研究者の報告

浅井朋彦 ナノ物質・ナノデバイス班
自己組織化磁化プラズモイドの制御と応用

淺田泰男 エネルギー班
光合成細菌，*Rhodopseudomonas palustris* No.7 によるフェニルケトン類の不斉還元

伊掛浩輝 超分子・自己組織班
バイオポリマーとしてのポリ乳酸フィルムの材料技術分野への高度利用

石田浩 量子理論・計算班
動的平均場理論による強相関界面の電子構造

伊藤彰義，塚本新 情報班，超分子・自己組織班
ナノ構造自己組織化基板と超高密度情報記録媒体

井上修一郎 情報班
量子中継の実現を目指した要素技術の開発

岩田展幸 ナノ物質・ナノデバイス班
ナノ物質を基盤とする光・量子技術の極限追求

大月穣 超分子・自己組織班，エネルギー班
自己集合超分子系の開拓と，エネルギー，医療，情報技術への応用

大貫進一郎 量子理論・計算班
電磁界シミュレーションによるナノスケールデバイスの設計

桑本剛 情報班
原子気体を用いた量子メモリの実現に向けた実験研究

越永従道 医療班
PI ポリアミドおよびナノ構造を用いた小児固形腫瘍に対する新規抗癌薬剤の開発

佐甲徳栄 量子理論・計算班
ヘリウム様原子におけるフント則の起源：低スピン状態における共役フェルミ孔の存在

鈴木薫 ナノ物質・ナノデバイス班
広バンドギャップ半導体ナノロッドデバイスの作成

高野良紀 ナノ物質・ナノデバイス班
層状構造を持つ鉄系超伝導体の超伝導機構解明と新超伝導物質探索

茶圓茂，東條正 ナノ物質・ナノデバイス班
バイオナノマシンの１分子イメージング

塚本新，伊藤彰義　情報班，超分子・自己組織班
光誘起超高速磁化反転と超高速情報記録

中川活二　情報班
近接場アンテナを用いた熱アシスト磁気記録

西宮伸幸　エネルギー班
水素吸蔵合金の複合材料化と光とのかかわり

羽柴秀臣　量子情報班，ナノ物質・ナノデバイス班
ナノサイズ半導体の単一光子単一電子素子の探求、量子情報技術、エネルギーへの応用

橋本拓也　エネルギー班
ナノプロセスによる中低温作動固体酸化物型燃料電池材料の合成

福田昇　医療班
1. ゲノム化学に基づく PI ポリアミドの創薬開発
2. ヒト iPS 細胞のヒト TGF-β1 に対する PI ポリアミドによる誘導
3. 原発性アルドステロン症の分子イメージング開発

藤川和男　量子理論・計算班

藤原恭子，永瀬浩喜　医療班
化学、生物学、物理学の融合による新規癌治療戦略

松下祥子　超分子・自己組織班，エネルギー班
自己集積・自己組織化現象を利用したデバイス作製の試み

松本宜明，青山隆彦　医療班
光線力学治療化合物の薬物体内動態／薬効モデリング

望月章介　ナノ物質・ナノデバイス班
金属酸化物の紫外レーザー光誘起現象

山﨑恒樹　量子理論・計算班
中間層に任意の不均質誘電体構造を持つ誘電体導波路の伝搬 特性

自己組織化磁化プラズモイドの制御と応用

浅井朋彦
ナノ物質・ナノデバイス班

内部電流により閉じ込め配位を形成する自己組織化プラズモイドは，温度・密度などのパラメータ領域の広さやその制御の柔軟性から幅広い応用が期待される。本研究では，汎用的に利用可能なプラズマ源を開発し，高速製膜や極端紫外光源への応用の可能性を示すとともに，その発展的な応用について検討を進めている。

１．磁化同軸ガンを応用した成膜法の開発

イオンビームアシスト蒸着装置などを用いた真空蒸着など，極めて方法が限定される Ti-Fe 系薄膜の生成などへの応用が期待される磁化同軸プラズマガンについて、装置開発およびその特性評価を終え，試験的にステンレス電極を用いた薄膜形成を行い，ガン口から 300mm 離れたターゲット基板上に金属膜が形成されることを確認した。さらに水素吸蔵を目的とした TiZrFeMn の高速成膜の堆積実験のため，複合金属材料によるガン電極の製作とガンの運転条件についての最適化を終え，近日中に実験に移る予定である。

この手法は、プラズマ電流とそれにより誘起される自己ローレンツ力により、磁場構造を持ったプラズモイドが放電領域から加速・射出される。この際に，電流密度の高くなる中心電極材料が溶出し，ドリフト管領域で混合され，ターゲット基板上に堆積する。射出される磁化プラズモイドは、生成時の磁気ヘリシティを保持したまま、磁束保持容器内で無力磁場配位へと緩和するため、外部制御なしにプラズマ生成部から離れた反応炉へ誘導することができる。またこのため，基材への熱負荷の低減やより精密なプラズマパラメータの制御が可能となることもこの方式の特長である。

（電気工学科　鈴木薫教授、物質応用化学科　西宮伸幸教授との共同研究）

２．無力配位プラズモイド合体を応用した極端紫外光源の開発

磁化同軸ガンの派生技術の一つとして、同装置で生成・射出される磁化プラズモイド（　＝スフェロマック）の衝突・合体時における磁気再結合加熱を利用した極端紫外光源についてその改良と特性評価を進めた。生成・衝突するスフェロマック　が持つ磁束の方向の組み合わせ方により，衝突後のプラズマ温度や閉じ込め性能を制御できることが見いだされ，より精密な制御が可能となった。また，この成果の一部については，NUBIC から PCT 国際出願を行った。

３．回転磁場法による無電極プラズマ源の開発

閉じた閉じ込め配位を有するプラズモイドを定常的に生成・維持可能なプラズマ生成法として、回転磁場（RMF）法によるプラズマ反応炉を開発し、 RMF アンテナに磁気回路を組み合わせることでプラズマの生成効率が向上することを実験により確認した。この成果については現在、NUBIC からの特許申請の準備を進めている。また， RMF によるプラズマ処理などの実験を展開するため，新たに反応炉用の真空チェンバーを駿河台校舎 6 号館に建設した。（東大・井研究室との共同研究）。

４．大気圧 LF 放電による CNT および CNT／ポリマー複合材料のプラズマ処理

物質応用化学科伊掛浩輝専任講師との共同研究として， CNT および CNT／ポリマー複合材料へのプラズマ処理のための大気圧 LF 放電装置の開発を開始した。

光合成細菌，*Rhodopseudomonas palustris* No.7 によるフェニルケトン類の不斉還元

浅田泰男，伊藤賢一，石見勝洋，神野英毅
エネルギー班

シアノバクテリア，*Synechococcus* PCC6803 および PCC7942 の生菌体は，イソオキサゾールやフェニルケトン類を s 体のアルコールに不斉還元する（K. Itoh,et al.*Tetrahedron: Asymmetry*, **16**, 1403(2005).）．また，アルコール資化性光合成細菌，*Rhodopseudomonas palustris* No.7 もイソオキサゾールを s 体のアルコールへのと不斉還元することを見いだした．さらに PCC6803 の短鎖アルコール脱水素酵素（ADH）と想定されている遺伝子３種と No.7 の ADH 遺伝子を ADH 活性のない光合成細菌である *Rhodobacter sphaeroides* RV に接合伝達によって導入し，これらがすべて短鎖アルコール脱水素酵素活性を有することを，報告した．その後，*Rh.palustris* No.7 の野生菌体が、フェニルケトンであるアセトフェノンおよびペンタクロロアセトフェノンを不斉還元することを見いだした．さらに、最近シアノバクテリア ADH 遺伝子導入 RV 株（sll1825, slr0886 or slr0942）を、ペンタフロロアセトフェノンの不斉還元活性を検討したところ、全てに活性が見いだされた。

バイオポリマーとしてのポリ乳酸フィルムの材料技術分野への高度利用

伊掛浩輝
超分子・自己組織班

わが国の第４期科学技術基本計画に掲げる「地球温暖化問題の解決に向けた温室効果ガス削減目標の達成，並びに自然への負荷の緩和，自然の保全・再生、環境への適応など，自然との共生と人類の発展・経済の成長との両立を可能とするグリーン・イノベーション」が指向され，そのひとつに再生可能である植物を由来とするバイオベースポリマーの高度利用が検討されている．本研究では，バイオベースポリマーのひとつであるポリ乳酸（PLA) に着目し，光学分野への応用発展を指向した材料設計の確立をめざすものである．

平成 22 年度の取り組み

本年度は，モノマーであるラクチドから PLA を化学合成し，得られた PLA のモルフォロジー制御とその精密構造解析を行っている．背景として，PLA がこれまで大きな関心を持たれながらも産業界に大きく貢献できなかった原因として，耐熱性や機械強度が汎用性ポリマーに比べ劣る点にある．そこで，本研究では，PLA 構造をナノメートルオーダーで制御することで，これらの問題点を克服し，PLA の高汎用化をめざし１～３の検討を行っている．

１．光歪応答性ポリ乳酸フィルムの開発

キラル性高分子であるポリ(L-乳酸) (PLLA) は，高い結晶化度を有することで知られているが，この PLLA を 1 次元方向に延伸させることで成形される PLLA ファイバーは，PLLA 結晶の配向によりユニークな圧電特性を示すことで関心が持たれている ．とりわけ，このファイバーに制御電界を印加した場合，PLLA の圧電特性により，ファイバー先端の振動や振幅が任意にコントロールでき，透過光の方向 性が制御できるようになる (Fig.1).

本研究では，1 次元であるファイバーから大面積を持つ 2 次元の薄膜，更に，それ以上の構造体となるシートなど への拡張をめざしている．そこで，本年度では，プロジェクト内共同研究として，電気工学科の鈴木薫教授と電 場下における PLA 分子鎖の配向制御に関する研究を， そして，N.プロジェクトを基盤とした学外ネットワークとしては，東北大学金属材料研究所と共同研究として，強磁場中における PLA 分子鎖の配向制御に関する研究をスタートさせたところである．

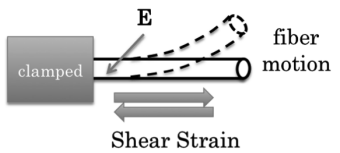


Fig.1 The piezoelectric motion of polymer fiber*.
* M. Honda, K. Hayashi, K. Morii, S. Kawai, Y. Morimoto, and Y. Tajitsu, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 46, 7122-7124 (2007).

２．ポリ乳酸/シリカ，及びポリ乳酸/カーボンナノチューブハイブリッド材料の作製

上述の通り，PLA がこれまで産業界に大きく貢献できなかった背景として，汎用性高分子と比べて PLA の耐熱性，及び機械強度が劣ることに原因があると考えられる．そこで，本課題では，PLA と環境負荷が比較的小さいシリカ，またはカーボンナノチューブ (CNT)をナノメートルサイズで複合化することで， これらの問題点を克服したいと考えている．そのための手法として，シランカップリング剤を用いたハイブリッド作製における最適化や，また CNT を用いたハイブリッドでは， CNT 表面の改質方法としてフレッシュプラズマ処理法について検討を始め，物理学科の浅井朋彦専任講師と共同研究をスタートさせた ．

３．ステレオコンプレックス型ポリ乳酸フィルムの作製

PLA に光学異性体が存在することはよく知られていることであるが，天然における存在割合が L 型，D 型ともほぼ同程度存在するということから珍しい高分子の一つとして挙げられる．また，これらは構造の対称性からステレオコンプレックス (sc) 構造を示すことが知られており，sc 構造を有するステレオコンプレックス型 PLA (sc-PLA) の物理的性質に多くの関心が寄せられている．とりわけ，結晶性である PLLA よりも sc-PLA の方が，融点が約 50℃も高くなることが知られている．また，成膜時の溶媒種や撹拌時間などの違いによって形成される sc 構造のサイズが異なることから，これらを最適化することで耐熱性に優れ，さらに透明性にも優れた材料となることがわかってきたところである．

動的平均場理論による強相関界面の電子構造

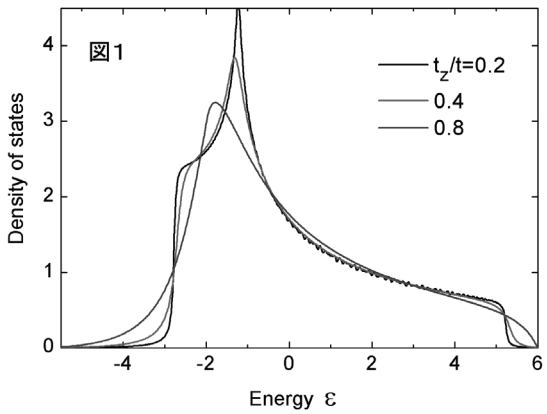
石田浩
理論班

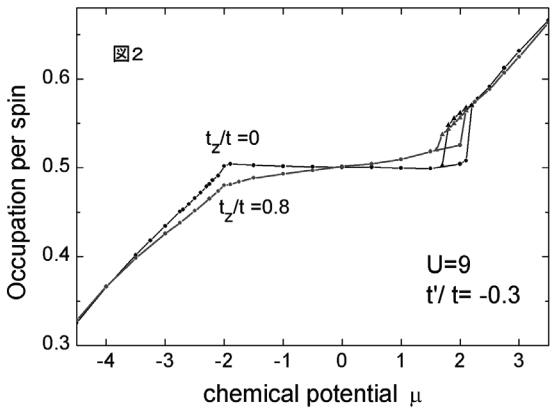
近年，遷移金属化合物など強相関物質の膜厚を原子層単位で制御したヘテロ構造の研究が盛んである。結晶界面は，電荷移動や電子系の低次元化により，バルク結晶と異なる物性を示し，新規電子デバイスの開発も期待される。本研究では，動的平均場理論を用いた量子多体計算により，強相関界面の電子構造の解明を目指している．

