

## 班の報告

➤ 情報（記憶）班 .....	29
➤ 情報（量子情報）班 .....	33
➤ エネルギー班 .....	37
➤ 医療班 .....	39
➤ 超分子・自己組織班 .....	42
➤ ナノ物質・ナノデバイス班 .....	44
➤ 量子理論・計算班 .....	49

情報（記憶）班：超高密度超高速記録の基盤

中川活二\*, 伊藤彰義, 塚本新

1. 研究目的

情報（記憶）班では、省エネルギーで高効率情報記憶のために、超高密度超高速記録の極限追求のための基盤研究を推進する。

2. 平成 21 年度（2009 年度）の目標と成果

2.1 磁性金属における光誘起磁化現象応答物質，発現条件の探索

- ・磁気光学感受率の大きな材料として、フェリ磁性希土類遷移金属合金に着目。
- ・磁気光学効果による超短時間応答の計測が可能である事を確認。
- ・光誘起磁化応答を検討するうえで不可欠となる、GdFeCo 膜の角運動量補償現象に起因する実効的磁気回転比，実行的ダンピング定数の増大効果を確認。(Fig. 1)
- ・光誘起超高速磁化反転現象発現条件の理論・実験結果を Physical Review Letters 誌に発表。

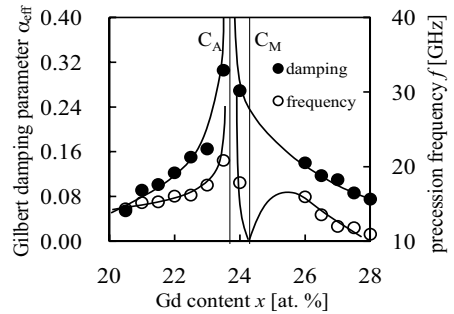


Fig. 1 Compositional dependence of damping parameter  $\alpha$  and precession frequency  $f$

2.2 超短パルス光利用極時間磁化応答のスペクトロスコピック計測

- ・超短パルス光源部を中心にスペクトロスコピック計測可能なシステムへと総合的改良実施。
- ・非線形光学効果利用による波長変換用 OPA を導入し、235 nm～1600 nm の波長範囲で半値全幅 100 fs の高輝度超短パルス光を出射可能とした。
- ・システム改良で磁化動特性のポンプ・プローブ計測が可能である事を確認。
- ・GdFeCo 試料に対しプローブ波長 420nm での実験を進行。

2.3 近接場光利用記録

- ・記録媒体昇温過程の記録媒体構造依存性をシミュレーションにて検討。
- ・粒子状媒体配列構造で、記録部とその他領域の温度差を 65% とすることが可能。
- ・記録時の近接場光発生アンテナと記録粒子との位置関係と昇温条件を調査。(Fig. 2)
- ・表面プラズモン共鳴の円偏光モードを形成可能な 4 回対称性のアンテナ提案。

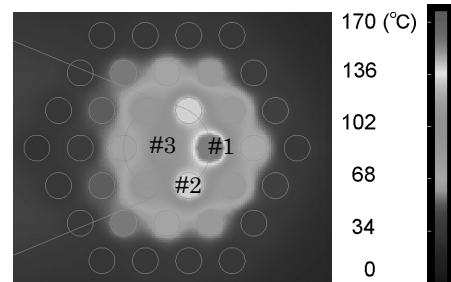


Fig. 2 Temperature increase of metallic particles heated surface plasmon antenna.

