つキラルな相関移動触媒およびその製造法、並びにそれを用いた不斉触媒反応」米澤浩司、下元愛、滝澤忍、笹井宏明、特願 2004-258567

「光学活性スピロビスイソオキサゾール誘導体およびその製造方法、並びにその金属錯体を用いた不斉触媒反応」笹井宏明、脇田和彦、加藤孝浩、荒井緑、特願 2004-262328

「光学活性二核錯体と該錯体が触媒するカップリング反応」笹井宏明、滝澤忍、特開 2005-75774

「ビナフトール誘導体ならびに該誘導体を用いた光学活性ビナフトール金属錯体触媒」笹井宏明、滝澤忍、特開 2005-75770

「固体高分子電解質及びその製造方法」笹井宏明、滝澤忍、阿部悟、特開 2005-50778

「不斉合成用触媒の製造方法」柴崎正勝、笹井宏明、田原義博、特願 2004-168628

「不斉合成用触媒の製造方法」柴崎正勝、笹井宏明、田原義博、特願 2004-300332

［ 国際会議 ］

Design and Synthesis of Novel Spiro-type Ligands (Poster), *T. Tsujihara, K. Wakita, T. Kato, A. Shimomoto, M. L. Patil, C. V. L. Rao, T. Shinohara, M. A. Arai, S. Takizawa, and H. Sasai, 17th French-Japanese Symposium on Medicinal and Fine Chemistry (FJS-2004), Miyagi, Japan, May 17-20, 2004.

Dual Activation in a Homolytic Coupling Reaction Promoted by an Enantioselective Dinuclear Vanadium(IV) Catalyst (Poster), H. Somei, Y. Asano, *T. Yoshida, S. Takizawa, H. Yamataka, and

H. Sasai, 17th French-Japanese Symposium on Medicinal and Fine Chemistry (FJS-2004), Miyagi, Japan, May 17-20, 2004.

The aza-Morita-Baylis-Hillman Reaction Catalyzed by Chiral Phosphine-Binol as an Organocatalyst, *K. Matsui, S. Takizawa, and H. Sasai, 16th International Symposium on Chirality (ISCD 16), New York, USA, July 11-14, 2004.

Development of Novel Chiral Spiro-type Ligands, *H. Sasai, K. Wakita, T. Kato, Y. Honda, M. A. Arai, T. Shinohara, C. Muthiah, T. Tsujihara, and S. Takizawa, The 36th International Conference on Coordination Chemistry (ICCC-36), Mérida Yucatán, México, July 18-23, 2004.

Dual Activation in a Homolytic Coupling Reaction Promoted by an Enantioselective Dinuclear Vanadium(IV) Catalyst (Poster), H. Somei, Y. Asano, *T. Yoshida, S. Takizawa, H. Yamataka, and H. Sasai, 15th International Conference on Organic Synthesis (ICOS-15), Aichi, Japan, Aug. 2-6, 2004.

The aza-Morita-Baylis-Hillman (aza-MBH) Reaction Promoted by Chiral Phosphine-BINOL as an Organocatalyst (Poster), *K. Matsui, S. Takizawa, and H. Sasai, 15th International Conference on Organic Synthesis (ICOS-15), Aichi, Japan, Aug. 2-6, 2004.

Novel Bifunctional Asymmetric Organocatalysts for aza-Morita-Baylis-Hillman (aza-MBH) Reaction, *K. Matsui, S. Takizawa, and H. Sasai, The 7th IUPAC International Conference on Heteroatom Chemistry (ICHAC-7), Shanghai, China, Aug. 20-25, 2004.

Catalytic Enantioselective Direct Henry Reaction, S. Takizawa, K. Murai, K. Wataguchi, T. Hara, and *H. Sasai, Rare Earths ’04 in Nara, Nara, Japan, Nov. 7-12, 2004.

Novel Bifunctional Organocatalysts for Enantioselective aza-Morita-Baylis-Hillman (aza-MBH) Reaction (Poster), *K. Matsui, S. Takizawa, and H. Sasai, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004)-Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing-, Osaka, Japan, Dec. 6-7, 2004.

Development and Application of Novel Immobilization Method for Multicomponent Asymmetric Catalysts (Poster), S. Takizawa, K. Marubayashi, *N. Inoue, and H. Sasai, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004)-Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing-, Osaka, Japan, Dec. 6-7, 2004.

Dual Activation in a Homolytic Coupling Reaction Promoted by an Enantioselective Dinuclear Vanadium Catalyst (Poster), T. Yoshida, *T. Katayama, H. Somei, Y. Asano, S. Takizawa, and H. Sasai, THE INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON DYNAMIC COMPLEX (ISDC-2005), Nagoya, Japan, Jan. 9-10, 2005.

Development of Novel Spiro-type Ligands, T. Tsujihara, P. Koranne, M. Chinnasamy, K. Wakita, J. Yogo, S. Takizawa, and *H. Sasai, THE INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON DYNAMIC COMPLEX (ISDC-2005), Nagoya, Japan, Jan. 9-10, 2005.

Development and Application of a Novel Method for the Immobilization of Multicomponent Asymmetric Catalysts (Poster), *K. Marubayashi, S. Takizawa, and H. Sasai, 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" Third International Symposium 2005, Shiga, Japan, Mar. 9-10, 2005.

Development of Artificial Enzymes with Relevance to Bioluminescence (Poster), *T. Kawase, D. Jayaprakash, S. Takizawa, and H. Sasai, 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" Third International Symposium 2005, Shiga, Japan, Mar. 9-10, 2005.

Design and Synthesis of Novel Chiral Spiro Ligands and Ionic Liquids (Poster), *C. V. L. Rao, M. L. Patil, S. Takizawa, and H. Sasai, 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" Third International Symposium 2005, Shiga, Japan, Mar. 9-10, 2005.

Study of Novel Chiral Ligands Bearing Spiro Skeleton and their Applications to Asymmetric Cyclizations (Poster), *C. V. L. Rao, M. L. Patil, S. Takizawa, and H. Sasai, 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" Third International Symposium 2005, Shiga, Japan, Mar. 9-10, 2005.

Development of Novel Chiral Spiro-type Ligands (Poster), *T. Tsujihara, P. Koranne, K. Wakita, M. Chinnasamy, J. Yogo, S. Takizawa, and H. Sasai, 229th ACS National Meeting, San Diego, CA, USA, Mar. 13-17, 2005.

DNA Supramolecular Chemistry, M. Endo and T. Majima, 11th Symposium of Intelligent Electrophotonic Materials and Molecular Electronics (SIEMME'11), XiQiao Hotel, iangbin West Road No.1, Kunming City, unnan, Kunming, China, Nov. 5-8, 2004.

Photochemical Control of the Protein Activity by Manipulating the Dimer Interface, M. Endo, K. Nakayama, and T. Majima, 2004 Korea-Japan Symposium on Frontier Photoscience "Photochemsitry and Nanotechnology", Samsung Fire & Marine Insurance HRD Center, Daejeon, Korea, Nov. 20-23, 2004.

Construction of Supramolecular Structures using DNA-porphyrin Conjugates, M. Endo, T. Shiroyama, M. Fujitsuka, and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004)-Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing-, Osaka, Japan, Dec. 6-7, 2004.

Photochemical Regulation of Caspase-3 Activity, M. Endo, K. Nakayama, Y. Kaida, and T. Majima, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN-2004)-Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing-, Osaka, Japan, Dec. 6-7, 2004.

［ 国内学会 ］

有機合成若手セミナー	2 件
日本化学会年会	13 件
ナノ超分子触媒の将来展望	2 件
反応と合成の進歩シンポジウム	1 件

有機金属化学討論会	1 件
有機合成シンポジウム	1 件
光化学討論会	3 件
基礎有機化学連合討論会	2 件

［科学研究費補助金 ］

（代表者として配分されたもの）　　単位：千円

特定領域研究 (2)

笹井　宏明	触媒活性部位での多元的協調作用を活用する人工酵素の開発	2,000

若手研究 (B)

遠藤　政幸	光機能性生体分子によるアポトーシスの誘導と癌治療への応用	3,500

［特別研究員奨励費 ］

笹井　宏明	概念的に新しい触媒的不斉合成の開発	400

［その他の競争的研究資金］

滝澤　忍	科学技術振興調整費若手任期付研究員支援　自己組織化による機能性ナノマテリアルの創製	17,100

ナノバイオデバイス分野

教授　　谷澤　克行
助教授　　岡島　俊英
助手　　中島　良介

a ）　概要

タンパク質を中心とする生体素子やその集合体をナノバイオデバイスと位置付け、それらのナノ構造と機能の解析を行う。さらに、ナノバイオデバイスを用いる超高感度バイオセンサーの開発やナノマシーンの創製に関する研究などを行う。

b ）　成果

・ナノバイオデバイスの構造と機能の解析

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

さらに、基質シッフ塩基中間体から触媒プロトン引き抜き素過程の温度依存性を調べ、定常状態の速度定数の大きな同位体効果から予想されたプロトントンネリング効果を評価した。すなわち、ストップドフローを用いて、野生型酵素と基質フェニルエチルアミンを嫌気条件下混合し、還元的半反応における TPQ 補酵素のスペクトル変化を追跡した。このとき、最終的にセミキノンラジカル型の TPQ が形成されて反応が終結する。このスペクトル変化をグローバル解析することによって、様々な温度で各ステップの反応速度定数を求めた。立体特異的に重水素ラベルされた[1-*R*-^{2}H-]、[1-*S*-^{2}H-]チラミン、[1-*R*-^{2}H-]、[1-*S*-^{2}H-]-2-フェニルエチルアミンについても同様の測定を行った結果、[1-*S*-^{2}H-]チラミンと[1-*S*-^{2}H-]-2-フェニルエチルアミンについてのみ、それぞれ 10 と 2.6 の一次同位体効果が観測された。この結果はプロトン引き抜き反応の立体特異性（*S* 位特異的）にも対応しているとともに、チラミンでのみトンネリング効果によってプロトンが引き抜かれることを示唆している。

・ナノマシンとしての薬剤排出蛋白質

生物界には、生体異物排出ポンプと呼ばれる一群の膜輸送体が広く分布していて、細胞レベルにおける最も基本的な生体防御機構となっていることが近年注目されてきている。これらの排出ポンプは、ガン細胞や病原細菌の多剤耐性の原因となるばかりでなく、血液脳関門やその他の組織にも分布していて、さまざまな細胞機能を担っている。私たちは、生体異物排出ポンプの立体構造と分子機構を解明することを目標に研究を進めている。

近年、大腸菌の持つAcrB多剤排出蛋白質の立体構造決定に世界に先駆けて成功した。これは、異物排出蛋白質として初めての結晶構造決定であるのみならず、プロトン輸送と共役する膜輸送蛋白質では初めての構造決定であった。この構造決定によって、初めて溶質の膜輸送が具体的な分子機構に基づいて理解することが可能となってきた。

［ 原著論文 ］

Molecular Function of Axonal Guidance-related Proteins, UNC-76/FEZ1/FEZ2, T. Fujita, J. Ikuta, A. Maturana, T. Okajima, K. Tatematsu, K. Tanizawa, and S. Kuroda: Recent Res. Devel. Biophys. Biochem., 4 (2004) 313–320.

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

Identification of a Tissue-non-specific Homologue of Axonal Fascination and Elongation Protein Zeta-1, T. Fujita, J. Ikuta, J. Hamada, T. Okajima, K. Tatematsu, K. Tanizawa, and S. Kuroda: Biochem. Biophys. Res. Commun., 313 (2004) 748-754.

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

Novel Tissue and Cell Type-Specific Gene Delivery System Using Surface Engineered Hepatitis B Virus Nanoprotein Particles, T. Yamada, A. Kondo, M. Ueda, M. Seno, K. Tanizawa, and S. Kuroda: Current Drug Targets: Infectious Disorders, 4 (2004) 163–167.

Over-Expression System for Secretory Phospholipase D by *Streptomyces lividans*, C. Ogino, M. Kanemasu, Y. Hayashi, N. Shimizu, A. Kondo, S. Tokuyama, Y. Tahara, S. Kuroda, K. Tanizawa, and H. Fukuda: Appl. Microbiol. Biotechnol., 64 (2004) 823–828.

［ 解説、総説 ］

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

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

中空バイオナノ粒子を用いたピンポイントドラッグデリバリーシステム，山田忠範，妹尾昌治，近藤昭彦，上田政和，谷澤克行，黒田俊一：高分子論文集，61（2004）606-612.

［ 国際会議 ］

Crystal Structure of Bacterial Multidrug Efflux Transporter AcrB, S. Murakami, R. Nakashima, E. Yamashita, A. Yamaguchi, International Workshop on Structural Chemical Biology of Membrane Protein Complex Functions, University of Hyogo, Kamigohri, Japan, April 19-20, 2004.

Crystal Structure of Bacterial Multidrug Efflux Transporter AcrB, S. Murakami, R. Nakashima, T. Matumoto, E. Yamashita, and A. Yamaguchi, The Sixth Conference of the Asian Crystallographic Association (AsCA'04), Symposium, "Macromolecular assemblies", Hong Kong, China, June 27-30, 2004.

Interaction of a RING-IBR Protein RBCK1 with Its Splicing Variant RBCK2 (Poster), N. Yoshimoto, K. Tatematsu, T. Koyanagi, K. Tanizawa, and S. Kuroda, FASEB Conference: Transcriptional Regulation During Cell Growth, Differentiation and Development, Saxtons River, Vermont, U.S.A., August 14-19, 2004.

X-ray Crystallographic Analysis of Multi-drug Efflux Transporter, S. Murakami, R. Nakashima, T. Matumoto, E. Yamashita, and A. Yamaguchi, The 8th International Conference on Biology and Synchrotron Radiation (BSR2004) Symposium, "Membrane Proteins", Hyougo, Japan, September, 7-11, 2004.

Development of Novel Bio-Nanoparticles for Human Tissue-Specific Delivery of Genes and Drugs (Invited), K. Tanizawa, T. Yamada, A. Kondo, H. Tada, M. Seno, M. Ueda, and S. Kuroda, 17th FAOBMB Symposium / 2nd IUBMB Special Meeting / 7th A-IMBN Conference “Genomics and Health in the 21st Century”, Bangkok, Thailand, November 22–26, 2004.

Mechanism of α-proton Abstraction in the Catalytic Intermediate of Bacterial Copper Amine Oxidase (Oral), T. Okajima and K. Tanizawa, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (SISSIN 2004), Suita, Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Improving Gene/Drug Delivery to Human Hepatocytes with Hepatitis B Virus Surface Antigen L Particles (Poster), J. Jung, T. Yamada, K. Tanizawa, and S. Kuroda, Third 21st Century COE “Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience” International Symposium, Makino, Shiga, Japan, March 9-10, 2005.

The ENH1-PKCε-PKD1 Complex and the PKC-regulating Protein ENH2: Novel Therapeutic Targets in Cardiac Hypertrophy (Poster), M. Iwata, A. Maturana, M. Ishida, K. Tatematsu, T.Okajima, K. Tanizawa, and S. Kuroda, Third 21st Century COE “Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience” International Symposium, Makino, Shiga, Japan, March 9-10, 2005.

Mechanism of α-Proton Abstraction in the Catalytic Intermediate of Bacterial Copper Amine Oxidase (Poster), T. Murakawa, T. Okajima1, M. Uchida, Y. Yamamoto, H. Hayashi, K. Tatematsu, S. Kuroda, and K. Tanizawa, Third 21st Century COE “Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience” International Symposium, Makino, Shiga, Japan, March 9-10, 2005.

Molecular Analysis of Hepatitis B virus (HBV) Infection Using the L Envelope Protein Fused to Green Fluorescent Protein (GFP) (Poster), T. Kasuya, A. Uyeda, T. Yamada, T. Okajima, K. Tatematsu, K. Tanizawa, and S. Kuroda, Third 21st Century COE “Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience” International Symposium, Makino, Shiga, Japan, March 9-10, 2005.

Structure-function Studies on a Neuronal Axon Guidance Related Protein FEZ1 and its Homologue FEZ2 (Poster), J. Ikuta, T. Fujita, A. Maturana, T. Okajima, K. Tatematsu, K. Tanizawa, and S. Kuroda, Third 21st Century COE “Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience” International Symposium, Makino, Shiga, Japan, March 9-10, 2005.

Interaction of a RING-IBR Protein RBCK1 with Its Splice Variant RBCK2 (Poster), N. Yoshimoto, K. Tatematsu, T. Koyanagi, T. Okajima, K. Tanizawa, and S. Kuroda, Third 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" International Symposium, Makino, Shiga, Japan, March 9-10, 2005.

Retargeting of Hepatitis B Virus-derived Nanoparticles to Mouse Tissues and Tumor Cells by Using Combinatorial Biochemical Technique (Poster), A. Uyeda, M. Inoue, T. Yamada, K. Tanizawa, and S. Kuroda, Third 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" International Symposium, Makino, Shiga, Japan, March 9-10, 2005.

Spectrophotometric, Kinetic, and Structural Characterization of Catalytic Intermediates of Copper/TPQ-dependent Amine Oxidase (Invited), T. Murakawa, Y.-C. Chiu, Y. Yamamoto, H. Hayashi, T. Okajima, and K. Tanizawa, 4th European-Japanese Bioorganic Conference (EJBC-4), Hotel Limani, Ushimado, Setouchi, Okayama, March 15–19, 2005.

[国内学会]

日本生化学会	1 件
SPring8 シンポジウム	1 件
コロイドおよび界面化学討論会	1 件
日本分子生物学会	5 件
日本生物物理学会年会	1 件
ビタミンＢ研究委員会	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）（2）

岡島　俊英	ビルトイン型キノン補酵素生成機構の解明と複合型触媒抗体への応用	1,200

[受託研究]

谷澤　克行	日本学術振興会	生物学分野に関する学術動向の調査・研究　－ ポストゲノム時代のバイオサイエンスの新しい潮流を探る－	2,000
谷澤　克行	農林水産省	キノン型ビルトイン補酵素含有酵素の構造と機能の解析及びデノボデザイン	3,047
谷澤　克行	三菱電機株式会社（NEDO 基盤技術研究促進事業）	ゲノム研究成果産業利用のための細胞内シグナル網羅的解析技術	4,712
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	1,400

[その他の競争的研究資金]

谷澤　克行	ビタミンＢ研究協議会	ビルトイン型キノン補酵素に関する研究	350

ナノシステム設計分野

客員教授　　西谷　龍介（平成１６年４月～平成１６年６月）

a ）　概要

ナノメータスケール科学では、そのシステムの内部構造とその物性を明らかにすること、すなわちナノスケール局所領域物性解析が不可欠である。そして、その構造と電子状態、光学特性などを関連させて理解することが、それらの状態の制御の基礎となる。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、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、測定、解析を進めた。

b ）　成果

走査型トンネル顕微鏡と光学測定装置を組み合わせて、同期して動作させることにより、空気中での分子発光測定ができる装置を製作した。光学系の改良などにより、ナノメータ領域における極微弱光である分子からの発光スペクトル測定が可能となった。これを用いて、空気中で初めてポリフィリン分子の分子準位間発光のスペクトルが測定できた。この分子準位間スペクトルの測定は、今後ナノメータスケールでの分子同定技術の基礎となるものといえる。このナノメータ領域の分子発光を測定するためには、通常では極微弱である発光を増強する必要があり、本研究では、この分子発光を増強させる条件を研究し、基板の貴金属のプラズモン誘起電磁場による分子発光の増強が不可欠であることを、実験、理論の側面から解明した。

［ 原著論文 ］

STM-excited molecular fluorescence from porphyrin thin films, H. Liu, R. Nishitani, Y. Ie, T. Yoshinobu, Y. Aso, H. Iwasaki: Jpn. J. Appl. Phys., 2005, Vol.44　No.18 pp.L566 - L569.

ナノシステム設計分野

客員助教　　砂川武義（平成１６年４月１日～平成１６年６月３０日）

a ） 概要

マイクロ波導波路・回路・キャビティ設計における Know-how を駆使し、光・放射線照射によるキャリア形成に伴うマイクロ波吸収測定の大幅な高感度化の実現を目指し、時間分解マイクロ波空洞吸収・時間分解過渡吸収同時測定法の高度化を行った。また、蓄光材料中のキャリア形成・移動のメカニズムを分光分析とあわせて解明し、より高性能な蓄光材料の開発のための実験を行った。

b ） 成果

マイクロ波立体回路を構成する各コンポーネントの電力・出力特性などの特性評価を行い、マイクロ波検波器の選定と検波器マウントの改良することで SN 比の向上のための設計指針を立てた。また、マイクロ波分配器（マジックティー）のチューニングおよび誘電吸収の実部・虚部の実験的分離のため、メインアームとリファレンスアームからのマイクロ波の重ねあわせについて基礎データを収集した。低温下で伝導度を評価してキャリア伝導メカニズムについて知見を得るため、低温下で空洞共振器を用いた実験の装置設計に貢献し、現在製作中である。有機高分子―電子受容体コンプレックスにおける移動度の実験を行い、時間分解マイクロ波伝導度―光過渡分光 同時測定により移動度定量を行った[1]。また、ユーロピウムを含む蓄光材料で同様の予備実験を行い、信号が得られることを確認した。

[1] A. Saeki, S. Seki, Y. Koizumi, T. Sunagawa, K. Ushida, and S. Tagawa, “Increase of Mobility of Photogenerated Positive Charge Carriers in Polythiophene” *J. Phys. Chem. B* (2005) in press.

ナノシステム設計分野

客員教授　　清水　良　（平成 16 年 7 月 1 日～平成 16 年 9 月 30 日）

a ）　概要

本研究分野は任意の物質上にナノサイズシステムをデザインする方法の開発を目的としている。

b ）　成果

・「タンパク質の立体構造に基づいた創薬に関する研究」

臨床上重要な機能を有する酵素群の立体構造に基づき阻害剤を設計する手法を研究開発した。
また以下の講演を行った。

「創薬とは何か？（１）（２００４年６月２６日）」
「創薬とは何か？（２）（２００４年８月１１日）」
「創薬とは何か？（３）（２００４年９月１０日）」

ナノシステム設計分野

客員助教授　　一木　隆範（平成 16 年 7 月～9 月）

a ）　概要

DNA を用いたデバイス実現のためには、トップダウンナノテクノロジーとボトムアップナノテクノロジーの融合が不可欠と考えられる。本研究ではナノインプリントリソグラフィーを利用した DNA パターン形成技術について、特にモールドの加工技術を検討した。

b ）　成果

フロロカーボンガスを用いたシリコン基板のドライ加工によりアスペクト比の高いナノインプリントリソグラフィー用のモールドを作製した。また、ドライエッチングやリフトオフを用いたナノ電極作製技術、バイオチップの作製技術に関する講演を行った。

[原著論文]

Non-Destructive On-Chip Cell Sorting System with Real-Time Microscopic Image Processing, K. Takahashi, A. Hattori, I. Suzuki, T. Ichiki and K. Yasuda : J. Nanobiotechnology, 2 (2004) 5-12.

Hydrophilic Patterning of Polymer Surfaces Using a Scanning Microplasma Jet Source, T. Ideno and T. Ichiki : J. Photopolymer Sci. and Technol., 17 (2004) 173-176.

Localized and Ultrahigh-Rate Etching of Silicon Wafers Using Atmospheric-Pressure Microplasma Jets, T. Ichiki, R. Taura, and Y. Horiike : J. Appl. Phys. 95 (2004) 35-39.

[解説、総説、翻訳]

マイクロプラズマの応用, 寺嶋和夫、伊藤剛仁、藤原秀行、片平研、河野明廣、王剣亮、荒巻光利、一木隆範：プラズマ・核融合学会誌, 80(10) (2004) 845-853.

特集:マイクロプラズマがおもしろいーマイクロマシン、バイオシステムへの応用ー,　一木隆範 : O plus E, (2004) 1347-1350.

[著書]

「バイオチップの最新技術と応用」第 5 章 3 節 オンチップ細胞計測システムの開発」一木隆範：シーエムシー出版,　(2004),　260-268.

[特許]

「マイクロプラズマジェット発生装置」一木隆範、特許番号第 3616088 号

[国際会議]

Microdevice Technologies forBiomolecular and Cellular Manipulation,(Invited) *T. Ichiki, The 1st International Symposium on Molecule-Based Information Transmission and Reception (MB-ITR2005), Okazaki, Japan, Mar. 3-7, 2005

Microchip Techbnology for High-throughput Screening of Molecular Functions, (Invited) *T. Ichiki, Fifth Int. Symp. on Biomimetic Materials Processing (BMMP-4), Nagoya, Japan, Jan. 26-28, 2005

Microplasma Processes for MEMS Applications,(Invited) *T. Ichiki, T. Ideno, H. M. L. Tan, and R. Taura, 25th Int. Symp. on Dry Process, Tokyo, Japan, Nov. 30-Dec. 1, 2004

Atmospheric-pressure Plasma Micro-jet and Its Applications to Plasma Processing and Micro Analytical Systems,(Invited) *T. Ichiki,, Gordon Research Conference, Plymouth, USA, Aug. 17, 2004

Plasma Technologies for Microfluidics for Novel Bioanalytical Systems,(Invited) *T. Ichiki, 51st Int. Symp. American Vacuum Society, Anaheim, USA, Nov. 16, 2004

Nano/Microfabrication Technologies for Nanobio-devices,(Invited) *T. Ichiki, The 4th Int. Symp. Advanced Fluid Information and The 1st Int. Symp. Transdisciplinary fluid Integration (AFI/TFI2004), Sendai, Japan, Nov. 11, 2004

Feasible Pattering of Functional Biomolecules by Self-assembled Beads Printing,(Invited) K. Takahashi, N. Ichikawa, *H. Fukuda and T. Ichiki, 2004 Int. Microprocesses and Nanotechnology Conference, Osaka, Japan, Oct. 26-29, 2004

Maskless Etching of Microstructures Using a Scanning Microplasma Etcher,(Poster) *T. Ideno and T. Ichiki, Proc. 7th Asia Pacific Conference on Plasma Science and Technology, Fukuoka, Japan, Jun. 29-Jul. 2, 2004

Microreactor Array Chips for High-throughput Function Analysis of Biomolecules Using Magnetic Beads,(Poster) *Y. Hosoi and T. Ichiki, Int. Conf. on Solid State Dev. and Mater.(SSDM 2004), Tokyo, Japan, Sep.16-18, 2004

Development and Characterization of 3D Scanning Microplasma Jet Etcher,(Poster) *Helen M. L. Tan, T. Ideno and T. Ichiki, 2nd Int. Workshop on Microplasmas, Oct. 6-8, 2004

Evaluation of Cell Electrophoretic Mobility Using Microcapillary Electrophoresis Chips, (Poster) *F. Omasu, Y. Nakano and T. Ichiki, Eighth International Conference on Miniaturized Chemical and Biochemical Analysis Systems (Micro Total Analysis Systems 2004), Malmö, Sweden, Sep. 26-30, 2004

Microfluidic Devices Integrated with Permalloy Micropatterns for Bead-based Assay, (Poster) *N. Ichikawa, Y. Katsuyama, Y. Nagasaki and T. Ichiki, Eighth International Conference on Miniaturized Chemical and Biochemical Analysis Systems (Micro Total Analysis Systems 2004), Malmö, Sweden, Sep. 26-30, 2004

ナノシステム設計分野

客員教授　　山下　一郎（平成 16 年 10 月～12 月）

a ）　概要

フェリチンを用いた磁性ナノ粒子の作製とその物性の測定。
基板上でのフェリチン分子と DNA 分子の相互作用の検討。

b ）　成果

L 型フェリチンの内部空間に水溶液中にてコバルト白金を合成した。また基板上に配置された DNA とフェリチンの吸着状況を検討し、一定の相互作用を確認した。さらに得られたコバルト白金ナノ粒子の磁性を測定した。

[原著論文]

A 7-nm Nanocolumn Structure Fabricated by Using a Ferritin Iron-core Mask and Low-energy Cl Neutral Beams, T. Kubota, T. Baba, S. Samukawa, H. Kawashima, Y. Uraoka, T. Fuyuki and I. Yamashita : Appl. Phys. Lett., 84[9] (2004) 1555-1557.