１．金属表面上の強相関単原子吸着層の電子構造

昨年度は，強相関薄膜の電子構造を，原子層間の電子相関を取り入れて計算したが，面内の原子間の電子相関は考慮しなかった（論文１）．そこで本年度は，金属表面に吸着した強相関単原子層の電子構造を，面内原子間の短距離電子相関の効果を取り入れて計算した．吸着原子層は 2 次元正方格子の単一バンド・ハバード模型で表した．最近接原子軌道間遷移積分を t，第 2 近接原子軌道間遷移積分を t'，クーロン反発エネルギーを U としたとき，銅酸化物超伝導体を考慮して，t' = -0.3t，U=9 t とした．下地金属はバンド幅 W=12t の相互作用のない半無限立方格子の強結合模型で表わし，吸着層と金属下地の軌道混成の大きさは，吸着原子と下地表面原子間の界面垂直方向の軌道間遷移積分 t_z で表わした．面内の電子相関を考慮するため，クラスター動的平均場理論により有限温度 Green 関数を計算する．系は 2x2 の 4 原子正方形クラスターの超格子に分割して，原子サイト(i,j)が同一クラスター内にあれば電子相関による自己エネルギー Σ_{ij} は有限，(i,j)が異なるクラスター内にあれば $\Sigma_{ij}=0$ と仮定した．

U=0 の場合の吸着層の電子の状態密度を，t_z / t=0.2, 04, 0.8 の場合に描いた（図１）．吸着層と下地半無限金属との軌道混成が大きくなるに連れて，2 次元正方格子の状態密度のファンホーフ異常が消えて行くのが判る．化学ポテンシャルの関数として，U / t=9 の場合の吸着原子のスピン当たりの電子数を描いた（図 2）．t_z / t=0 の時には系は完全な 2 次元モット絶縁体であり，エネルギーギャップ内では占有数は n=0.5 で一定である。またホールドープ側の金属絶縁体転移は 2 次転移，電子ドープ側は 1 次転移でヒステリシスが見られる。t_z / t= 0.8 の場合には，軌道混成により下地金属が吸着層に侵入するため，dn/dμ>0 であり，系は常に金属である。しかし，ホールドープ側には dn/dμ>0 の傾きの変化，電子ドープ側には n の不連続な変化があり，下地金属との大きな軌道混成効果にもかかわらず，本質的には系は 2 次元モット絶縁体に近い電子構造を持つことが分った。





ナノ構造自己組織化基板と超高密度情報記録媒体

伊藤彰義，塚本新
情報班，超分子・自己組織班

１．研究目的

超高密度記録に関する急激な発展により、1Tbit/inch^2 の高密度記録の研究が活発化しつつあるが、その実現には今までに無い多くの困難がある。本研究は、これを解決し、更なる高密度記録の実現、すなわち 2 Tbit/inch^2 以上の未踏領域に挑戦するものである。近年、大規模情報記録に関する研究分野において、ナノ構造を有する磁性記録媒体が注目されている。本研究ではナノスケール配列構造を有する磁性媒体を得る手法として、自己組織/集積化現象を利用し形成した超高密度なナノ構造を表面に有するテンプレート基板の利用を提案し、検討するものである。

上記目的を達成するため、具体的には、

１）高分子ミセルの自己組織化 3 次元稠密空間配列
２）ナノ構造金属材料形成用テンプレート基板の開発
３）高密度記録媒体形成用磁性薄膜／微粒子形成への応用

により超高密度情報記録の更なる発展を図る。

２．研究計画・進捗

平成 22 年度計画として、「稠密空孔配列二次元化（現在の三次元配列における厚さ方向の空孔層数を１とする）による、各種金属基板エッチング用テンプレートへの利用について検討」を重点課題とし、①内部に空孔を有するシリカ薄膜の、広範囲にわたる稠密規則化および単層化、上記シリカ膜の金属膜上への作成、②空孔を含むシリカ薄膜と双対なナノ表面構造の作成、につき検討した。以下に主要な進捗、達成度を示す。

2-1：内部に空孔を有するシリカ薄膜の、広範囲にわたる稠密規則化および単層化

内部に空孔を有するシリカ薄膜の、広範囲にわたる稠密規則化および単層化を Pt および Fe 上で実現するための基礎実験に成功した。具体的には、

１．トリブロックコポリマーの重合数の調整により、ナノ空孔径を約 8 nm から約 5 nm にまで減少するとともに、主に溶液調合手順の見直しにより、形成される 連続した規則配列領域の面積を約 1 μm^2（8.8×10^5 nm^2 以上）にまで増大した。Fig. 1 参照。
２．多孔質シリカ膜の作製に用いる要素のうち、高分子ミセルを形成するトリブロックコポリマー(A)・多孔質シリカの主成分であるテトラエトキシシラン (B)・および塩酸＋水(C)の比を一定とし、主に乾燥時に蒸発するエタノール(D)の量を増加する事で空孔 1 層相当の膜厚にまで薄膜化 を行った。
３．多孔質シリカ薄膜を、 2 種の金属薄膜（Pt、Fe）上へ形成する事に成功した。

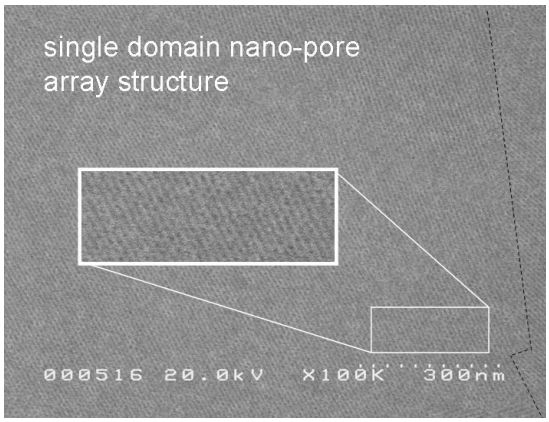


Fig. 1 SEM image of sirica thin film having nano dent array structure.

2-2：空孔を含むシリカ薄膜と双対なナノ表面構造の作成

空孔を含むシリカ薄膜と双対なナノ表面構造として、ディップコート法による超微小シリカ粒子配列膜の作製とそれをマスクとした ICP エッチングにより、熱酸化 Si 基板上への転写構造の作製に成功した。

量子中継の実現を目指した要素技術の開発

井上修一郎
情報班

無条件安全性および伝送容量拡大を実現する量子情報通信技術へ向けた実験的研究を進めている．本研究では，量子もつれ光子対を用いる BBM92 量子暗号プロトコルの実装，また次世代量子暗号に不可欠となる量子中継の要素技術確立を目指している．以下には本年度実施した研究内容の概要およびその成果を項目ごとに記す．

１．高レート量子もつれ配送実験

タイプ II PPLN-WG を用いて直交偏光量子もつれ光子の配送実験を行った．本実験では単一光子検出器として正弦波ゲート動作型 APD を用いた．ここで，正弦波ゲートの繰り返し周波数は 1GHz，検出効率は 16 %，暗計数確率～10^{-6} に設定した．1 パルスあたりの平均光子対数を 0.01 とした時の量子もつれ純度測定結果を図 1 に示す．目標とする状態 HV－VH による 2 光子干渉明瞭度 97 %(0° 方向)，94 %(45° 方向)を得た．ここで，H は水平偏光，V は垂直偏光を意味する．本結果は光子検出器の不完全性による偶発的同時計数を含む．また，伝送路が無い状態（0km 伝送）において量子もつれ配送レート 2.8 kHz を得た．本結果は 1550nm 帯における量子もつれ配送実験においては現時点で世界記録となる(投稿準備中)．今後は，検出効率のさらなる向上，平均光子対数の引き上げ，光学損失の低減によって 10 kHz 以上の配送レートの確保を目指す．さらには量子もつれ配送系を用いて BBM92 量子暗号を実施する．

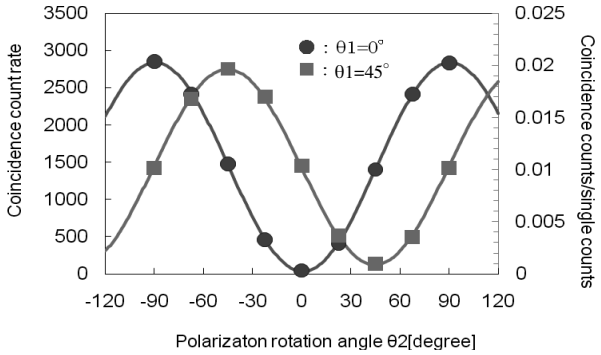


図 1　量子もつれ純度測定結果

２．850 nm 帯高検出効率光子数識別器の開発

量子鍵配送や量子ゲート回路などの量子情報通信の実現には，高い性能の光子検出器が求められている．超伝導転移端センサ(TES)は，超伝導転移領域での急峻な抵抗変化を利用した高検出効率かつ低暗計数をもつ光子数識別器である．我々はこれまでに，チタニウム超伝導体を用いた TES(Ti-TES)を開発し，光子数識別器の高速化を実現している ．今回，850 nm 帯に最適化した光吸収構造をもつ Ti-TES の開発を行った．Ti 薄膜は，大きさが 10 μm×10 μm，厚さが 22 nm である．波長 844 nm のパルス光を入射した際の TES の波高値分布を図 4 に示す．この図から光子数を明瞭に分離できていることが分かる．また， 入射光子数を変えながら検出効率の測定を行った．その結果，検出効率の平均値は 98.4 %であった．この効率は，現在報告されている光子検出器の中で最も高い効率である．

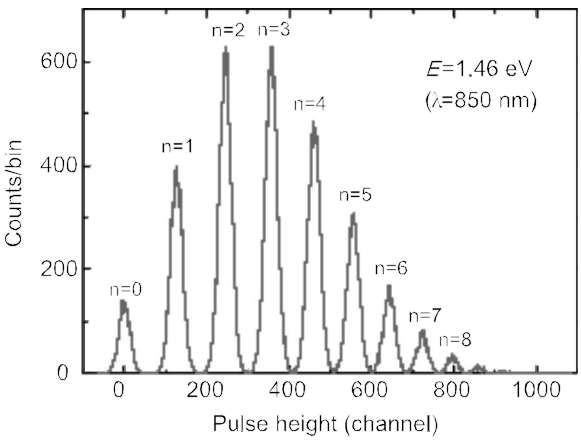


図２　TES の波高値分布

ナノ物質を基盤とする光・量子技術の極限追求

岩田展幸
ナノ物質・ナノデバイス班

１．単層カーボンナノチューブ(SWNT)のカイラリティ制御

図 1(a)内右上に使用した基板を示す。場所(i)は基板、(ii)は三角形状の Au 電極、(iii)は電極間である。(ii)、(iii)はオゾン処理によって、より親水性にした。エタノールに分散した酢酸 Mo、酢酸 Co を触媒とし基板上にディッピングした。最も親水性の高い状態にあるオゾン処理した(iii)電極間に親水性のエタノールが良く濡れ、多くの極微小サイズの触媒微粒子が付着していると考えられる。炭素源にエタノールを用いたアルコール触媒化学気相成長(ACCVD)法を用い、800nm の自由電子レーザー(FEL)を照射しながら単層カーボンナノチューブ(SWNT)を成長させた。図 1(a)は成長した SWNT の低波数域の Raman 散乱結果である。測定箇所は、(iii)電極間である。励起波長は 785,632,532,441nm の 4 種類を用いた。785nm を用いた時にのみ、Radial Breathing Mode (RBM)が観測された。可能性のあるカイラル指数は(8,7),(10,6),(10,5),(12,2),(13,2),(13,0),(14,0)の 7 種類であり、すべて半導体的性質を持つ。図 1(b)に高波数域の Raman 散乱結果を示す。G バンド、D バンドが観測された。また、場所(ii)、(iii)では、G バンドはほぼ確認できなかった。以上結果から、電極間上でのみカイラリティの制御された半導体的 SWNTs が成長していることがわかった。我々は成長位置、成長中カイラリティ制御された SWNTs 成長を同時に初めて達成した。

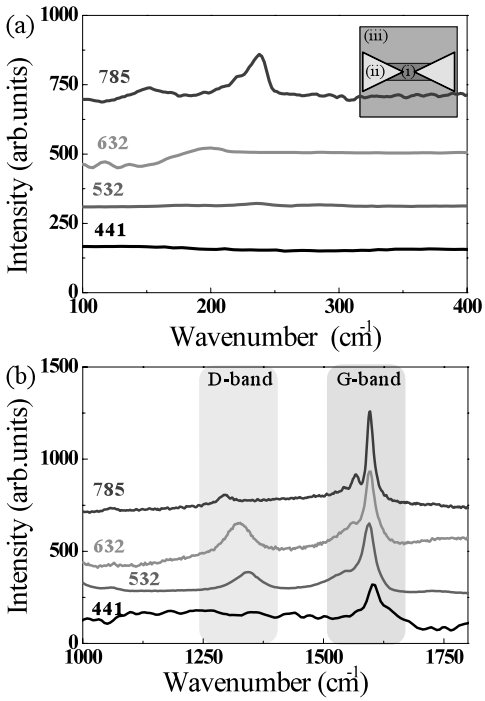


図 1：電極を蒸着し、表面処理した基板上に作製した SWNTs の Raman 散乱。

２．$REFeO_3/AFeO_3$ 超格子の作製と室温マルチフェロイックの発現(RE=Bi,La A=Ca,Sr)