2.4 磁気微粒子形成

- ・作製したテンプレート基板を用いて平均粒子直径 14.8 nm，粒子数密度 0.74 T particles/inch<sup>2</sup> を実現した。

2.5 トピックス

- ・H21 年 6 月塚本，伊藤らが MORIS2009 において Best poster Awards を受賞。
- ・H21 年 9 月 11 日付けで，塚本，伊藤らの執筆論文が，PHYSICAL REVIEW LETTERS 誌 (Vol. 103, P. 117201) に採録。
- ・同上の論文は「Selected for a Viewpoint in Physics」に選出された。
- ・同上の論文は，Riccardo Hertel 氏執筆による解説記事 “For faster magnetic switching—destroy and rebuild” が American Physical Society 発行 “Physics -spotlighting exceptional

research-”誌 Viewpoints に掲載された

- ・ H22 年 1 月 29 日開催日本磁気学会 第 170 回研究会「光と磁気のシナジー技術」～次世代ストレージ・光機能磁性デバイス実現のための新技術動向～において、伊藤彰義と塚本新がそれぞれ独立に招待講演。

### 3. 平成 22 年度（2010 年度）の目標と成果

#### 3.1 磁性金属における光誘起磁化現象応答物質，発現条件の探索

- ・ 超短パルス光励起偏光顕微鏡装置を構築し光誘起磁化反転現象を確認するとともに (Fig. 3)，磁性層厚 20nm の超薄膜 TbFeCo 材料で垂直磁気異方性を発現する組成域において光誘起磁化反転現象が発現することを明らかにした。

#### 3.2 超短パルス光利用極短時間磁化応答のスペクトロスコピック計測

- ・ サブピコ秒時間領域での光学応答現象計測の縦プラズモン応答評価装置整備完了。
- ・ フェムト秒パルスレーザー光源によるポンプ・プローブ時間分解計測システムを構築。
- ・ 磁化動特性については、磁気ファラデー効果、磁気カー効果で計測。
- ・ 電子温度解析は、電子温度依存誘電率変化に伴う透過率、反射率の変化率で計測。

#### 3.3 近接場光利用記録

- ・ 大貫准教授の協力で、ナノスケール分散性媒質電磁界過渡解析手法を確立。  
→三次元任意形状物体のプラズモン共鳴周波数推定や過渡応答解析が可能。
- ・ 円偏光モード発生アンテナ構造を複数抽出。
- ・ 十字形アパチャーと粒子記録媒体との組み合わせで局所的な円偏光モード生成可能。(Fig. 4)

#### 3.4 磁気微粒子形成

- ・ 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 上で実現する基礎実験に成功した。
- ・ 超微小シリカ粒子配列膜の作製を実現。
- ・ 超微小シリカ粒子配列膜をマスクとした ICP エッチング、熱酸化 Si 基板上への転写構造の作製に成功。

#### 3.5 トピックス

- ・ 本プロジェクトの成果を出願（特願 2010-161996）。
- ・ 上記内容を、国際会議（55th Annual Conference on Magnetism & Magnetic Materials, 14-18 November 2010, Atlanta, Georgia, USA）にて発表（GE-08）。

### 4. 平成 23 年度（2011 年度）の目標と成果

#### 4.1 磁性金属における光誘起磁化現象応答物質，発現条件の探索

- ・ 超短パルス光照射後数十 ps に渡る光・磁気応答の層構成依存性より高速エネルギー伝達機構に導電金属層の存在が重要な働きを担う事を解明。

#### 4.2 超短パルス光利用極短時間磁化応答のスペクトロスコピック計測

- ・ モーションコントロールシステムで微動機構を導入。

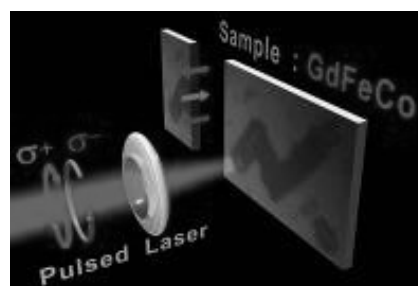


Fig. 3 The demonstration of all-optical information recording on magnetic media.

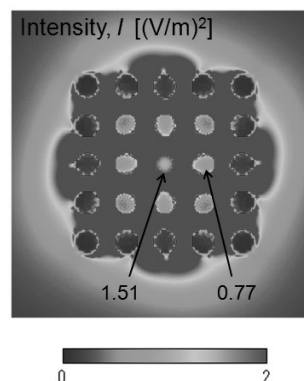


Fig. 4 A simulation result as a generated circularly polarized light into a center particle.