Bio-template Synthesis of Uniform CdSe Nanoparticles Using Cage-shaped, Apoferritin, I. Yamashita: Chemistry Letters, 9(2004) 1158-1159.

[解説、総説、翻訳]

バイオの力で超々LSI をつくる, 村岡雅弘, 岩堀健治, 山下一郎 : 化学, 59 (2004) 38-39.

[著書]

先端化学シリーズ VI　界面・コロイド/ナノテクノロジー/分子エレクトロニクス/ナノ分析, 村岡雅弘, 岩堀健治, 山下一郎 : 丸善（株）, 2004, 127-135.

金属ナノ粒子の合成･調製､コントロール技術と応用展開, 山下　一郎（分担執筆）:（株）技術情報協会, 2004, 総 408 頁.

電子物性・材料の事典, 村岡雅弘, 岩堀健治, 山下一郎 : 朝倉書店, 2004.

金属ナノ粒子の合成・調整・コントロール技術と最適応用, タンパク質無機材料ナノ粒子の作製とバイオナノプロセスへの応用, 岩堀健治・村岡雅弘・山下一郎 : 技術情報協会, 2004.

[国際会議]

Biological Pathway to Nanoelectronics Devices(Invited), *I. Yamashita, SPIE International Symposium, Smart Materials, Nano-, and Micro-Smart Systems, Miyagi, Japan, Apr. 10, 2004.

Nano Fabrication based on Self-assembly of Protein(Invited), *I. Yamashita, Asia-Pacific Conference of Transducers and Micro-Nano Technology, Hokkaido, Japan, Jul. 4, 2004.

Protin Supramolecules for Nano-Electronics Device Fabrication, *I. Yamashita, Viruses&Protein Cages as Materials Conference, Montana, USA, Aug. 1, 2004.

Fabrication of a 7-nm High-aspect Nanocolumn Structure by Low Energy Neutral Beam Etching on a Ferritin Iron-core Mask, *T. Baba, T. Kubota, Y. Uraoka, T. Fuyuki, I. Yamashita, S. Samukawa, AVS 51st International, Anaheim, USA, Nov. 14, 2004.

Nano Device Fabrication Based on Self-assembly of Protein(Invited), *I. Yamashita, SMBN2004, ISMM2004, Kagawa, Japan, Nov. 24, 2004.

Fabrication of 7-nm Nanocolumn Structure Using Ferritin Iron-Core Mask and Highly Anisotepic Neutral Beam Etching, *T. Kubota, T. Baba, H. Kawashima, Y. Uraoka, T. Fuyuki, I. Yamashita, S. Samukawa, Tokyo, Japan, Nov. 30, 2004.

Biological Pathway to the Nanoelectronics Devices, AFI/TFI, *S. Yoshii, I. Yamashita, Miyagi, Japan, Apr. 10, 2004.

Biological Path to Nanoelectronics Devices(Invited), *I. Yamashita, Smart Materials, Nano-and Micro-Smart Systems, Austlaria, Dec. 12, 2004.

Fabrication of Nanometric Structure by Protein supramolecule(Invited), *I. Yamashita, Nanoarchitectonics Workshop, NAMINA2005 , Ibaragi, Japan, Mar. 3, 2005.

The Effects of N-terminal Residues on the Self-assembly of L-chain Apoferritin, *K. Yoshizawa, K. Iwahori, Y. Mishima, I. Yamashita, Nanoarchitectonics Workshop, NAMINA2005, Ibaragi, Japan, Mar. 3, 2005.

Ferritin Cage as a Nanoscale Platform for Chemical Modification, *Y. Fukushige, M. Muraoka, I. Yamashita, Nanoarchitectonics Workshop NAMINA2005, Ibaragi, Japan, Mar. 3, 2005.

Synthesis of Hybrid Nanomaterials of Cage-shaped Protein with Synthetic Polymer, *M. Muraoka, N. Kishimoto, I. Yamashita, 229th ACS National Meeting, USA, Mar. 13, 2005

Biological Path for Nanofabrication of Size-and Shape-controlled Nanoparticle Synthesis (Invited), *I. Yamashita, 229th ACS National Meeting, USA, Mar. 13, 2005.

Cobalt Oxide Nanoparticle Synthesis Using Cage-shaped Protein Cavity, *R. Tsukamoto, K. Iwahori, M. Muraoka, I. Yamasita, 229th ACS National Meeting, USA, Mar. 13, 2005.

Fabrication of Semiconductor Nano-particles in the Protein Cage of Apoferritin, *K. Iwahori, K. Yoshizawa, I. Yamashita, 229th ACS National Meeting, USA, Mar. 13, 2005.

The Bio-Nano-Process: Making Semiconductor Devices Using Protein Supramolecules(Invited), *I. Yamashita, MRS Spring Meeting, USA, Mar. 28, 2005.

ナノシステム設計分野

客員助教授　　古川　功治（平成 16 年 10 月ー12 月）

a ）　概要

分子認識能を持つ生体物質のほとんどはナノレベルを越える精緻な認識能力を持ち、ナノマテリアルと呼ぶに相応しい。その中でも抗体は古くから用いられている、所謂、生体由来のナノツールと言える。抗体が他の生体物質と決定的に異なる点は、その多様性にあり、ナノツールとして幅広く利用するためには、抗体の多様化機構を理解し、任意の特異性を持つ高親和性クローンを効率良く得るシステムを確立することが重要である。

我々は、独自の着眼点と新規手法を用いて、どのような多様性を持つ抗体レパートリーが、いつ、どの程度の量形成されるのか、そのダイナミズム（動力学）を中心に研究を進めており、個体の遺伝的背景と免疫履歴が抗体出現の時期、器官内分布、親和性成熟等に大きく関与することを既に示している。ここから得られる知見は、免疫分野において学術的に重要であるだけでなく、これまで取得困難であった抗原や微量抗原に対する抗体を効率良く作製する技術に直結するため、それら開発技術の確立も進めている。

b ）　成果

(4-hydroxy-3-nitrophenyl) acetyl (NP)をハプテンとして C57BL/6 マウスを免疫すると、単一の遺伝子のみが応答し、そこから親和性成熟により多様な抗体レパートリーが形成される。この系を利用して、抗体の分子進化過程を明らかにした。その結果、NP に対して親和性を示す抗体レパートリーにおいて、各クローン配列と結合能を解析した結果、その成熟は大きく 2 つの経路を経ていることが明らかとなった。

［ 原著論文 ］

A Landscape for the Dynamics of an Immune Response, A. Furukawa, K. Furukawa, and T. Azuma: Biochem. Biophys. Res. Commun. 319 (2004) 469-478.

BASH-Deficient Mice: Limited Primary Repertoire and Antibody Formation, But Sufficient Affinity Maturation and Memory B Cell Generation, in Anti-NP Response, M. Yamamoto, T. Nojima, K. Hayashi, R. Goitsuka, K. Furukawa, T. Azuma, D. Kitamura: Int. Immunol. 16 (2004) 1161-1171.

ナノシステム設計分野

客員教授　　高木　克彦（平成 17 年 1 月～3 月）

a ）　概要

層状光触媒であるチタニアナノシート(TN)とメチルビオロゲン(MV^{2+})との複合体を光照射すると、TN から MV^{2+}への光誘起電子移動が起こることを、すでに見出している。また、可視光増感剤であるポルフィリン誘導体(TMPyP)と MV^{2+}を、層状半導体で複合化した膜では、TMPyP から MV^{2+}への可視光誘起電子移動が起こることを観察した。これらの光触媒反応を発展させるため、メソポーラスシリカ(MPS)と TN からなる複合膜の合成を行い、MPS と TN 界面で起こる光誘起電子移動についてレーザーフラッシュフォトリシス法による検討を行った。

b ）　成果

MPS/TN 複合膜を用いることで、TMPyP と MV^{2+}を、それぞれ独立に配置することが可能となる。MPS として、厚さ 0.8 μm の薄膜を用いると、TMPyP は MPS 細孔内に選択的に取り込まれた。この、(H_2TMPyP-MPS)膜に、TN をキャスト、MV^{2+}水溶液に浸積することで、(TMPyP-MPS)/(MV^{2+}-TN)複合膜を得た。この膜に、紫外光照射を行うと、H_2TMPyP の分解と共に、MV^{2+}の一電子還元体である $MV^{\bullet+}$の生成が確認された。また、(TMPyP-MPS)/(MV^{2+}-TN)複合膜への Nd:YAG レーザー（355 nm）の照射により、$MV^{\bullet+}$に帰属される過渡吸収が観測された。これらの結果は、MPS と TN の界面で長寿命の電子移動が生じていることを明確に示している。以上の結果を基に、様々な MPS, 層状半導体、有機色素による複合膜を用いて、光誘起電子移動について検討を行いその反応機構を明らかにした。

ナノシステム設計分野

客員助教　　山路　稔（平成 16 年 1 月～3 月）

a ）　概要

化学物質に光照射すると励起状態を経由して様々な化学反応が起きることは知られている。反応後に生成する中間体の励起状態についての研究は広く為されてきたが、未反応の励起状態をさらに励起して形成される高励起状態、特に高励起三重項状態における化学反応の研究は余り注目されていない。また、放射線照射により生成する分子のカチオンおよびアニオンラジカル等の中間体をさらに光励起したときの化学反応もほとんど研究対象となっていない。このような励起状態を含めた光・放射線照射初期反応中間体の励起状態の化学の新展開を目指して、大阪大学産業科学研究所において開発されたマルチレーザー照射法を利用して、多色多段階レーザー光分解や、パルスラジオリシスとレーザーフラッシュフォトリシスを融合させたマルチビーム励起の化学に関する研究を行う。

b ）　成果

二色二段階レーザー光分解法を用いて、高励起三重項状態で下記の結合解離反応か進行することを見出した。これらの結果は、異なる波長の光でタイミング良く光励起すると、光に対して安定な分子でさえも光分解が可能であることを示唆する。

カルボニル化合物のω解離反応に対して不活性な炭素-酸素および炭素-ケイ素結合を有するいくつかの芳香族カルボニル化合物は、二色二段階レーザー光分解を用いるとω解離が誘起されることを見出した。この研究成果は Chem. Phys. Lett. に論文として報告した。

Homolytic cleavage of C-Si bond of *p*-trimethylsilylmethylacetophenone upon stepwise two-photon excitation using two-color two-laser flash photolysis, X. Cai, M. Sakamoto, M. Hara, S. Inomata, M. Yamaji, S. Tojo, K. Kawai, M. Endo, M. Fujitsuka, and T. Majima : Chem. Phys. Lett. **2005**, 407, 402-406.

1) α位に炭素-酸素結合を有し、三重項状態ではα解離が起きないいくつかのカルボニル化合物でも、高励起三重項状態では効率よくα解離反応が進行することを見出した。
2) 二つの芳香環が炭素-酸素結合で連結されたいくつかの分子の高励起三重項状態におけるβ結合解離過程の量子収率が、炭素-酸素結合の結合エネルギーと良い相関を示す。このことから、β解離反応性高励起三重項状態のエネルギー準位を見積もることが出来た。

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とフェムト秒超短パルス電子線の発生
- 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
- 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
助手　　楊　金峰
特任助手　　近藤　孝文
大学院生　　竹谷　孝司、友定　寛、島田　巧、藤井　崇弘、菅　晃一
学部学生　　黒田　洋一、廣瀬　正佳
事務補佐員　　寺下　美絵

a ）　概要

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

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

フェムト秒・アト秒時間分解能を実現するためには、サンプル中での光と電子が通過する速度の違いによる時間分解能の劣化の防止が必要である。我々のグループは、電子線パルスと光パルスを屈折率に応じて角度をつけてサンプルに入射する等価速度分光法を開発し、パルスラジオリシス時間分解能の向上に成功した。さらに、パルスラジオリシスの時間分解能をアト秒に向上するために、レーザー分析光パルスを使わない、１台のライナックでツインライナックを実現するダブルデッカー加速器を開発し、世界初めて１台の加速器で上下２つのフェムト秒パルス電子線の発生に成功した。
また、モンテカルロシミュレーション法を用いて、炭化水素及びハロカーボン溶媒中での電子の熱化過程に関する研究を行い、ハロカーボン溶媒中では、電子と溶媒分子との電子付着解離反応を考慮して電子の熱化距離分布を求めた。得られた結果をパルスラジオリシスの実験と比較し、熱化過程及びジェミネートイオン再結合過程の検証を行った。

b ）　成果

・フォトカソード RF 電子銃ライナックによるフェムト秒電子パルスの発生

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

レーザーフォトカソード RF 電子銃を利用したフェムト秒電子パルス発生システムは、レーザーフォトカソード RF 電子銃、S-バンドライナックと磁気パルス圧縮装置から構成されている。低エミッタンス電子ビームの発生には、1.6 セルの加速空洞で構成された最先端 S-バンドフォトカソード RF 電子銃を採用され、電子発生用の光カソードの材質は無酸素銅を用いられている。光カソードの光源としては、全固体ピコ秒レーザーを用いた。本レーザーは、モードロック Nd:YLF 発振器、再生増幅器と波長変換器により構成される。発振器の周波数は、電子線発生と加速用の 2856MHzRF を 1/36 に分周した 79.3MHzRF と位相ロックされている。再生増幅器から出力エネルギー3mJ まで増幅された光パルスは、非線形結晶によって４倍波（262nm）を発生し、カソードに照射される。RF 電子銃から発生した電子ビームのエネルギー（4MeV）が低いため、ビーム輸送中空間電荷効果によるエミッタンスの増大を生じる。これに対しては、電子銃出口にソレノイド磁石を取り付けられ、ソレノイド磁場強度を最適化し、空間電荷効果によるエミッタンスの増大を補正している。

電子ビーム加速用のライナックは、長さ 2mの S-バンド進行波型ライナックを採用している。ライナックと RF 電子銃には、同一クライストロンから 2 分配された RF がそれぞれ供給される。ライナック

と RF 電子銃に供給される RF ピークパワーはそれぞれ 25MW と 10MW であり、運転繰り返しは 10Hz である。ライナックの RF 位相調整は、ハイパワーRF 伝送ラインに取り付けたフェーズシフターによって行う。ライナックでは、電子ビームを加速するともに、RF 位相調整により電子パルスがエネルギー変調される。フェムト秒電子パルスの圧縮には、2 台の 45° 偏向磁石と 4 台の四極電磁石から構成された磁気パルス圧縮システムを用いている。すなわち、ライナックでエネルギー変調された電子パルスが磁気パルス圧縮システムを通過させることによってエネルギー違い電子の軌道長の差を利用してパルスを圧縮する。磁気パルス圧縮法によって圧縮されたパルスの幅は、入力ビームのエミッタンスとエネルギー分散に依存し、空間電荷効果や磁場による非線形効果から決められる。本研究では、RF 電子銃に照射するレーザーの光ビーム径を最適化し、ソレノイド磁場によるエミッタンス増大の補正を行い、3mm-mrad の低エミッタンス電子ビームが得られた。このビームをライナックに加速する際、RF 位相の最適化により電子パルスの非線形エネルギー変調を利用して、パルス圧縮の非線形効果を補正し、世界最短 98 フェムト秒電子パルスの発生に成功した。この電子パルスはフェムト秒パルスラジオリシスの励起パルスとして利用されている。

・等価速度分光法によるフェムト秒パルスラジオリシスの研究

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

この問題を解決するために、本システムでは等価速度分光法と呼ばれる方式を開発した。これは、電子線パルスと光パルスを屈折率に応じて角度をつけてサンプルに入射する方法である。その際に、磁気パルス圧縮器で電子線パルスの波面を光パルスと同じになるように調整を行う。そうすることにより、サンプル中での光路長による時間分解能劣化を原理的にはゼロにまですることができる。また、光路長も電子ビームの径に応じて大きくとることが可能であり、吸収強度も格段に大きくなる。

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

実験では、厚さ 2mm の石英セル内で常温照射し、分析光にはフェムト秒レーザーの基本波（800nm）を用いた。このとき、電子線パルスと光パルスの入射角度は 45° であった。等価速度分光法を用いて電子パルス波面を曲げた時（$\phi=65^{o}$）の水和電子吸収時間スペクトルの測定時間分解能（4.0ps）は、電子パルス波面を曲げない時（$\phi=90^{o}$）の時間分解能（5.5ps）より 1.5ps を向上したことがわかった。また、等価速度分光法を用いたパルスラジオリシスでは、時間分解能への効果だけではなく、吸収強度が明らかに大きく取れることも実験的に確認した。

・ダブルデッカー電子加速器の開発とアト秒パルスラジオリシスの研究

極限ナノファブリケーションでは、アト秒・フェムト秒領域の現象を解明し、レジストにおけるスパー内反応を制御する必要がある。我々のグループは、ダブルデッカー加速器を開発し、レーザー分析

光パルスを使わないアト秒パルスラジオリシスの研究を行っている。

ダブルデッカー型電子加速器は、１台のライナックで上下２つ電子パルスの発生と加速を実現する加速器である。すなわち、現在開発しているレーザーフォトカソード RF 電子銃ライナックを利用し、ダブル入射光学系を用いてカソードに照射するレーザー光パルスを２つに分ける。その２つレーザー光パルスを光学遅延回路により時間差つけ、約 1mm ずれたカソード面に照射することによりダブル電子パルスが生成され、その後、ライナックで加速され、磁気パルス圧縮装置を用いて圧縮される。圧縮された一番目の電子パルスを光に変換し、分析光パルスとして利用する。励起パルスとしては、次の電子パルスを利用する。ダブル電子パルスは同じのレーザーパルスから生成されるため、時間ジッターは電子加速の RF 位相変動だけで決められる。したがって、RF 位相を安定化することにより、分析パルスと励起パルスの時間ジッターが最小限に抑えられる。また、分析光パルスの生成には電子線のコヒーレント放射を利用しているため、レーザー以上の大強度の分析光パルスが得られる。

今年度には、ダブル入射光学系、ダブル電子パルス発生と圧縮システム、電子ビーム測定系を構築し、初めてレーザーフォトカソード RF 電子銃を用いたダブルデッカー電子パルスの発生に成功した。本実験では、ダブル電子パルスの時間差を 1.4ns（加速器の周波数 2856MHz の 4 周期分）設定した。最後に、そのダブル電子パルスを、磁気パルス圧縮器を用いて圧縮し、パルス長が 380fs と得られた。来年度から、電子パルスから分析光パルスの発生実験を行い、ダブルデッカー電子ビームを用いたパルスラジオリシスの実験を行う予定である。

・モンテカルロ法を用いたナノ空間内の反応機構の解析に関する研究

熱化電子の分布は、その後のスパー内不均一反応を決定する要因となる為、電子の熱化過程の解明は放射線化学初期過程の研究にとって重要である。イオン化によって生成された電子は、非弾性散乱による電子の運動エネルギー損失を経て、数百 fs 程度で熱化に至る。氷や n-ヘキサンなどの炭化水素溶媒中での、モンテカルロ法を用いた電子の熱化過程の研究が以前から行われているが、熱化距離分布に関する直接的な実験結果が得られていない為、オンサガー理論に基づいた G-値などによる間接的な検証のみが行われてきた。本研究では、炭化水素及びハロカーボン溶媒中での電子の熱化距離分布を、モンテカルロ法を用いて求め、サブピコ秒パルスラジオリシスでの実験結果と比較することで、ハロカーボン溶媒中で熱化距離が短くなる事の検証を行った。モンテカルロ法を用いた熱化距離分布の計算は、Rassolov らの n-ヘキサンでの手法を参考し、電子の熱化過程では電子の運動エネルギーによって、溶媒分子の電子励起ポテンシャルエネルギー以下の亜励起電子、溶媒分子の分子内振動エネルギー以下の亜振動励起電子、熱電子に区別した。モンテカルロ法による熱化過程の計算手法として、始め、カチオンラジカルと電子の位置、および電子の初期運動エネルギーを与える。その後、電子は平均自由行程に従って拡散する。この時、電場の影響も考慮する。電子の次の位置が決まれば、ある確率 k で、散乱の弾性ないし非弾性を決定する。非弾性散乱により電子のエネルギーが失われる過程は、亜励起電子では C-H 結合などの分子内振動励起($3000cm^{-1}$)であり、亜振動励起電子では、フォノンなど分子外振動励起($80cm^{-1}$)である。ハロカーボン溶媒では、電子付着解離反応がその断面積に従って起こる。電子付着解離反応の断面積は、凝縮相でのデータは得られていない為、気相のデータを参考にした。以上の過程を繰り返す事で、最終的に電子は熱化するか電子付着解離反応を起こし、計算を終了させる。その時のカチオンラジカルとアニオンの距離を、熱化距離として記録する。モンテカルロ法による n-ヘキサンの熱化距離分布と電子付着解離反応を考慮した時の四塩化炭素溶媒での電子の熱化距離分布の計算において用いたパラメータは、平均自由行程 λ=5Å、C-H 結合エネルギー ε_{CH}=0.4eV、フォノン ε_{ph}=0.01eV である。n-ヘキサンにおいて、得られた平均の熱化距離は 6.6nm であり、これは過去のパルスラジオリシスの実験から求められた値と一致している。四塩化炭素溶媒においては、n-ヘキサンで得られた全散乱中の非弾性散乱の割合 k を用いて同様の計算を行った。電子付着解離反応を考慮した時の四塩化炭素溶媒での電子の平均熱化距離は、n-ヘキサンの場合より 1/3 短く、2.5nm であることが分かった。理由の１つとしては、電子の熱化前の付着反応によるスパーサイズの減少と考えられる。このことより初期分布距離が短いことを利用すれば、ナノファブリケーションにおける空間分解能向上に貢献できる可能

性が考えられる。

［ 国際会議 ］

Development of a Femtosecond Pulse Radiolysis for Reaction Analysis in nano-space, Y. Yoshida, J. Yang, T. Kozawa and S. Tagawa, 9th European Particle Accelerator Conference, Lucerne, Switzerland, July 5-9, 2004.

Generation of a Femtosecond Electron Photocathode Linac for Nanoscience and Nanotechnology, J. Yang, T. Kozawa, Y. Yoshida, and S. Tagawa, 9th European Particle Accelerator Conference, Lucerne, Switzerland, July 5-9, 2004.

Subpicosecond Pulse Radiolysis Study on Geminate Ion Recombination Process in n-Dodecane, Y. Yoshida, A. Saeki, T. Kozawa, J. Yang, and S. Tagawa, 14th International Conference on Ultrafast Phenomena, Niigata, Japan, July 25-30, 2004.

Generation of Low-emittance Femtosecond Electron Pulse with Laser Photocathode RF Linac, J. Yang, K. Kan, H. Tomosada, K. Takeya, T. Kondo, T. Yamamoto, T. Kozawa, Y. Honda, Y. Yoshida, and S. Tagawa, 8th SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, Dec. 6-7, 2004.