図 2 に $SrTiO_3$(STO)(103)に関する(a) $CaFeO_X$ (CFO) / $LaFeO_3$(LFO) 、(b) CFO / $BiFeO_3$ (BFO) 、(c) $SrFeO_X$ (SFO) / BFO 超格子の逆格子マッピングを示す。(a)では約 CFO、LFO が 7units ごとに超格子を作製していること、(b)では、[CFO(1.16nm) / BFO(1.30nm)]×14、(c)では、[SFO(1.36nm) / BFO(1.00nm)]×14 の超格子構造を確認した。超格子回折ピークが確認できたこと、さらに、表面像がステップ-テラス構造を示したことから清浄な界面が形成されていることが予想される。

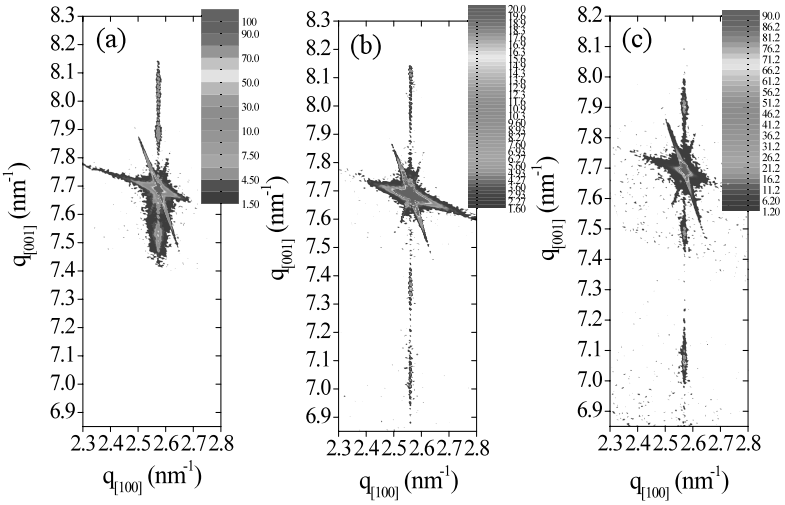


図 2：CFO/LFO、CFO/BFO、SFO/BFO 超格子の STO(103)に関する逆格子マッピング。

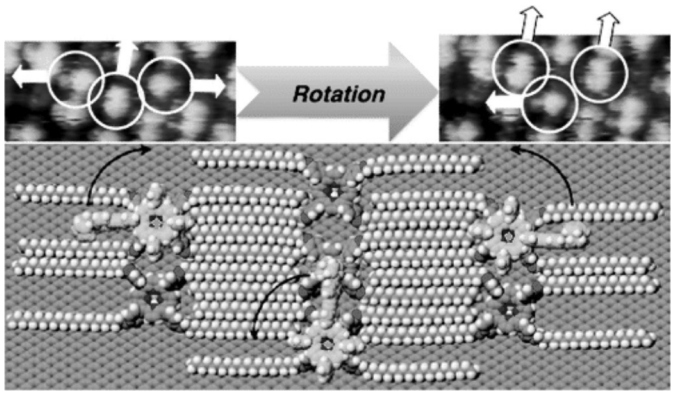
自己集合超分子系の開拓と，エネルギー，医療，情報技術への応用

大月穣
超分子・自己組織班，エネルギー班

適切に設計された分子の自己集合は，ナノ構造を構築するための有力なボトムアップ的手法である．本研究では，新しい分子の自己集合系を開発し，分子レベルでの自己集合構造，そのダイナミックな挙動を明らかにするとともに，N.研究プロジェクトの研究者との連携によって，エネルギー，医療，情報への応用を検討している．

１．分子の自己集合構造と動的挙動の分子レベルでの解明

ダブルデッカー錯体というポルフィリンやフタロシアニンのような平面のディスク状分子２枚が一つの金属イオンをはさみこんだ形の化合物の自己集合挙動を検討した．ダブルデッカー錯体の２枚のディスクは，金属を中心として回転することが各種スペクトロスコピーによって明らかにされていたが，その回転を「見た」人はいなかった．我々は，この回転による向きの変化を検出できるようにするために，置換基を一カ所導入したダブルデッカー錯体を合成した．この錯体を基板表面に吸着させ，自己集合によって配列させることによって，錯体の向きを走査トンネル顕微鏡で明らかにすることができた．さらに，その向きが時間とともに変化する像を捕らえることに成功し，初めて，ダブルデッカー錯体の回転を「見る」ことに成功した（論文１，図）．



光照射によって分子構造が大きく変化する新しい化合物を合成し，ポルフィリンとの集合状態を光でコントロールする系を報告した（論文２）．

２．自己集合錯体を用いた光エネルギーによる水からの水素発生.

金属配位部位をもつ新しいイリジウム錯体を合成した．水を含む溶液中でこれらの錯体とコバルトイオンを混合すると，錯体がコバルトイオンにも配位し，イリジウム―コバルトの両方を含む超分子錯体が生成する．イリジウム部位は光増感剤として，コバルト部位は水素発生触媒として機能し，両者を結合することによって水素生成反応に必要な電子移動が効率よく起こることが期待される．いくつかの誘導体について光照射実験を行い，水素が発生することを見いだした．イリジウムとコバルトが結合していない場合に比べて，効率が向上する超分子錯体も認められた（論文３）．さらに，ルテニウム錯体を用いた系で，触媒が不要で高ターンオーバーの水素発生系を見いだした．その機構を現在検討中である．

３．X 線を用いた光線力学療法のための化合物合成

癌の治療法のひとつとして光線力学療法が用いられている．これは，色素化合物を癌細胞に集積させておき，レーザーを照射することによって生成する励起色素の効果によって活性酸素種を生成させ，癌細胞にダメージを破壊する療法である．可視光レーザーでは体表面から 1 cm 程度の浅い部位にある癌にしか適用できないという問題点がある．そこで，体内透過性がある X 線と光線力学療法を組み合わせるために， X 線吸収効果のあるヨウ素と活性酸素性性能のあるポルフィリンが結合した化合物を合成した（特願１）．

細胞実験レベルで一定の効果が認められており，今後開発を継続していくとともに， X 線による内殻電子励起→価電子励起のエネルギー移動過程には 10^4 倍ものエネルギー差があり，この間のプロセスは科学的にも新しく，非常に興味深く，追求する価値があると思われる．

電磁界シミュレーションによるナノスケールデバイスの設計

大貫進一郎
量子理論・計算班

高速かつ信頼性の高い電磁界シミュレーションを，光の波長に比べ解析対象物が小さいナノ構造物に対して行う．ナノ領域に局所的な円偏光を生成するアンテナやプラズモン導波路などを設計し，N.研究プロジェクトの研究者との連携により情報技術への応用を目指している．

１．光直接記録に向けたナノスケールアンテナの設計

情報班の塚本・伊藤らが発見した光誘起超高速磁化反転現象は円偏光を利用することが必須であるが，現状の光スポットサイズはマイクロメートルオーダであるため高密度記録が困難である．そこで，情報班の中川と共同で，ナノメートルオーダの局所的な円偏光を高効率に生成できるアンテナを設計した．図１のアンテナは２組のダイポールアンテナから構成され，それぞれのアンテナに誘起される表面プラズモンの位相が 90 度ずれるようなアンテナ長を選んだ．このアンテナに直線偏光を入射した場合，中央部のギャップにおいて図２に示すような局所的な円偏光が生成できることを確認した．また，入射方向を変えることで右回りと左回りの制御も可能であること，記録媒体中においても円偏光が生成できることも明らかにした．

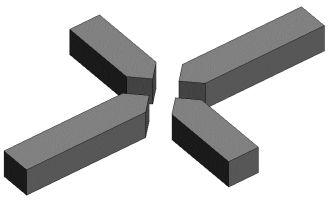


図１：局所的円偏光生成用アンテナ

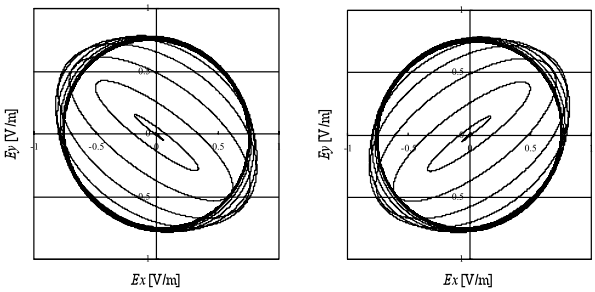


図２：電界の時間応答解析

２．複素周波数領域積分方程式法による表面プラズモンの解析

計算精度の保証が可能な複素周波数領域における積分方程式法を用いて，ナノスケール金属粒子における表面プラズモンの解析を行った．本手法は，光の波長帯において，任意形状や金属粒子が複数ある場合について信頼性の高い解析が行えることを明らかにした．また，金属粒子のモデリングについても検討を行い，曲面パッチなどの有用性を明らかにした．

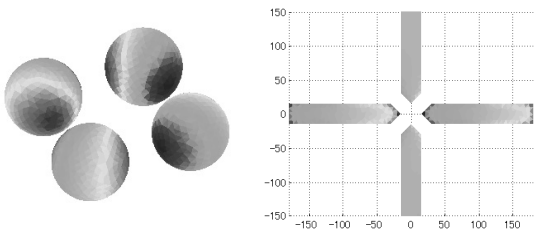


図３：表面プラズモンの解析例

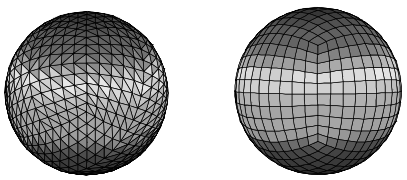


図４：モデリングと表面電荷密度

３．超高速並列プロセッサを用いた 高速電磁界解析

GPU や Cell などの超高速並列プロセッサに対応した計算プログラムを開発した．通常の CPU での計算に比べて，GPU を用いた FDTD 法の計算は 25 倍程度，Cell を用いた 3 次元フルベクトル解析が可能な積分方程式法では 20 倍程度の高速化を実現した．

原子気体を用いた量子メモリの実現に向けた実験研究

桑本剛
情報班

1. 本研究の目的

原子を利用した量子メモリの実用化を目指した基礎研究を行う．量子メモリは，高度情報化社会の実現・発展のために極めて重要である量子情報処理・通信に必要不可欠な要素技術である．本研究では特に，偏光量子もつれ光子対を原子中に長時間保存することを目指す．現在以下の 2 つの実験を平行して進めている．

(1) ルビジウム原子との共鳴波長（795 nm）をもつ偏光量子もつれ光子対の生成（量子光源の開発）
(2) 電磁誘起透明化を利用した室温ルビジウム原子気体中へのレーザー光の保存実験系の開発および高度化（保存装置の開発）

上記の開発が終了後，両者を統合して偏光量子もつれ光子対の室温ルビジウム原子気体中への保存実験を行う．基礎的知見を得た後，冷却原子や通信波長帯光を使用するための検討を行いより実用的な系への展開を試みる．

2. 平成 22 年度の研究内容および成果

平成 21 年度において，上記に挙げた(1)に関する研究開発として，偏光量子もつれ光子対源となる直交偏光光子対の生成装置を立ち上げた．直交偏光光子対らしき信号を得たがその量子性を確認するまでには至らなかった．また，上記(2)に関する研究開発としてレーザー光の保存に成功したが，保存時間が先行研究の 10 分の 1 程度と短いものであった．本年度はこれらの改善を進めた．以下に具体的な研究内容を示す．

(1) ルビジウム原子との共鳴波長（795 nm）をもつ直交偏光光子対の量子性の確認
主な改良および開発に関し以下に記す．

1. 直交偏光光子対を発生させるために必要となる波長 397.5 nm の光源の増強．
397.5 nm 光は，非線形光学結晶に出力 600 mW，波長 795 nm の励起光を入射し第 2 高調波を発生させて得る．前年度までは予算の都合上非常に変換効率の悪い結晶を使用していた．本年度は本プロジェクト予算にて購入した変換効率の高い結晶（Type I PPKTP）を使い 2～3 mW の 397.5 nm 光を得た．これにより直交偏光光子対の発生数を 2 倍にすることができた．
2. 光学系の改善．
生成した直交偏光光子対の量子性が確認できなかったのは，397.5 nm 光を除去するために使用していた分光プリズムに偏光依存性がある事が原因であることを突き止めた．プリズムを取り除き，本プロジェクト予算にて購入した半値幅 0.5 nm の波長 795 nm 光用狭帯域バンドパスフィルターや複数のローパスフィルターを用い， 397.5 nm 光の除去を行う光学系に変更した．
3. 直交偏光光子対の 2 光子干渉測定のための同時計数回路の製作．
4. タイミング補正結晶の導入
非線形光学結晶（Type II PPKTP）内で生成した直交偏光光子対は 90 度偏光が異なる 2 つの光子の組であるが，結晶の複屈折により結晶内を伝搬中に 偏光の異なる光子間の空間的分離が生ずる．これを補正するために， 本プロジェクト予算にて購入した KTP 結晶を導入した．

実験の結果，直交偏光光子対の量子性を確認する事に成功した．Fig. 1 に実験結果を示す．これは光子対の 2 光子干渉を測定したものであり，明瞭度(visibility)は 83%であった．今後はさらなる計数率および明瞭度の改善を進める．

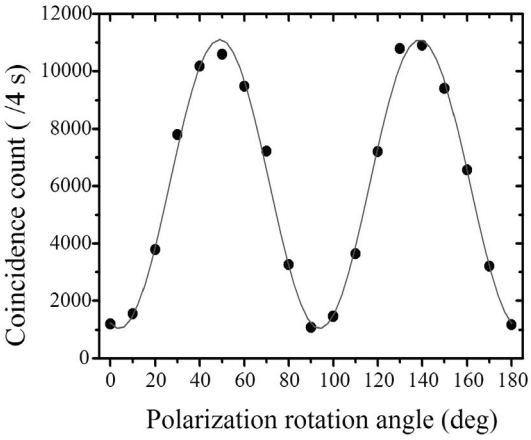


Fig. 1 Coincidence count of orthogonally polarized photon pair as a function of polarization rotation angle.