- ・ポンピングとプロービングの位置制御を高精度で走査実験可能とした.
- ・レーザシステム同期で、磁場印加可能な微小コイルシステム試作.

#### 4.3 近接場光利用記録

- ・磁性記録膜上針状アンテナを配置によるフェムト秒光パルスで記録実験を開始.
- ・同上の構造で、電磁界・熱伝導シミュレーション計算を実施.
- ・十字形開口やクローバー形開口で粒子記録材料に円偏光を生成する構造を見いだした.
- ・直線偏光による円偏光を生成十字形アンテナの検討実施.

#### 4.4 磁気微粒子形成

- ・金属膜上にシリカナノ構造を形成し、各種エッチングガス種・条件による加工実験に着手.

#### 4.5 トピックス

- ・国際会議 (MORIS2011, June 21-24, 2011, Nijmegen, The Netherlands) において、理論・計算 Gr.の大貫准教授との連名発表を含めて、熱アシスト記録実験、高速磁化反転ダイナミクス、局所円偏光生成に関して4件の発表.
- ・磁気微粒子媒体作製及び高速磁化反転ダイナミクスに関して、国際会議 (Moscow International Symposium on Magnetism, Aug. 21-25, 2011, Moscow, Russia) で2件の招待講演.
- ・プラズモン励起の過渡応答現象解析手法の成果を国際会議 (IEEE International Symposium on Antennas and Propagation and CNC/USNC/URSI Radio Science Meeting, July 5-6, 2011, Spokane, Washington, USA) 等で発表.

### 5. 平成24年度(2012年度)の目標と成果

#### 5.1 磁性金属における光誘起磁化現象応答物質、発現条件の探索

- ・フェリ磁性 GdFeCo を用いて、極短時間の熱エネルギー供給のみで磁化反転可能な新規スピンドダイナミクスを見出した. (Fig. 5)

#### 5.2 近接場光利用記録

- ・世界初のフェムト秒レーザによる近接場熱アシスト磁気記録実証実験に成功.
- ・166 nm × 120 nm の記録マークを実現.
- ・エネルギー伝搬効率を向上するプラズモン利用光学系を提唱. (Fig. 6)
- ・上記構成でも円偏光生成を実現できることも新たに見いだした.

#### 5.4 磁気微粒子形成

- ・急速昇温結晶化処理による高磁気異方性 FeCuPt 規則合金微粒子単結晶化を検討.
- ・ナノ磁性粒子化後、適切な追加熱処理で単結晶 FeCuPt 規則合金微粒子が形成可能.

#### 5.5 トピックス

- ・国際会議 (ICM2012, July 8-12, Pusan) にて高磁気異方性材料の成果を発表.
- ・国際会議 (ICAUMS2012, Oct. 1-5, 2012, Nara) において、世界初のフェムト秒熱アシスト近接場光記録の成果を含め、高速磁化反転ダイナミクス、記録媒体、局所円偏光生成に関して6件の発表.

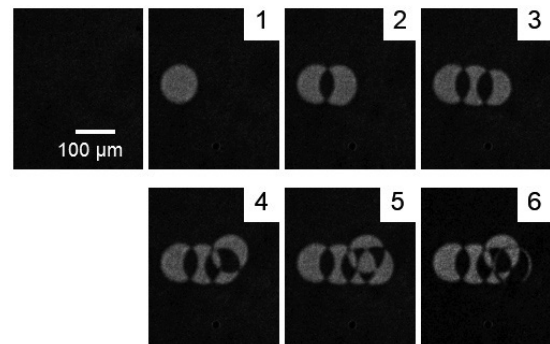


Fig. 5 Magneto-optical image of magnetic domains after single pulse laser irradiations.