［ 国内学会 ］

日本放射線化学会	6 件
リニアック技術研究会	4 件
日本物理会	1 件
日本原子力学会	7 件
日本応用物理学会	1 件
高周波電子銃研究会	1 件
TIARA 研究発表会	2 件

［ 取得学位 ］

修士（工学）

友定　寛	等価速度分光法によるフェムト秒パルスラジオリシス
島田　巧	AMOC 測定法を用いた高分子内陽電子消滅過程の研究
藤井　崇弘	低速陽電子発生用モデレーターの開発

［ 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

基盤研究 (A)(2)

吉田陽一	サブフェムト秒・アト秒電子線励起時間分解吸収分光法の基礎研究	8,900

［ 共同研究 ］

吉田　陽一	日本原子力研究所高崎研究所	パルスラジオリシス法を用いたイオン性溶液化学的研究
	日本原子力研究所高崎研究所	ナノストラクチャー内放射線誘起反応高時間分解測定
	日本原子力研究所高崎研究所	イオンビームによる超微細構造体の形成

日本原子力研究所高崎研究所	イオンパルスラジオリシス法による中間活性種の挙動の解明
広島大学	ナノフォトニック結晶放射光
住友重機械工業株式会社	光カソードRF電子銃と高品質電子ビームの開発

ナノ量子ビーム開発分野

教授　　磯山　悟朗（兼任）
助教授　　誉田　義英
助手　　木村　徳雄

a ）　概要

本研究分野では極限ナノ加工を実現するために必要な電子線形加速器の高性能化と、量子ビームの開発研究、新しいナノ計測手法の開発と利用法の研究を行うことを目的としている。電子ビームを用いたナノスケールでの微細加工を行うためには、電子ビームと材料との反応過程を調べる必要がある。この目的のために電子ライナックによるパルスラジオリシス法が用いられてきており、更なる超高速現象解明のためには、電子ライナックをより高性能化する必要がある。一方、電子ライナックを利用した陽電子ビームの生成も行っている。陽電子は空孔、自由体積に対し検出効率が高く､ナノスケールでの空孔サイズや分布を調べるための有効な手法と考えられている。特に高分子などの薄膜に対してもこれらの情報を得ることが可能な低速陽電子ビームの利用価値は高い。陽電子あるいは陽電子と電子が束縛状態を形成しているポジトロニウムと物質との相互作用に対する理解を進め、高分子薄膜内の自由体積や表面・界面の評価を行い、これを新しい材料開発に役立てていこうとしている。このような研究を行うためには、高品質な陽電子ビームが必要であるため、これを可能とする電子ライナックを用いた大強度低速陽電子ビームの発生法の開発、及び陽電子ビームの利用法の開発研究も行っている。更に、これらの研究を進める実験装置を有する加速器量子ビーム実験室の管理・運営にも寄与している。

b ）　成果

・S バンドライナックの立ち上げ

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

・高強度低速陽電子ビームの生成

陽電子の最も一般的な利用法に陽電子寿命測定法、及び消滅γ線ドップラー拡がり測定法などがあり広く利用されてきている。より多くの情報を得るためには、これらを組み合わせた AMOC 法や２台の検出器で同時にドップラー拡がり計測する方法などがより有効な測定方法となるが、このような測定方法ではγ線の計数効率が著しく低下するため、高強度短パルス陽電子ビームの利用が望まれる。ライナックを用いた陽電子発生では、モデレーターと呼んでいる低速陽電子を生成する部分での生成効率を、如何に上げるかが重要な研究課題である。また、陽電子回折実験を効率よく行うためには、陽電子ビーム径はできるだけ小さいほうがよい。そこで、小型で低速陽電子生成効率の高い新型モデレーターを、数値計算を基に設計・製作し陽電子ビームの生成を行った。数値計算からは従来型に比べ数倍高い生成効率が期待されるが、まだ、陽電子ビームを陽電子用実験室まで輸送できた段階で、陽電子量の計測は行っていない。今後輸送パラメーターの最適化を行うと共に、陽電子量の計測も行う予定である。

・AMOC 法を用いたオルソポジトロニウム消滅過程に関する研究

高分子におけるオルソポジトロニウム(*o*-Ps)の寿命は高分子内空隙の大きさや分布を調べる上で重要なパラメーターとなる。しかし、高分子のように多くの官能基が存在する物質では、局所的な電位分布が陽電子やポジトロニウム(Ps)の空間的偏在をもたらし、更には陽電子やポジトロニウムの寿命に影響を与える可能性がある。陽電子や Ps が特定の場所で優先的に消滅しているかどうかを調べるためには、消滅電子に関する情報が重要となる。通常高分子材料における陽電子寿命は３つの消滅過程（パラポジトロニウム(*p*-Ps)、陽電子、オルソポジトロニウムの消滅過程）に分解される。また S パラメーターで記述される消滅γ線の光電ピークのエネルギー拡がりは、これらの消滅過程で放出される消滅γ線、および装置関数から構成されている。S パラメーターとは光電ピーク全体の面積に対するピーク近傍での面積の比で表され､たとえばSパラメーターが大きいと光電ピークの幅が小さく、消滅電子の運動量は小さくなる。通常、S パラメーターには陽電子のすべての消滅過程に寄与した消滅電子の運動量が含まれており、これらは分解できないのに対し、AMOC 法を用いることで、３つの消滅過程に対応する S パラメーターを得ることが可能となる。

官能基の影響が S パラメーターに現れるかを調べるために、試料としてポリスチレン（PS）およびこの誘導体であるポリブロモスチレン（PBS)、ポリヒドロキシスチレン（PHS)、ポリメチルスチレン（PMS)、ポリクロロスチレン（PCS）を選んだ。陽電子源として ^{22}Na を用い、AMOC 法で、極性基の違いによる陽電子、*o*-Ps の消滅相手電子の運動量の比較を行った。ただし今回は試料作成の仕方等で問題点が生じないようにするため、各高分子をペレット状に加工せず、精製後パウダーのままで測定を行った。

実験結果から、全ての試料に対し *o*-Ps に対応する S パラメーターの方が自由消滅に対応する S パラメーターより大きいことが判った。PS や PMS のように低エネルギーの電子が存在している場合でも、自由消滅する電子の運動量は大きく、多くは低エネルギー電子と自由消滅していない、という注目すべき結果が AMOC 測定から示唆された。また、*o*-Ps に限れば、寿命と S パラメーターの関係は、ハロゲンを含む場合と含まない場合で２つのグループに分かれ、夫々のグループでは寿命が増えるに従い対消滅電子の運動量も下がる傾向があった。*o*-Ps の消滅に関連するエネルギースペクトルだけを抽出し、PS をリファレンスとして直接光電ピークの差をとることで、対消滅電子運動量分布に関する情報を得ることも AMOC 法を用いることで可能となる。分子軌道計算については Win MOPAC3.9 を用いて、上記試料中のエネルギー準位計算を行い、実験データとの比較・検討を現在行っている。

・高分子中の官能基がポジトロニウム生成に与える影響に関する研究

陽電子を物質中に照射すると、電子線照射の場合と同様イオン化が起こる。ポジトロニウム（Ps）は熱化した陽電子が電子を捕捉することによって生成され、長寿命成分である *o*-Ps の寿命から空孔のサイズが推測される。スパーモデルによると、Ps の生成は、媒質および添加物による電子の捕捉ならびに電子と親イオンの再結合と競争的に起こる。したがって、Ps の生成量を測定することによって電子の捕捉反応を推測できる。本研究では、ポリメチルメタアクリル酸およびポリスチレンにハロゲンや $C_6H_5CH_2O$ 等の官能基を導入し、*o*-Ps の生成量に対する影響を検討した。測定結果は大きな生成量の低下を示し、官能基による電子の捕捉を示唆する。この結果は、電子の親イオンによる捕捉が～1ns で起こることを考えると、電子は官能基によって捕捉され、その過程が Ps の生成過程（数 ps）よりも速いことを示す。これらの結果は、陽電子寿命測定法が固相中での放射線化学初期過程を研究するのに有効である。さらに、レジスト材料に対する電流効率を見積もるのにも有用であることを示している。

［ 原著論文 ］

Formation of defect structures in Au-polysilane interfaces probed by low energy positron beams, Y. Terashima, S. Seki, M. Tashiro, Y. Honda, S. Tagawa: Solid State Commun. 132 (2004) 641-645.

Study of Interfaces in Polymer Bilayers by Slow Positron Beam, Y. Terashima, S. Seki, K. Miyamoto, M. Tashiro, Y. Honda, S. Tagawa, Material Science Forum 445-446(2004)349-351.

［ 国際会議 ］

Positron Annihilation Lifetime Spectroscopy as a Novel Method to Investigate the Radiation Chemistry of Resists, N. Kimura, K. Miyamoto, Y. Honda, G. Isoyama, S. Tagawa, 8th SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Dec. 6-7, 2004, Osaka, Japan

Study on Positron Annihilation Process in Nano Vacancy, T. Shimada, N. Kimura, Y. Honda, Y. Yoshida, 8th SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Dec. 6-7, 2004, Osaka, Japan.

Design of a New Moderator forIntense Slow Positon Beam, T. Fujii, T. Shimada, N. Kimura, Y. Honda, Y. Yoshida, G. Isoyama, S. Tagawa, 8th SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Dec. 6-7, 2004, Osaka, Japan.

Femtosecond Electron Pulse with Laser Photocathode RF Linac, J. Yang, K. Kan, H. Tomosada, K. Takeya, T. Kondo, T. Yamamoto, T. Kozawa, Y. Honda, Y. Yoshida, and S. Tagawa, 8th SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Dec. 6-7, 2004, Osaka, Japan.

Equivalent Velocity Spectroscopy for Improvement of Time Resolution on Electron Beam Pulse Radiolysis System, T. Kondoh, H. Tomosada, K. Kan, J. Yang, T. Yamamoto, T. Kozawa, Y. Honda, Y. Yoshida, and S. Tagawa, Third 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" International Symposium. March 9-10, 2004, Makino, Japan.

Study of Annihilation Processes of Positrons in Polymers, Y. Honda, T. Shimada, N. Kimura, Y. Yoshida, and G. Isoyama, Third 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" International Symposium. March 9-10, 2004, Makino, Japan.

Upgrade of the L-band Linac at ISIR, Osaka University for Highly Stable Operation, R. Kato, G. Isoyama, S. Kashiwagi, T. Yamamoto, S. Suemine, Y. Yoshida, Y. Honda, T. Kozawa, S. Seki and S. Tagawa, FREE ELECTRON LASERS 2003, Proc. of the 25th International Free Electron Laser Conference and the 10th FEL Users Workshop, Tsukuba, Ibaraki, Japan, September 8-12, 2003, Elservier 2004, pp.II-43 - II-44.

［ 国内学会 ］

リニアック技術研究会	3 件
日本放射線化学会	2 件
日本原子力学会	3 件

ナノビームプロセス分野

教授　　田川　精一
助教授　　関　修平
助教授　　古澤　孝弘

a ）　概要

ナノビームプロセス分野は電子、イオン、光子等の集束性に優れた量子ビームを用いたナノテクノロジープロセスの研究・開発を行っている。トップダウン型ナノテクノロジーの代表であるリソグラフィは現在 100 nm 以下の加工が可能なレベルに到達しているが、本研究分野では、さらなる高解像化を目指すため、極限ナノビームプロセスの追求と、その展開を目的に研究を行っている。ナノビームが微小空間内で引き起こす現象は物理・化学的に興味深いだけでなく、今後のトップダウン型ナノテクノロジーの進展のため、解明されなければならない必須項目である。さらに、ナノテクノロジーの発展のためにはトップダウン型ナノテクノロジーとボトムアップ型ナノテクノロジーの融合が必要不可欠であり、本研究分野では両者の融合を念頭に極限ナノビームプロセスの展開を目指した研究を進めている。

b ）　成果

・分子ナノワイヤーの電子構造と物理的特性

飽和高分子ながら分子内に広がった共役系を有すると考えられるポリシラン・ポリゲルマンは、その特有の電子光学特性から多くの注目を集めている。このような共役系高分子の物理的特性を改善するため共役系骨格の電子構造の研究を行っている。

・化学増幅型レジストの反応機構

次世代電子ビーム・X線用レジストとして開発が進められている化学増幅型レジストの放射線反応過程を、パルスラジオリシス法および電子ビーム露光後の分光分析により調べ、酸発生機構における酸発生効率および高分子マトリクス中でのプロトン移動の高分子構造依存性を明らかにした。

・荷電粒子による一次元ナノワイヤーの形成

荷電粒子ビームの全く新しい応用形態として、これらビームによる高密度エネルギー付与・励起を利用し、新しいナノスケール素子の形成手法を提案した。特に高分子中にイオンビームが入射した際、飛跡に沿ってトラック構造と呼ばれる非常に高密度の反応中間体集合が形成され、ここでの特殊な物理化学反応から、トラック外部には全く影響を与えずに元の形質を維持したまま、非常に微細な空間領域にのみ新しい微細構造体を形成すると同時に、極めて高度にサイズ・構造制御されたナノ構造集合体の形成に成功した。

・ナノエレクトロニクス材料からのアウトガス生成機構

ナノエレクトロニクス用材料であるレジストからのアウトガスはフォトリソグラフィシステムの光学素子に付着し、システムに重大なダメージを与える。これは、次世代フォトリソグラフィにおいてもっとも重大な問題となっている。この問題を解決し、汚染のないレジスト材料開発のための設計指針を得るためレジストの分子構造とアウトガスの関係を質量分析器と用いて調べた。

・微細加工材料のナノ空間内での量子ビーム誘起反応種の三次元ダイナミクスの研究

電子線リソグラフィはトップダウン型ナノテクノロジーにおいてもっとも解像度が高い加工システムである。微細加工材料においてパターン形成に利用される短寿命中間活性種のナノ空間内での三次元空間分布とその経時変化を解明することにより、微細加工材料の限界解像度と反応機構が密接に関係していることを明らかにした。

［ 原著論文 ］

Adjacent Effect on Positive Charge Transfer from Radical Cation of n-Dodecane to Scavenger Studied by Picosecond Pulse Radiolysis, Statistical Model, and Monte Carlo Simulation, A. Saeki, T. Kozawa, Y. Yoshida and S. Tagawa: J. Phys. Chem. A 108 (2004) 1475.

Dependence of Acid Generation Efficiency on the Protection Ratio of Hydroxyl Groups in Chemically Amplified Electron Beam, X-ray and EUV Resists, H. Yamamoto, T. Kozawa, A. Nakano, K.Okamoto, S. Tagawa, T. Ando, M. Sato and H. Komano: J. Vac. Sci. Technol. B 22 (2004) 3522.

Modelling and Simulation of Chemically Amplified Electron Beam, X-ray and EUV Resist Processes, T. Kozawa, A. Saeki and S. Tagawa: J. Vac. Sci. Technol. B 22 (2004) 3489.

Pulse Radiolysis Study on Proton and Charge Transfer Reactions in Solid Poly (methyl methacrylate), A. Nakano, K. Okamoto, T. Kozawa and S. Tagawa: Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2004) 4363.

Effects of Ester Groups on Proton Generation and Diffusion in Polymethacrylate Matrices, A. Nakano, K. Okamoto, T. Kozawa and S. Tagawa: Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2004) 3981.

Proton Dynamics in Chemically Amplified Electron Beam Resists, H. Yamamoto, T. Kozawa, A. Nakano, K. Okamoto, Y. Yamamoto, T. Ando, M. Sato, H. Komano and S. Tagawa: Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2004) L849.

Polymer Screening Method for Chemically Amplified Electron Beam and X-Ray Resists, H. Yamamoto, A. Nakano, K. Okamoto, T. Kozawa and S. Tagawa: Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2004) 3971.

Electron Dynamics in Chemically Amplified Resists, T. Kozawa, H. Yamamoto, A. Nakano, A. Saeki, K. Okamoto and S. Tagawa: J. Photopolym. Sci. Technol., 17 (2004) 449.

Precise Control of Nanowire Formation Based on Polysilane for Photoelectronic Device Application, S. Tsukuda, S. Seki, A. Saeki, T. Kozawa, S. Tagawa, M. Sugimoto, A. Idesaki, S. Tanaka: Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2004) 3810.

Delocalization of Positive and Negative Charge Carriers on Oligo- and Poly-fluorenes Studied by Low-Temperature Matrix Isolation Technique, Y. Koizumi, S. Seki, A. Acharya, A. Saeki, and S. Tagawa: Chem. Lett. 33 (2004) 1290.

Formation of benzene trimer radical cation in γ-irradiated low temperature 2-methylpentane matrices, M. Todo, K. Okamoto, S. Seki, S. Tagawa: Chem. Phys. Lett.399 (2004) 378

Dynamics of Positive Charge Carriers on Si Chains of Polysilanes, S. Seki, Y. Koizumi, T. Kawaguchi, H. Habara, S. Tagawa: J. Am. Chem. Soc. 126 (2004) 3521.

157 nm-Induced Resist Outgassing Studied by Films Thickness Loss and in-situ Quadrupole Mass Spectrometer, Y. Matsui, S. Seki, S. Tagawa: S. Kishimura, and M. Sasago: J. Photopolym. Sci. Technol. 17 (2004) 671.

Fabrication of Nanowires Using High-Energy Ion Beams, S. Tsukuda, S. Seki, M. Sugimoto, A. Idesaki, S. Tanaka, A. Oshima, and S. Tagawa: J. Phys. Chem. B 108 (2004) 3407.

Study of Interfaces in Polymer Bilayers by Slow Positron Beam, Y. Terashima, S. Seki, K. Miyamoto, M. Tashiro, Y. Honda, S. Tagawa: Mater. Sci. Forum 445 (2004) 349.

Inhomogeneous Distribution of Crosslinks in Ion Tracks in Polystylene and Polysilanes, S. Seki, S. Tsukuda, K. Maeda, Y. Matsui, A. Saeki, and S. Tagawa: Phys. Rev. B 70 (2004) 144203

Formation of Defect Structures in Au-Polysilane Interfaces Probed by Low Energy Positron Beams, Y. Terashima, S. Seki, M. Tashiro, Y. Honda, S. Tanaka: Solid State Commun.,132 (2004) 641-645.

［ 総説、解説 ］

高分子の架橋と分解, 関　修平: CMC 出版, 東京, (2004).

Charged Particle and Photon-Induced Reactions in Polymers, S. Tagawa, S. Seki and T. Kozawa: Charged Particle and Photon Interactions with Matter (Marcel Dekker, New York, 2004) 551-578.

ナノリソグラフィ, 古澤孝弘: The News of Engineering, Vol.26 (2004) 2.

［ 国際会議 ］

Transient Spectroscopy of Radical Cations of a Variety of Substituted Polysilanes, *S. Seki, T. Koizumi, T. Kawaguchi, H. Habara, and S. Tagawa: 37th Silicon Symposium, Philadelphia, USA, May 20-22, 2004.

Cross-Linked Silicon Based Polymer Nanowire Formation by High Energy Charged Particles, S. Tsukuda, S. Seki, S. Tagawa and M. Sugimoto, 37th Silicon Symposium, Philadelphia, USA, May 20-22, 2004.

Radiolysis Studies of Benzene: Pico-and Subpicosecond Pulse Radiolysis and γ-Radiolysis at Low Tempaerature, *K. Okamoto, M. Todo, A. Saeki, T. Kozawa, S. Seki, Y. Yoshida and S. Tagawa, 2004 Gordon Research Conference, Colby College, ME, USA, June 20-25, 2004.

The dependence of acid generation efficiency on the protection ratio of hydroxyl groups in chemically amplified electron beam, X-ray and EUV resists, *H. Yamamoto, A. Nkano, K. Okamoto, T. Kozawa and S. Tagawa, T. Ando, M. Sato and H. Komamo, 48th International Conference on Electron, Ion and Photon Beam Technology and Nanofabrication 2004, June 1-4, San Diego, USA.

Modelling and Simulation of Chemically Amplified EB, X-ray and EUV Resist Processes, *T. Kozawa, A. Saeki and S. Tagawa, 48th International Conference on Electron, Ion and Photon Beam Technology and Nanofabrication 2004, June 1-4, San Diego, USA.

Subpicosecond Pulse Radiolysis Study on Geminate Ion Recombination Process in n-Dodecane, *Y. Yoshida, A. Saeki, T. Kozawa, J. Yang and S. Tagawa, 14th International Conference on Ultrafast Phenomena, 25-30 July, 2004, Niigata, Japan.

Recent progress in reaction analysis of chemically amplified resists for post-optical lithographies, T. Kozawa, H. Yamamoto, A. Nakano, A. Saeki, K. Okamoto and *S. Tagawa, Micro- and Nano- Engineering International Conference, 19-22 Sep. 2004, Rotterdam, Netherlands.

Potential Cause of Inhomogeneous Acid Distribution, *H. Yamamoto, T. Kozawa, A. Nakano, K. Okamoto, S. Tagawa, T. Ando, M. Sato and H. Komano, Microprocesses and Nanotechnology, 27-29 Oct. 2004, Osaka, Japan.

Dependence of Acid Yield on Acid Generator in Chemically Amplified Resist for Post-optical Lithography, *A. Nakano, K. Okamoto, Y. Yamamoto, T. Kozawa, S. Tagawa, T. Kai and H. Nemoto, Microprocesses and Nanotechnology, 27-29 Oct. 2004, Osaka, Japan.

Modelling of Chemically Amplified EUV Resist Processes, *T. Kozawa, A. Saeki, K. Okamoto and S. Tagawa, 3rd International EUVL Symposium, 1-4 Nov. 2004, Miyazaki, Japan.

Delocalization of Positive and Negative Charge Carriers on Oligo- and Poly-Fluorenes Studied by Low Temperature Matrix Isolation Technique, *Y. Koizumi, S. Seki, Anjali Acharya, A. Saeki, and S. Tagawa: 2004 Gordon Research Conference, Colby College, ME, USA, June 20-25, 2004.

Dynamics of Positive Charge Carriers on Si Chains of Polysilanes, *S. Seki, Y. Koizumi, T. Kawa-guchi, H. Habara, and S. Tagawa: 2004 Gordon Research Conference, Colby College, ME, USA, June 20-25, 2004.

Formation of Nanowires Based on π-Conjugated Polymers by High-Energy ion Beam Irradia-tion, S. Tsukuda, S. Seki, M. Sugimoto, S. Tagawa, Microprocess and Nanotechnology Confer-ence2004, Osaka, Japan, October 26-29, 2004.

Transport Properties of Charge Carries in Single-Walled Carbon Nano-tubes by Flash-Photolysis Time-Resolved Microwave Conductivity Technique, Y. Ohno, K. Mae-hashi, K. Inoue, K. Matsumoto, A. Saeki, S. Seki, S. Tagawa: Proc. ICPS-, 27, 2004

Outgassing Characteristics of Acetal Resists for 157 nm Lithography Investigated by Time-Resolved Measurement, Y. Matsui, S. Seki, S. Matsui, S. Tagawa, S. Irie, T. Itani: Proc. SPIE 5376 (2004) 178.

［ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ］

田川　精一　　14th Microprocess and Nanotechnology Conference（組織委員）

［ 国内学会 ］

日本放射線化学会	7 件
応用物理学会	6 件
日本化学会	6 件

日本原子力学会	5 件
日本高分子学会	4 件

[科学研究費補助金]

（代表者として配分されたもの）　　単位：千円

基盤研究(A)(2)

田川　精一	フェムト秒パルスラジオリシス法によるナノ構造内反応機構の解明	7,200

萌芽研究

関　修平	孤立したナノ構造体・分子素子の電極レス伝導度評価技術の開発	1,700

若手研究(B)(2)

古澤　孝弘	フェムト秒パルスラジオリシスによる極限ナノビームプロセスの創生	1,300

[受託研究]

田川　精一	技術研究組合超先端電子技術開発機構 (ASET)	化学増幅レジストの反応機構の研究
田川　精一	半導体先端テクノロジー(Selete)	液浸リソグラフィ用液浸液に関する研究
田川　精一	原子力安全基盤調査研究	放射線化学の最先端の研究を基盤とした安心安全の確保のための目に見える線量計材料の開発

超高速ナノ構造分野

客員教授　　ムスタファ　モアディブ　（平成 16 年 6 月 28 日～平成 16 年 10 月 4 日）

a ） 概要

本研究分野では，単一カメラと複数の全方位ミラーからなる複眼全方位ビジョンに関する理論解析を行っている．

b ） 成果

様々な構成の複眼全方位ビジョンをシミュレーション可能な，全方位ビジョンシミュレータを開発し，ミラーの構成の違いによる能力評価を行なった．具体的には，ミラーの大きさ，数量と配置の違いによる，奥行き計測精度，計測安定性，視野範囲への影響を調べた．その成果は，以下の国際会議で発表した．

E. Mouaddib, R. Sagawa, T. Echigo, Y. Yagi, "Stereo Vision with a Single Camera and Multiple Mirrors", In Proc. IEEE International Conference on Robotics and Automation, Barcelona, Spain, April 18-22, 2005.

モアディブ氏により，以下の講義が行われた．

“Computer Vision in the CREA lab: Some results” (July.28, 2004).

概要は，ピカルディー大学におけるコンピュータビジョンとロボティクス研究の概要と，モアディブらの研究グループによる，パターン投光法ならびに全方位ビジョン研究の紹介である．

超高速ナノ構造分野

客員助教授　　Marek Nowicki（平成 16 年 11 月 6 日～平成 17 年 1 月 11 日）

a ）　概要

ナノテクノロジーにおいては、構造とその物性を明らかにすることは重要な課題である。本分野では、分子発光素子の開発をめざし、特に金基板上に形成した自己組織化有機薄膜ナノ構造を、超高真空走査トンネル顕微鏡、原子間力顕微鏡などを用いて調べた。これらの光学特性を解析するために、トンネル顕微鏡を用いたナノスケール STM 誘起発光分光測定装置の開発、測定、解析を進めた。

b ）　成果

走査型トンネル顕微鏡と光学測定装置を組み合わせて、同期して動作させることにより、空気中での分子発光測定ができる装置を製作した。光学系の改良、光遮蔽チャンバの作製などにより、ナノメータ領域における極微弱光である分子からの発光スペクトル測定が可能となった。これを用いて、空気中で初めてポリフィリン分子の分子準位間発光のスペクトルが測定できた。この分子準位間スペクトルの測定は、今後ナノメータスケールでの自己組織化有機薄膜の構造とその物性研究の基礎となる。これらの成果は、岩崎研究室と共同で得られた。

超高速ナノ構造分野

客員教授　　Werner Schlegel　（平成 17 年 1 月 12 日～平成 17 年 3 月 11 日）

a ）　概要

本研究分野は超高速で作動するナノスケールの構造物の解析を目的としている。

b ）　成果

・シグナル分子足場タンパク質 ENH1 を中心とする心肥大誘導機構の解析

ラット新生仔心筋細胞を用いて心肥大を誘導するシグナル分子機構を明らかにした。

また以下の講演を行った。

「細胞内シグナルと遺伝子発現超早期遺伝子発現は mRNA 伸長レベルでダイナミックに制御されている。（２００５年２月１５日）」

ナノテクノロジー産業応用研究部門

概要

本研究部門は、環境調和ナノマテリアル分野（菅沼研)、計算機ナノマテリアルデザイン分野（兼吉田（博）研)、ナノバイオ知能システム分野（兼溝口研)、ナノテクノロジープロパテント分野（学内兼任)、ナノテクノロジートランスファー分野（外国人客員）の４分野から構成され、産業界にとって有用であり、また将来の新産業の創成に利すると考えられるナノテクノロジーに関する科学技術や知的所有権を産業応用するための中核となる研究を行っている。それぞれの名称の通りに、ナノテクノロジーを用いた環境調和ナノマテリアル、高効率エネルギー変換ナノマテリアル、ナノマテリアルデザインソフト技術、ナノバイオ知的システム技術，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いただきたい。

成果

- Sn-Ag-Cu 系はんだボールアレイの凝固現象解明
- Sn-Zn 系はんだの高湿環境信頼性確保のためのガイドラインを提示
- Ni-P めっき膜接続界面のナノ構造を TEM 観察により解明
- Ti-PVA 系人工軟骨材料およびバイオ軟骨-ポーラスアパタイト系材料を開発
- 原子配列デザイン・HREM 計算・画像処理から、異元素を内包した C・BN フラーレン等、様々な物質の研究
- 予備的なナノテクオントロジーの開発
- 機能分解木を用いたナノ粒子およびナノ薄膜の材料設計過程の追試的記述
- シグナル伝達オントロジーCSNO の改善とそれに基づくシグナル伝達知識の再構築
- ナノテク材料機能を対象とした機能設計発想支援システムのプロトタイプの開発
- 第一原理擬ポテンシャル法による電子状態及び動力学計算手法の開発
- 第一原理計算とモンテカルロ法による強磁性半導体の強磁性転移温度（キュリー点）の予測とデザイン
- 電子励起ナノ構造創製プロセスのデザイン（グラファイトからナノ構造ダイヤモンド）
- ナノ構造デルタドーピング法による強磁性転移温度の上昇法デザイン
- 水素化アモルファスシリコンのＣＮ処理欠陥低減機構の第一原理分動力学による機構解明
- デラッフォサイトベースの自然超格子を用いた透明強磁性半導体のマテリアルデザイン

環境調和ナノマテリアル分野

教授	菅沼　克昭
助教授	奥　健夫
助手	山口　俊郎、井上　雅博
技官	谷畑　公昭
博士研究員	金　槿銖、林　大和
研究推進員	畑村　真理子
事務補佐員	浦山　奈緒美、井手　こずえ
大学院学生	金　迎奄、中田　昌幸、成田　一人、李　在彦、金野　元紀、中川　登志子、山中　公博、隈元　聖史、今西　貴之、西脇　篤史、山崎　雄介、小井　成弘

a ） 概要

無機・有機・金属などの異相界面ナノ構造制御技術を駆使し，電子機器分野を主とした鉛フリーはんだ技術・導電性接着剤技術など環境調和したファインな構造接続技術開発と新たな学際領域開拓，複合化技術を用いた金属基・金属間化合物基複合材料開発，BCN フラーレン物質の合成と構造研究，或いは生体親和性の高い人工骨形成などを通し，産業界へ積極的な寄与を行っている。

b ） 成果

・環境調和型エレクトロニクス実装技術の基礎技術確立と推進

環境調和型超高密度化が強く望まれている。このための要素技術としてエレクトロニクス実装における鉛フリー化を目差し研究を行っている。鉛フリーはんだ特有の凝固欠陥形成メカニズムを解明し，凝固シミュレーションとその場観察手法を確立し、更にこれらを CSP などの微細接続における凝固欠陥の抑制方法を提案した。低温はんだとして重要な Sn-Zn 系合金の高湿度下での劣化挙動を解明した。鉛フリーはんだ組成の提案を行った。更に、ナノペーストや導電性接着剤接続技術の界面現象のナノレベル解明と新規分野開拓を行っている。

・ナノ構造創成及び超高分解能電子顕微鏡による原子直視構造解析

BN フラーレン物質の新規合成・評価及び HREM による極微小領域原子配列評価法の確立を目的としている。新規 BN メタロフラーレン創成、遷移元素による BN ナノチューブ合成、B_{12} 系高次ボライド構造解析、超伝導酸化物構造解析等により、新規ナノ構造の創成・構造解析・分子軌道法による構造最適化・電子状態計算・STM による電気特性評価等を行い、BN ナノ構造の将来可能性を提案した。

・バイオミメティックなアプローチによる人工関節の開発

培養軟骨の移植治療では、軟骨欠損部に培養軟骨を移植し、骨膜で固定している。この方法では十分に固定できないので、培養軟骨に骨接合部（多孔質アパタイト）を組み込んだ人工関節のモデル（軟骨細胞・コラーゲンゲル／多孔質アパタイト）を作製し、固定化を試みた。骨接合部に細胞増殖因子を包埋することで、石灰化が促進され、軟骨下骨類似構造に変化し、培養軟骨と骨接合部の強固な固定を達成した。

・バイオアクティブな骨セメントの開発

骨セメントに要求されている主な特性は、次の 4 点である。１)生体適合性、２)骨セメントの強度、３)骨セメントの硬化時間の短縮、4)骨吸収性である。リン酸カルシウム系セメントの複合化により、骨吸収性をもつリン酸カルシウムナノコンポジット系骨セメントの開発を行った。また、自己修復機能をもつナノコンポジットーPMMA 系骨セメントの開発を行っている。

・金属および金属間化合物材料表面の高機能化に関する研究

種々のプロセスにより金属および金属間化合物系材料の表面改質を行うことにより触媒機能，生体適合性，耐環境性などの機能を付与し，高機能性表面の創成を目指している。

1）ゾルーゲル電着法による機能性セラミックス薄膜の作製

2）活性プラズマプロセスによる傾斜機能性セラミックス層の直接形成

3）導電フィラー表面の自己組織化単分子膜による改質

［ 原著論文 ］

複合化理論による等方性導電性接着剤の熱物性解析、杉村貴弘、井上雅博、山下宗哲、山口俊郎、菅沼克昭：エレクトロニクス実装学会誌、7[2] (2004) 47-155.