(2) 室温ルビジウム原子気体中へのレーザー光の長時間保存のためのレーザー周波数制御系の高度化

ルビジウム原子中へのレーザー光の保存時間が先行研究の 1/10 程度であった理由は複数考えられるが，我々は，使用している 2 台のレーザーの相対的な周波数揺らぎが主原因であると予想を立て，光位相同期によるレーザー相対周波数制御装置の開発を行った．本開発にはプロジェクト予算にて購入した信号発生器を使用した．高速光検出器によって 2 台のレーザー光のビート信号（6.8 GHz + 相対周波数揺らぎδ）を検出し，信号発生器からの高精度な信号と比較することでδを抽出して，これを最小化するようにレーザーをフィードバック制御した．結果を Fig. 2 に示す．光位相同期を行わない場合，ビート信号の半値全幅は 2 MHz 程度あったが光位相同期によってこれを 400 Hz まで狭窄化する事ができた．これは 2 台のレーザーの相対周波数ゆらぎが 1/5000 になったことに相当する．本開発の成功によって，従来生じていたシングルショットごとの信号強度変動が大きく抑制された．今後は光保存の長時間化を確認する．

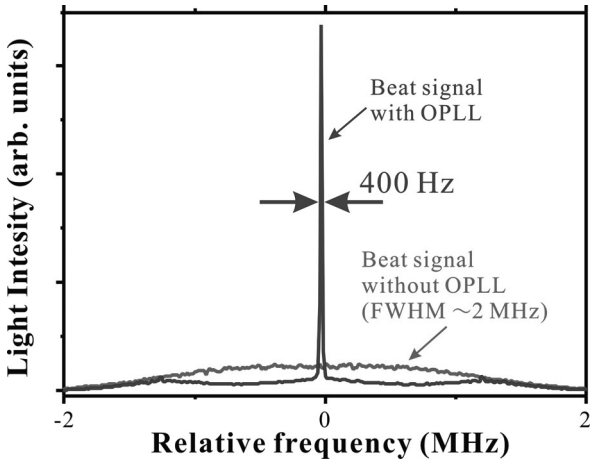


Fig. 2 Beat signals of two lasers with and without the relative frequency control by the optical phase lock loop

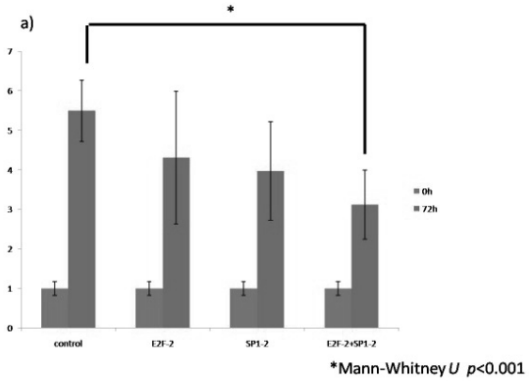
PI ポリアミドおよびナノ構造を用いた小児固形腫瘍に対する新規抗癌薬剤の開発

越永従道
医療班

神経芽腫は神経堤より発生し，頭蓋内以外に発生する固形腫瘍であり小児のガン死の 15%を占める．神経芽腫の予後不良例においては生存率が 40%を切っており，新規治療法および予後不良な腫瘍に対する治療の層別化に応用するための新規診断法が期待されている．また *MYCN* 遺伝子の増幅は神経芽腫の予後因子であり，同遺伝子の発現抑制は細胞増殖抑制効果や分化を促す．一方，PI ポリアミドは配列特異的に DNA に結合でき，転写因子の結合配列を標的として作製することで遺伝子の発現を調整できる．我々は *MYCN* 遺伝子の発現調整領域に存在する転写因子である SP1，E2F の結合領域を標的とした PI ポリアミドを作製し，その抗腫瘍効果を神経芽腫細胞株で検討した．さらに今後，新規ナノ構造で PI ポリアミドを修飾することでより効果的な抗腫瘍薬剤の開発および新規診断法の開発への応用のための基盤となる研究を遂行した．

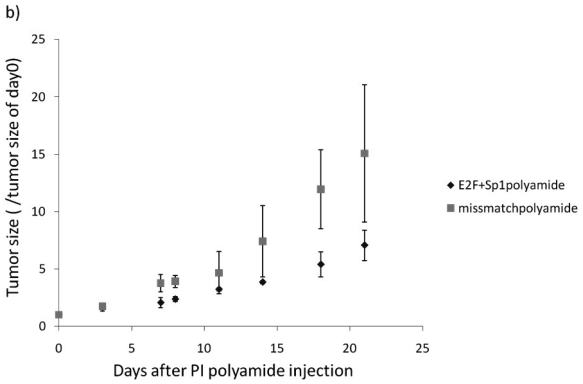
1．*In vitro* での検討

現在までに神経芽腫細胞株 CHP134 に対して E2F および SP1 を標的とした PI ポリアミドの混合投与を行い，投与後 72 時間で非投与群と比較して細胞増殖抑制効果(a)および *MYCN* 遺伝子の発現抑制を認めた．さらにこれらの PI ポリアミドの投与は増殖抑制のみならずアポトーシスの誘導をすることが確認できた．



2．*In vivo* での検討

神経芽腫細胞株 CHP134 細胞をヌードマウスの皮下に移植し，xonograft モデルマウスを作製した。このマウスの腫瘍移植部に対して *In vitro* 同様に E2F および SP1 を標的とした PI ポリアミドを混合投与した．その結果，投与群で目的領域と結合を有しないコントロール PI ポリアミド(mismatch)と比較して腫瘍の増殖を抑制する傾向にあった(b).



これらの結果は今後，新規ナノ構造で PI ポリアミドを修飾することでより効果的な抗腫瘍薬剤の開発および新規診断法の開発へ応用するための基盤となる研究であったと考えられる．

ヘリウム様原子におけるフント則の起源：低スピン状態における共役フェルミ孔の存在

佐甲徳栄
量子理論・計算班

電子は自然界に存在する最小単位の磁石であり，この磁石としての性質を担うスピンを制御することによって，電子は最小単位のメモリ素子となる．本研究では，原子における電子スピンとエネルギー準位の関係を規定する「フントの第一規則」に着目し，この規則が成り立つ起源を最も単純な複数電子系である He 原子および He 様原子イオンについて解明した．

フントの規則は，軌道配置を共有し，スピンおよび軌道角運動量が異なる電子状態間のエネルギー順序を規定する規則であり，特にスピンに関する「フントの第一規則」については，原子のみならず，分子，さらには人工原子についても成り立つことが知られている．この第一規則の起源については，1929 年の Slater の考察に基づく，「スピン多重度の大きい状態ほど電子間反発エネルギーが小さい」ことが原因だとする，いわゆる伝統的な解釈が知られている．一方，Davidson に端を発する He 原子におけるその後の量子化学計算によって，スピン多重度が大きい 3 重項状態の方が，多重度が小さい 1 重項状態よりも，電子間反発エネルギーが大きいことが示されている．すなわち，3 重項状態の方が 1 重項状態よりも低いエネルギー値を持つのは，電子間反発ポテンシャルによるエネルギー増加が小さいからではなく，電子分布がより核付近に収縮することによって，「核引力ポテンシャルによるエネルギー低下の利得が大きいため」であることが示されている．

一方，3 重項状態において電子分布が収縮する原因については，「電子が互いに避け合い 2 電子角度がより大きくなることによって，核電荷の遮蔽が小さくなる」ためであることが Boyd によって古くから示唆されてきたが，最近 Moiseyev らは，電子状態計算においてフントの多重項則を再現するためには，高次の角運動量関数を基底関数に入れる必要がないこと，すなわち，2 電子間の角度相関が重要ではないことを示している．佐甲らは最近，少数の電子をナノスケールの低次元ポテンシャル井戸に閉じ込めた「人工原子」と呼ばれる量子系の電子物性を明らかにするための研究に取り組み，He 原子に対応する 2 電子人工原子について，波動関数の内部構造を可視化することによって，3 重項状態の電子密度分布がコンパクトになる原因を明らかにしている [論文 1]．本研究では，この波動関数の内部構造を調べるという発想の下に，He 原子について完全配置間相互作用(FCI)法に基づく電子状態計算を行い，未だ統一した見解が得られていない He 原子について，フントの第一規則の起源を解明することを目指した．

FCI 法によって得られた波動関数の確率密度分布から，全軌道角運動量に対応する角度変数を積分することによって波動関数の内部部分を抽出し，この内部波動関数を内部空間 (r_1, r_2, ϕ_-) で可視化を行った．また電子間反発ポテンシャル $1/r_{12}$ をこの内部空間で可視化したところ，$1/r_{12}$ は $\phi_- = 0, \pm\pi$ および $r_1 = r_2$ で定義される空間にピークを持つ三つの「ポール」として表れ，フェルミ孔が現れる空間領域を厳密に貫くことが示された．そして，3 重項状態の内部波動関数の確率密度は，パウリ原理によってフェルミ孔近傍に確率密度を持たないため，電子間反発ポテンシャルの影響を受けにくい一方，1 重項状態の波動関数の場合には，フェルミ孔近傍に元々存在していた確率密度が，電子間反発のポールによって押し出されることが示された．一方，1 重項状態と 3 重項状態の内部波動関数の詳細を比較した結果，1 重項状態の波動関数は，フェルミ孔の近くに，3 重項状態よりも確率密度が小さくなる「共役フェルミ孔」を持つことがはじめて見出された．そして，この共役フェルミ孔の存在によって，フェルミ孔近傍から押し出された 1 重項状態の確率密度は，核からより遠くに移動し，その結果，3 重項状態よりも広がった電子密度分布を持つこと，言い換えれば，3 重項状態は 1 重項状態よりもコンパクトな電子密度分布を持つことが明らかとなった [論文 2]．

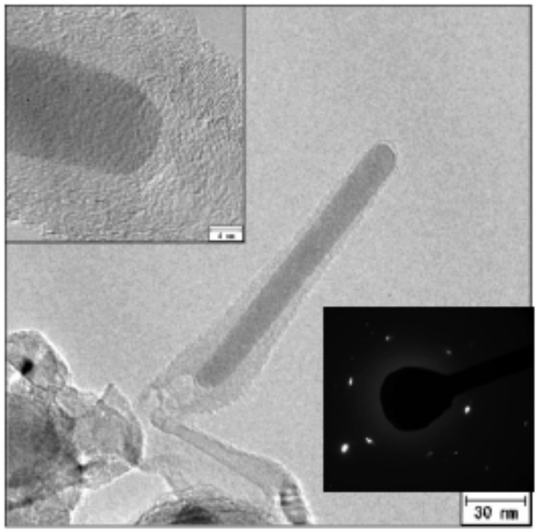
広バンドギャップ半導体ナノロッドデバイスの作成

鈴木薫
ナノ物質・ナノデバイス班

ナノ物質系として，「カーボンナノロッド」，「広バンドギャップ半導体」等を対象として，レーザ・プラズマプロセス，その他独自の手法による物質合成法，構造作製法を開発する．

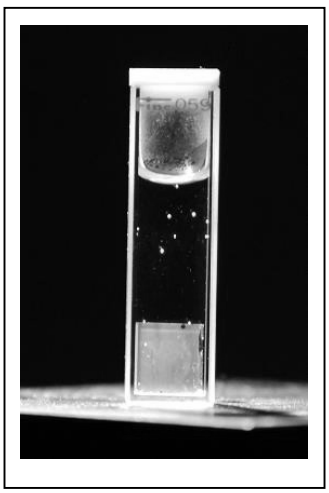
１．金属内包カーボンナノチューブの磁気力顕微鏡用プローブ加工

強磁性体のニッケルを直径 10～80nm・長さ 100～800nm という高アスペクト比で内包したカーボンナノチューブは、その外側に数～数十層のグラフェン層が巻き付いて成長していることを確認した。また、ニッケルには結晶性が存在することや、生成時の電流や時間依存性について検討し、最適条件を見出した。これらの成果を、21st European Conference on Diamond, Diamond-Like Materials, Carbon Nanotubes, and Nitrides (5-9 Sep. 2010, Budapest, Hungary)で発表した。また、「磁性体内包 CNT の析出装置、磁性体内包 CNT の析出方法、磁性体内包 CNT、磁気力顕微鏡、スピン・トランジスタ、スピン・ダイオード、スピン電界効果トランジスタ、スピン pin ダイオード」特願 2010-198325 を特許出願した。