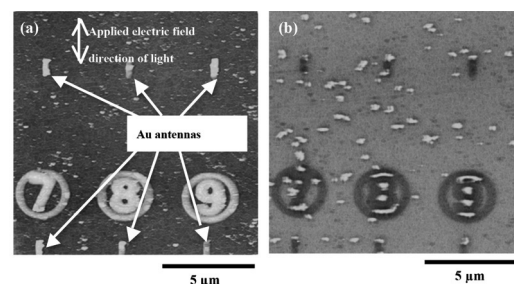


Fig. 6 Surface morphology (a) and written magnetic domains (b) observed by magnetic force microscope for rod plasmon antennas.

## 6. 平成 25 年度 (2013 年度) の目標と成果

### 6.1 磁性金属における光誘起磁化現象応答物質，発現条件の探索

- GdFeCo フェリ磁性体における光誘起磁化現象の内，円偏光フェムト秒パルスレーザーによる偏光依存全光型磁化反転現象 (AO-HDS: all-optical light helicity-dependent magnetic switching) は，正味の磁化ではなく副格子磁化に相関がある事を見出し，さらに，円二色性に基づく AO-HDS の説明を導いた。

5.1 節で述べたように，フェリ磁性体への超短時間加熱により副格子磁化構造に起源を持ち磁化反転を誘起する事が可能である。本研究結果は，副格子磁化構造を有する磁性体が MCD による偏光依存光吸収特性により，偏光依存磁化反転を生じるものと考えたと実験事実と対応する事を示している。さらに，高磁気異方性を有する TbFeCo 磁気記録媒体においても超短パルス円偏光により磁化反転が可能である事を明らかにした。

### 6.2 近接場光利用記録

- 前年度記録を更新し，最小磁区  $62 \text{ nm} \times 67 \text{ nm}$  を得て，プロジェクト最終目標 ( $77 \text{ nm} \times 77 \text{ nm}$ ) を越える結果を出し，目標を達成した。(Fig. 7)
- 十字形アンテナ，十字形アパチャー，クローバー形アパチャーが円偏光生成に最適。
- 電子ビーム露光による十字形アパチャーの試作に着手し，これを継続。

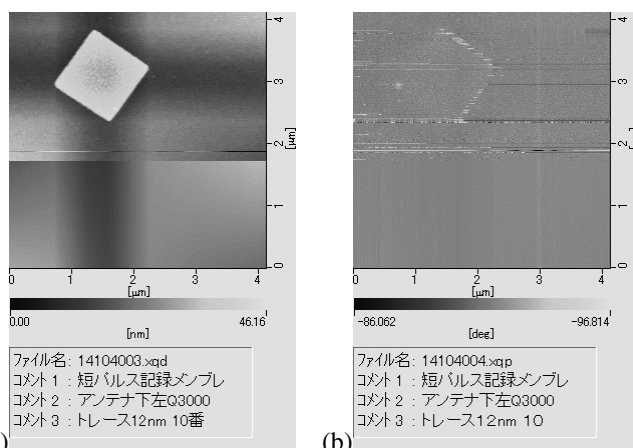


Fig. 7 Surface morphology (a) and written magnetic domains (b) observed by magnetic force microscope for square plasmon antennas.

### 6.3 磁気微粒子形成

- 急速昇温加熱法を用いた高磁気異方性 FeCuPt 規則合金微粒子形成において，自己組織/集積形成ナノテンプレート基板を用いる事で，完全孤立磁性微粒子の面内粒子数密度を著しく増大し， $5.4 \text{ T particles/inch}^{-2}$  を得た。また，急速昇温加熱法の詳細検討から，所望の体積の孤立磁性微粒子を形成する際，製膜熱処理プロセスを複数回に分ける事により，微粒子化，高粒子数密度化が可能である事を見出し，平坦熱酸化 Si 基板上でも平均粒径約  $10 \text{ nm}$  において面内粒子数密度約 4 倍の増加により  $3.2 \text{ T particles/inch}^{-2}$  を得た。