Effect of Cu addition to Sn-Ag lead-free solder on interfacial stability with Fe-42Ni, C. -W. Hwang and K. Suganuma: Mater. Trans., 45[3] (2004) 714-720.

The observation and simulation of Sn-Ag-Cu solder solidification in chip-scale packaging, K. -S. Kim, K. Suganuma, J. -M. Kim, and C. -W. Hwang: JOM, 56[6] (2004) 39-43.

Effects of composition on microstructure and on thermal stability of Sn-Ag-In lead-free soldered joints, K. S. Kim, T. Imanishi, K. Suganuma, S. Kumamoto and M. Aihara: Trans. Mater. Res. Soc. Jpn., 29[5] (2004) 2005-2008.

Influence of Cu Addition to Interface Microstructure between Sn-Ag Solder and Au/Ni-6P Plating C.-W. Hwang, K. Suganuma M. Kiso and S. Hashimoto: J. Electron. Mater., 33 [10] (2004) 1200-1209.

高温保持による Sn-Zn 系低温鉛フリーはんだ接合体の破断パターン変化、金　迎庵、金　槿銖、菅沼克昭：MES2004（第１４回マイクロエレクトロニクスシンポジウム）、大阪、(2004) 213-216.

高温及び高温高湿保持試験による Sn-Ag-In はんだと Cu との接続界面組織及び強度変化、今西貴之，金槿銖，菅沼克昭：MES2004（第１４回マイクロエレクトロニクスシンポジウム）、大阪、(2004) 229-232.

Synthesis and aldehyde absorption [sic] properties of aspartate-octacalcium phosphate inclusion compound, S. Aoki, A. Nakahira, H. Nakayama, K. Sakamoto, S. Yamaguchi and K. Suganuma: Journal of Physics and Chemistry of Solids, 65 (2004) 465-470.

Preparation of porous calcium phosphates using a ceramic foaming technique combined with a hydrothermal treatment and the cell response with incorporation of osteoblast-like cells, S. Aoki, S. Yamaguchi, A. Nakahira and K. Suganuma: Journal of the Ceramic Society of Japan, 112 (2004) 193-199.

Formation of fluoridated hydroxyapatite by competitive attack of OH- and F- ions onto a- or b-tricalcium bis(orthophosphate), K. Sakamoto, S. Yamaguchi, J. Ichihara, M. Okazaki, Y. Tsunawaki and J. C. Elliott: Journal of the Ceramic Society of Japan, 112 (2004) 6-12.

Tetrabutylammonium phosphomolybdate on fluorapatite: an efficient solid catalyst for solvent-free selective oxidation of sulfides, Y. Sasaki, K. Ushimaru, K. Iteya, H. Nakayama, S. Yamaguchi and J. Ichihara: Tetrahedron Letters, 45(52) (2004) 9513-9515.

Atomic and electronic structures of endohedral $B_{36}N_{36}$ clusters with doping elements studied by molecular orbital calculations, A. Nishiwaki, T. Oku and K. Suganuma: Physica B, 349 (2004) 254-259.

Atomic structure of boron nitride nanotubes with an armchair-type structure studied by HREM, I. Narita and T. Oku: Solid State Commun., 129 (2004) 415-419.

Formation and atomic structures of boron nitride nanohorns, A. Nishiwaki, T. Oku and I. Narita: Sci. Tech. Adv. Mater., 5 (2004) 629-634.

High-resolution electron microscopy of boron nitride nanotube with yttrium nanowire, T. Oku and I. Narita: J. Phys. Chem. Solids, 65 (2004) 359-361.

$B_{12}@B_{12}@B_{60}$ and $B_{12}@(B_{12})_{12}$ giant clusters with doping atoms observed by high-resolution electron microscopy, T. Oku: J. Phys. Chem. Solids, 65 (2004) 363-368.

Formation and structures of $B_{36}N_{36}$ and $Y@B_{36}N_{36}$ clusters studied by high-resolution electron microscopy and mass spectrometry, T. Oku, I. Narita and A. Nishiwaki: J. Phys. Chem. Solids, 65 (2004) 369-372.

Hydrogen storage in boron nitride nanomaterials studied by TG/DTA and cluster calculation, T. Oku, M. Kuno and I. Narita, J. Phys. Chem. Solids, 65 (2004) 549-552.

Atomic structures and stabilities of zigzag and armchair-type boron nitride nanotubes studied by high-resolution electron microscopy and molecular mechanics calculation, T. Oku and I. Narita: Diamond Relat. Mater., 13 (2004) 1254-1260.

Iron fine particles coated with boron nitride nanolayers synthesized by a solid phase reaction, H. Tokoro, S. Fujii and T. Oku: Diamond Relat. Mater., 13 (2004) 1139-1143.

Iron nanoparticles coated with graphite nanolayers and carbon nanotubes, H. Tokoro, S. Fujii and T. Oku: Diamond Relat. Mater. 13 (2004) 1270-1273.

Formation, atomic structures and structural optimization of tetrahedral carbon onion, T. Oku, I. Narita and A. Nishiwaki: Diamond Relat. Mater. 13 (2004) 1337-1341.

Atomic structures, electronic states and hydrogen storage of boron nitride nanocage clusters, nanotubes and nanohorns, T. Oku, I. Narita, A. Nishiwaki and N. Koi: Defects and Diffusion Forum, 226-228 (2004) 113-140.

Formation and structure of $B_{28}N_{28}$ studied by mass spectrometry and molecular orbital calculation, T. Oku, A. Nishiwaki and I. Narita: Sol. State Comm., 130 (2004) 171-173.

Hydrogen storage in boron nitride and carbon clusters studied by molecular orbital calculations, N. Koi and T. Oku: Sol. State Comm., 131 (2004) 121-124.

Molecular orbital calculations of hydrogen storage in carbon and boron nitride clusters, N. Koi and T. Oku: Sci. Tech. Adv. Mater., 5 (2004) 625-628.

Formation and atomic structure of $B_{12}N_{12}$ nanocage clusters studied by mass spectrometry and cluster calculation, T. Oku, A. Nishiwaki and I. Narita: Sci. Tech. Adv. Mater., 5 (2004) 635-638.

Three-dimensional atomic imaging of Y and $(B_{12})_{13}$ clusters in YB_{56} by HREM and crystallographic image processing, T. Oku: Sci. Tech. Adv. Mater., 5 (2004) 657-661.

Formation and atomic structures of B_nN_n (n = 24-60) clusters studied by mass spectrometry, high-resolution electron microscopy and molecular orbital calculations, T. Oku, A. Nishiwaki and I. Narita: Physica B, 351 (2004) 184-190.

Microstructures and magnetic properties of boron nitride- and carbon-coated iron nanoparticles synthesized by a solid phase reaction, H. Tokoro, S. Fujii and T. Oku: J. Mater. Chem., 14 (2004) 253-257.

Origin of the nanocrystalline interface in superconducting Bi-2223/Ag composites: a SEM/HREM study, E. Bruneel, T. Oku, G. Penneman, I. Van Driessche and S. Hoste: Supercond. Sci. Technol., 17 (2004) 750-755.

Nanostructures and electronic properties of carbon and boron nitride nanocapsules, H. Kitahara and T. Oku: J. Ceram. Process. Res., 5 (2004) 89-93.

Preparation of iron fine particles coated with boron nitride layers, H. Tokoro, S. Fujii, T. Oku, T. Segi and S. Nasu: Mater. Trans., 45 (2004) 2941-2944.

Synthesis, atomic structures and electronic states of boron nitride nanocage clusters and nanotubes, T. Oku, I. Narita and A. Nishiwaki: Mater. Manuf. Process., 19 (2004) 1215-1239.

［ 解説、総説 ］

鉛はんだに対する世界の規制動向（前，後編）、菅沼克昭：エレクトロニクス実装技術, Vol.20, No.4(2004), 56-61, No.5, 36-41.

はんだ代替としての導電性接着剤の技術・市場動向、菅沼克昭、電子材料「実装技術ガイドブック2004」、7月号別冊(2004) 5-22.

鉛フリーはんだ実装と信頼性、菅沼克昭：OEG Letter, Vol.10, No.2(2004) 1-2.

Sn-Ag-Cuを中心とする鉛フリーはんだの凝固組織制御、菅沼克昭、金槿銖：高温学会誌, Vol. 30, No. 4 (2004) 185-190.

低融点鉛フリーはんだ技術の現状と信頼性課題、菅沼克昭、金槿銖：金属, Vol. 74, No. 12 (2004) 1258-1262.

@BNナノ錬金術－未来磁性材料の開発に向けて、成田一人、奥健夫、菅沼 克昭：Boundary, Vol. 20, No. 1 (2004) 10-18.

BN クラスターと BN ナノチューブの構造－炭素系ナノ物質との調和と超越、奥健夫、成田一人、西脇篤史：Boundary, Vol. 20, No. 2 (2004) 8-19.

BN ナノホーンの原子配列・構造安定性と応用可能性、西脇篤史、奥健夫、成田一人：Boundary, Vol. 20, No. 1 (2004) 2-5.

［ 著書 ］

「鉛フリーはんだと導電性接着剤の開発の状況」（Q&Aエレクトロニクスと高分子第５版） 菅沼克昭、財)化学技術戦略推進機構、2004年、68-72.

Research and Development in Japan, C. A. Handwerker, F. G.gayle, E. E. deKluizeneraar and K. Suganuma: Handbook of Lead-Free Solder Technology for Microelectronic Assemblies, eds. by K. J. Puttlitz and K. A. Stalter, Marcel Dekker, New York, (2004), 665-728.

Mechanical Behaviour of Intermetallics and Intermetallic Matrix Composites, M. Inoue and K. Suganuma: Metal and Ceramic Matrix Composites, ed. by B. Cantor, F. Dunne and I. Stone, Institute of Physics Publishing, Bristol, UK, Chapter 14 (2004) , 241-256.

「ここまで来た導電性接着剤技術」（編著）、菅沼克昭、工業調査会、2004 年。

「Consciousness, Life and Cosmology」奥 健夫、三恵社、2004 年。

「これならわかる電子顕微鏡－マテリアルサイエンスへの応用」、奥健夫、化学同、2004 年、1-144 頁。

［ 国際会議 ］

Lead-free soldering status and projects of Japan (Invited), *K. Suganuma, 2004 China SMT International Conference, CEPEA/CEAC/SMT China/IPC/Soldertec, Shanghai, Nov.16-17, 2004.

Lead-free soldering statues and projects of Japan(Invited), *菅沼克昭，中日無鉛実装技術交流会，上海電子製造工業協会 SMT 委員会/上海交通大学材料科学工学科/大阪大学産業科学研究所，上海，Nov. 18, 2004.

Lead-free interconnects engineering in electronics packaging (Invited), *K. Suganuma, K. S. Kim, and C. H. Hwang, International Conference on New Frontiers of Process Science and Engineering in Advanced Materials (PSAE'04, 14th Iketani Conference), High Temperature Society of Japan/JWRI Osaka University, Kyoto, Nov. 24-26, 2004.

Development of Pb free solders and their industrial applications (Invited), *K. Suganuma, 1st IMAGINE International Forum on Venture-Business, Osaka, Dec.15-17, 2004.

Formation mechanisms of various solidification defects in lead-free soldering and their prevention

(Invited), *K. Suganuma and K. -S. Kim, The 3rd International Symposium on Microelectronics and Packaging (ISMP0204), Seoul, Sep. 2-3, 2004, 181-199.

Next generation of lead-free solders: Low temperature solders (Invited), *K. Suganuma, Materials Science & Technology 2004 Conference & Exhibition, TMS, New Orleans, Sep. 26-29, 2004.

Effect of moisture absorption on ACF interconnects, *M. Inoue, T. Miyamoto and K. Suganuma, International Conf. on Electronics Packaging (ICEP 2004), IMAPS Japan/JIEP/IEEE CPMT, Tokyo, Apr. 13-15, 2004, 212-216.

Relationship between curing conditions and interconnect properties of flexible printed circuit/glass substrate joints using anisotropic conductive films, *M. Inoue, T. Miyamoto, K. Suganuma, Proc. The sixth IEEE CPMT Conference on High Density Microsystem Design and Packaging and Component Failure Analysis (HDP'04), Shanghai, China, Jul. 1-3, 2004, 248-253.

Analysis of influential factors in determining adhesive strength of ACF joints, *M. Inoue, T. Miyamoto and K. Suganuma, Proc. Polytronic 2004, Portland, USA, Sep. 12-15, 2004, RT12, CD-ROM.

Eco-fabrications and applications of noble metal nano-particles by ultrasound, Y. Hayashi, *M. Inoue, K. Niihara and K. Suganuma, Proc. Polytronic 2004, Portland, USA, Sep. 12-15, 2004, MP32, CD-ROM.

Physicochemical phenomena induced by water sorption in flexible printed circuit/glass substrate joints using anisotropic conductive films, *M. Inoue, T. Miyamoto and K. Suganuma, The 7th IEEE CPMT International Academic Conference on Next Generation Microsystem Packaging Research and Education, Shanghai, China, Jun. 28-30, 2004.

Interconnect Reliability of Anisotropic Conductive Adhesives for Advanced Electronics Packaging Technologies, *M. Inoue and K. Suganuma, The 1st Workshop on Anistropic Science and Technology of Materials and Devices, Osaka, Japan, Oct. 31-Nov. 1, 2004.

Influence of lead contamination on reliability of lead free soldered joints, *K. Suganuma and K. -S. Kim, IPC and Soldertec Global 2nd International Conference on Lead Free Electronics “Towards Implementation of the Rohs Irective” RAI International Congress and Exhibition Centre, Amsterdam, Netherlands, Jun. 22-23, 2004.

Next generation of lead-free solders: Low temperature solders, *K. Suganuma, K. -S. Kim, K. Toyofuku, K. Hagio, Pb-Free and Pb-Bearing Solders Symposium for 2004 Fall meeting of TMS, New Orleans, USA, Sep. 26-29, 2004.

Development of new lead-free solder containing nano sized particles, *K. -S. Kim, K. Suganuma and M. Ueshima, TMS 133rd Annual Meeting, Charlotte, USA, Mar. 14-18, 2004.

Differences in Formation and Growth of Interface Between Sn-Ag and Sn-Ag-Cu Lead-Free Solder with Ni-P/Au Plating (invited), C.-W. Hwang, *K. Suganuma, M. Kiso, S. Hashimoto, TMS 133nd

Annual Meeting & Exhibition, Charlotte, NC, Mar. 14–18, 2004.

Solidification phenomenon in CSP soldering with Sn-Ag-Cu lead-free alloy using in situ observation system with computer simulation (invited), *K. Suganuma, K. -S. Kim and C. W. Hwang, TMS 133rd Annual Meeting, Charlotte, USA, Mar. 14-18, 2004.

Nano paste and new interconnection technology, K. Suganuma, *M. Hayashi, K. -S. Kim, S. Yamaguchi and M. Hatamura, 5th International Symposium on Electrochemical Micro & Nanosystem Technologies (EMT2004), Tokyo, Japan, Sep. 29 – Oct. 1, 2004.

Properties of Zn-Sn Alloys and Intermetallic Compound Formation at Zn-Sn/Cu Joint Interface, J. –E. Lee, *K. -S. Kim and K. Suganuma, International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 (ISSIN-2004), Osaka, Japan, Dec. 6-7, 2004, 156.

Synthesis and characterization of calcium phosphate-AMP composite material, *M. Kaneno, K. Sakamoto, H. Nakayama, S. Yamaguchi and K. Suganuma, The 3rd International Symposium on the Science of Engineering Ceramics (EnCera04), The Ceramic Society of Japan, Osaka, Oct. 31- Nov. 3, 2004

Effect of alumna structure on thermal properties of alumina/aluminum composite formed by freeze and dry process and partial sintering process, *M. Nakata and K. Suganuma, The 3rd International Symposium on the Science of Engineering Ceramics (EnCera04), The Ceramic Society of Japan, Osaka, Oct. 31- Nov. 3, 2004

Fabrication and applications of nano-metal particle composites by ultrasonic eco-process, *Y. Hayashi, Y. Saijo, T. Sekino, K. Suganuma, K. Niihara, The 3rd International Symposium on the Science of Engineering Ceramics (EnCera04), The Ceramic Society of Japan, Osaka, Oct. 31- Nov. 3, 2004

Formation of hydroxyapatite from mechanochemically treated β-tricalcium bis (orthophosphate), M. Kaneno, K. Sakamoto, S. Yamaguchi, and *K.Suganuma, The 3rd International Symposium on the Science of Engineering Ceramics (EnCera04), The Ceramic Society of Japan, Osaka, Oct. 31- Nov. 3, 2004

Friction-activated capillary soldering for hermetic seal of vacuum glazing; joining of a pair of glass sheets with lead-free solder, *K. Sakaguchi, S. Domi, and K. Suganuma, The 3rd International Symposium on the Science of Engineering Ceramics(EnCera04), The Ceramic Society of Japan, Osaka, Oct. 31- Nov. 3, 2004

Synthesis and structures of boron nitride nanocapsules encaging iron nanoparticles, *I. Narita, T. Oku, M. Yamashita and K. Suganuma, International Symposium on the Creation of Novel Nanomaterials, Osaka, Japan, Jan. 20-22, 2004.

Synthesis of magnetic nanoparticles in boron nitride nanocapsules by metal organic chemical vapor deposition, I. Narita, *T. Oku, H. Tokoro and K. Suganuma, 13th European Conference on Diamond, Diamond-like materials, Carbon nanotubes, Nitrides and Silicon carbide, Riva Del Garda,

Italy, Sep. 12-17, 2004.

Synthesis and magnetic properties of boron nitride nanocapsules encaging metal nanoparticles by annealing of ammine complexes, I. Narita, *T. Oku, H. Tokoro and K. Suganuma, International symposium on inorganic and environmental materials 2004, Eindhoven, the Netherlands, Oct. 18-21, 2004, Abstracts 46.

Atomic structures of multi-walled boron nitride nanohorns, *A. Nishiwaki and T. Oku, International Symposium on the Creation of Novel Nanomaterials, Osaka, Japan, Jan. 20-22, 2004, 105.

Atomic and electronic structures of boron nitride nanohorns studied by high-resolution electron microscopy and molecular orbital calculations, A. Nishiwaki and *T. Oku, 15th European Conference on Diamond, Diamond-Like Materials, Carbon Nanotubes, Nitrides, Riva del Garda, Italy, Sep. 12-17, 2004, 254.

Atomic structures and stability of boron nitride nanotubes with a cup-stacked structure, A. Nishiwaki, *T. Oku, H. Tokoro and S. Fujii, 15th European Conference on Diamond, Diamond-Like Materials, Carbon Nanotubes, Nitrides, Riva del Garda, Italy, Sep. 12-17, 2004, 64.

Atomic structures and formation mechanism of boron nitride nanotubes and nanohorns synthesized by arc-melting LaB_6 powders, A. Nishiwaki and *T. Oku, International Symposium on Inorganic and Environmental Materials 2004, Eindhoven, The Netherlands, Oct. 18-21, 2004, 54.

Molecular orbital calculations of carbon and boron nitride clusters with hydrogen, *N. Koi and T. Oku, International Symposium on the Creation of Novel Nanomaterials, ISCNN'04, Osaka, Japan, Jan. 20-22, 2004, Abstract 94.

Effects of endohedral elements in B24N24 clusters on hydrogenation studied by molecular orbital calculation, N. Koi and *T. Oku, International Symposium on Inorganic and Environmental Materials 2004, ISIEM 2004, Eindhoven, The Netherlands, Oct. 18-21, 2004, Abstract 90.

Possible hydrogen storage in boron nitride nanotubes and clusters, *N. Koi, T. Oku and K. Suganuma, Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, SISSIN-2004, Osaka, Japan, Dec. 6-7, 2004, Abstract 160.

Atomic and electronic structures of multiply-twinned boron nitride nanoparticles with fivefold symmetry, *T. Oku, A. Nishiwaki and I. Narita, 15th European Conference on Diamond, Diamond-Like Materials, Carbon Nanotubes, Nitrides and Silicon Carbide, Riva del Garda, Italy, Sept. 12-17, 2004, Abstract Book 5. 7. 14.

Effects of titanium addition on the microstructure of carbon/copper composite materials, T. Oku and *T. Oku, International Symposium on Inorganic and Environmental Materials 2004, Eindhoven, The Netherlands, Oct. 18-21, 2004, Abstract Book. 38.

Atomic structures of bamboo-type boron nitride nanotubes with cap-stacked structures, *T. Oku, A. Nishiwaki and I. Narita, International Symposium on Inorganic and Environmental Materials 2004,

Eindhoven, The Netherlands, Oct. 18-21, 2004, Abstract Book. 39.

[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）

菅沼　克昭　　Electronics Goes Green 2004　（国際諮問委員）

[国内学会]

エレクトロニクス実装学会	4 件
日本金属学会	3 件
その他	4 件

[取得学位]

修士（工学）

今西　貴之	Sn-Ag-Bi-In 低温鉛フリーはんだの実装信頼性に関する研究
西脇　篤史	BN ナノ物質の構造および物性
山崎　雄介	超フレキシブル配線技術の開発とソフトスキンセンサーへの応用

博士（工学）

成田　一人	窒化ほう素ケージ物質の合成・構造解析及び磁気特性評価に関する研究

[科学研究費補助金]

（代表者として配分されたもの）

特別研究員奨励費　　単位：千円

成田　一人	新規 BCN ナノクラスターの構造と物性解明	1,000
金　槿銖	微細回路パターン用金属ナノ粒子ペーストの開発及び焼結過程解析	1,200

21 世紀 COE プログラム事業推進担当者　　単位：千円

菅沼　克昭	異相界面ナノ構造制御技術による環境調和型ファイン構造材料開発	4,000

21 世紀 COE プログラム新産業創造指向インターナノサイエンス　　単位：千円

成田　一人	メタルボロンナイトライド磁性粉末の合成・構造解析及び磁気特性評価	100

[受託研究]

単位：千円

菅沼　克昭	日本学術振興会	金属材料工学分野に関する学術動向の調査・研究	3,500
菅沼　克昭	日本電気株式会社	導電性樹脂接続・配線技術の研究	1,050

[その他の競争的研究資金]

単位：千円

菅沼　克昭	財団法人電子回路基板技術振興財団	導電性接着剤実装技術の現状と次世代技術調査に関する調査・研究のため	1,000

奥　健夫	財団法人近畿地方発明センター	新規 BN 系ナノチューブ・ケージ物質の創成と高機能発現研究のため	1,500

計算機ナノマテリアルデザイン分野

教授（兼任）　吉田　博
助教授　白井　光雲
助手　佐藤　和則
博士研究員　真砂　啓、Dinh Van An、中山　博幸、浜田幾太郎、柳澤　将
研究生　張　允僖
大学院学生　松村　隆嘉、光田　直樹、山内　邦彦、舩島　洋紀、松川　和人、松岡　秀行、木崎　栄年、劔持　一英、豊田　雅之、福島　鉄也、小倉　明夫、野口　隆行
学部学生　竹内　康祐、名兒耶　彰洋、平松　雅規
事務補佐員　浅田　美香

a ）　概要

ナノ構造材料の電子構造とマテリアルデザイン

計算機ナノマテリアルデザイン分野では、従来のバルクでは見られないような様々な物性が出現するナノ構造物質の性質を、理論的手法を用いて解明する。用いる手法は密度汎関数理論に基づく第一原理計算であり、あらゆる経験的パラメータを排除し原子番号のみの入力で行う。さらに、実験的に得られたナノ構造の解明だけでなく、新規な機能を持つ新たなナノ構造物質を理論的に設計し、ナノ物質探索をリードしていく。

また、このようなナノ領域現象の解明のためには従来の第一原理計算の発展・拡張が必須である。現在の第一原理計算の原理、密度汎関数理論の対象は基底状態に限られるが、実験的に多くの現象は励起状態に関係する。そのため、その重要性に鑑み、その方法論の発展をも行う。

b ）　成果

・大きな磁気光学効果を持つ 4ｄ遷移金属不純物をドープした逆（アンチ）CaF_2 構造を持つ K_2S ベース透明強磁性半導体のデザイン

大きな磁気光学効果を持つ 4ｄ遷移金属不純物をドープした逆（アンチ）CaF_2 構造を持つ K_2S ベース透明強磁性半導体のデザインを行った。これにより、光誘起や FET 電場誘起、また円偏光レーザー発光によるスピングラス状態からハーフメタル透明半導体強磁性体への転移を起こすマテリアルデザインが可能になり、これを用いた脳型メモリや脳型演算装置などの機能調和材料デバイスのデザインを行った。