２．水の光分解による生成と水素・酸素の吸蔵回収を一体で行う複合材料の開発

歯学部：関、中田、紙本、廣瀬、升谷先生との共同研究で可視光応答型光触媒の研究を行い、酸化チタン(TiO_2)にランタン(La)とストロンチウム(Sr)・バリウム(Ba)・カルシウム(Ca)等をドープすることにより，可視光でも水分解反応を示し、水素発生が確認された。 La が無添加時には水素の発生は起こらなかったが，La の添加により水素発生 10 μLh^{-1} cm^{-2} を昨年の研究で確認し、今年度は La＋Sr の添加により 16 μLh^{-1} cm^{-2} へと水素発生効率の改善がなされた。この成果を、 7th International Conference on Photo-Excited Processes and Applications (16-19 August 2010, Copenhagen, Denmark) で発表した。また、第 10 回レーザー学会東京支部研究会 (2010 年 3 月 3 日東海大学湘南キャンパス)で学部４年の野々村君がポスター講演優秀賞を受賞した。



３．鉄砒素系超伝導材料の薄膜化と単電子デバイスの作成

物理学科　高野先生と共同で超電導材料 LaOFeAs の成膜に関する研究を行い、その成果を 7th International Conference on Photo-Excited Processes and Applications (16-19 August 2010, Copenhagen, Denmark) で発表した。

４．光歪応答性キラル高分子ナノ薄膜の開発

指でも触れる低温のフレッシュプラズマジェットを用いてバイオポリマー 材料の重合ができることから、物質応用化学科の伊掛先生と高分子の配向制御に関する研究を開始した。また、 歯学部：関、中田、紙本、廣瀬、升谷先生との共同研究で歯周病細菌の殺菌に関する研究を開始した。

層状構造を持つ鉄系超伝導体の超伝導機構解明と新超伝導物質探索

高野良紀
ナノ物質・ナノデバイス班

１．はじめに

2008 年に酸素の一部をフッ素で置換した $LaO_{1-x}F_xFeAs$ が約 26K の超伝導転移温度 T_c を持つことが発見された。その後、LaOFeAs と同様に Fe の 2 次元正方格子を持つ超伝導体が次々に見出されてきている。これらの物質は鉄系超伝導体とよばれ、現在、世界中で精力的に研究されている。

我々は、このような物質群において、LaOFeAs と同一の 1111 構造を持つ SrFFeAs および 1111 構造よりも結晶構造が単純で同様に Fe の 2 次元正方格子を持つ Li_xFeAs(111 構造)に着目した。SrFFeAs では Sr の一部を希土類元素 R で置換し、電子ドープを行うと母体物質の構造相転移の消失とともに、超伝導が発現する。これまでに報告されている超伝導体は R=La, Sm の場合であり、その超伝導転移温度 T_c はそれぞれ約 29K および約 56K であった。そこで、我々はこれまでに報告されていない R=Nd とした試料の作成を行い、その特性を評価した。また、SrFFeAs では、超伝導を担うと考えられている FeAs 層の Fe の一部を直接 Co で置換しても、約 4K で超伝導になると報告されている。超伝導の発現が *d* 電子数の増加による電子ドープによるとすれば、Co よりも *d* 電子数が多い Ni の方が効率的であると考えられるため、$SrFFe_{1-x}Ni_xAs$ を作成し電気的性質を評価した。Li_xFeAs は母体物質自身が T_c が約 18K の超伝導体であるが、これとホモロガスな Na_xFeAs は超伝導を示さないが、Fe の一部を Co あるいは Ni で置換すると超伝導になると報告されている。そこで、我々は、まず、$Li_xFe_{1-y}Co_yAs$ を作成し、その電気的・磁気的性質を評価した。

２．実験結果および考察

2.1 $Sr_{1-x}Nd_xFFeAs$ の超伝導

微量の SrF_2 や $FeAs_2$ などの不純物を含むものの、$0 \le x \le 0.5$ の範囲で、ほぼ単相の試料を作成することに成功した。置換量 *x* の増加ともに格子定数 *a*, *c* は減少し、T_c は増加した。最高の T_c は $Sr_{0.5}Nd_{0.5}FFeAs$ の 49K であり、従来報告されている Sm 置換の T_c に匹敵する値が得られた。また、T_c における上部臨界磁場の温度勾配(dH_{c2}/dT)は-1.5T/K であり、放物線近似により 0K における上部臨界磁場を見積もったところ、約 75T という非常に高い値を示した。

2.2 $SrFFe_{1-x}Ni_xAs$ の電気的性質

微量の SrF_2 を不純物として含むものの、$0 \le x \le 0.2$ の範囲で、ほぼ単相の試料を作成することに成功した。置換量 *x* の増加ともに格子定数 *a*, *c* は減少し、構造相転移による電気抵抗率の急激な落ち込みを示す温度は低温側に移動した。全ての試料において、電気抵抗率の温度依存性は金属的であったが、3K 以上で超伝導を得ることができなかった。

2.3 $Li_xFe_{1-y}Co_yAs$ の電気的・磁気的性質

Li 量 *x* については、完全には決定されていないがほぼ化学量論比である 1 に近いと考えられる。不純物として微量の Co_5As_2 が含まれていたが、$0 \le y \le 0.05$ の範囲で、ほぼ単相の試料を作成することに成功した。置換量 *y* の増加ともに格子定数 *a*, *c* は減少し、T_c も減少した。Li_xFeAs および $Li_xFe_{0.98}Co_{0.02}As$ の T_c、T_c における dH_{c2}/dT、下部臨界磁場、超伝導分率はそれぞれ、18K、-0.43 K/T、0.05T、54 %および 11K、-0.43 K/T、0.02T、46 %であった。$Li_xFe_{0.95}Co_{0.05}As$ では約 11K で超伝導によると思われる電気抵抗の急激な減少を観測したが、ゼロ抵抗状態を得ることができなかった。

３．まとめ

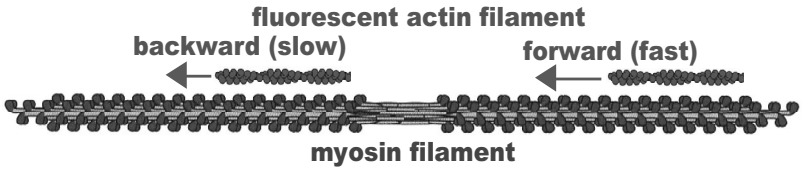
現在、我々は、高い超伝導転移温度を示す新超伝導物質の探索を中心に研究を行ってきている。一方、このような超伝導体をエレクトロニクスに応用するには、薄膜化が必要である。我々は、超伝導転移温度が高く、比較的試料の作製が容易な $(Sr_{1-x}La_xF)FeAs$ を選び、同一班の鈴木教授との共同研究により、薄膜化を行っており、その成果を国際会議で報告した。

バイオナノマシンの１分子イメージング

茶圓茂，東條正
ナノ物質・ナノデバイス班

従来のバイオナノマシンの研究では，少なくとも１００兆個の分子の平均値を測定する生化学，あるいは生物物理学的手法が主流であった．しかしながら，１００兆個のバイオナノマシンと ATP との反応サイクルにおいて，それら１個１個の反応サイクルが同期しているわけではないので平均値はバイオナノマシンの真のコンフォメーションを現していない．したがって，１分子計測が必要となる．ここでは１分子イメージングの前段階としての多分子イメージングによる生体分子モーター作動原理の研究と１分子イメージングによる細胞膜上受容体蛋白の研究を報告する．

１．多分子イメージングによる生体分子モーター作動原理の研究.



ミオシンフィラメント上を滑る蛍光標識アクチンフィラメントの動きを蛍光イメージング法で解析した。図のようにアクチンフィラメントはミオシンフィラメントの端から中央に向かって（forward）は速く滑り、中央から端に向かって（backward）はゆっくり滑ることがわかっている．しかし，その理由はわかっていなかった．ここでは，滑り速度の温度依存性を調べ，アレニウスプロットからそれぞれの活性化エネルギーを計算した．その結果，forward と backward の活性化エネルギーはそれぞれ 44k kJ/mol, 79 kJ/mol であった．これらの結果は１８０°ひねられたミオシンの頭がアクチンフィラメントを逆方向に動かすと仮定すると、ミオシンの頭がひねられる遷移は熱揺動エネルギーでなされていることを示唆している（論文１）．

２．１分子イメージングによる細胞膜上の上皮成長因子受容体蛋白の研究.

上皮成長因子(EGF)は細胞膜上の受容体(EGFR)に結合し，細胞の成長と増殖の調節に重要な役割を果たす．この EGFR の変異は調節不可能な細胞分裂を起こし，がんを発生させると言われている．この EGFR の細胞膜上の動態を明らかにするために１分子解析をめざしている．生体内観察（*In Vivo*）では細胞や組織が強い自家蛍光を持っているため背景光を減少させることが難しい．また、細胞や組織は均一系でないためノイズ除去が難しい，観察対象分子が自由にブラウン運動しているために空間分布が時々刻々と変化する ，等の困難がある．これらの困難を解決するため，より高コントラストを実現する光学系の構築 と GFP（緑色蛍光タンパク質）に代わる蛍光ラベル化剤の探索を行 い，最も S/N 比が高く，なおかつ蛍光色素の寿命が最も長い蛍光タンパク質として mPlum を見いだした．

光誘起超高速磁化反転と超高速情報記録

塚本新，伊藤彰義
情報班，超分子・自己組織班

１．研究目的

近年、大規模情報記録に関する研究分野における最も重要な課題の一つとして記録スピードの高速化が挙げられる。ハードディスクに代表される磁気記録では、磁性記録媒体内の集団スピンである磁化の向きを磁界によりスイッチングすることで情報記録を行うが、既に物理的に不可避な高速化の限界に迫り、根本的解決策がないまま模索が続いている。

これまでに、GdFeCo 薄膜に対しパルス長 40 fs（フェムト秒：10^{-15} 秒)のレーザ照射のみで完全磁化反転できることを実証実験し、その光誘起磁化反転作用が、円偏光のヘリシティにより制御可能であることを明らかにした。これは、従来不可能だと考えられてきたもので、既存ハードディスクの約 100,000 倍という飛躍的超高速記録への可能性を示すものである。本研究では、光と磁気の積極的利用の下、新規な超高速スピン制御法、情報記録原理を明らかにする。上記目的を達成するため、具体的には、

1）光誘起超高速磁化反転現象の系統的解明（H23 までに薄膜材料、H25 までにナノ構造媒体）
2）媒体材料の超高速磁化応答とその光・熱特性の解明（H24 まで上記と並行）
3）上記1）、2）に基づく、全光型超高速磁気記録の実施（H25 まで）

により超高速情報記録の更なる発展を図る。

２．平成 22 年度研究計画・進捗

平成 22 年度具体計画として、以下の目標につき検討した。

1)本研究目標である数十 THz 領域での磁化制御に向け、光-電子-磁気-熱間作用を理解・利用するため、フェムト秒パルスレーザを用いたサブピコ秒時間領域での、①磁化動特性、②光-電子作用よる光学応答、の解明と共に制御を試みる。

2)電子構造の異なる他元素材料(TbFeCo)に関し、非熱的光誘起磁化反転現象の発現を確認。

以下に主要な進捗、達成度を示す。

2-1)サブピコ秒時間領域での磁気特性、光学応答解明のため、フェムト秒パルスレーザ光源によるポンプ・プローブ法を用いた時間分解計測システムを構築した。①の磁化動特性については、磁気ファラデー/カー効果を用い、②については、電子温度依存誘電率変化に伴う透過率、反射率の変化率計測により行うため、高感度同時計測可能な検出システムを構成し、時間分解能約 10fs での測定を実施した。強励起光照射後サブps の時間領域において、電子温度上昇を主要因とした減磁現象を確認した。また、単一超短パルスレーザー照射のみで、熱磁気記録が可能であることを明らかにした。Fig. 1 参照。

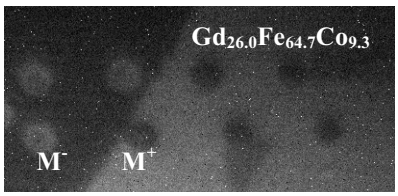


Fig. 1 The demonstration of thermo - magnetic recording by ultra-short single laser pulse.

2-2) これまでに非熱的光誘起磁化反転現象の発現を確認している GdFeCo（Fig. 2 参照）と同様な希土類および遷移金属からなる磁性合金であり、電子構造が異なる希土類金属として Tb を含む TbFeCo 材料に関し、磁性層厚 20nm の超薄膜において垂直磁気異方性を発現する組成を明らかにした。そして、この組成範囲において非熱的光誘起磁化反転現象が発現することを明らかにした。

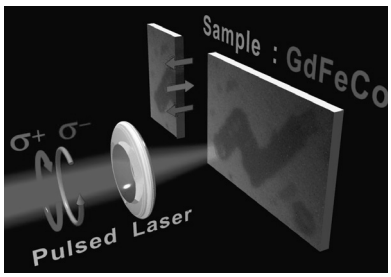


Fig. 2 The demonstration of all-optical information recording on magnetic media.