### 6.4 トピックス

- 中川，芦澤，塚本，伊藤，大貫が，日本磁気学会誌 (J. Magn. Soc. Jpn., Vol. 37, 119-122 (2013)) に発表し，平成 25 年度の論文賞を受賞した。

情報（量子情報）班

桑本剛\*, 羽柴秀臣, 行方直人

1. 研究目的

量子情報班では、従来の限界を超えた大容量の通信やスーパーコンピュータを遙かに凌ぐ極限高速計算、原理的に盗聴や解読が不可能な極限暗合通信の実現を目指して、量子力学の原理に基づく情報処理技術の極限追求を研究目的に据えた。量子情報処理は非常に高いエネルギー効率を実現できるという側面もあり、本研究は情報通信におけるグリーンイノベーションに大きく貢献できるものである。具体的な研究内容としては、光子検出、量子鍵配送、量子メモリ、量子ドットデバイスなどの開発・高度化を行った。以下に各研究開発の成果を述べる。

2. 研究の進捗および成果

(1) 光子検出技術の開発

量子 ICT において最重要基盤技術は光子検出技術であり、既設光ファイバ網を利用するためには、光ファイバの最小光損失波長帯である 1550 nm 帯における高感度かつ低雑音な光子検出技術が必須となる。我々は光検出器としての nGaAs/InP なだれフォトダイオード (APD) の簡便性および実用性に着目し、単一光子検出器として用いるための開発を行った。本素子の最大の弱点は高いアフターパルス雑音と低い繰り返し周波数である。独自に考案した「正弦電圧ゲート動作」(以下 SG) により、この問題を克服した。繰り返し周波数は従来の 3 桁近い改善となる 2 GHz を達成し、アフターパルス確率~3%, 単一光子検出効率 10% 以上、暗計数確率  $10^{-7}$  を達成した (*IEEE Photo. Tech. Lett.* 2010; *Opt. Express* 2011)。

SG 手法をシリコン APD にも応用し極めて高いなだれ降伏確率 (97.6%) を実現した。これは、可視域領域における超高効率光子検出に繋がる成果である。(*Appl. Phys. Lett.* in press).

高度な量子 ICT では、同時入射される光子数を識別することが要求されるが、上記の単一光子検出器は光子数識別能を持たない。我々は産総研と共同で光子数識別能を有する光子検出器、「光子数識別器」の開発も行った。チタン薄膜を用いた超伝導転移端センサを開発し、1550 nm 帯における 80% 以上の検出効率、0.2 eV 以下の高光子数分解能を達成した。開発した光子識別器を用い、通信波長帯における非ガウス状態の生成に成功した (*Nature Photonics*, 2010, 図 1)。

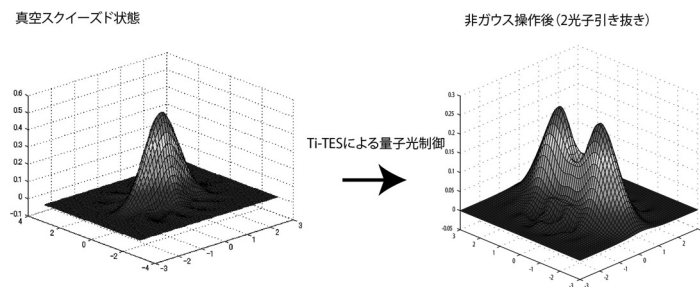


図 1 非ガウス状態の Wigner 関数

(2) 量子鍵配送実験

SG 手法によって動作させた InGaAs/InP-APD を用いた量子鍵配送実験を実施した。量子鍵配送系には NTT 物性科学基礎研が開発した差動位相シフト量子鍵配送 (DPS-QKD) システムを用いた。システム動作速度は開発した光子検出器の最大繰り返し周波数である 2GHz とした。本系で量子鍵配送実験を行ったところ通信可能な距離は 160km であることが解り、これまでの InGaAs/InP-APD による量子鍵配送実験において最大となった。距離 100km の通信実験においては安全鍵配布率 24 kbps を記録し、超伝導素子を用いた記録 (17 kbps, 2007 年) を塗り替えることに成功した (*Opt. Express*, 2011)。また、10 km の短距離であれば 1