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

第一原理計算に基づいて、磁性不純物（遷移金属や希土類金属）を含まないハーフメタル強磁性半導体のマテリアルデザインをおこなった。K_2S などの逆蛍石構造を持つ半導体や、CaO, BaO, SrO, MgO などのイオン結晶中にドープしたＢ、Ｃ、Ｎなどの深い不純物バンドのバンド幅は狭く、電子相関エネルギーとの競合により、磁性状態が実現し、さらに、不純物状態による二重交換相互作用や強磁性的超交換相互作用を不純物濃度によってバンド幅を制御することにより強磁性状態を安定化させるためのマテリアルデザインを行った。

・ワイドギャップ透明半導体の価電子制御と新機能性のマテリアルデザイン

ワイドバンドギャップ半導体、$CuAlO_2$ やダイヤモンドにおいて、第一原理計算からアクセプター不純物、原子空孔、侵入型原子の形成エネルギーや不純物準位を予測し、価電子制御のためのアクセプターやドナーの補償機構を解明し、低抵抗化のためのアクセプターとドナーの同時ドーピング法による不純

物バンドを利用した新しい価電子制御法のマテリアルデザインを行った。これらの系についての同時ドーピング法による価電子制御法の予言はその後の実験的に検証された。また、これらの価電子制御に基づいたｐ型透明酸化物伝導体や透明超伝導体、また高効率熱電機能のマテリアルデザインをおこなった。

・第一原理 FLAPW 計算による強相関電子系のフェルミ面の研究

L(S)DA+U 法を用いた電子状態計算を行ない、強磁性相の CeSb および $CeRh_3B_2$ の電子状態およびフェルミ面を明らかにした。その際、強い相関を示す強磁性体の計算に有用である、スピン・軌道相互作用およびLSDA+U法による有効クーロンポテンシャルの両方を従来のFLAPW法に取り入れた新しい計算手法を開発し、その妥当性を議論した。

・新超伝導体の電子状態の解明

新しい超伝導体である Y_2C_3 と KOs_2O_6 の電子状態を計算し、バンド構造を求めた。Y_2C_3 では C の p 電子が超電導に重要な寄与をしている事を示した。

・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より精度の高い一般化密度勾配補正を取り入れたこと。また分子動力学シミュレーションでは、拡散シミュレーションをより有効に行うためのバイアス技法を開発した。

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。代表的な多形を取り上げ、その温度ー圧力の相図を作成し、それらの間の転移温度・圧力の予測を行って、実験との一致を見た。その安定性の原因を解明した。同時にこの系での原子配置に関する乱れを計算し、それが系の安定性に寄与していることを明らかにした。これにより高圧での超伝導物質探索の基礎ができた。

・アモルファス半導体の高効率太陽エネルギー変換材料のマテリアルデザイン

第一原理分子動力学法により、アモルファス半導体の光励起劣化反応機構の研究を行い、ダングリングボンドが正と負の電子相関をもつためであることを解明した。これらを防止するためのＣＮ処理法が提案されているが、これまでの理論研究で、ＣＮのダングリングボンドの不活性機構が明らかになった。それはＣＮによる一重結合、二重結合、三重結合の環境に合わせた変身によって生じる連続ネットワークの修復と再生によるものである。この結合の高温での安定性は非常に良いことが分かった。一方でそれは拡散が困難であることも示唆し、有効なＣＮ処理プロセスへの提案を探索中である。

・Si中のCu不純物のゲッタリングのデザイン

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。その高速拡散現象を分子動力学シミュレーションで再現し、機構を明らかにした。そしてその抑制にはBなどのドーピング種によりゲッタリングが実験的に行われているが、その機構を明らかにした。

・Si中のドーピング不純物の増速拡散のデザイン

Si 中のドーピング原子は通常、熱拡散により制御するが、近年のデバイスの高集積化に伴い、もっときめの細かい拡散制御が求められている。このための一方策が、不純物振動と同調する振動数の赤外線照射により特定の原子種だけの増速拡散の方法が考えられている。この方法が有効であるかどうかを分子動力学シミュレーションした。その結果、ＢやＯでは有効であることが示された。Ｐに関してはホスト原子にエネルギー緩和してしまい有効でないことがわかった。

・キュリー温度の高精度予測とスピントロニクスのためのマテリアルデザイン
希薄磁性半導体のうちバンドギャップ中にできる不純物バンドの広がりによって強磁性が安定化されるものについては一般的に磁気的相互作用が短距離で、低濃度では不純物の分布に対して平均場近似を超えた取り扱いをしなければ T_C を精度よく計算できないことが昨年の研究から明らかになっている。本年度はそのような系についてキュリー温度を正確に計算できる方法を開発しスピントロニクス材料のマテリアルデザインに応用した。不純物バンドができる典型的な例として Cr を添加した II-VI 族磁性半導体をとりあげ、Cr を添加した ZnS, ZnSe, ZnTe についてそれらのキュリー温度を第一原理計算とモンテカルロシミュレーションを組み合わせて計算した。モンテカルロシミュレーションによると低濃度ではこれらの系の T_C は平均場近似に比べて非常に低く、平均場近似で予測されていた低濃度での急激な T_C の立ち上がりはなくなって、T_C の濃度依存性はむしろ直線的になる。ZnCrTe において T_C の実験値と計算値の一致は非常によい。II-VI 族では遷移金属の溶解度が一般に III-V 族よりも高いことから、II-VI 族磁性半導体で高い T_C が期待できる。

・LDA+U 法によるスピントロニクス材料のキュリー温度の計算
強磁性相互作用のメカニズムが磁性イオンの d 状態と母体半導体の価電子帯との相対的な位置によって決まることは第一原理計算により既に明らかになっている。一方、局所密度近似(LDA)で予測される d 状態の位置に系統的な誤差があることも経験的に知られている。LDA の誤差がどの程度キュリー温度の見積もりに影響を与えるか調べるために、本年度は局所密度近似の誤差の補正を半経験的な LDA+U 法を用いてシミュレートし電子状態計算を行いキュリー温度を見積もった。(Ga, Mn)As では LDA+U 法では d 状態がエネルギーの低い位置にシフトし p-d 交換相互作用が主なメカニズムとなり、LDA に比べて若干低い T_C を与える。(Ga, Mn)N では、非占有 d 状態がエネルギーの高い位置に予測されるため超交換相互作用の寄与が抑制され、特に高濃度で高い T_C が予測される。しかし、モンテカルロシミュレーションによると、パーコレーションの効果により実際の T_C はやはり低く、15%程度以上の超高濃度で T_C が室温に近づく。

・LDA-SIC 法による ZnO 系希薄磁性半導体の電子状態
LDA に基づく第一原理電子状態計算で得られる希薄磁性半導体の状態密度は光電子分光実験のスペクトルと一致せず、3d 電子のエネルギーが浅い位置に計算される。この不一致の原因として LDA で自己相互作用が完全に取り除かれていないことが挙げられる。本年度は、Filippetti らによって提案された自己相互作用補正法(Pseudo-SIC)を KKR-CPA 電子状態プログラム(MACHIKANEYEMA)にとりいれ、ZnO 系の希薄磁性半導体について電子状態計算を行った。得られた状態密度は LDA のものとはかなり異なり、ギャップ中に表れる不純物準位の占有状態と非占有状態が大きく分裂し、フェルミレベルでの状態密度は減少する。Co を添加した系の場合、Co の部分状態密度の最も浅いピークがフェルミレベルの 2-3eV したに現れ、最も深いピークがフェルミレベルから 7eV 程度したに現れるなど、光電子分光実験とのよい一致が得られるようになった。

・$CuAlO_2$ ベース希薄磁性半導体の材料設計
デラフォサイト構造をもつ $CuAlO_2$ は、一般の酸化物とは違って p 型にドーピングしやすいことが実験で示されている。多くの希薄磁性半導体はホール添加により強磁性を示すことから、$CuAlO_2$ は強磁性希薄磁性半導体の候補となりうる。本研究では、$CuAlO_2$ の Cu または、Al サイトに 3d 遷移金属を添加した系の第一原理計算を行い、強磁性状態と不規則状態のエネルギー差を計算した。その結果 Fe または Co を Cu サイトに置換した系が最も高い T_C を持つことがわかった。

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

より調整することで強磁性が安定な状態を作ることができる。

・Mn 添加窒化物希薄磁性半導体の同時ドーピングによる T_C の上昇法のデザイン
窒化物半導体, AlN, GaN, InN において、Mn ドーピングによる格子定数の変化を補償するように Be(AlN, GaN の場合)、または Cd(InN の場合)を同時ドーピングすると高濃度で T_C が大きく上昇することを第一原理計算により見いだした。また、格子変化を補償した系においては、T_C 上昇のためには、さらにホールを添加してやることが非常に有効であることがわかった。

[原著論文]

Theoretical study on anti-site defects in half-metallic zinc-blend ferromagnets, M. Shirai, Seike, K. Sato, H. Katayama-Yoshida, J. Magn. Magn. Matt., 272-276 (2004) 344-345.

High-pressure properties of icosahedron-based solid borons, K. Shirai, A. Masago, and H. Katayama-Yoshida, phys. stat. sol. (b) 241 (2004) pp. 3161-3167.

New Route to Fabricate Ferromagnetic Semiconductors without Transition Metal Elements, M. Seike, K. Kenmochi, K. Sato, A. Yanase and H. Katayama-Yoshida, Jpn. J. of Appl. Phy., 43, (2004) L 579-L 581.

Mechanism of enhanced ferromagnetism in delta-doped (Ga,Mn)As studied by *ab initio* electronic structure calculation, Y. Ohishi, K. Sato and H. Katayama-Yoshida, J. Magn. Magn. Matt., 272-276 (2004) 1989-1990.

Materials Design of Transparent, Half-metallic and Room-temperature Ferromagnets in I_2-VI Semiconductors with 4d Transition Metal Element, M. Seike, K. Sato, A. Yanase and H. Katayama-Yoshida, Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2004) L834-L837.

New Class of Diluted Ferromagnetic Semiconductors based on CaO without Transition Metal Elements, K. Kenmochi, M. Seike, K. Sato, A. Yanase and H. Katayama-Yoshida, Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2004) L934-L936.

Design of Transparent, Half-Metallic Ferromagnetiic 4d-Transition-Metal-Doped K_2S with High Curie Temperature, M. Seike, K. Sato, A. Yanase and H. Katayama-Yoshida, Jpn. J. Appl. Phys. 43 (2004) 3367-3370.

Enhancement of TC by a carrier codoping method with size compensation for nitride-based ferromagnetic dilute magnetic semiconductors, V. A. Dinh, K. Sato and H. Katayama-Yoshida, J. Phys.: Condens. Matter 16 (2004) S5705–S5709.

Exchange interactions in diluted magnetic semiconductors, K. Sato, P. H. Dederichs, H. Katayama-Yoshida and J. Kudrnovský, J. Phys.: Condens. Matter 16 (2004) S5491–S5497

Theoretical Prediction of Curie Temperature in (Zn,Cr)S, (Zn,Cr)Se and (Zn,Cr)Te by First Principles Calculations, T. Fukushima, K. Sato, H. Katayama-Yoshida and P. H. Dederichs, Jpn. J. of Appl. Phys. 43 (2004) L 1416–L 1418.

Materials Design of Transparent and Half-Metallic Ferromagnets of MgO, SrO and BaO without Magnetic Elements, K. Kenmochi, V. A. Dinh, K. Sato, A. Yanase and H. Katayama-Yoshida, J. Phy.

Soc. Jpn, 73, (2004) pp. 2952–2954.

Low-temperature ferromagnetism in (Ga,Mn)N: *Ab initio* calculation, K. Sato, W. Schweika, P. H. Dederichs, H. Katayama-Yoshida, Phys. Rev. B70, (2004) 201202 R.

Bandstructure calculations and Fermi surfaces of RNi_2B_2C, K. Yamauchi, H. Katayama-Yoshida, A. Yanase, H. Harima, Physica C 412-414 (2004) 225-229.

[解説]

計算機ナノマテリアルデザインの基礎と応用, 吉田博, 固体物理 39, (2004) 711-714

第一原理計算による半導体材料のダイナミックスとマテリアルデザイン,白井光雲, 固体物理 39, (2004) 875-881

半導体スピントロニクスのマテリアルデザイン, 佐藤和則, P. H. Dederichs, 吉田博, 固体物理 39, (2004) 855-860

[特許]

「シリコン結晶中のＣu 不純物のゲッタリング方法」吉田博、白井光雲、道北俊行、特願 2004-135971
「二次元酸化物自然超格子を用いた高効率熱電材料とその熱電特性の調整方法」吉田博、舩島洋紀、浜田幾太郎、播磨尚朝、柳瀬章、特願 2004-085615
「遷移金属または希土類金属を固溶する透明強磁性アルカリ・カルコゲナイド化合物及びその強磁性特性の調整方法」吉田博、清家聖嘉、佐藤和則、柳瀬章、PCT/JP04/003373
「遷移金属または希土類金属などの磁性不純物を含まず不完全な殻を持つ元素を固溶した透明強磁性化合物及びその強磁性特性の調整方法」吉田博、劔持一英、清家聖嘉、佐藤和則、柳瀬章、特願 2004-055017
「磁気抵抗ランダムアクセスメモリー装置」吉田博、佐藤和則、特許登録番号第 3571034 号
「強磁性 VI 族系半導体、 強磁性 III-V 族系化合物半導体、または強磁性 II-VI 族系化合物半導体とその強磁性特性の調整方法」吉田博、荒木和也、佐藤和則、韓国出願：第 7019113 号
「内殻励起によりグラファイトからダイヤモンドを製造する方法」吉田博、中山博幸、台湾特許番号発明第 206737 号
「磁性半導体を用いた円偏光スピン半導体レーザーおよびレーザー光の発生方法」吉田博、佐藤和則、台湾出願第 2244106 号
「シリコン結晶中の遷移金属不純物のゲッタリング方法」吉田博、韓国出願：第 70106351 号
「低抵抗 n 型ダイヤモンドの合成法」吉田博、国内特許番号第 3568394 号
「抵抗率が低い n 型又は p 型金属シリコンの製造方法」吉田博、特許第 3525141 号（P3525141）
「低抵抗 p 型 $SrTiO_3$ の製造方法」吉田博、別役潔、川合知二、田中秀和、米国特許登録番号 6790278
「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、韓国登録番号 0446144
「強磁性 p 型単結晶酸化亜鉛およびその製造方法」吉田博、佐藤和則、台湾登録番号　発明第 203716 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、EP 特許番号 1219731

[国際会議]

Materials design for spin-electronics by *ab-initio* electronic structure calculation (Invited), *H. Katayama-Yoshida, 31st Conference on The Physics and Chemistry of Semiconductor Interface (PCSI-31), Kailua-Kona, Hawaii, USA, January 18-22, 2004.

Exchange interactions and Curie temperatures in diluted magnetic semiconductors (invited), *K. Sato, International Symposium on the Creation of Novel Nanomaterials (ISCNN04), Osaka, Japan, January 20-22, 2004

Ferromagnetism and Curie Temperature of V-doped Nitrides, *V. A. Dinh, K. Sato and H. Katayama-Yoshida, International Symposium on the Creation of Novel Nanomaterials (ISCNN04), Osaka, Japan, January 20-22, 2004

Hyperfine Interactions and Magnetism of 3d impurities in magnetic semiconductors (invited), *K. Sato, International Workshop on Nanomaterials, Magnetic Ions and Magnetic Semiconductors studied mostly by Hyperfine Interactions (IWNMS - 2004), Vadodara (Baroda), Gujarat, India, February 10-14, 2004

Exchange interactions and Curie temperatures in diluted magnetic semiconductors, *K. Sato, P. H. Dederichs, H. Katayama-Yoshida, APS(American Physical Society) March Meeting, Montreal, Quebec, Canada, March 22-26, 2004.

Exchange Interactions, Curie Temperatures and Spin-waves in Dilute Magnetic Semiconductors, *K. Sato, P. H. Dederichs and H. Katayama-Yoshida, 2004 MRS Spring Meeting, San Francisco, USA, April 12-16,2004

Ab Initio Materials Design for ZnO-Based Semiconductor Spintronics: Prediction vs. Experiment (Invited), *H. Katayama-Yoshida, Zinc Oxide WorkShop, Maui, USA, May 16-20, 2004.

Materials design for semiconductor spintronics by *ab initio* electronic structure calculation: Prediction vs. Experiment (Invited), *H. Katayama-Yoshida, International Conference on Nanospintronics Design & Realization (ICNDR), Kyoto, Japan, May 24-28, 2004.

Exchange interactions and Curie temperatures in diluted magnetic semiconductors (Invited), *P. H. Dederichs, K. Sato and H. Katayama-Yoshida, International Conference on Nanospintronics Design & Realization (ICNDR), Kyoto, Japan, May 24-28, 2004.

Enhancement of Tc by Carrier Codoping Method with size compensation for Nitride (GaN), *V. A. Dinh, K. Sato and H. Katayama-Yoshida, International Conference on Nanospintronics Design and Realization (ICNDR 2004), May 24-28, 2004. Kyoto, Japan

Computer modeling and simulation for nanospintronics: prediction vs. experiment (Invited), *H. Katayama-Yoshida, 3rd International Conference "Computational Modeling and Simulation of Materials" & Special Symposium "Modeling and Simulating Materials Nanoworld" (CIMTEC), Sicily, Italy, May 30- June 4, 2004.

Exchange interactions and Curie temperatures in diluted magnetic semiconductors (Invited), *K. Sato, P. H. Dederichs, H. Katayama-Yoshida, 3rd International Conference "Computational Modeling and Simulation of Materials" & Special Symposium "Modeling and Simulating Materials Nanoworld" (CIMTEC), Sicily, Italy, May 30- June 4, 2004.

Ab initio Molecular Dynamics Simulation of CN in amorphous silicon, *N. Mitsuda, K. Shirai and H. Katayama-Yoshida, 19th European Photovoltaic Solar Energy Conference, Paris, France, June 7-11, 2004.

Electronics and spintronics materials design by first principles approach (Invited), *H. Katayama-Yoshida, 12th International Conference on Solid Films and Surfaces (ICSFS-12), Hamamatsu, Japan, June 21-25, 2004.

Materials Design for Spintronics by *ab initio* Electronic Structure Calculation, *H. Katayama-Yoshida, IVC-16 (16th International Vacuum Congress), ICSS-12 (12th International Conference on Solid Surfaces), NANO-8 (8th International Conference on Nanometer Scale Science and Technology), AIV-17 (17th Vacuum National Symposium), Venice, Italy, June 28- July 2, 2004.

Is High-Tc possible in (Ga, Mn)N?: Monte Carlo Simulation vs. Mean Field Approximation, *K. Sato, H. Katayama-Yoshida, The 3rd International Conference on Physics and Applications of Spin-Related Phenomena in Semiconductors (PASPS-III), Santa Barbara, California, USA, 21-23 July, 2004.

New Class of high-Tc Diluted Ferromagnetic Semiconductors Based on CaO without Transition Metal Elements, * K. Kenmochi, M. Seike, K. Sato, A. Yanase, H. Katayama-Yoshida, The 3rd International Conference on Physics and Applications of Spin-Related Phenomena in Semiconductors (PASPS-III), Santa Barbara, California, USA, 21-23 July, 2004.

Carier Codoping Method with Size Compensation to Enhance the Tc of Mn-doped Nitrides, * V. A. Dinh, H. Katayama-Yoshida, The 3rd International Conference on Physics and Applications of Spin-Related Phenomena in Semiconductors (PASPS-III), Santa Barbara, California, USA, 21-23 July, 2004

Study of New Thermoelectric material $CuAlO_2$ using *ab initio* Calculations, *H. Funashima, A. Yanase, H. Katayama-Yoshida, 23rd International Conference on Thermoelectrics (23rd ICT), Adelaide, Australia, July 25-29, 2004

Bandstructure calculations and Fermi surfaces of RNi_2B_2C, *K. Yamauchi, H. Katayama-Yoshida, A. Yanase, H. Harima, The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems, Karlsruhe, Germany, July 26 - 30, 2004

New class of High-Tc Diluted Ferromagnetic Semiconductors Based on K_2S without Transition Metal Elements, *M. Seike, K. Kenmochi, K. Sato, A. Yanase, H. Katayama-Yoshida, 27th International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS-27), Flagstaff, Arizona, USA, 26-30 July, 2004.

Crystal stability of α-and β-boron, *A. Masago, K. Shirai, H. Katayama-Yoshida, 27th International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS-27), Flagstaff, Arizona, USA, 26-30 July, 2004.

Ab initio study of native point defects in Delafossite $CuAlO_2$, *I. Hamada, H. Katayama-Yoshida, 27th International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS-27), Flagstaff, Arizona, USA, 26-30 July, 2004.

Exchange interactions and Curie temperatures in dilute magnetic semiconductors, *K. Sato, H. Katayama-Yoshida, 27th International Conference on the Physics of Semiconductors (ICPS-27), Flagstaff, Arizona, USA, 26-30 July, 2004.

High-pressure properties of icosahedron-based solid borons, *K. Shirai, A. Masago and H. Katayama -Yoshida, 11th International Conference on High Pressure Semiconductor Physics, Berkeley USA, August 2-5, 2004.

Theoretical investigation on the electronic structure of Alq_3/LiF/Al interface, *S. Yanagisawa and Y. Morikawa, International Discussion Meeting on Tris(8-hydroxyquinoline) aluminum (III): Basic Properties and Secrets of Alq_3 as an EL material, Wako, Japan, September 21-22, 2004

Theoretical investigation on the electronic structure of Alq_3/LiF/Al interface, *S. Yanagisawa and Y. Morikawa, The International Symposium on Super-Functionality Organic Devices, Chiba, Japan, October 25-28, 2004.

Molecular Dynamics Simulation of Impurity Diffusion in Si, *K. Shirai, T. Michikita and H. Katayama -Yoshida, 4th International Symposium on Advanced Science and Technology of Silicon Materials, Hawaii, USA, November 22-26, 2004.

Ab initio Materials Design for Semiconductor Spintronics (Invited), *H. Katayama-Yoshida, The 9th Asia Pacific Physics Conference (9th APPC), Hanoi, Vietnam, October 25-31, 2004.

Control of the Local Electronic Structure and Engineering of Highly Correlated Deep-Impurity Band for Semiconductor Spintronics (Invited), *H. Katayama-Yoshida, IFCAM (International Frontier Center for Advances Materials) Forum on "Electronic Properties of Interfaces and Contacts", Sendai, November 28-30, 2004.

Computational Materials Design from the First Principles: ~21st Century's Alchemy and the Philosopher's Stone~, *H. Katayama-Yoshida, K. Sato, K. Kenmochi, T. Fukushima, M. Toyoda, V. A. Dinh, H. Nakayama, I. Hamada, H. Funashima, H. Kizaki and A. Yanase, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Conversion from Graphite into Diamond Induced by Excitation of Holes, *H. Nakayama, K. Shirai and H. Katayama-Yoshida, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Materials Design of Ferromagnetic Diamond, *K. Kenmochi, K. Sato, A. Yanase and H. Katayama-Yoshida, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Ab initio Molecular Dynamics Simulation of CN in Amorphous Silicon, *N. Mitsuda, K. Shirai and H. Katayama-Yoshida, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Gettering Mechanism of Cu in Silicon calculated from First Principles, *K. Matsukawa, K. Shirai and H. Katayama-Yoshida, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Study of Delafossite $CuAlO_2$ using *ab initio* Calculation, *H. Funashima, A. Yanase and H. Katayama-Yoshida, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

First-Principles Materials Design of $CuAlO_2$ Based Diluted Magnetic Semiconducting Oxide, *H. Kizaki, K. Sato, A. Yanase and H. Katayama-Yoshida, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Ab initio Study of Native Point Defects in Delafossite $CuAlO_2$, *I. Hamada and H. Katayama-Yoshida, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Theoretical Prediction of Curie Temperature in (Zn, Cr)S, (Zn, Cr)Se and (Zn, Cr)Te by First Principles Calculations, *T. Fukushima, K. Sato, H. Katayama-Yoshida and P. H. Dederichs, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Self-interaction Corrected First Principles Calculations for ZnO-based Diluted Magnetic Semiconductors, *M. Toyoda, H. Akai, K. Sato and H. Katayama-Yoshida, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Theoretical Investigation on the Electronic Structure of Alq_3/Al Interface, *S. Yanagisawa and Y. Morikawa, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Ferromagnetism and magnetic Transition Temperatures *Tc* of Nitride Ternary-based Dilute Magnetic Semiconductors, *V. A. Dinh, K. Sato and H. Katayama-Yoshida, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Tc-enhanced without Codoping by Avoiding Nearest Neighbor Mn-Mn Site in (Ga, Mn)N, (Ga, Mn)P, (Ga, Mn)As and (Ga, Mn)Sb, *Y. H. Chang, K. Sato, H. Katayama-Yoshida and C. H. Park, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Low Temperature Ferromagnetism in (Ga, Mn)N, *K. Sato, P. H. Dederichs and H. Katayama-Yoshida, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Pressure Dependence of Band Gap in Solid Boron, *A. Masago, K. Shirai and H. Katayama-Yoshida, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Bandstructure Calculations and Fermi Surfaces of Ferromagnetic CeSb, *K. Yamauchi, A. Yanase, H. Harima and H. Katayama-Yoshida, SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

[国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員]

吉田　博	第３回半導体中のスピンに関連する物理と応用国際会議（PASPS-3）国際諮問委員及びプログラム委員
吉田　博	ナノマテリアルデザインと実証に関する国際会議 (ICNDR) 組織委員及びプログラム委員及びプロシーディングス編集委員
吉田　博	第２３回半導体中の欠陥国際会議(ICDS-23)委員長
白井　光雲	第２３回半導体中の欠陥国際会議(ICDS-23)　組織委員
吉田　博	第３回スピントロニクスと量子情報技術に関する国際スクールおよび国際会議(Spintech III)委員長
佐藤　和則	第３回スピントロニクスと量子情報技術に関する国際スクールおよび国際会議(Spintech III)　組織委員
吉田　博	磁性国際会議(ICM2006)組織委員

[国内学会]

物理学会	17 件
応用物理学会	5 件

[取得学位]

博士（理学）

山内　邦彦	強磁性 Ce 化合物の電子状態の理論的研究

修士（理学）

豊田　雅之	自己相互作用を補正した電子状態計算手法の開発および ZnO 系稀薄磁性半導体の電子状態と磁性の研究
福島　鉄也	第一原理計算による(Zn，Cr)S，(Zn，Cr)Se，(Zn，Cr)Te のキュリー温度の理論予測

修士（工学）

木崎　栄年	第一原理計算による $CuAlO_2$ を母体とした希薄磁性半導体の物質設計
劔持　一英	Materials Design of Transparent and Half-Metallic Ferromagnetic Semiconductors without Transition Metal Elements

[科学研究費補助金]

単位：千円

（分担者として配分されたもの）

特定領域研究 (代表者:白井正文、東北大学)

吉田　博	光―スピントロニクスデバイス及びナノスピンプローブのデザイン

[受託研究]

吉田　博	科学技術振興調整費	ナノスピントロニクスのデザインと創製に関する研究「計算機ナノマテリアル・デバイスデザイン」	27,164
吉田　博	産学官連携イノベーション創出事業費補助金（独創的革新技術開発	赤外レーザ照射による半導体中不純物の選択的低温拡散技術の研究	4,500