近接場アンテナを用いた熱アシスト磁気記録

中川活二
情報班

現行の磁気記録における記録密度の物理的限界を打破するために，表面プラズモンと近接場光による次世代超高密度磁気記録である熱アシスト磁気記録の研究を実験とシミュレーションの二つのアプローチで進めている．さらに，光誘起超高速磁化反転現象を活用した新たな未来磁気メモリの研究を伊藤・塚本らと綿密な連携の下で進めている．また、量子理論・計算班メンバー（大貫ら）と表面プラズモン解析を連携して進めている．

１．近接場光アシスト磁気記録

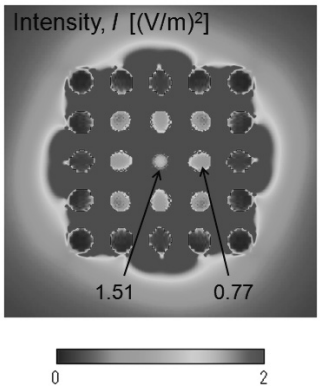
ナノメートルサイズの記録部分のみを加熱して記録を行う近接場光アシスト磁気記録において， 記録に用いたプラズモンアンテナの形状および記録時の媒体との距離と，記録マークとの相関関係が明らかになっていない．そこで，記録した磁区に対するプラズモンアンテナ形状の確認および位置の制御を可能とするアンテナ配置を考案した．電子線リソグラフィを用いたリフトオフ法により，高密度記録用高安定磁性媒体上にナノメートルサイズの表面プラズモンアンテナを形成するプロセスを構築した．

２．表面プラズモンアンテナ設計

近接場光アシスト磁気記録は，光波長オーダーより小さい領域を光加熱する必要があり，これを実現するための表面プラズモンアンテナの設計に FDTD (Finite Difference Time Domain) シミュレーション解析 (大貫准教授と一部連携) を用いている．これまでに孤立微粒子媒体を用いることにより，高い電界強度が得られることを報告している．さらに媒体形状に依存しない，特に連続記録媒体に対しても有効なプラズモンアンテナを設計することにより，媒体設計のマージンを広くすることが可能となる．そこで，連続媒体において有効なプラズモンアンテナの設計を，プラズモンアンテナの傾斜角に対して検討し，アンテナ先端部の電界強度の増加，後部の電界強度の低減を実現した．

３．光誘起超高速磁化反転記録

光誘起超高速磁化反転現象を用いる新規磁気記録方式における超高密度化に関し，大貫准教授と協同で，近接場光を用いて金属電極と記録媒体 との間に局所的に円偏光を発生させる方法を検討した． 4 回対称性の十字アパチャを用いることで，アパチャ中心位置に局所的に円偏光を形成することができることを示した．媒体構造を従来の連続構造ではなく，立方配置に整列させた孤立微粒子媒体と することにより，粒子媒体内に円偏光を伝搬可能であることを示した．さらに，十字アパチャの形状を改善したクローバアパチャを考案し，記録を行う粒子と周辺粒子との電界強度差を拡大し，記録を行う粒子のみに高い強度の円偏光を生成可能であることを示した（図，論文，特許出願，国際会議発表）．加えて，クローバアパチャと記録を行う孤立微粒子との相対位置マージンについて検討した．



シミュレーションによる表面プラズモン励起の過渡応答現象の解析手法を検討し， 大貫准教授の協力により，ナノスケールの分散性媒質に適用可能でかつ計算精度の保 証が可能な電磁界過渡解析手法を開発した．これにより，三次元任意形状物体のプラズモン共鳴周波数の推定や過渡応答解析を可能とした．（国際会議発表）

水素吸蔵合金の複合材料化と光とのかかわり

西宮伸幸
エネルギー班

１．水素吸蔵合金からの光刺激水素脱離

錯体系水素化物 $LiBH_4$ に光触媒 WO_3 の存在下で紫外線 (g 線) を照射すると，助触媒 CuO を共存させると水素が放出されるが，WO_3 または CuO のどちらか一方の存在下では水素が放出されないことが分かった．四重極質量分析 (QMS) の結果を図 1 に示す．

$LiBH_4$ を真空中で加熱すると，単体では 150℃および 350℃付近で水素が放出されるが，光触媒 WO_3 および助触媒 CuO の存在下で光照射後した後の加熱では，100℃および 280℃付近で水素が放出された．光照射と加熱を組み合せることより水素放出温度の低温化が可能ということになり，従来，水素放出温度が実用温度 (100℃付近) より高いという理由で顧みられなかった水素化物を，見直す必要が出てきた．

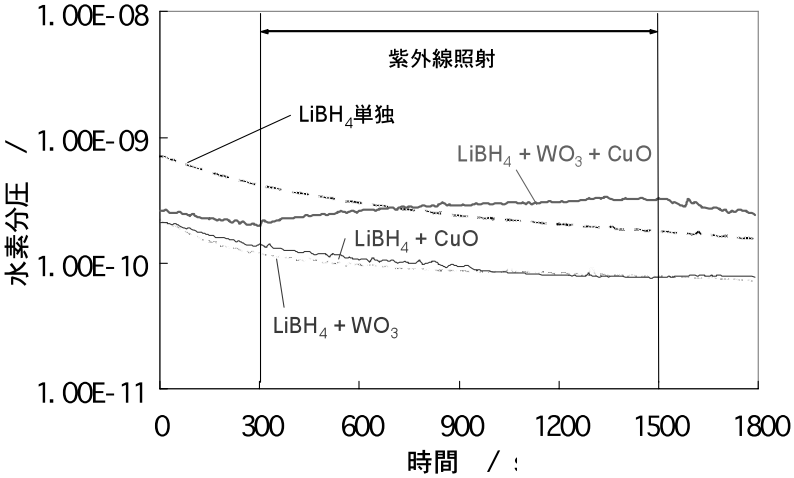


図 1　Li BH4 および L iBH4 混合物の　QM

紫外線照射後の加熱では，CuO が共存せず WO_3 のみの存在下でも 100℃および 280℃付近で水素が放出された．しかし，WO_3 のみの共存下での単純な加熱では，水素放出温度は $LiBH_4$ 単体と同じ 150℃および 350℃であった．従って，WO_3 は固相の水素を光反応で不安定な状態に変えることにより水素放出温度を低下させていることになる．助触媒 CuO は，その不安定な水素が室温で固相から気相へ出る過程を促進するらしい．実際，CuO を添加した $LiBH_4$ を真空中で加熱すると，80℃および 220℃で水素が放出された．CuO は暗反応触媒であると言える．

２．複合水素吸蔵合金によるバイオ水素の回収

（西宮伸幸・淺田泰男 共同研究）

低圧の水素を吸蔵することができるジルコニウム基水素吸蔵合金の表面をジメトキシジメチルシラン由来の膜で被覆し，耐水蒸気性を有しつつ空気中で水素を吸蔵できる複合材料を作製し，ストレス環境にあるアナベナ，グレオカプサ，スピルリナ等が産生する水素の回収を試みた．図 2 に 13.1 mL の培養瓶を用い，アルゴン雰囲気中，30℃で数日の培養を行った，典型的な結果を示す．カプセル化水素吸蔵合金の共存下のほうが水素の総産生量が多い．気相の水素は水素吸蔵合金の非共存下のほうが多いことから，合金が気相の水素を吸蔵することによって水素産生を生成側に有利となるようシフトさせたと考えられる．

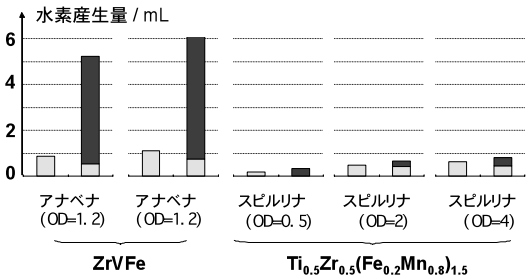


図 2　水素産生におよぼす合金共存の効果
OD は 540 nm における光学密度(菌体濃度)
左：合金非共存、右：合金共存
右の下段：気相の水素、右の上段：合金中の水素

特許出願を予定している．

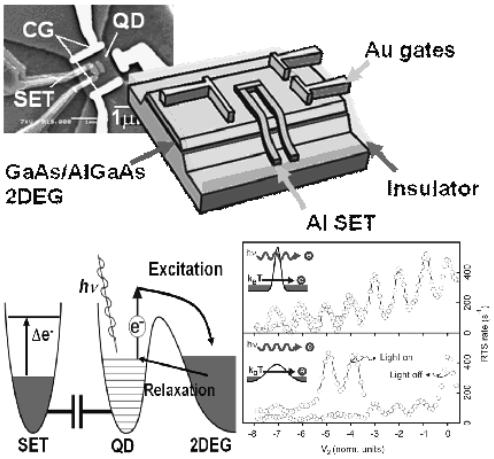
ナノサイズ半導体の単一光子単一電子素子の探求、量子情報技術、エネルギーへの応用

羽柴秀臣
量子情報班，ナノ物質・デバイス班

ナノ技術による半導体の適切な形状の作成は、2 次元電子系、量子ドット、フォトニック結晶などの量子効果素子を生み出してきた。本研究は、量子ドットの THz 帯応答、TiO_2 フォトニック結晶、Si 微細導波路による、光子－電子素子を追求する。これらの素子により光子－電子相互作用の物性を明らかにするだけでなく、産業界への広い応用が期待できる。N. 研究プロジェクトの研究者との連携によって、次世代量子情報、エネルギーを開拓する.

１．量子ドットのプラズマ励起を用いた THz 単一光子検出

THz 帯単一光子検出での有望な方法の一つは、2 次元電子ガスのプラズマ励起を検出する事である。これを用い、我々は高感度 THz 帯単一光子検出器を開発した。検出器は GaAs/AlGaAs ヘテロ基板上に作成した量子ドットと、その電荷を測定する超伝導単一電子トランジスタからなる。量子ドットはトンネルバリアを介し絶縁されているが、THz 光子吸収によりプラズマ励起すると 1 電子をバリアを介して排出する。これによる電荷のポラライゼーションは、単一電子トランジスタのコンダクタンスの変化として現れる。このシステムは単一光子検出として非常に簡単に動作させる事ができるだけでなく、検出波長を可変させる事が可能である。この検出器の改良により、受光感度を示す NEP が~10^{-19} $WHz^{-1/2}$ と、一桁上げる事に成功した（論文 1,)。



２．色素増感太陽電池へ使用する二次元 TiO_2 フォトニック結晶の作成

色素増感太陽電池は、環境にやさしく、安価で製作が容易であるため、太陽光エネルギー利用の有力な素子として見込まれている。この素子は、太陽光により色素を励起し、その励起電子を半導体へ受け渡して電流を流す。本研究では、光電変換効率を上げるために、トップダウン法で半導体フォトニック結晶を作成する事を提案する。半導体フォトニック結晶はルチル化した TiO_2 を用い、ITO ガラス基盤上に作成した。フォトニック結晶構造は太陽電池に使用する為に波長 630 nm にフォトニックフルバンドギャップを持ち、これを報告した（論文 2)。

３．量子暗号通信の為のシリコン微細導波路の作成

Si 微細導波路は、シリコンの非線形光学特性と半波長のコア 径によるシングルモードでの導波により、量子暗号通信をオンチップで行う為に最適と考えられる 。本研究の Si 導波路は、高度な作成技術を用いず、実用性が確保できる簡略化した作成方法を用い、 Si コア径 300 nm x 300 nm を持つ通信波長帯へのシングルモード導波を狙う。 1 mm 長の Si 微細導波路を作成する事に成功した。

ナノプロセスによる中低温作動固体酸化物型燃料電池材料の合成

橋本拓也
エネルギー班

固体酸化物型燃料電池は電極における白金触媒が不要でローコストおよび高温で作動するために高エネルギー変換効率を持つ事が知られている．しかしながら作動温度が 900～1000℃と高すぎるために長期安定性や材料選択幅に問題があることが問題となっている．作動温度が 600℃まで低下できれば上記問題点は一気に解決可能となる．本研究では低温作動化のキーマテリアルである電解質材料および空気極材料を開発することを試みている．特に従来知られている固相反応法では合成そのもの，あるいは高強度化や高密度化が難しかった物質について，ナノレベルでの混合が可能なプロセスを用いて合成を行い，新たな固体酸化物型燃料電池材料として応用可能か否かを検討している．

本年度は

１．新水素イオン導電体 $Sr_{1-x}Ba_xZrO_3$ の液相法による合成

２．新たな電極材料 $LaNi_{1-x}Fe_xO_3$ の合成

を試みたが本報告では主に 1 について報告する．

現在，固体酸化物型燃料電池の心臓部ともいえるイオン導電体は酸化物イオン導電体であるイットリア安定化ジルコニアが主に用いられている．本物質は化学的な安定性や強度に優れるという利点はあるものの，実用に耐える酸化物イオン伝導には 900℃以上の高温が必要であることが問題となっていた．本研究では酸化物イオンのような大きなイオンの移動には必然的に高温が必要であるものと考え，作動温度低温化のためには水素イオン導電性セラミックスを検討すべきとの結論に達した．

水素イオン伝導体として従来から注目されていたのは $SrZrO_3$ や $BaZrO_3$ などペロブスカイト構造を持つ物質である．$SrZrO_3$ の Zr サイトに Y など異種原子価イオンを部分置換して酸素欠損を導入したものは高い水素イオン伝導を示す事が報告されてきたが，本物質中には 3 種もの構造相転移があり，機械的安定性が問題となっていた．本研究では高温 X 線回折，走査型熱量計，示差熱分析，熱膨張計を相補的に用い，$SrZrO_3$ の相転移挙動を明らかにすることに成功した．また Sr サイトに Ba を置換していくと相転移温度を低温化でき，Ba 量 0.6 以上で室温～作動温度まで一次相転移のない物質を合成することに成功した．さらに固相反応法および液相混合法の比較を行い，液相法で合成した試料の方が高い焼結密度を示すことを明らかにした．これは Fig. 1 に示す $Sr_{0.4}Ba_{0.6}ZrO_3$ の SEM 像で，液相法で合成した方が固相法で合成したものより結晶粒が規則的に成長，facet が観測されたことと対応している．

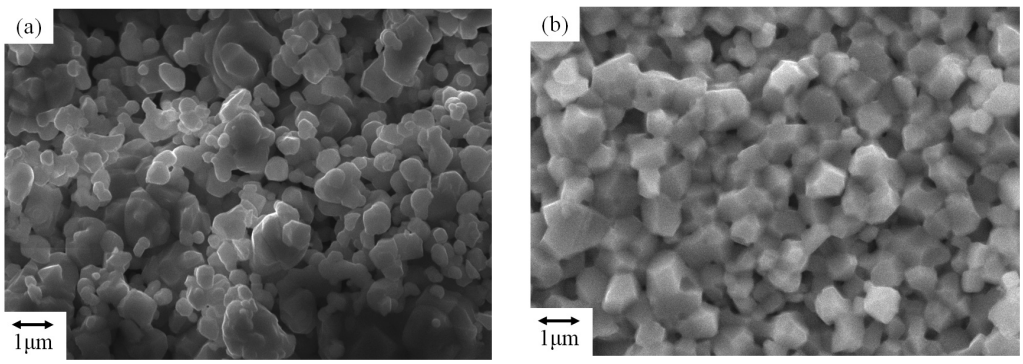


Fig. 1 SEM images of $Sr_{0.4}Ba_{0.6}ZrO_3$ ceramics prepared with (a) solid state reaction method and (b) liquid phase mixing method.