研究提案）

（分担者として配分されたもの）

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

［ 共同研究 ］

吉田　博	東北大学金属材料研究所	II-VI 族化合物半導体ベースの強磁性半導体のスピンエレクトロニクス
吉田　博	(財)高輝度光科学研究センター　SPring-8	電子励起による新物質創製の機構解明
吉田　博	(財)国際高等研究所	物質科学とシステムデザイン
吉田　博	ドイツ・ユーリッヒ固体物理研究所	計算機ナノスピントロニクスのマテリアル・デバイスデザイン

ナノバイオ知能システム分野

教授（兼任）　　溝口　理一郎
助手　　古崎　晃司

a ）　概要

ナノ・バイオ知的支援システムの開発、ナノ・バイオテクノロジーに関わる膨大なデータからのデータマイニング・知識発見、ナノ・バイオテクノロジー知識の構造化、オントロジー工学などの知能システム科学とナノ・バイオテクノロジーとを融合した研究の中で、特にナノテクノロジー知識の構造化に重点を置いて研究を行っている。

ナノテクノロジーに関する研究は多種多様な領域にまたがり、かつ、これらの領域は互いに密接に絡み合っている。このため、知識を異なる領域間で共有することができれば、互いの領域のさらなる発展の促進に貢献することが期待される。各領域に共通であるべきナノテク世界を構成する基盤概念を抽出し、構造化することに貢献するものが「オントロジー」である。本研究では、オントロジー工学の手法を用いて機能概念を組織化して、一般社会が要求する材料の機能概念を整理し、ナノテク基盤概念との関係を確立する。更に、構造化された知識を用いたナノテク材料開発発想支援システムの設計・開発を行う。

b ）　成果

① ナノテクオントロジーの開発

化学工学の領域を含む複数の領域を対象にして、全体に共通する基盤概念を構造化するために必要な共通オントロジーを開発する。オントロジーを開発しながらナノテクオントロジーの特殊性を把握して、オントロジー構築の基礎を固める。教科書や関連論文を参照しつつ、基本的な用語を抽出した。収集した概念を対象にして、プロセス、構造、機能、物質の４つのカテゴリーに分類し、予備的なオントロジーを構築した。その中の上位オントロジーと基本的な考え方を以下に示す。

(a) ４つのトップレベル概念

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

(b)形状と構造の差別化

－形状:それ以上要素に分解できないものが持つ姿・形（例：球，直方体など)。

－構造:要素間の位相的関係を表す抽象概念。

(c)機能と特性

－物性・特性：あくまでもある対象物の属性であり客観的。

－機能：目的指向で，ある特定の状況における働きを概念化したもの。

－現象・効果：ある物性を発現する根拠を与える。

② 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。

一般に、ある機能は、複数の部分機能を実現することによって達成される。例えば、白熱灯が「発光する」機能は、「フィラメントに電流を流す」「抵抗が発熱する」「発光する」という部分機能によって達成される。機能達成には、対象の構造や物理原理などの背景（この例では材料が持つ「輻射」という性質）があり、このような機能達成方法の背景を概念化したものを「方式」と呼ぶ。そして、ある機能（全体機能）を分析し、ある方式に基づいて部分機能の列に分解することを「機能分解」と呼び、これらの関係を木構造で表現したものを「機能分解木」と呼ぶ。部分機能はさらに機能分解することが可能で、機能分解木は複数の階層を持つ木構造となる。

一つの機能を達成する方式は複数存在し、ある方式を新しい方式に代替することで発想がなされる。例えば、上述の「発光する」という機能を達成する為の方式として白熱灯で用いられている「抵抗発熱方式」の代わりに、放電により放出された熱電子を水素原子に衝突させることで発光させる「放電発光方式」が、蛍光灯に用いられている。従って、様々な方式をデータベースとして蓄えておき、必要に応じてユーザーに提示することで、発想支援を行うことが出来る。その際に重要となるのは、機能や方式を領域に依存しない形で概念化することである。そうすることで、ある領域ではこれまで用いられていなかった方式を、他の領域の方式において適用し革新的な発想がなされることが期待される。

分野間協力の一環として、新原研究室と川合研究室とで行われている研究課題の内、薄膜形成およびナノ粒子生成に関する機能を対象にして機能分解木を作成し、機能分解木記述方式の検証と同時に方法論の浸透を図った。さらに、体系化したナノ材料知識を用いて、両研究室で実際に行われた材料開発の具体事例を追試的に記述することを通して、材料設計支援システムの有用性の検討を行った。

③ オントロジー構築・利用環境の開発

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

オントロジーエディタ

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

概念工房

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

オントロジーサーバー

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

先に述べた、ナノテクオントロジーや、方式知識に基づく発想支援システムは、「法造」を利用して開発を進めている。本年度は，オントロジーエディタのインタフェースを改善すると共に、専用の Web サイトを開設し（http://www.hozo.jp/）システムの一般公開を行った。

［ 国際会議 ］

A Success Story of Ontological Engineering in a Japanese Company - Engineering Knowledge Management Based on Functional Ontology (Invited), *R. Mizoguchi, KEST04, Beijin, P.R.China, September 17-19, 2004

Ontological integration ofdata models for cell signaling pathways, *T. Takai-Igarashi, and R. Mizoguchi, GIW2004, Tokyo, Dec.13-15, 2004.

［ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ］

溝口理一郎　　The 3rd International Semantic Web Conference(ISWC2004)（組織委員長）

溝口理一郎　European Project on SEKT, (Steering committee 委員)
溝口理一郎　International Conference on Intelligent Tutoring Systems(ITS2004)（プログラム委員会委員）
溝口理一郎　The 9th Ibero-American Conference on Artificial Intelligence IBERAMIA'04（プログラム委員会委員）
溝口理一郎　European Semantic Web Conference (ESWC2004)（プログラム委員会委員）
溝口理一郎　The Fifth International Symposium on Tools and Methods of Competitive Engineering (TMCE 2004) （プログラム委員会委員）
溝口理一郎　Workshop on Applications of Semantic Web Technologies for E-learning（副議長）
溝口理一郎　The 2004 IFIP International Conference on Intelligence in Communication Systems (INTELLCOMM 04)（プログラム委員）
溝口理一郎　The World Congress on Computers, AIAI2004（プログラム委員）
溝口理一郎　European KAW Conference(EKAW2004)（プログラム委員）
溝口理一郎　Secretary of International Artificial Intelligence in Education Society（国際学会前会長）
溝口理一郎　Asia-Pacific Society for Computers in Education(APSCE) （理事）
溝口理一郎　International Journal of Applied Ontology（編集委員）
溝口理一郎　International Journal of Advanced Engineering Informatics （編集委員）
溝口理一郎　International Journal of Artificial Intelligence in Education（編集委員）
溝口理一郎　International Journal of Web Semantics（編集委員）
溝口理一郎　International Journal of Computer and Engineering Management （編集委員）
溝口理一郎　International Journal of Web Engineering and Technology （編集委員）
古崎　晃司　Evaluation of Ontology-based Tools 3rd International Workshop(EON2003)(プログラム委員)

[国内学会]

人工知能学会　2 件
情報処理学会　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

特定研究（２）

溝口理一郎	機能オントロジーに基づく設計・製造知識コンテンツ管理と活用	4,900

[共同研究]

溝口理一郎	（社）化学工学会	材料技術の知識の構造化プロジェクト，研究項目③「知識基盤プラットフォームの開発」，ナノテクオントロジーの研究とオントロジーサーバーの開発	5,250

ナノテクノロジートランスファー分野

客員教授　　Ramasamy　RAMARAJ（ラマサミー ラマラジ）（平成 16 年 5 月～9 月）

a ） 概要

ナフィオン膜はパーフルオロスルホン酸型のイオン交換膜で、優れた耐熱性および耐酸性から燃料電池など様々な分野への応用が検討されている。また、疎水的なポリマー鎖と親水的なイオンクラスターを形成することから生体膜のモデルとしても研究の対象になっている。スルホン酸の負電荷によるカチオンの取り込みについては研究例が多いものの、ナフィオン膜中におけるアニオンの局所濃度や運動性についての知見はほとんど得られていない。本研究では、共鳴二光子イオン化により膜中にピレンスルホン酸ラジカルカチオンを生成させ、アニオンによる消光過程を過渡吸収法によって直接観測することにより、ナフィオン膜中におけるアニオンの局所濃度と運動性について議論した。

b ） 成果

ナフィオン膜中に存在するピレンスルホン酸を Nd:YAG レーザー（355 nm）を用いて直接励起することにより、膜中にピレンスルホン酸ラジカルカチオンを生成させた。ここで、ピレンスルホン酸ラジカルカチオンはフルオロカーボン鎖に近い境界領域に存在している。ピレンスルホン酸ラジカルカチオンの寿命に対するアニオン添加効果を観測することにより、ピレンスルホン酸ラジカルカチオンからアニオン（SCN^-、N_3^-、I^-、Br^-）への電子移動反応速度を決定した。得られた見かけの二分子反応速度は、バルク水溶液中で得られた値と比べ４桁以上小さいことがわかった。ナフィオン膜およびバルク水溶液中で得られた電子移動反応速度定数の比較から、ナフィオン膜中におけるアニオンの局所濃度と運動性は、バルク水溶液中のそれらと比べ著しく減少しており、その減少度はアニオンの疎水性の指標となるホフマイスター系列に従うことを見出した。また、テトラブチルアンモニウムイオンなどを用いてアニオンの局所濃度を制御することに成功した。

この研究成果はJ. Phys. Chem. B に論文として報告した。

“Hofmeister Effects on the Electron Transfer Reactions of 1-Pyrenesulfonic Acid Radical Cation with Nucleophilic Anions in Nafion Membrane”

T. Tachikawa, R. Ramaraj, M. Fujitsuka, and T. Majima

J. Phys. Chem. B **2005**; *109*(8); 3381-3386.

ナノテクノロジートランスファー分野

客員教授　　Thomas Wirth（平成 16 年 9 月～10 月）

a ）　概要

ナノテクノロジーに関する開発研究成果を産業界に技術移転し、新産業を創製することを目的とする。

b ）　成果

カルコゲン化合物を活用する立体選択的反応と、超原子価ヨウ素試薬による機能性有機ナノ材料の新規構築法に関して研究発表と討論をおこなった。

ナノテクノロジートランスファー分野

客員教授　　Jay A. LaVerne（平成 16 年 10 月～平成 16 年 11 月）

a ）　概要

複素芳香族分子の凝縮相において、量子ビームが誘起する化学反応の解明を行った。反応の素過程について、高速過渡分光法により物理化学反応の初期過程を明らかにすると同時に、最終的に得られる生成物の分析を含め、ビームと物質の相互作用の始まりから安定な生成物への全反応経路を明らかとした。

b ）　成果

複素芳香環化合物は、多用途に用いられる有機材料としての側面のみでなく、様々な触媒反応を促進する重要な化合物で有り、ナノ構造形成反応でも盛んに用いられている。本研究では、量子ビームによって付与されたエネルギーの芳香環化合物凝縮相中での散逸、及び物理化学反応過程を、最終反応生成物に至るまでの全時間領域に渡って明らかとし、各時間領域において支配的となる反応活性種の定量的同定と全体の反応スキームの構築を行った。これらの結果は、将来のナノ材料形成反応におけるマトリクスとしての複素芳香族化合物の有用性を示すと同時に、新たな複素芳香環凝縮相中における高効率反応系の可能性を示唆した。

また、以下の講演会を開催した。

平成１６年１０月１９日「H_2 Production in the Radiolysis of Water-Oxide Interfaces」

ナノテクノロジートランスファー分野

客員助教授　　趙　大源（平成 16 年 12 月～平成 17 年 2 月）

a ）　概要

ナノテクノロジーにおいて高速応答性スイッチング分子は構成要素として重要である。高速応答性スイッチング分子の評価方法として超短パルスレーザーを用いた高速分光が不可欠であることから、サブピコ秒蛍光寿命測定装置を開発する。超高速スイッチングを実現する分子系を合成し、その機能評価を行う。さらにサブピコ秒蛍光寿命測定装置を用いることで、光エネルギー捕集系でのエネルギー伝達過程の評価および DNA 分子の溶媒和過程を観測することが可能になることから、これらの評価もあわせて行うことで、超高速分光法の有用性を明らかにする。また、超分子化学およびその光化学・物理現象に関しての討論を行う。

b ）　成果

パルス幅 100 フェムト秒のチタンサファイアレーザーの第二高調波を励起光としてサンプルに照射し、生じた蛍光と基本波との和周波混合を生じさせることで、時間分解能約 300 フェムト秒程度のサブピコ秒蛍光寿命測定装置を開発した。実際にオリゴチオフェンとアクセプター分子を結合したダイアッド分子の蛍光寿命は 600 フェムト秒であることを明らかにした。サブピコ秒領域の蛍光寿命は従来の時間相関単一光子計測法では測定不能であることから、サブピコ秒蛍光寿命測定装置の有用性が示された。さらに種々のオリゴチオフェンとアクセプター分子の結合分子の蛍光寿命を測定することで、電荷移動メカニズムについて知見を得た。また、この測定装置は変更に関する知見も得られることから、エネルギー伝達過程の解明にも適用可能と考えられる。この他にもエネルギー伝達システムの構築を目的としてデンドリマーの励起エネルギー移動過程を明らかにした。

ナノテクノロジートランスファー分野

外国人客員助教授　　Mohamed El-Maghraby（平成 17 年 3 月～平成 17 年 6 月）

ａ ） 概要

電子線ビームリソグラフィや、収束イオンビームを用いる従来型のトップダウンナノ構造制御とは逆のアプローチ（ボトムアップ手法）を用いたナノ構造制御形成プロセスを開発する。

触媒サイトとなる金属微粒子の配列を制御することにより、ワイドギャップ半導体の結晶成長（核形成）を任意に制御し、さらに触媒金属微粒子径を変化させることで、ナノロッド径の変化（次元性変化）により期待される状態密度の局在化、量子化機能の発現を狙う。

さらに、磁性元素を組み込んだり、バンドギャップ整合等のヘテロ構造バンドエンジニアリングにより、ナノ構造制御したスピントロニクス素子への応用を試みる。

ｂ ） 成果

これまで ZnO、ZnMgO および ZnCoO のナノレベルでの薄膜形成を目的とした HotWall-PLD システムの立ち上げを行ってきた。
これら薄膜は LED デバイスや高性能低消費電力デバイスへの応用に非常に重要である。

［ 原著論文 ］

Influence of Gamma Radiation on the Absorpion Spetra and Optical Enrgy of Li-Doped ZnO Thin Films, A. Abu EL-Fadl, El-Maghraby Mohamed , Galal A. Mohamed : Cryst. Res. Technol., 39 (2004) 143-150.

High Quality Growth of TiO_2 Thin Films from Its Precursor Solution by New Sol-Gel Method, El-Maghraby Mohamed, Y. Nakamura, Y. Fujii, M. Kamiya, S. Rengakuji : Electrochemistry, 72 (2004) 455-457.

［ 国際会議 ］

Preparation and Characterization of Phosphoric Acid-doped Triglycine Sulphate Crystals, *El-Maghraby Mohamed, The fourth International Conference on Solid State Crystals, Zakopane, Poland, May 16-20, 2004

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、量子マテリアルデバイス機能評価、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、ナノメーター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。また、ナノ構造制御マテリアルの時間分解創製プロセスや原子配列と電子状態、次世代量子マテリアルデバイスの機能・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

- 高分解能電顕法、電子線構造解析法によるアモルファス構造の多面解析手法の確立
- 電界放射型電子顕微鏡による相変化型記録材料の非晶質構造評価
- ナノビーム電子回折法による相変化型記録材料のソフトフォノン解析
- 低エネルギー電子線ビーム励起による半導体表面構造制御の基礎過程の解明
- フェムト秒パルスレーザー光励起によるグラファイト表面構造相転移と原子層剥離の発見
- エネルギー分解差分 STM イメージ解析法の開発と半導体表面点欠陥周辺での電荷移動の定量評価
- XAFS, Raman による強磁性半導体のナノ構造評価
- 時間分解 PL による強磁性半導体の発光機構の解明
- SPM によるサブミクロン Si デバイスのナノ評価

ナノ構造多次元評価分野

教授　　弘津　禎彦
助手　　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

・　「アモルファス構造の電子線多面構造解析手法の確立」

実空間、逆空間双方からの豊富な情報を取り入れた高精度電子線アモルファス構造解析技術を確立する目的で、高分解能電子顕微鏡法、エネルギーフィルター法、ナノビーム電子回折法およびイメージングプレートを利用し、アモルファス合金を対象にした電子線構造解析を行っている。2004 年は Fe-Nb-B 系アモルファス合金を用い、構造解析への非弾性散乱、多重散乱（試料厚さ）の影響に関する研究を行った。また、リバースモンテカルロシミュレーションなどの計算機手法を組み合わせた非晶質構造モデル作成法を 5000 個の原子について行った。

・　「電界放射型電子顕微鏡による相変化型記録材料の非晶質構造解析」

相変化型記録は結晶相－非晶質相の相変化に伴う光学特性の変化を利用した記録方式であり、DVD-RW などの光ディスクに応用されているが、相変化型記録材料の非晶質構造に関しては未だ不明な点が多い。透過電子顕微鏡法、高分解能電子顕微鏡法およびナノビーム電子回折法を併用することで、光ディスク内部における Ge-Sb-Te 系相変化型記録材料の非晶質構造に関する知見を得る手法を確立した。高分解能電子顕微鏡観察により as-deposited Ge-Sb-Te 非晶質薄膜内にはおよそ 2 nm サイズの中範囲規則領域(MRO)が存在することを確認した。また、高分解能像の自己相関関数解析より、これらの MRO の構造は結晶 Sb に類似したものであることを明らかにした。さらに、ナノビーム電子線動径分布解析の結果、Ge-Sb-Te 非晶質薄膜の構造は、非晶質 Sb に類似した構造であることを見出した。

・　「ナノビーム電子回折法による相変化型記録材料のソフトフォノン解析」

Ge-Sb-Te 結晶相より得られた電子回折図形にはブラッグ反射点を横切るすじ状散漫散乱がしばしば観察される。これらのすじ状散漫散乱のすじの方向はすべて$[2\bar{2}01]$、$[\bar{2}021]$ および $[02\bar{2}1]$ 方向に伸びる原子鎖のいずれかと直交しており、また散漫散乱の強度は入射電子線と原子鎖のなす角に依存することが確認された。これらのことから、今回観察されたすじ状散漫散乱が Ge-Sb-Te 結晶中の原子鎖の熱振動に起因するものであることが明らかとなった。

［ 原著論文 ］

Nanoscale Phase Separation in an $Fe_{70}Nb_{10}B_{20}$ Glass Studied by Advanced Electron Microscopy Techniques, *T. Hanada, Y. Hirotsu and T. Ohkubo: Mater. Trans. 45 (2004) 1194-1198.

Nanoscale Phase Separation in Metallic Glasses Studied by Advanced Electron Microscopy Techniques, *Y. Hirotsu, T. Hanada, T. Ohkubo, A. Makino, Y. Yoshizawa and T. G. Nieh: Intermetallics **12**, 1081-1088 (2004).

Local Structure Analysis of Ge-Sb-Te Phase Change Materials Using High-resolution Electron Microscopy and Nanobeam Diffraction, *M. Naito, M. Ishimaru, Y. Hirotsu and M. Takashima: J.

Appl. Phys. 95 (2004) 8130-8135.

Local Structural Change of Amorphous Ge-Sb-Te Thin Film during Annealing, *M. Naito, M. Ishimaru, Y. Hirotsu and M. Takashima: J. Non-Cryst. Solids 345/346 (2004) 112-115.

［ 解説、総説 ］

Fe-B アモルファス合金におけるナノスケール相分離、花田　剛、平田秋彦、弘津禎彦、大久保忠勝、V. Bengus：まてりあ **43**, 1002 (2004).

［ 著書 ］

Nanostructure of amorphous alloys, Y.Hirotsu, T.Ohkubo and M.Matsushita:
"Novel Nanocrystalline Alloys and Magnetic Nanomaterials", Edited by B.Cantor, Series in Materials Science and Engineering, Institute of Physics Publishing, Bristol, 2004, p 16-41.

［ 国際会議 ］

Two dimensionally dispersed Fe/FePd nanocomposite particles synthesized by electron beam deposition (Invited), *Y. Hirotsu, K. Sato and J. Kawamura, Int'l Conf. New Frontiers of Process Science and Engineering in Advanced Materials, Kyoto, November 24-26, 2004.

Growth and atomic ordering of hard magnetic $L1_0$-FePt, FePd and CoPt alloy nanoparticles studied by transmission electron microscopy (Invited), *Y. Hirotsu and K. Sato, ICCG&D2004, Seoul, November 10-14, 2004.

Fabrication and Structural Analysis of Oriented $L1_0$-FePt and FePd Nanoparticles (Invited), *Y. Hirotsu and K. Sato, The First Asia Forum on Magnetics, Okinawa, September 21-24, 2004.

Local Structure Analysis of Metallic Glasses Using HREM and Electron Diffraction (Invited), *Y. Hirotsu, T. Ohkubo and T. Hanada, 8th Asia-Pacific Conference on Electron Microscopy, Kanazawa, June 7-11, 2004.

Structure and metallurgy of alloy nanoparticles in Fe-Pd system (Invited), *Y. Hirotsu and K. Sato, $L1_0$ Ordered Intermetallic and Related Phases for Permanent Magnet and Recording Applications, Colorado, USA, August 15-20, 2004.

Nanostructures of binary and ternary Fe-B based glasses studied by HREM and electron diffraction (Invited), *Y. Hirotsu, Akihiko Hirata, Tadakatsu Ohkubo and A.Makino, 5th Polish-Japanese Symposium on Advanced Methods of Materials Characterization, Niedizca, Poland, August 29-September 1, 2004.

Structural Analysis of As-sputterd and Melt-quenched Ge-Sb-Te Thin Film (Poster), *M. Naito, M. Ishimaru, Y. Hirotsu, and M. Takashima, 8th Asia-Pacific Conference on Electron Microscopy, Kanazawa, June 7-11, 2004.

［ 国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員 ］

弘津禎彦	8th Asia-Pacific Conference on Electron Microscopy（組織委員）
弘津禎彦	16th International Congress on Electron Microscopy （組織委員）
弘津禎彦	International Conference on New Frontiers of Process Science and Engineering in Advanced Materials（顧問委員）

弘津禎彦	11th International Symposium on Metastable, Mechanically Alloyed and Nanocrystalline Materials（顧問委員）
弘津禎彦	Japan-Polish Joint Seminar on Materials Analysis（組織委員）

[国内学会]

日本金属学会	4 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

特定領域研究（２）「金属ガラスの科学」

弘津　禎彦	融体・金属ガラスの局所原子構造のその場観察	30,100

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	33,400

[受託研究]

（代表者として配分されたもの）

弘津　禎彦	科学技術振興調整費	ナノヘテロ材料局所構造の電子線精密構造解析と機能発現機構の解明	15,057
弘津　禎彦	NEDO（革新的部材産業創出プログラム）	高機能高精度省エネ加工型金属材料（金属ガラス）の成形加工技術	3,150

表面ナノ構造プロセス評価分野

教授　　谷村　克己
助教授　　金崎　順一

a ）　概要

電子系の励起により表面の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。この電子励起状態の反応誘起性・促進性・選択性を利用することにより、従来の熱的プロセスでは得られなかった、凝縮系の新しい物性・機能の発現あるいは構造相の制御・組織化が期待できる。当研究分野では、まず、固体表面の電子励起状態が誘起する原子過程の基礎的理解を完全なものとし、さらに、その基礎的知見に立脚し、電子励起状態という新しい経路を利用した先進的な表面及びナノプロセスの手法構築へと発展させる。

b ）　成果

・電子線励起による半導体表面構造の不安定性

表面価電子系の励起形態には、バンド間の個別励起と集団励起であるプラズモンがある。レーザー励起の場合、バンド間遷移により生成される正孔の非線形局在により半導体表面の原子結合が切断されることが知られている。最近、電子線励起によっても表面構造の不安定性が誘起されるということが明らかと成ったが、その機構についてはいまだ解明されていない。レーザー光及び電子線による電子的結合切断の機構が同一か、あるいは定性的に異なるのかという問題は、電子励起による構造不安定性を理解するうえで重要な問題である。

当グループでは、低エネルギー電子線によりSi(111)-(7x7)表面において誘起される構造変化をトンネル顕微鏡により直接観察した。その結果、電子線励起により、最外層原子が除去され、空格子点が生成されることが明らかとなった。生成される空格子点の大部分が孤立空格子点で、その生成効率は強いサイト選択性を示した。これらの構造変化の特徴は光励起の場合とよく一致しており、光と電子線とで、結合切断を発生させる電子的過程の最終段階が共通であることを示唆している。一方、光励起の場合と異なり、空格子点生成効率は電子線のフラックスに比例し、また、入射電子線エネルギーの増大に対して急激に減少する事が明らかとなった。以上の実験結果の詳細な解析により、表面プラズモン励起に起因する半導体表面の電子線誘起構造不安定性の機構を解明した。

・フェムト秒レーザーパルスによるグラファイト表面構造の変化

グラファイトは sp_2 結合からなる六方格子の原子面が、隣接原子面と互いに緩やかに結合した典型的な擬二次元物質である。この表面を電子励起することにより誘起される構造変化の特徴及び電子的機構を解明することは、電子励起による構造不安定性と次元性との相関を理解する上で重要である。

当グループは、フェムト秒パルスレーザー光励起によりグラファイト表面のπ－π*電子遷移を高密度に誘起させ、励起前後の表面構造をトンネル顕微鏡により直接観察した。構造変化に対する閾値励起強度の存在を確認し、この表面での構造不安定性の過程に多重励起効果が含まれる事を明らかにした。閾値以上の励起強度においては、原子層の断片が集団的に剥離し、直径数ナノメートルの空格子点クラスターが観測された。さらに、この剥離された領域の周辺において、これまでに報告されていない新しい周期構造を発見した。これらの結果は、電子励起において構造相転移と原子層剥離とが密接に関係している事を強く示唆している。

・電子励起による無欠陥Si(001)新表面構造相の創製

本グループの研究により、Si(001)表面のダイマーが光励起により選択的に除去される事、またその効率が、①励起波長530nm近傍においてピークを形成する事、②励起強度に対して非線形に増大する事、などが明らかにされている。これらの知見に基づいて励起条件を最適化し、ダイマー除去によるSi(001)新表面構造相を得た。表面ダイマーを除去することにより露出した表面はバルク終端構造に近い’(1x1)’周期性を示す。また、新構造相は極端に低い空格子点密度を示し、次世代高密度半導体素

子基盤として有用であることが期待できる。これまでに95%程度のダイマーを除去することに成功しており、さらに励起条件を励起波長・強度・パルス幅等の多次元空間で制御することにより、残存ダイマー除去の効率化及び完全除去による無欠陥・完全表面相創製に向けた手法の確立に取り組んでいる。

・半導体表面点欠陥の物理的性質評価手法の開発

電子デバイスの寸法がナノメートル領域へ向けて微細化するにつれて、点欠陥の構造的・電子的性質の理解がさらに重要となってくる。当グループでは、半導体表面点欠陥の物理的性質を解析するための新しい手法の開発に取り組んでいる。今回、エネルギー分解差分 STM イメージ解析法を用いた半導体表面空格子点周辺における電荷移動の定量的解析を試みた。

Si(111)-(7x7)表面におけるアドアトム空格子点をトンネル顕微鏡により観察し、空格子点周辺アドアトムのトポロジー変化の特徴がサンプルバイアス及び空格子点の存在するサイトに強く依存する事、また、この変化が空格子点周辺のダングリングボンド間での電荷移動に起因する事、を明らかにした。異なるサンプルバイアス及び異なる単位格子での STM 像の差分イメージを詳細に解析する事により、エネルギー及びサイトに強く依存した電荷移動現象及び電荷移動の空間的広がりの視覚化に成功した。今回得られた結果により、この表面での再構成構造の安定化に電荷移動が重要な役割を果たしている事を示した。

[原著論文]

Electronic Bond Rupture of Si-dimers on the Si(001)-(2x1), J. Kanasaki, K. Katoh, Y. Imanishi, and K. Tanimura: Applied Physics A79 (2004) 865-868.

Photoinduced Structural Instability of the InP(110)-(1x1) Surface, T. Gotoh, S. Kotake, K. Ishikawa, J. Kanasaki, and K. Tanimura: Physical Review Letters 93[11] (2004) 117401-1-4.

Femtosecond time-resolved reflection spectroscopy of photoinduced ionic-neutral phase transition in TTF-CA crystals, K. Tanimura: Physical Review B70[14] (2004) 144112-1-11.

Temperature-dependent yield of Frenkel pairs generated by valence excitation in NaCl, K. Tanimura and W. P. Hess: Physical Review B69 [15] (2004) 155102-1-7.

Role of two-hole localization in anion-vacancy formation on the (110) surfaces of InP and GaAs at the third regime of Langmuir evaporation, K. Tanimura: Physical Review B69 [3] (2004) 033301-1-4.

[解説、総説]

レーザービームによる半導体表面原子結合の局所的切断, 金崎順一、谷村克己：応用物理学会誌, 73 [4] (2004) .485-489.

[国際会議]

Site-selective yields of laser-induced bond rupture of Si-Dimers on Si(001)-(2x1) surface, *J. Kanasaki, K. Katoh, Y. Imanishi, and K. Tanimura, The 16th International Vacuum Congress / The 12th International Conference on Solid Surfaces / The 8th international Conference on Nanometer-Scale Science and Technology, Venice Cinema Theator, Venice, Italy June 28-July 2, 2004.

Photoinduced structural instability on Si(111)-(2x1), *E. Inami and K. Tanimura, The 10th

International Workshop on Desorption Induced by Electronic Transitions (DIET10), Susono, Japan, Nov. 8-11, 2004.

Structural instability of Si(111)-(7x7) induced by low-energy electron irradiation, Y. Sugita, J. Kanasaki and K. Tanimura, The 10th International Workshop on Desorption Induced by Electronic Transitions (DIET10), Susono, Japan, Nov.8-11, 2004.

[国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員]

谷村　克己　The 10th International Workshop on Desorption Induced by Electronic Transitions (DIET10)（委員長、国際運営委員）
SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004(SISSIN-2004)(Osaka, 2004.12.6-7)（組織委員）

金崎　順一　The 10th International Workshop on Desorption Induced by Electronic Transitions (DIET10)（実行委員）

[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

基盤研究(B)(2)

谷村　克己	時間分解ラマン散乱分光による擬１次元有機結晶の光誘起構造相転移の研究	5,300
金崎　順一	シリコン(001)表面における光誘起結合切断と新表面構造相の創製	3,900

量子マテリアルデバイス機能評価分野

教授（兼）　　朝日　一
助手　　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

・希薄磁性半導体の物性評価

遷移金属Crまたは希土類元素Gd添加GaNは室温で強磁性を示すだけでなく、伝導性、発光特性を示し、電荷･光･スピンを複合制御した半導体スピントロニクス材料として魅力的な磁性半導体である。平成１６年度は、それらの発光メカニズムの解明のため、光学特性評価及び構造解析を行った。GaCrNに対して時間分解PL測定を行い、発光寿命の短さ(0.1 ns)からband to band（励起子)遷移による発光であることを明らかとした。GaGdNでの発光寿命は25 μs（20 K)と長いことから、希土類元素Gdイオンの f 電子による内殻遷移によるものであることを明らかとした。GaCrNに対するEXAFS評価では、Cr濃度1%から2.6%のGaCrN試料においては、Cr原子がGaサイトに入り、Ga原子と置き換えていることがわかった。Cr濃度が3%以上になると、第2近接原子間（Cr-Ga）距離が縮み、NaCl構造を持つ第2相のGrNの析出が確認できた。ラマン散乱分光評価では、Cubic GaCrNの混在を示唆した。この示唆はTEM観察により確認した。

・GaNナノロッドの構造、機能評価

GaNはその電子親和力は小さいことから電界放出電子源への応用の期待がある。平成１６年度は、Si基板上成長GaNの構造ならびに電界放出特性の評価・解析を行った。AFM（原子間力顕微鏡）観察により直径は50 nm程度で凹凸が平均約12 nmのナノロッドの構造をもっていることが明らかとなった。更に、断面TEM観察により､成長初期から柱状成長しており､配向性の良いナノロッド構造となっていること、各ナノロッドは結晶欠陥の少ない単結晶となっていることが明らかとなった。更に、ナノロッドの先端には突起状の構造が観測された。この突起状構造では電界集中が起こり易く、低電圧での電界電子放出に有利な構造である。実際、電界電子放出特性を調べたところ、しきい値電界 1.25 V/μm と低電界で電子放出が開始し、2.5 V/μmで2.5 mA/cm^{2}の大きな電流の得られることが明らかとなった。

・100nm MOSFETのSTM評価

Si-VLSIでのSiデバイスの益々の小型化に伴い、ナノレベルでの評価が必須となるが、ナノレベルでの評価が難しくなってきている。STM(走査型トンネル顕微鏡)により、100nmサイズMOSFET断面での２次元ポテンシャル分布評価を行った。STMを用いることで、100nmサイズMOSFET断面での２次元ポテンシャル分布評価が可能となることが明らかとなった。

［ 原著論文 ］

Observation of photoluminescence emission in ferromagnetic semiconductor GaCrN, M. Hashimoto, H. Tanaka, R. Asano, S. Hasegawa, and H. Asahi: Appl. Phys. Lett. 84 (21) (2004) 4191-4193.

Growth and characterization of new III-V-based magnetic semiconductors for application to semiconductor spintronics devices (Invited), H. Asahi, Y.K. Zhou, M. Hashimoto, H. Tanaka and S. Emura: Proceedings of 12th International Workshop on The Physics of Semiconductor Devices (Eds. by K.N. Bhat and A. DasGupta, 2004 Narosa Publishing House, New Delhi, India) 1095-1100.

Migration enhanced epitaxy (MEE) growth of five-layer asymmetric coupled quantum well (FACQW) and its cross-sectional STM observation, J.H. Noh, S. Hasegawa, T. Suzuki, T. Arakawa, K. Tada and H. Asahi: Physica E 23 (2004) 482-486.

Wavelength control of 1.3-1.6 μm light emission from the quantum dots self-formed in GaAs/InAs short-period superlattices grown on InP (411)A substrates, J. Mori, T. Nakano, T. Shimada, S. Hasegawa and H. Asahi: J. Appl. Phys. 96 (3) (2004) 1373-1375.

Temperature stability of the refractive index and the direct-band edge in TlInGaAs quaternary alloys, A. Imada, H.J. Lee, A. Fujiwara, T. Mukai, S. Hasegawa and H. Asahi: Appl. Phys. Lett. 84(21) (2004) 4212-4214.

1.3-1.5-μm-wavelength GaAs/InAs superlattice quantum-dot light-emitting diodes grown on InP(411)A substrates, J. Mori, T. Nakano, T. Shimada, S. Hasegawa and H. Asahi: Jpn. J. Appl. Phys. 43(7A) (2004) L901-L903.

Barrier height control for electron field emission by growing an ultra-thin AlN layer on GaN/Mo, S. Nishida, T. Yamashita, S. Hasegawa and H. Asahi: Thin Soild Films, 464-465 (2004) 128-130.

GaN-based magnetic semiconductors for nanospintronics (Invited), H. Asahi, Y.K. Zhou, M. Hashimoto, M.S. Kim, X.J. Li, S. Emura and S. Hasegawa: J. Phys.: Condens. Matter. 16 (48) (2004) S5555-S5562.

Optical properties of GaN-based magnetic semiconductors, Y.K. Zhou, M.S. Kim, X.J. Li, S. Kimura, A. Kaneta, Y. Kawakami, Sg. Fujita, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi: J. Phys.: Condens. Matter. 16 (48) (2004) S5743-S5748.

Magnetic, optical and transport properties of GaN-based ferromagnetic/nonmagnetic heterostructurtes, M.S. Kim, Y.K. Zhou, X.J. Li and H. Asahi: J. Phys.: Condens. Matter. 16 (48) (2004) S5711-S5716.

Ramana scattering characterization of GaN-based spintronics materials, N. Hasuike, H. Fukumura, H. Harima, K. Kisoda, M. Hashimoto, Y.K. Zhou and H. Asahi: J. Phys.: Condens. Matter. 16 (48) (2004) S5811-S5814.

Local structural change in GaCrN grown by radio frequency plasma-assisted molecular-beam epitaxy, M. Hashimoto, H. Tanaka, S. Emura, M.S. Kim, T. Honma, N. Umesaki, Y.K. Zhou, S. Hasegawa and H. Asahi: J. Cryst. Growth 273 (2004) 149-155.

［ 解説、総説 ］

温度無依存発振波長 TlInGaAs/InP 半導体レーザ、朝日一：電気学会技術報告「パワー半導体レーザ応用技術調査報告」パワー半導体レーザ応用技術調査専門委員会編、第 961 号（2004）36-39.

強磁性半導体と創製、朝日一：第３回スピントロニクス入門セミナー「磁性の初歩からスピントロニクス材料、デバイスまで」（2004）53-61.

［ 著書 ］

Structural and optical characterization of self-formed quantum dots, S. Gonda and H. Asahi: in *Encyclopedia of Nanoscience and Nanotechnology*, Eds. by J.A. Schwarz, C. Contescu and K. Putyera (Marcel Dekker, Inc., 2004) 3227-3235.

［ 国際会議 ］

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

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

Luminescence from Gd Site in Dilute Magnetic Semiconductor GaGdN, *S. Emura, Y.K. Zhou, M. Hashimoto, H. Tanaka, M.S. Kim, S. Kimura, S. Shanthi, X.J. Li, N. Teraguchi, A. Suzuki, A. Yanase, and H. Asahi, Second 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience" and 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science, Osaka, Japan, January 13-14, 2004.

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

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

GaN-based magnetic semiconductors for nanospintronics (Invited), *H. Asahi, Y.K. Zhou, M. Hashimoto, M.S. Kim, X.J. Li, S. Emura and S. Hasegawa, International Conference on Nanospintronics Design and Realization, Kyoto, Japan, May 24-28, 2004.

Optical properties of GaN-based magnetic semiconductors, *Y.K. Zhou, M.S. Kim, X.J. Li, S. Kimura, A. Kaneta, Y. Kawakami, Sg. Fujita, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, International Conference on Nanospintronics Design and Realization, Kyoto, Japan, May 24-28, 2004.

Magnetic, optical and transport properties of GaN-based ferromagnetic/nonmagnetic semiconductor heterostructures, *M.S. Kim, Y.K. Zhou, X.J. Li and H. Asahi, International Conference on Nanospintronics Design and Realization, Kyoto, Japan, May 24-28, 2004.

Raman scattering characterization of GaN-based spintronics materials, *H. Fukumura, N. Hasuike,

H. Harima, K. Kisoda, M. Hashimoto, Y.K. Zhou and H. Asahi, International Conference on Nanospintronics Design and Realization, Kyoto, Japan, May 24-28, 2004.

Gas source MBE growth of Tl-containing semiconductors and their application to temperature–insensitive wavelength laser diodes (Invited), *H. Asahi, H.J. Lee, A. Fujiwara, A. Imada, K. Mukai and S. Hasegawa, 16th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials, Kagoshima, Japan, May 31-June 4.

Reduced temperature dependence of refractive index in TlInGaAs by addition of Tl, A. Imada, A. Fujiwara, H.J. Lee, *T. Mukai, S. Hasegawa and H. Asahi, 16th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials, Kagoshima, Japan, May 31-June 4.

GaAs-InAs short-period superlattice/InP(411)A self-formed quantum dot light emitting diodes with 1.3-1.5 μm light emission, *T. Shimada, J. Mori, S. Hasegawa and H. Asahi, 16th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials, Kagoshima, Japan, May 31-June 4.

Photoluminescence emission from room temperature ferromagnetic semiconductor GaCrN, *H. Asahi, M. Hashimoto, H. Tanaka and S. Hasegawa, International Workshop on Nitride Semiconductors 2004, Pittsburgh, USA, July 19-23, 2004.

Electric field emission characteristics of GaN nanorods grown on Si substrates with native oxides, *T. Yamashita, S. Nishida, S. Hasegawa and H. Asahi, International Workshop on Nitride Semiconductors 2004, Pittsburgh, USA, July 19-23, 2004.

Magnetic, optical and transport properties of GaCrN-based ferromagnet/nonmagnet/ferromagnet trilayer structure, *M.S. Kim, Y.K. Zhou, S. Kimura, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, 13th International Conference on Molecular Beam Epitaxy, Edinburgh, UK, August 22-27, 2004.

GaN-based diluted magnetic semiconductors for spintronics (Invited), *H. Asahi, Y.K. Zhou, M.S. Kim, S. Emura, S. Shanthi, S. Kimura and S. Hasegawa, 31st International Symposium on Compound Semiconductors, Seoul, Korea, September 12-15, 2004.

Polycrystalline GaN for field electron emitter application (Invited), *S. Hasegawa, S. Nishida, T. Yamashita and H. Asahi, International Conference on Polycrystalline Semiconductors 2004, Potsdam, Germany, September 5-10, 2004.

Formation of local ferromagnetic area on GaAs by focused Mn ion beam implantation, *M. Kasai, J. Yanagisawa, H. Tanaka, S. Hasegawa, H. Asahi, K. Gamo, and Y. Akasaka, 14th International Conference on Ion Beam Modification of Materials, Monterey, California, USA, September 5 - 10, 2004.

Magnetoresistance in GaCrN-based ferromagnet/nonmagnet/ferromagnet trilayer structures, *Y.K. Zhou, M.S. Kim, H. Kimura, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, 13th Semiconducting and Insulating Materials Conference, Beijing, China, September 20-25, 2004.

Magnetic, electric and optical properties of AlN and GaN doped with rare-earth element Gd, *S.W. Choi, Y.K. Zhou, M.S. Kim, S. Kimura, S. Shanthi, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, 3rd Asian International Symposium on the Science of Engineering Ceramics, Osaka, Japan, October 31-November 3, 2004.

Optical properties of Cr-doped GaN/AlN quantum dots, *H. Munakata, S. Matsuno, S. Hasegawa and H. Asahi, 3rd Asian International Symposium on the Science of Engineering Ceramics, Osaka, Japan, October 31-November 3, 2004.

Emission spectra from AlN and GaN doped with rare earth elements, S. Emura, *S.W. Choi, S. Kimura, M.S. Kim, Y.K. Zhou, N. Teraguchi, A. Suzuki, A. Yanase, and H. Asahi, International Conference on Rare Earths in Nara, Nara, Japan, November 7-12, 2004.

Electron field emission from polycrystalline GaN nanorods (Invited), *S. Hasegawa and H. Asahi, 2004 Fall International Symposium on Crystal Growth and Devices, Seoul, Korea, November 10-13, 2004.

Evaluation of device configurations through different cross-sectional planes of 0.1 μm MOSFETs by scanning tunneling microscopy/spectroscopy, *S. Hasegawa, W. Doi, A. Yabuuchi and H. Asahi, 12th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, Izu-Atagawa, Shizuoka, December 9-11, 2004.

Luminescence properties of GaN and AlN doped by rare earth elements, *S. Emura, S.W. Choi, S. Kimura, S. Kobayashi, M.S. Kim, S. Shanthi, Y.K. Zhou, N. Teraguchi, A. Suzuki and H. Asahi, Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 -Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing-, Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Effect of chromium doping on the luminescence properties of GaCrN on sapphire, *S. Shanthi, M. Hashimoto, S. Kimura, Y. K. Zhou, S.W. Choi, M. S. Kim, S. Emura, S. Hasegawa and H. Asahi, Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 -Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing-, Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

Cross-sectional scanning tunneling microscopy study of 100 nm MOSFETs through the different cross sections, *W. Doi, A. Yabuuchi, S. Hasegawa and H. Asahi, Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004 -Advanced Characterization for Nanomaterials, Nanodevices and Nanoprocessing-, Osaka, Japan, December 6-7, 2004.

［ 国際会議の組織委員、国際雑誌の編集委員 ］

朝日　一	16th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials International Steering Committee member（国際諮問委員）
朝日　一	International Conference on Nanospintronics Design and Realization（組織委員）
朝日　一	International Workshop on Nitride Semiconductors（国際諮問委員）
朝日　一	12th International Colloquim on Scanning Probe Microscopy（運営委員、出版委員）
朝日　一	14th International Conference on Molecular Beam Epitaxy （組織委員会副委員長、プログラム委員長）
朝日　一	17th International Conference on Indium Phosphide and Related Materials （組織委員、プログラム委員）
朝日　一	SANKEN International Symposium on Scientific and Industrial Nano-Technology 2004 （組織委員、会場委員長）
朝日　一	Third International Symposium on 21st Century COE "Towards Creating New Industries Based on Inter-Nanoscience"（組織委員、広報・出版委員長）
朝日　一	International Workshop on Nitride Semiconductors（国際諮問委員）

朝日　一　　SpinTech III（組織委員）
朝日　一　　2005 International Conference on Solid State Devices and Materials（プログラム委員）
朝日　一　　Japan. J. Appl. Phys. （編集委員）
朝日　一　　Current Applied Physics（編集委員）
朝日　一　　J. of Materials Science: Materials in Electronics（編集委員）
朝日　一　　e-Journal of Surface Science and Nanotechnology（Advisary Board 委員）

[国内学会]

応用物理学会	22 件
電子材料シンポジウム	2 件
PASPS シンポジウム	3 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（A）（2）

周 逸凱	GaN ベースの透明強磁性半導体の創製に関する研究	2,600

基盤研究（B）（2）

朝日 一	多結晶窒化物半導体の電界放射電子源、可視蛍光体への応用に関する研究	4,200

[その他の競争的研究資金]

朝日　一	文部科学省書科学技術振興　ナノスピントロニクスのデザインと創製調整費（代表：笠井秀明）	18,717

オープンラボラトリー

管理室員　　田畑　仁（管理室長）、中嶋　英雄、谷澤　克行、八木　康史　各教授
技術担当研究員　　吉田　亮、法澤　公寛
事務補佐員　　長谷真奈美

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

今年度より新規利用者の募集をし、1 次募集で 17 グループ、2 次募集で 5 グループの利用が採択された。今年度利用があった合計 22 グループの一覧を以下に示す。

掛下　知行	教授	工学研究科
山本　雅彦	教授	工学研究科
佐々木　孝友	教授	工学研究科
森　勇介	助教授	工学研究科
吉野　勝美	教授	工学研究科
藤原　康文	教授	工学研究科
尾浦　憲治郎	教授	工学研究科
川合　知二	所長	産業科学研究所
川合　知二	所長	産業科学研究所
村杉　政一	客員助教授	産業科学研究所ナノテクノロジープロセスファウンドリー
増原　宏	教授	工学研究科
朝日　剛	助教授	工学研究科
河田　聡	教授	工学研究科
田中　拓男	特任助教授	フロンティア研究機構
山崎　義光	教授	医学系研究科
福住　俊一	教授	工学研究科
馬越　佑吉	機構長	ナノサイエンス・ナノテクノロジー研究推進機構
和田　健彦	助教授	工学研究科
桑畑　進	教授	工学研究科
明石　満	教授	工学研究科
中村　收	教授	生命機能研究科
福井　希一	教授	工学研究科

加速器量子ビーム実験室

実験室長・教授	磯山　悟朗（兼任）
室長補佐・教授	田川　精一（兼任）、真嶋　哲朗（兼任）、吉田　陽一（兼任）
助教授	山本　幸男（兼任）、加藤　龍好（兼任）、誉田　義英（兼任）、関　修平（兼任）、藤塚　守（兼任）、古澤　孝弘（兼任）
助手	池田　稔治（兼任）、木村　徳雄（兼任）、小林　一雄（兼任）、藤乗　幸子（兼任）、川井　清彦（兼任）、遠藤　政幸（兼任）、柏木　茂（兼任）、楊　金峰（兼任）、佐伯　昭紀（兼任）
技術職員	山本　保 、馬場　久美子
事務補佐員	川口　奈央子

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

平成 14 年度後期に開始したＬバンドライナックの大規模改修とＲＦ電子銃ライナックの建設に引き続き、これらの加速器の改良、電子ビームの調整や性能テストを行なってきた。平成 16 年前期には、これらの加速器の立上げ調整は完了し、加速器の使用に必要な放射性同位元素等の使用にかかわる変更申請が認められた後、施設検査にも合格して、加速器の利用を開始した。Ｌバンド電子ライナックの共同利用を後期から再開した。

・Ｌバンドライナック

本年度は新しい主 RF 発信器とタイミングシステムを導入して、電子ビームの調整を更に進めた。立上げ調整で最後まで残った問題は、原因が不明の加速用マイクロ波の微細で不規則な変動であるが、新しい主 RF 発信器を使用すると、その不安定性はなくなり、ビームの安定化が実現できた。Ｌバンドライナックの大規模改修により、電子ビームの強度変動を改造前の約 10 分の 1 に抑えることが出来た。また、コンピューターによる機器制御が可能になったことにより、1 日の中で運転モードを変更する試みも行われた。更にマルチバンチモードと呼ぶ運転モードを新たに取り入れた。10 月から開始した共同利用では、22 のテーマに約 100 日のマシーンタイムを配分した。

・Ｓバンドライナック

Ｓバンドライナックは、従来から陽電子生成に利用している。長期間の停止の後、ＲＦ電子銃ライナックを設置するために変更した部分を含めてＳバンドライナックの再立上げを行なった。導波管で放電が頻発したため、これを改良して、陽電子ビームの生成が可能となった。

・RF 電子銃ライナック

前年度設置した RF 電子銃ライナックのビームテストを行ない、パルス幅が 100 フェムト秒以下の電子ビームの生成に成功した。また、フォトカソードの 2 点に時間差をつけてレーザーを照射し、2 本の電子ビームを生成することに成功した。

・コバルト 60 ガンマ線照射装置

本研究所をはじめ、理学・工学研究科ならびに微生物病研究所などの研究者に広く利用された。利用件数、利用時間については昨年とほぼ同じような状況であった。点検整備・補修に関しても例年通り夏季停止期間中におこなった。

電子顕微鏡室

室長・教授　　弘津　禎彦（兼任）

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、センター内はもちろん所内各研究部門のナノテクノロジー研究をナノレベルでの形態観察および構造解析の立場から支援するものである。

現在、300 kV 電界放射型透過電子顕微鏡(JEM-3000F)、走査電子顕微鏡（S-2250N）などが稼働しており、これらの装置は各種試料の原子レベルでの観察、ナノメートルサイズの極微小部の電子回折による結晶構造解析、ナノメートルサイズの部位の元素分析およびバルク試料の表面組織観察などに有効に利用されている。特に、平成 10 年より稼働を始めた 300 kV 透過電子顕微鏡（上写真）の最高分解能は 0.17 ナノメートルであり、本装置搭載のエネルギー分散型 X 線検出器による組成分析はホウ素以上で可能である。

b ）　成果

2004 年に 300kV 電子顕微鏡を利用した研究室は 6 研究室であり、半導体、セラミックス、金属、高分子分野にまたがっている。これらの総利用件数は 268 件であった。

電子プロセス実験室

室長・教授	朝日　一（兼任）
助教授	長谷川　繁彦（兼任）
助教授	松本　卓也（兼任）
助教授	吉信　達夫（兼任）
助手	周　逸凱（兼任）
助手	前橋　兼三（兼任）

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、フォトリソグラフィ装置、電子線描画装置、電極形成用高真空蒸着装置、電子ビーム蒸着装置、スパッタ薄膜形成装置、反応性イオンエッチング装置、劈開機、配線用ワイヤーボンダー装置、二結晶Ｘ線回析装置、原子間力顕微鏡、解析用パーソナルコンピュータが設置してある。

当実験室は、ナノテクノロジーセンターおよび関連研究室での各種材料に対する構造解析、表面解析、電極形成の実験研究や、これらをもとに各種材料の電気的性質等の測定、光素子、電子素子、分子素子などの試作等に寄与している。

材料解析センター

センター長・教授　　笹井　宏明（併任）
助教授　　澤田　正實

a ）　概要

材料解析センターは、材料解析のための各種の分析および測定を行い、かつ、その周辺技術に関する研究を行うことを目的としている。

産業科学研究所内研究部門のプロジェクト研究、基盤研究、および一般基礎研究などの遂行にあたり、当センター所属の分光分析機器、組成分析機器、状態分析機器類を用いる各種材料のスペクトル測定、解析、評価などを通じて強力な研究支援活動を行っている。

一方、これら分析装置類を駆使して、(1)新しい材料解析法の開発と応用に関する研究、(2)新規機能性物質の構造解析などの研究活動を行っている。

b ）　成果

微量試料量、高感度検出を最大の特徴とするマススペクトロメトリー(MS)は、本来アキラルな方法論であって、キラル／キラリティーの問題には無力であると古くから考えられてきた。われわれは、この当初は不可能と考えられていた MS を主たる方法論として用い、ホストーゲストキラル認識現象の検出とその定量的応用に取り組んでいる。これまで困難とされてきたマススペクトロメトリーによるキラル認識能の決定や ee 値の決定が、同位体標識(EL)法とホストーゲストコンプレクセーションをうまく組み合わせるわれわれの方法を駆使することにより、初めて可能になり、MS の適用範囲は（１）キラル化合物の定量的機能評価や（２）エナンチオマー混合物の定量的キラル分析の分野に大きく広がってきた。

・新しい材料解析法の開発と応用に関する研究

エレクトロスプレーイオン化法(ESI)は質量分析法において現在最もひろく用いられているソフトイオン化法の一つであり、非共有結合型会合体を容易に生成することができる。したがって、分子間相互作用を介して起こる分子認識の検出に力を発揮することが期待される。われわれは ESIMS を用いて、キラルカルボン酸の定量的キラル分析の可能性を検討した。

キラルカルボン酸のエナンチオマー過剰度（ee）決定のための ESI マススペクトロメトリーは、HPLC 法に比べて高速、高感度であり、それ故汎用性の高い方法論の確立が待たれている。われわれは新しい「ホスト・メタル・ゲストコンプレクセーションシステム」を開発し、カルボン酸類の定量的キラル分析（ee 決定）へ応用することを目的とした。

１：１ホストペアー（H_{RR} および H_{SS-dn}）には不斉合成触媒に多用される(R,R)-Ph_2-Pybox(**1**)とそのエナンチオマーの重水素標識体(S,S)-Ph_2-Pybox-d_4(**2**)を用いた。

メタル（M）にはランタニドイオン（La^{3+}）、ゲスト（G）カルボン酸には 2’-メトキシ-2-(1-ナフチル)プロピオン酸（MNPA）を用いて、EL-ホスト法を実施した。アセトニトリル／メタノール（９／１）中、AccuTOF 装置で ESI マススペクトルを測定し、重水素ラベル数 n=4 だけ離れた２本の［ホスト・メタル$^{+3}$・ゲスト$^{-1}$・(NO_3^{-1})］$^{+1}$正イオンピークの強度比で IRIS 値を決定した。

Ph_2-Pybox(**1**,**2**)系ホストペアーを用いる MNPA カルボン酸ゲストの EL-ホスト法の場合、Ie=(IRIS－1)/(IRIS＋1)で定義される Ie 値と ee 値との直線相関は、R^2=0.9994(n=7)と極めてすぐれた直線関係が得られた。従って、ここでの「ホスト・メタル・ゲスト・システム」を用いた ESI マススペクトロメトリーで、キラル MNPA カルボン酸のキラル分析（ee 決定）が定量レベル（±2%）で可能なことを明らかにできた。

［ 原著論文 ］

Depression of the Apparent Chiral Recognition Ability Obtained in the Host-Guest Complexation

Systems by Electrospray and Nano-Electrospray Ionization Mass Spectrometry, M. Sawada, Y. Takai, H. Yamada, M. Yoshikawa, R. Arakawa, H. Tabuchi, M. Takada, J. Tanaka, M. Shizuma, H. Yamaoka, K. Hirose, K. Fukuda, Y. Tobe: Eur. J. Mass Spectrom., 10 (2004) 27-37.