1. ゲノム化学に基づく PI ポリアミドの創薬開発
2. ヒト iPS 細胞のヒト TGF-β1 に対する PI ポリアミドによる誘導
3. 原発性アルドステロン症の分子イメージング開発

福田昇、井口晃史、斎藤孝輔、池田友紀博
医療班

共同研究先：生物資源科学部応用生物科学科生体制御科学、舛廣善和、花澤重正
フロリダ大学病理学教室　N. Terada, K. Shinohara

【目的】

1. ゲノム化学に基づく PI ポリアミドの遺伝子制御薬、遺伝子プローブとしての創薬開発の為、リード化合物の絞り込み、長期的薬物動態、副作用および特異性を検証する。
2. ヒト線維芽細胞から iPS 細胞を TGF-β1 に対する PI ポリアミドによる誘導を試みる。
3. 分子イメージングを用いた原発性アルドステロン症の診断法の開発を目的とする。

【研究内容】

1. PI ポリアミドの創薬開発

1) 被嚢性腹膜硬化症モデルにへの TGF-β1 に対する PI ポリアミドの効果

腹膜透析の合併症の被嚢性腹膜硬化症のモデルラットを作成し、TGF-β1 に対する PI ポリアミド（GB1203）を腹腔内投与した。GB1203 は投与回数依存性に腹膜肥厚を抑制した。肥厚した腹膜では TGF-β1, CTGF, fibronectin, VEGF mRNA 発現が亢進し、GB1203 は TGF-β1, CTGF, fibronectin mRNA 発現を抑制した。腹膜硬化をタクタイルマッピングで評価し、GB1203 は腹膜硬化のエラスティシティを有意に抑制した。

2)ヒト TGF-β1 に対する PI ポリアミドのリード化合物の絞り込み

ヒト TGF-β1 のプロモーターにシスエレメントに対し、7 つの PI ポリアミドを設計し、TGF-β1 の mRNA 発現抑制効果から GB1101, GB1105, GB1106 にリードを絞り込んだ。さらにヒト VSMC の TGF-β1, fibronectin、collagen type IV , CTGF mRNA の発現に対する作用、ヒト上皮細胞の EMT に対する作用を検討している。

2. ヒト iPS 細胞のヒト TGF-β1 に対する PI ポリアミドによる誘導

山中 4 因子による iPS 細胞メカニズムが TGF-β1 抑制による Mesenchymal Epithelial Transformation であることが 2010 年に判明したため、フロリダ大学 Terada Lab と N.研究プロジェクトで MTA 契約を行い、GB1105 での共同研究に入った。また生物資源科学部の花澤研とも TGF-β1 抑制に加え、E-カドヘリンまたは BMP-7 蛋白による iPS 細胞作成の N.研究プロジェクトでの共同開発を開始した。

3. 原発性アルドステロン症のアンチセンス PNA を用いた分子イメージング

マウス副腎皮質腫瘍由来細胞である Y1 細胞においては CYP11B2 の発現が認められ、ACTH 刺激により発現が増強される。 CYP11B2 に対するアンチセンス PNA は、CYP11B2 mRNA が発現した Y1 細胞に長期間とどまることが予想され、アンチセンス PNA により CYP11B2 mRNA 発現細胞を画像化することができる。 Y1 細胞 10^{-7}/cm^2、ACTH 刺激（10^{-6} M, 10^{-7} M or none）、PNA 添加（センスまたはアンチセンス）の条件で、培養液中のアルドステロン濃度測定および mRNA の抽出を行った。ACTH 刺激後 30 分程度でアルドステロン産生はピークに達するが、PNA 添加後の効果発現までには時間がかかると思われるので、 PNA 添加のタイミングに関しては要検討であった。

藤川和男

量子理論・計算班

今年度は、昨年からの継続である不確定性関係に関係した研究を主として行った。この不確定性関係は、量子情報理論におけるエンタングルメントの判定条件にも関係する量子論のもっとも重要な基礎的性質である。われわれの基本的な考えは、不確定性関係を量子論の物理的な基礎として捕らえるよりは、むしろ量子論の帰結の一つであり、したがって確率解釈で支配される性質であるとする点にある。　したがって、ある事象を選んだときに、その選び方によって見かけ上不確定性関係が大きく損なわれるような場合があってもよいと考える。そのような「都合のよい事象」が起こる確率は小さいと考えるわけである。この考えを推し進めれば、不確定性関係が破れているように見える事象を選択的に選んで、物理学的な目的に使うことも原理的に可能と思われる。事実、重力波の測定において、過去において提案された量子力学的な制約を越えた測定精度を出す可能性は、われわれの考え方では許され自然であることが結論される。

論文としては、昨年度 N.プロジェクトの RA であった現京都産業大学の PDF である梅津博士との共同研究を完成し国際雑誌に accept された。この他に、藤川単独の周期的な境界条件の下で不確定性関係をいかに定式化するかという、初歩的であるが非常に難しいことが知られていた問題に一つの解決を与えた論文を完成し出版した。また、日本語でも 3 篇ほど量子論および物理学における対称性の原理に関係した解説を書いた。

化学、生物学、物理学の融合による新規癌治療戦略

藤原恭子（永瀬浩喜）
医療班

我々の研究チームは、理工学部の大月グループとの連携によりナノバイオロジー、ケミカルバイオロジーを利用した疾病の診断・治療の試みを行い、いくつかの効果的な化合物を作製した。現在もその機能についての解析、および化合物の改良を続けている。

1. MYCN 下流遺伝子を標的としたピロール・イミダゾール（PI）ポリアミドによる神経芽腫治療

神経芽細胞腫(NB)は神経堤細胞を起源として発生する悪性腫瘍であり、小児腫瘍の中では白血病に次いで発生頻度が高く、小児悪性腫瘍の 20%を占める。発生後自然治癒するケースもあるが、生後 18 カ月以前に発見されるタイプのものには予後不良例の割合が高い。以前より NB の予後不良群の 30～50%に MYCN 遺伝子の増幅がみられることが報告されていた。一般的にコピー数が一細胞において 100 個以上に増幅しており、このことから MYCN の発現上昇は NB の進行に関与すると推定され、治療薬の標的として有望な候補であった。

我々は MYCN そのものの発現、もしくは MYCN が制御する下流遺伝子の発現を低下せる PI ポリアミドをそれぞれ複数設計し、その効果を NB 細胞株において検証した。PI ポリアミドは芳香族アミノ酸 *N*-methylpyrrole(Py) および *N*-methylimidazole(Im) で構成され、DNA に配列特異的に結合することが報告されている。Im/Py ペアは G・C を、Py/Py ペアは T・A および A・T を認識し、Im/Py と Py/Py の組み合わせ次第で多様な配列の DNA に結合させることができる。この PI ポリアミドを各遺伝子のプロモーター領域の転写因子結合部位に結合させることで、遺伝子特異的な発現抑制が可能である。

MYCN プロモーター領域の E2F および SP1 結合サイトを認識する PI ポリアミドの投与により、NB 細胞株 CHP134 における MYCN の発現が 60%抑制され、細胞増殖も 40%程低下した。また MYCN の認識サイトに結合する PI ポリアミド 5 種のうち 1 つが、どうように細胞の増殖抑制効果を示し、代表的な MYCN 下流遺伝子である ODC 1 の発現を有意に低下させた。現在この結果をマウスモデルにて検証すると同時に、より効果の高いポリアミドの開発を続けている。

2. PI ポリアミド-SAHA 融合分子による標的領域特異的なヒストン修飾の調節

遺伝子プロモーター領域のメチル化やヒストン修飾状態が癌細胞において変化していることが知られている。これらの Epigenetic な変化により癌関連遺伝子の発現状態が変化し、癌の進展につながると考えられる。これまでにヒストン脱アセチル化酵素（HDAC）阻害剤が開発され、そのいくつかは癌治療薬として実用化されているが、特異性 の面で課題が残されていた。 そこで我々は京都大学の杉山弘教授との共同研究により、HDAC 阻害剤である Suberoylanilide hydroxamic acid (SAHA)と、p16 のプロモーター領域に存在する配列 5’-TGCTGGC-3’ を認識する PI ポリアミドを架橋した化合物を合成した。この化合物（以下、PIP-SAHA）は HDAC 阻害活性を維持しており、細胞核内の標的配列領域近傍のヒストン H3 蛋白質のアセチル化を誘導することを明らかにした (Tetrahedron Letter 50 (52): 7288-7292, 2009.)。ヒト子宮頚癌細胞株への投与により細胞増殖を抑制する事が確認できた。現在、全ゲノム領域を網羅的なクロマチン免疫沈降法にてヒストン修飾状態特異性を確認し、 PIP の局在特異性をあげる PIP 標的配列決定の検討およびヒストンアセチル化誘導に効果的な PIP-SAHA の合成をおこなっている。

3. ヨウ素導入ポルフィリン化合物による癌の放射線治療

医療現場で行われている光線力学療法(PDT)は、腫瘍親和性のある光感受性物質を投与 後、腫瘍にレーザー光を照射し腫瘍細胞を特異的に死滅させる治療法であるが、レーザー光の深達度が浅く深部癌や進行した癌には適応がないこと、患者 が長期間暗室で管理されなければならない 等の問題がある。

我々は臨床で x 線撮影時の造影剤として使用されているヨード元素を、PDT で使用され腫瘍親和性のあるポルフィリン化合物に結合させることで新たな放射線増感剤による治療法の開発を試みた。具体的には PDT の新たな光感受性物質 HPPH(3-(1'-hexyloxyethyl)-3-devinylpyropheophorbide-a) にヨード元素を結合させた化合物(531 および 717)を用い、ヨードの K 吸収端に相当するエネルギーの X 線を照射して増感効果を調べた。培養ヒト膀胱癌株などのヒト癌細胞株に 531 および 717 を取り込ませた後 33.17keV の PXR を照射した。その後一定時間培養した後に生細胞数を計測したところ、ヨード化合物なしのコントロール照射群に比較してヨード化合物投与群で生細胞数がより減少し PXR による放射線増感効果が示唆された。ヒト子宮頚癌細胞株でも同様の結果が得られた。また既存の白色 X 線照射装置でも同様の増感効果が示唆された。現在、癌細胞を移植した動物個体において効果を検証中である。

自己集積・自己組織化現象を利用したデバイス作製の試み

松下祥子
超分子・自己組織班，エネルギー班

本研究では、自己集積・自己組織化現象による光・量子融合領域の未踏科学開拓と新規技術創出を目的とし、三つのテーマを行った。具体的には１）フォトニック結晶による色素増感型太陽電池効率向上の解明（超分子・自己組織班、エネルギー班）、２）微粒子自己集積体による光学・分析デバイス作製（超分子・自己組織班）、３）油水界面における自発的張力変動の現象解明（超分子・自己組織班）である。

１．フォトニック結晶による色素増感型太陽電池効率向上の解明

本年度は、色素増感型インバースオパール電極の粒径に依存した太陽電池特性測定ならびに電気化学インピーダンス測定を行った（Figure 1）。その結果、少なくとも本インバースオパール電極による光電変換効率向上はナノ/メソスコピック効果ではないことが示唆された。本研究は文理学部橋本研究室との共同研究であり、現在共著論文を提出中である。また、本発表の成果は Korean-Japan Joint Forum にてポスター賞を受賞した。

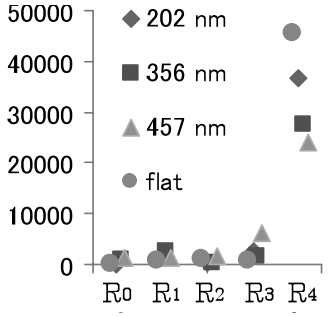


Figure 1. 色素増感型インバースオパール電極の粒径に依存した電気化学インピーダンス。R_0: 基板抵抗, R_1: 基板/酸化チタン界面, R_2: 酸化チタン微粒子間, R_3: 電極/電解液界面, R_4: 電解液拡散

２．微粒子自己集積体による光学・生物デバイス作製

微粒子自己集積体の新しい応用展開として、メタマテリアルならびに生物培養基板への応用を模索している。

メタマテリアルへの応用展開として、ポリスチレン微粒子を固体基板上に一層に配列させ、熱融着を利用してリング状構造体の作製を行った。まだ不十分な作製状態ではあるが、作製されたメタマテリアルの基材について招待講演を行わせていただいた。