ESI マススペクトロメトリーによるカルボン酸類のキラル認識、澤田正實、野村幸代、宮本義貴、江川奈都、静間基博、山田等、高井嘉雄、田中寿一、山岡寛史： J. Mass Spectrom. Soc. Jp., 52 (2004), 154-157.

ESI および FAB マススペクトロメトリーを用いるアミン類およびジペプチド類のエナンチオマー過剰度の決定、澤田正實、亀井亮宏、上野弘高、山田等、高井嘉雄、静間基博、山岡寛史、田中寿一、荒川隆一： J. Mass Spectrom. Soc. Jp., 52(2004), 289-294.

［ 解説、総説 ］

Structure Determination of Organic Compounds: Chiral Compounds, Masami Sawada, "The Encyclopedia of Mass Spectrometry", Vol. 4, ed. by N. M. M. Nibbering, Elsevier, 2004, Part H06, 740-748.

新刊紹介　「ノーベル賞の質量分析法で病気を診る」－清水章著、澤田正實: J. Mass Spectrom. Soc. Jp., 52, 55(2004).

［ 国際会議 ］

Quantitative Chiral Recognition in Host-Guest Complexations by Mass Spectrometry (Poster), *M. Sawada, Y. Takai, 2nd 21st Century COE Program: 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science, Osaka, Japan, Jan.13-14, 2004

Inclusion of Permethylated Inulin with Alkali Metal Ions (Poster), *Y. Takai, M. Sawada, 2nd 21st Century COE Program: 7th SANKEN International Symposium on Hybridization of Chemistry, Biology, and Material Science, Osaka, Japan, Jan.13-14, 2004

Quantitative Chiral Recognition in Host-Guest Complexations using Mass Spectrometry Coupled with the Enantiomer-Labeled Method (Invited), *M. Sawada, Y. Takai, M. Shizuma, H. Yamaoka, International Symposium on "Stereodynamics of Chemical Reactions 2004", Osaka, Japan, Nov.28-Dec.3, 2004

Chiral Recognition of Amines and Carboxylic Acids by Mass Spectrometry (Poster), M. Sawada, *Y. Takai, M.Shizuma, H. Yamaoka, 8th SANKEN International Symposium & 3rd International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology, Osaka, Japan, Dec.6-7, 2004

［ 国内学会 ］

日本化学会	4 件
質量分析総合討論会	3 件
基礎有機化学連合討論会	1 件
その他	1 件

［国際会議の組織委員、外国雑誌の編集委員］

澤田正實　　European Journal of Mass Spectrometry　（編集委員）

［ 研究助成金］ 単位：千円

委任経理金	材料解析センター研究助成	200

プロセスファンドリー

主任者、教授	川合　知二
室長、客員助教授	村杉　政一
客員助教授	河原　敏男（平成 16 年 7 月 1 日～）
支援研究員	松井　良憲
支援研究員	岡本　一将
支援研究員	大野　隆裕
支援研究員	神吉　輝夫（平成 16 年 4 月 1 日～平成 16 年 6 月 30 日）
事務補佐員	圓見　恵子（平成 16 年 4 月 1 日～）

a ）　概要

ナノテクノロジー総合支援プロジェクトの一環として設立した当プロセスファウンドリーは、ナノテクノロジーをキーとした商品化や事業化が早期に叶うようにするため、個別の研究機関や研究開発プロジェクトでは整備の難しい大型・特殊な施設・設備とその利用に関する高度な技術などを学内外研究者が活用できる環境を整え、プロジェクト発足後 3 年度目の平成 16 年度は合計 23 件の支援を効率的に遂行してきた。

具体的な推進目標として掲げてきたことは、ノテクノロジー研究に携わる産学官の学内外研究者に対して施設・設備の利用の機会を提供し、またこれらの施設・設備を活用した極微細加工や観測・評価等の高度な技術支援を行ない、総合的なナノテクノロジー追究のための支援を実施することである。

これまで産業科学研究所のナノテクノロジー研究で培われてきたナノ薄膜形成技術を核として、酸化物・有機物をはじめとする多様な物質のナノ薄膜形成とその加工技術が、この支援の中核に位置づけられているところである。そこで、ナノ薄膜の形成およびそれらの極微加工まで視野に入れたナノテクノロジープロセスを一ヶ所で可能な当プロセスファウンドリーを活かし、国内の学内外でのナノテク研究をより一層支援できるよう以下の３項目に取り組んできている。

（１）有機・無機薄膜形成支援
有機物、無機物、融点の高い材料や電極形成のための金属材料等を対象として、各種材料また各用途に最適な汎用性の高いシステムを用意し提供する。

（２）有機・無機薄膜をデバイス化するための極微加工支援
酸化物薄膜や有機薄膜の機能を引き出すために必要な、基板上に極細パターン形成を行う装置を充実させ、薄膜材料の基礎物性から応用デバイスの観察や評価まで、広い範囲の要求に対応できるシステムを用意し提供する。

（３）有機・無機薄膜評価支援
薄膜作製とその機能評価を容易にするための装置を充実させ、希望する多種多様な実験を行うときに共通して必要となる機器も含め、要請に応えた評価システムを用意し提供する。

b ）成果

平成 16 年度を振り返っての主な成果として言えることは、商品化や事業化一歩手前のところまで漕ぎ着けている支援研究が数件出てきていることである。また、学内外に開放した支援組織として認知も進み、毎年度ナノテク研究者の利用が安定してきている。当プロセスファウンドリーの支援による成果の芽が、日々育まれてきていると実感している。

平成 16 年度の成果について、下記 3 項目にまとめ補足説明する。

<u>*プロセスファウンドリーの環境整備</u>

これまで本学産業科学研究所内の７ヶ所に分散していた各種支援装置を、新たに竣工したナノテクノロジー総合研究棟の４階クリーンルームと５階オープンラボスペースの２ヶ所に移設し集中した。研究プロセスに応じた①ナノ薄膜形成の装置群、②微細加工の装置群を効率よく共同利用でき、研究のため

の環境を今までより充実することができた。

*デスバレーの解消　－広範囲なニーズに応える－

基礎研究の枠を超えたナノテク技術開発を推進するための支援に腐心してきたが、共同研究のための支援件数を装置利用と技術代行の合計件数が今年度初めて超えた。

当プロセスファウンドリーを活用して支援依頼元が意図するものを作成できるという証であり、今後ますます商品化や事業化につながる機能性先端ナノテク材料・工法の研究や開発を促進できるものと期待している。

*トップダウン型／ボトムアップ型ナノテクノロジーの融合

トップダウンとボトムアップの融合したプロセス開発は、今後最も重要なナノテク研究の結実の一つとしてクローズアップしてくる。トップダウン型のナノテクノロジー研究分野でも最先端の加工技術を提供するだけに留まらず、トップダウン型とボトムアップ型との融合を志向するナノテクノロジー研究分野が増えるものと大きく期待している。

［ 原著論文 ］

Coordination Number Constraint Models for Hydrogenerated Amorphous Si Deposited by Catalytic Chemical Vapour Deposition, T. Kawahara, N. Tabuchi, T. Arai, Y. Sato, J. Morimoto and H. Matsumura: Journal of Physics: CONDENSED MATTER, 17(2005) S103-S110.

157-nm-Induced Resist Outgassing Studied by Film Thickness Loss and In-Situ Quadrupole Mass Spectrometry, Y. Matsui, S. Seki, S. Tagawa, S. Kishimura and M. Sasago: J. Photopolym. Sci. Technol., 17 (2004) 671.

Photoacourstic Spectra from Co doped ZnO with Different Grain or Cluster Sizes, Y. Inoue, Y. Miyauchi, A. Kimura A, T. Kawahara, Y. Okamoto and J. Morimoto: Jpn. J. Appl. Phys., 43 (2004) 2936-2939.

Electron Dynamics in Chemically Amplified Resists, T. Kozawa, H. Yamamoto, A. Nakano, A. Saeki, K. Okamoto and S. Tagawa: J. Photopolym. Sci. Technol., 17 (2004) 449-452.

Estimation of Schottky to Porous Si by Photoacourstic Spectroscopy, T. Kawahara, S. Fukunai, M. Okamoto, Y. Inoue, K. Tahira, Y. Okamoto and J. Morimoto: Jpn. J. Appl. Phys., 43 (2004) 2932-2935.

Inhomogeneous Distribution of Crosslinks in Ion Tracks in Polystylene and Polysilanes, S. Seki, S. Tsukuda, K. Maeda, Y. Matsui, A. Saeki and S. Tagawa: Phys. Rev., 70 (2004) B144203-144210.

Development of Structual Analysis Method Based on Reverse Monte Carlo Simulation and Its Application to Catalytic Chemical Vapor Deposition Hydrogenated Amorphous Silicon, N. Tabuchi, T. Kawahara, T. Arai, J. Morimoto and H. Matsumura: Jpn. J. Appl. Phys., 43 (2004) 6873-6879.

Formation of Benzene Trimer Radical Cation in g-irradiated Low Temperature 2-methylpentane Matrices, M. Todo, K. Okamoto, A. Seki and A. Tagawa: Chem. Phys. Lett., 399 (2004) 378-383.

Substrate Dependence of Photoacourstic Spectra on 3,4,9 10-Perylenetracarboxylic Dianhydride(PTCDA) Film, M. Okamoto, Y. Inoue, K. Yoshihara, T. Kawahara and J. Morimoto: IEICE Trans. Electron, E87-C (2004) 2108-2111.

Dependence of Acid Generation Efficiency on the Protection Ratio of Hydroxyl Groups in Chemically Amplified Electron Beam, X-ray and EUV Resists., H. Yamamoto, T. Kozawa, A. Nakano, K. Okamoto, S. Tagawa, T. Ando, M. Sato and H. Komano: J. Vac. Sci. Technol. B, 22 (2004) 3522-3524.

Polymer Screening Method for Chemically Amplified Electron Beam and X-ray Resists, H. Yamamoto, A. Nakano, K. Okamoto, T. Kozawa and S. Tagawa: Jpn. J. Appl. Phys., 43 (2004) 3971-3973.

Proton Dynamics in Chemically Amplified Electron Beam Resists, H. Yamamoto, A. Nakano, A. Saeki, K. Okamoto, T. Kozawa, T. Tagawa, T. Ando, M. Sato and H. Komano: Jpn. J. Appl. Phys., 43 (2004) 848-850.

Proton Dynamics in Chemically Amplified Electron Beam Resists., H. Yamamoto, A. Nakano, A. Saeki, K. Okamoto, T. Kozawa, S. Tagawa, T. Ando, M. Sato and H. Komano: Jpn. J. Appl. Phys., 43 (2004) L848-L850.

Pulse Radiolysis Study on Proton and Charge Transfer Reactions in Solid Poly (Methyl Methacrylate), A. Nakano, K. Okamoto, T. Kozawa and S. Tagawa: Jpn. J. Appl. Phys., 43 (2004) 4363-4367.

Effects of Ester Groups on Proton Generation and Diffusion in Polymethacrylate Matrices, A. Nakano, K. Okamoto, T. Kozawa and S. Tagawa: Jpn. J. Appl. Phys., 43 (2004) 3981-3983.

The Study for the Annealing Effects on the Si and Ge Amorphous Thin film by Using Photoacourstic Spectroscopy, A. Miyata, Y. Okamoto, H. Takiguchi, T. Kawahara and J. Morimoto: Transactions of the MRS-J, 29 (2004) 2801-2804.

Thermoelectric properties of amorphous Ge/Au and Si/Au thin films , Miyata A, Abe M, Okamoto Y, Kawahara T, Morimoto J and Inoue N: 電学論 A, 124 (2004) 307-311.

［ 解説、総説、紀要 ］

Substrate Temperature and Anneal Cycle Dependence of the Optical Properties for Thermoelectric Materials Si-Ge-Au Thin Films, A. Miyata, K. Morita, Y. Okamoto, T. Kawahara and J. Morimoto: Memories of the National Defense Academy, Japan, 44(2004) 15-20.

Size Estimation of the Calcined $Zn_{1-X}Co_XO$(x=0.03)Powders by Photoacoustic Spectroscopy, T. Kwahara, Y. Miyauchi, A. Kimura, Y. Inoue, Y. Okamoto and J. Morimoto: Memories of the National Defense Academy, Japan, 44(2004) 1-5.

Studies of Deep Levels in $Al_{0.75}Ga_{0.25}As$: Sn by Isothermal Capacitance Transient Spectroscopy, Y. Inoue, K. Yoneda, T. Kawahara, Y. Okamoto and J. Morimoto: Memories of the National Defense Academy, Japan, 44(2004) 7-13.

光音響分光法によるポーラスシリコンのショートカットキー電極の評価, 河原敏男、岡本真幸、守本純: 超音波テクノ, 3-4(2005)77-82.

光音響分光法による焼成プロセスの評価-酸化物セラミクスCoドープ酸化亜鉛への適応, 井上善博、守本純、河原敏男,超音波テクノ: 16(2004) 16-20.

［ 著書 ］

Inductively Coupled Plasma Etching of GaN and the Micro Photoluminescence, T. Kawahara, F. Fälth, L. Xinyu, R. Nunes, Tg.Anderson, V., H.Zirath, Pp.Paskov and Po. Holts, Eds.Ka. Khor, Y. Watanabe, K. Komeya and H. Kimura: Materials Processing for Properities and Performance (MP3), Institute of materials(East Asia), Yokohama, 2 (2004) 548-555.

［ 国際会議 ］

157nm induced resist outgassing studued by film thickness loss and *in-sitsu* quadrupole mass spectrometer (oral), *Y. Matsui, S. Saki, S. Tagawa, S. Kishimura and M. Sasago. The 21st conference of photopolymer science and technology/The International symposium 2004 materals & processes for advanced microlithography and nanotechnology, Chiba, Japan, Jun. 22-25, 2004.

Sub-picosecond pulse radiolysis in benzane derivatives (poster), *K. Okamoto, A. Saeki, T. Kozawa, S. Tagawa. Gordon Research Conferences (2004 GRC on Radiation Chemistry), Waterville, USA, Jun. 20-25, 2004.

Activities of the Support for the Nanotechnology in Osaka University (poster), *M. Murasugi, T. Kawahara, T. Ohno, Y. Matsui, K. Okamoto, and T. Kawai. 8th Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, Dec. 6- 7, 2004.

Fabrication of Ferroelectric $Ba(Zr_xTi_{1-x})O_3$ Superlattices with Different Symmetry by Pulse Laser Deposition (poster), *T. Kawahara, T. Ohno, M. Murasugi, H. Tabata, T. Kawai, and T. Hino. 8th Sanken International Symposium on Scientific and Industrial Nanotechnology 2004, Osaka, Japan, Dec. 6-7, 2004.

Tunneling spectroscopy analysis for the observation of the HEX- fluorescent dye attached DNA (poster), *T. Kawahara, T. Takahashi, H. Tanaka and T. Kawai. The 12th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy, Sizuoka, Japan, Dec. 9- 11, 2004.

［ 国内学会 ］

放射線化学会	2 件
応用物理学会	4 件

［ 受託研究 ］

単位：千円

川合　知二	文部科学省（新世紀重点研究創生プラン; RR2002）	高度な極微細加工や観測・評価等の総合的な支援	94,000

〔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　　真嶋　哲朗
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

本研究所が設置されると同時に、その研究機能を十分に発揮させる目的で、金木工場とガラス工場が付設された。その後、昭和５７年（１９８２）に産研技術室の発足に伴い、金属工作室とガラス工作室の２つの工作室をもつ試作室となった。本研究所の研究分野は広範囲であり、実験装置類は多種多様で、かつ斬新なものが多い。これらの研究遂行にあたり当試作室は重要な役割を果たしている。

金属工作室は、主に各種金属を用いる理工学実験装置の設計・試作および実験器具の製作を行っている。現在は超高真空・極低温等の雰囲気中での実験装置の依頼が多く、これらの要請に応じるために、設計の段階から研究者と綿密な連携を保ちながら、実験目的に適応した装置類を製作している。平成 14 年度には高精度門型マシニングセンタが導入され、研究者からの高度な依頼にも対応できるようになった。さらに共同利用工作室（オープンショップ）も併設しており、適時研究者への技術指導も行われている。

ガラス工作室は、主に各種理化学ガラス等を材料とする実験器具ならびに装置類の設計と試作を行なっている。研究者が必要とする実験目的に適応した装置類、さらに、従来の器具類も機能性を高め、使いやすさと安全性を追求した装置類を提供できるよう研鑽し技術の確立を図っている。また、現在では各種セラミックス材料等の加工も要求され、そのための設備の充実も図っている。

b ）　活動報告

試作室は昨年新たな取り組みとして、いちょう祭の施設公開および試作室利用者講習を行った。

いちょう祭では、金属工作室はマシニングセンタの自動運転や工作機械類を、また展示コーナーでは実験装置類を公開した。ガラス工作室はガラス旋盤および実験器具類の他、科学にちなんだガラスのオブジェを展示し、ハンドワーク加工の実演および体験を実施した。

また、試作室利用者講習を６月に開催し、安全講習と実技指導のガイダンスを行った。試作室利用者講習参加者は引き続き後日数回、実技の個人指導に参加した。この試作室利用者講習は今後年２回、春と秋に実施予定している。

[年間依頼処理件数]

金属工作室　１５０件（前年度１５８件）　ガラス工作室　１５５件（前年度１５９件）

[オープンショップ利用件数]

金属工作室　６０件　　ガラス工作室　５０件

[いちょう祭見学者数]

金属工作室　約６５名　　ガラス工作室　約１６０名（ガラス細工体験１２０名）

[平成 16 年度春期試作室利用者講習受講者数]

金属工作室　１０名　　ガラス工作室　２名

[実技指導受講者数]

金属工作室　延べ５名　　ガラス工作室　延べ３名

情報ネットワーク室

室長（兼任）　　教授　　山口　明人

a ）　概要

情報ネットワーク室は、近年の研究環境における情報ネットワークの急速な普及と重要性を鑑み、これまでのボランティアベースの所内情報ネットワークの運営を組織化する為に、1999 年 3 月に発足した。所内情報ネットワークは、1980 年代後半に知能システム科学大部門の研究室が共同で構築し、1994 年の ODINS(Osaka University Information Network System)の運用開始に伴い研究所全体規模で整備された。現在では、産業科学研究所に携わる人々に情報の発信・受信の場を提供している。情報ネットワーク室では室長のもと、技術室より派遣された技官により産業科学研究所ネットワークの安定運用はもとよりネットワークポリシーの策定、整備における技術的作業をはじめ、利用者・研究者のサポート・教育、ホームページの更新・作成による広報支援等を行っている。また、産業科学研究所の於ける各種シンポジウム、講演会等において全世界へ向けてインターネットライブを提供しているかたわら、研究所入館管理システムの運用・管理も行っている。

b ）　成果

［インターネットライブ］

・第 60 回　産研学術講演会　「学際融合領域研究から新産業創成へ」(04 年 11 月)

・ 8th SANKEN International Symposium「Advanced Characterization for Nano-materials, Nano-devices and Nano-processing」(04 年 12 月)

放射性同位元素実験室

室長（兼任）教授　　谷澤　克行

a ）　概要

本実験室は、放射性同位元素のうち、非密封の ^{3}H, ^{14}C, ^{32}P, ^{35}S を含む物質を取り扱う実験のために設置されたものである。本実験室では、上記の元素で標識された化合物の合成や、標識化合物を用いた生化学的、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。主として生体応答科学研究部門の教職員や学生（放射性同位元素取扱教育訓練受講者）が年間を通して利用しており、放射線障害防護規定に則した維持管理が行われている。

b ）　成果

放射性同位元素実験室を使用して得られた研究の成果は各研究室の頁にまとめられている。

図書室

室長（兼任）教授　　八木　康史
事務官　　古田　泰子

a ）概要

本図書室は、研究用図書室として専門図書のみを所蔵している。現在、管理棟二階に開架図書室、第二閲覧室、図書作業室が設けられ、研究棟一階に第二書庫が設けられている。図書、雑誌の発注、受入及び文献の所在調査や照会、複写の申し込みや受付業務、図書館間相互貸借を行っている。又、利用案内、受入れ図書などをホームページ（http://www.sanken.osaka-u.ac.jp/labs/lib-web/）に掲示している。

【蔵書数】	和文図書　１２，５４９冊	和雑誌　２９２種	新聞　５種
	欧文図書　４６，９４１冊	洋雑誌　９７９種	

（平成１７年 ４月１日現在）

技術室

	室　長	山田　等
工作班	班　長	角一　道明
	技術専門職員	小川　紀之
	技術専門職員	大西　政義
機械回路工作掛	掛　長	山本　保
ガラス工作掛	掛　長	松川　博昭
計測班	班　長	石橋　武
	技術専門職員	馬場　久美子
計測・情報システム掛	掛　長	田中　高紀
	掛　員	相原　千尋
分析・データ処理掛	掛　長	谷畑　公昭
	掛　員	松崎　剛

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。技術室長は技術室を統括すると共に、材料解析センターにおいて業務を行ってきた。工作班班長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及び機械回路工作掛所属技術職員は、産業科学ナノテクノロジーセンター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及びガラス工作掛所属技術職員は、試作室のガラス工作室において業務を行ってきた。計測班班長は計測班を統括すると共に、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及び分析・データ処理掛所属技術職員は、産業科学ナノテクノロジーセンター及び材料解析センターにおいて業務を行ってきた。計測・情報システム掛所属技術職員は、材料解析センター及び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、本研究所に於ける研究を力強く支援している。

技術・知識の向上のため、技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も１７回目を数え、「技術室報告」No.１７(２００４)を発刊した。これらにより得られた技術・知識は、教官、研究生等に対してそれぞれの専門的技術指導等で成果を上げている。さらに本年より当研究所の新入学生を対象とした安全教育にも取り組み、技術室主催の安全講習会を６月に開催した。

b ）　成果

（技術室刊行物）

技術室報告　Ｎｏ．１７（２００４）

－報告題目、報告者－

○シンポジウムや国際会議等に於ける支援業務について

計測班　　相原　千尋

○高真空蒸着装置を用いた光学器具の試作

工作班　　○大西　政義、計測班　　石橋　武

○微細光導波路の製作について

工作班　　松川　博昭

○断面観察用薄膜試料(透過電子顕微鏡用)作製のコツ『接着剤編』

計測班　　石橋　武

（技術研究会、学会等の参加、発表）
・ＡＦＭのトレーニングセミナー受講（日本ビーコ）－大阪 （０４，４月）
・第 52 回質量分析総合討論会 －名古屋　（０４，６月）・・・ポスター発表
・熊本大学理学部技術交流 －熊本（０４，６月）
・ＳＰＭセミナー－大阪　（０４，７月）
・日本質量分析学会「第３１回ＢＭＳコンファレンス」－福井　（０４，７月）
・大阪大学教養研修（単位認定試験受験）－神戸大学　（０４，７月・０５，１月）
・日立ナノテクフォーラム－大阪　（０４，７月）
・第 29 回リニアック技術研究会（日本大学）－千葉（０４，８月）
・AutodeskＣＡＤセミナー受講（リコー関西株式会社）－大阪　（０４，９月・１２月）
・ＡＮＳＹＳセミナー（サイバネットシステム株式会社西日本支社）－大阪　（０４，９月）
・２００４年度機器・分析技術研究会－佐賀大学　（０４，９月）・・・口頭発表
・ＥＤＡＸユーザーズスクール－大阪　（０４，１１月）
・オートデスクカレッジ 2004（晴海トリトンスクエア）－東京　（０４，１２月）
・日本放射線安全管理学会（第３回学術大会・北海道大学）－札幌（０４，１２月）・・・ポスター発表
・AutoCAD スペシャルセミナー－大阪　（０５，３月）
・平成１６年度　大阪大学総合技術研究会－大阪　（０５，３月）・・・口頭発表
・第１１回国立大学附置研究所技術室長会議（京大・原子炉）－大阪 （０５，３月）
・「新産業創造指向インターナノサイエンス」国際シンポジウム－滋賀県 （０５，３月）
・東北大学多元物質科学研究所技術交流－仙台　（０５，３月）

（視察、研修等による技術室への来訪者）
・東北大学多元物質科学研究所技術室長－技術室報告会への招待講演（０４，１２月）

事務部　（平成１７年３月３０日現在）

		（部長）	田部　信重
総務課		（課長）	廣橋　利夫
		（専門職員）	佐藤　正子
	庶務掛	（掛長）	松田　健治
		（事務員）	和崎　英里
		（事務員）	俊成　謙介
		（事務員）	林　史晃（文部科学省研修生）
		（事務補佐員）	島村　和子
		（事務補佐員）	長谷川　尚子
		（事務補佐員）	甲斐　香
		（事務補佐員）	北浦　恵美子
		（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）	松浦　光雄
		（専門職員）	今村　康雄
	経理掛	（掛長）	周防　孝
		（主任）	花木　信夫
		（事務員）	奥田　慎一
		（事務補佐員）	藤士　啓子
		（事務補佐員）	笹田　由美
		（事務補佐員）	清水　実佐子
	研究助成掛	（掛長）	川口　勝
		（主任）	中原　洋一
		（主任）	吉田　寛仁
		（事務補佐員）	久保　美里
		（事務補佐員）	寺田　久美子
		（事務補佐員）	長岡　美和

平成１７年　８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