また、微粒子自己集積体をテンプレートとして、外部応答により硬さや体積が変化するマイクロポケットヒドロゲルの作成を行った。本研究の展開として、 生物資源科学部の加納先生と打ち合わせを行った。

３．油水界面における自発的張力変動の現象解明

非平衡現象の一つである油水界面における自発運動は、 1987 年に Dupeyrat と Nakache によって発見されて以来多様な研究が成されている。しかしながら本自発運動には多様なパラメータが内包されており、明確に現象のメカニズムは解明されておらず反応の制御や応用力に欠けている。

一方、界面活性剤水溶液に塩類を添加することで遮蔽効果が生まれ、界面活性剤の集合体の形状はより安定性を増し、形状変化をすることが知られている。また、水相側に金属塩類を混入させることで、油水界面における電位の周期的な変化や油滴の周期的な振動現象が現れる報告例などもある。今回は界面活性剤水溶液に金属塩類を添加することで、界面活性剤の形状の安定性およびイオン流の影響の観点から油水界面における非平衡的な挙動のメカニズムを探った。

光線力学治療化合物の薬物体内動態/薬効モデリング

青山隆彦，松本宜明
医療班

癌ゲノムにおける特異的な遺伝子増幅領域を利用した診断および治療化合物および光線力学療法とコヘーレント X 線照射技術の融合による新たな治療化合物の体内動態/薬効モデリングを目的とし，生体試料中濃度測定法の開発とともに，薬物体内動態，レーザー光線照射エネルギー密度および薬効の関係を検討している．

１．腫瘍親和性光感受性薬物タラポルフィンの薬物体内動態/薬効モデリング

腫瘍親和性光感受性薬物タラポルフィンの血中薬物濃度，レーザー光線照射エネルギー密度，治癒率の関係のモデリングを検討した．現在，光線力学療法により患者を対象とし治療が行われているが，レーザー光線照射エネルギー密度や薬物の投与量は，限られた条件で行われた臨床試験を根拠に決定されている．これらの関係のモデルを構築し、様々な条件における治療効果をシミュレーションすることにより，より治療効果が高い条件での治療を行うことが可能となる．医薬品開発過程においては，モデルを元に臨床試験や動物実験を計画することにより，試験の成功確率が高くなる．本研究では，腫瘍モデルマウスを用いてタラポルフィンの血中薬物濃度推移およびレーザー光線照射後の腫瘍治癒率を検討した文献より，タラポルフィンの血中薬物濃度推移および治癒率データを抽出し、得られたデータをもとにタラポルフィン体内動態モデルを構築した。さらに、レーザー光線照射密度と治癒率の関係を最大効果モデルにより記述した（図 1)．構築したモデルによりシミュレーションしたモデル予測値と実測値は近い値が得られた（図 2)．

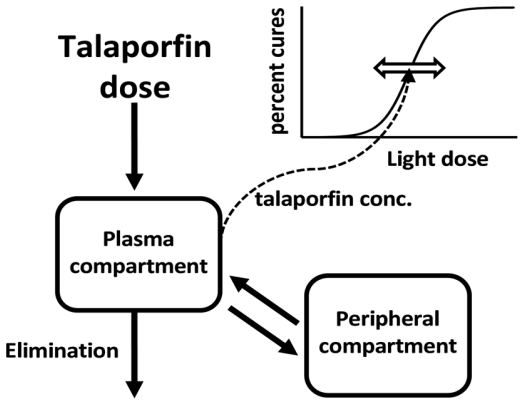


Fig. 1

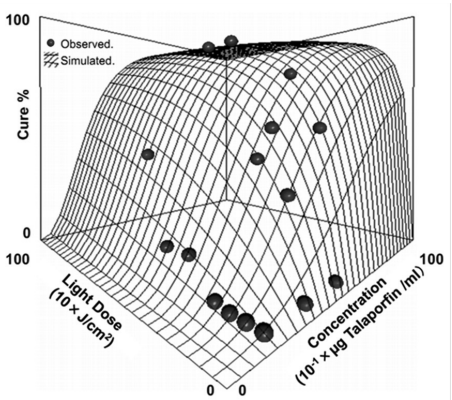


Fig. 2

金属酸化物の紫外レーザー光誘起現象

望月章介
共同研究者：吉田芳，齋藤誉司，水谷文人
ナノ物質・ナノデバイス班

物質の状態や物性に光による制御及び新しい物質状態の探索の研究は内外で盛んに行われてきた．この種の研究では，物質を適当な温度にしておいてレーザー光による光励起のみで光誘起相転移や光誘起局所的構造変化を起こさせようとするタイプの研究が主流である．他方，これとは異なり我々の研究では，化学反応や触媒反応も含めて起こる光誘起局所的構造変化を期待して，物質周りの雰囲気の種類を選んで紫外光励起によって起こる現象を探索しようとしている．これまでに対象にした物質試料は希土類金属酸化物（Eu_2O_3，Sm_2O_3，Nd_2O_3，CeO_2），酸素貯蔵物質（CeO_2-ZrO_2），遷移金属酸化物（$SrTiO_3$，TiO_2，Fe_2O_3，CoO，NiO ほか），その他金属酸化物（MgO，SiO_2 ほか）等の固体，薄膜，ナノ粒子である．

1. 実験

実験のセットアップの概略を図 1 に示す．実験ではダイアフラム型真空ポンプとターボ分子ポンプより成るオイルフリーな真空排気装置で試料室を排気し，所望の種類の雰囲気ガスを導入できるようにしてある．紫外光励起（照射）は連続発振 He-Cd レーザー（発振波長=325 nm，出力=20～50 mW）を用いた．試料よりの発光は光マルチチャンネルアナライザー（1024ch のイメージインテンシファイアー・フォトダイオードアレイ・CCD）を用いている．実験はすべて室温で行った．

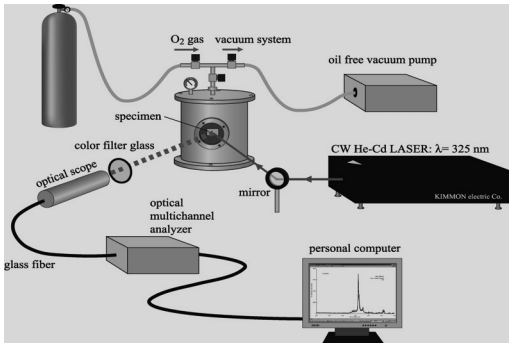


図 1　実験のセットアップ

2. 結果

例えば，赤色発光体である Eu_2O_3 を真空中で He-Cd レーザー装置よりのレーザー光で照射し始めるとルミネッセンス色は白色に変化していく .この色の変化はレーザー光の照射が無ければ雰囲気をどのように交換しようとも長期間保存さ れる．すなわち，赤色発光体に情報を白色のドット記憶できることを示唆している（光情報の記録）．また，酸素中で照射すると元の発光色に戻る（メモリーの消去）．これらの現象は時間を要するのが特徴である .また，連続発振レーザー光の照射が必須で，パル光照射では起こらない．そして，この現象には光照射に伴う原子放出（原子吸着），欠陥生成（欠陥消滅），価数変化，光触媒機構等のいずれかが関与していると考えられる．

特に今年度は望月，吉田，齋藤は 種々の金属酸化物のフォトルミネッセンススペクトル特性を酸素ガス，真空，炭酸ガス等の雰囲気中で測定し，多くの金属酸化物で炭酸ガスはフォトルミネッセンス強度を増加させることを見つけた．この現象は金属酸化物のフォトルミネッセンス特性の改善や温暖化ガスである炭酸ガスの固定や吸着・脱離の光制御に応用できる可能性がある．

また，水谷は金属酸化物の光触媒性評価装置を自作し，TiO_2 や $SrTiO_3$ ほかの金属酸化物の光触媒特性の評価を行っている．

中間層に任意の不均質誘電体構造を持つ誘電体導波路の伝搬特性

山﨑恒樹
量子理論・計算班

●本年度の研究計画

本年度の研究計画は、中空導波路内に任意誘電体構造を設けたフォトニックバンドギャップ構造による伝搬問題を高精度に解析し、中空層の不均質媒質体がフォトニックナノ構造の伝搬特性に及ぼす影響を検討する。

●本年度の成果

本研究では，図１のように、中間層に任意の不均質誘電体構造をもつ多層誘電体グレーティングの伝搬問題をフーリエ級数展開法と多層分割法によって解析した。

数値解析では、伝搬モードの相違，誘電体の誘電率を変化した場合の伝搬特性を解析し、形状変化による伝搬特性の基礎特性を得た(論文投稿予定)。

具体的に図 2 の形状(b)の場合、中空層の誘電率を変化した時の、規格化伝搬定数 $(\beta p/2\pi)$ と規格化減衰 $(\alpha p/2\pi)$ で、図３に TM_0 モード，図４が TE_0 モードである。同様に図 3 は周波数特性である.比較として円柱誘電体の結果も示してある。図３と図４から次結果が得られた。

(1)誘電率を変化すると，等価的な誘電率は大きくなる為，Stop-band 領域は低周波数側に移動する。誘電率分布の違いは Stop-band 領域上部の周波数で現れる。

(2)TE_0mode では，円柱と三角柱の等価誘電率が等しい場合には特性の影響は現れない。

(3)TM_0mode では，形状の違いが特性に影響し Stop-band 領域が広くなる。

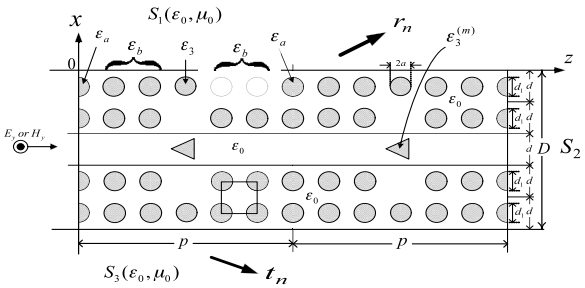
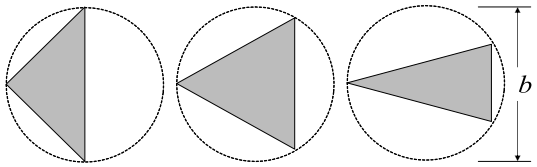


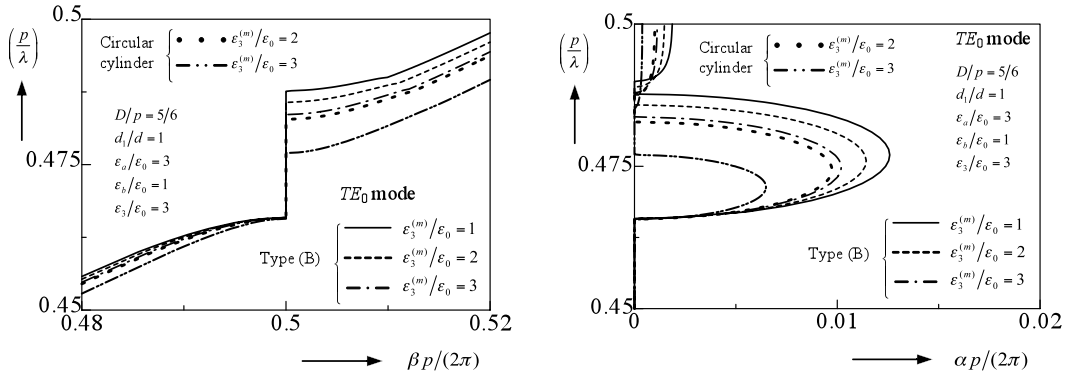
図 1 中間層に任意の不均質誘電体構造を持つ誘電体導波路の構造と座標系



(a)形状(A)　(b)形状(B)　(c)形状(C)

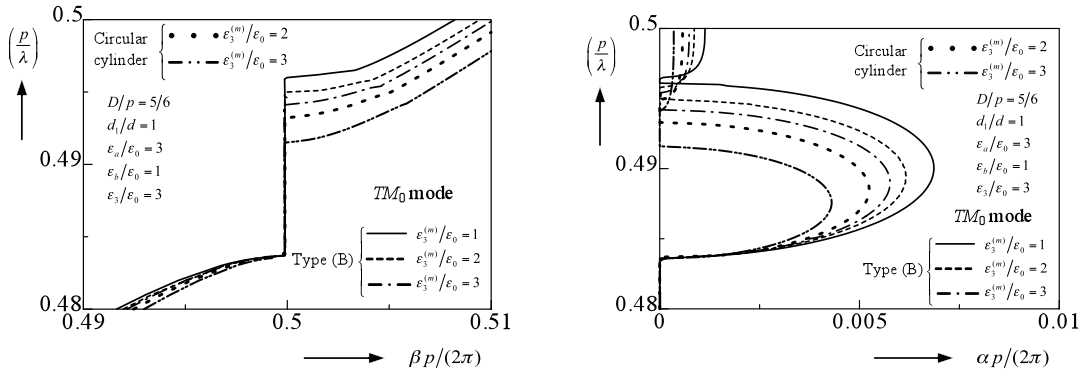
図 2. 任意の不均質誘電体構造

文献(7)：尾崎，山崎，日向；電気学会電磁界理論研究会資料，EMT-10-163，pp.43-48（2010）.



(a)規格化位相定数　(b)規格化減衰定数

図３ 構造(B)の場合における規格化周波数に対する規格化伝搬定数 $\gamma(:=\beta+i\alpha)$ ；TE_0 mode



(a)規格化位相定数　(b)規格化減衰定数

図４．構造(C)の場合における規格化周波数に対する規格化伝搬定数 $\gamma(:=\beta+i\alpha)$ ；TM_0 mode