Mbps を超える高速量子鍵配送も可能であることも明らかにした。

本実験により都市圏光ファイバネットワークを用いた量子鍵配送が可能となったことが明らかとなった。しかし、今回用いたような単一光子伝送による量子鍵配送方式では、理論的にさらなる長距離伝送 (> 400km) は困難であることが判明している。そこで、長距離量子鍵配送が可能となる、量子もつれ光子対を用いた量子鍵配送システム（量子中継技術）の開発も行った（図 2）。

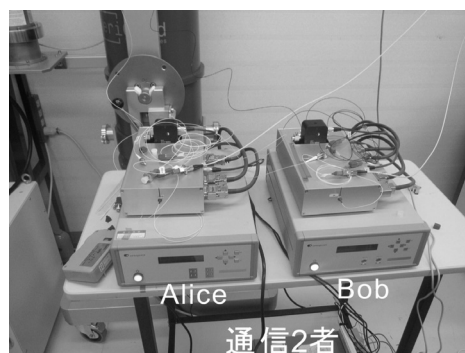


図 2 偏波量子もつれ量子鍵配送システム

### （3）量子中継技術の開発

長距離量子鍵配送を実現するためには量子中継技術が必須となる。量子中継は、量子もつれ交換、量子メモリ（ストレージ、バッファ）、量子非破壊測定 of 3 つの要素技術からなる。先ず、高忠実度量子もつれ交換技術の開発を行った。これまでに可視光領域における原理検証実験に関する報告は多数あるものの、光ファイバ通信への応用を前提とした実験的研究は数例のみである。それは強い識別不可能性を持つ通信波長帯量子もつれ光子対発生とその検出技術の困難さに起因する。本研究では、それら技術的課題を克服し、高忠実度量子もつれ交換技術を通信用波長帯で実現することを試みた。

周期分極反転ニオブ酸リチウム(Type-II 型位相整合)をフェムト秒レーザーで励起することで、時間的、空間的、スペクトルの(中心波長:1550 nm, 帯域幅:5 nm)に識別不可能な量子もつれ光子対の発生に成功した。その量子もつれ光子対発生系を 2 つ用意し、量子もつれ交換実験を実施した。量子もつれ交換後の量子もつれ純度 $\sim 0.9$  を実現し、これまでの通信波長帯における記録( $\sim 0.75$ )を大きく更新した (*J. Phys. B*, 2013)。また、その量子もつれ純度は量子もつれ交換を通した後も量子鍵配送が可能となる水準であり、長距離量子鍵配送実現に向け大きく前進したと言える。

前述の実験では、量子もつれ交換成功確率は  $10^{-6}$  と非常に低く、その高効率化が大きな課題である。量子メモリ（ストレージ、バッファ）技術がそれを克服するための鍵となる。今回、ファイバースワッチによる単一光子バッファの開発に着手した。図 3 に示されるように光ファイバと低損失光学素子によって構成されるため、非常に簡素かつ低損失であり、能動的な操作なしに量子状態（偏波）を保持したままプログラマブルな時間遅延を与えることが可能である。

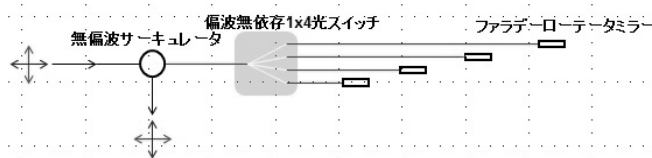


図 3 光スイッチを用いた単一光子バッファ

### （4）量子メモリの開発

#### （4-1）直交偏光光子対生成装置の開発

量子もつれ状態は直交偏光光子対を用いて生成する。また、原子中へ光を保存するためには、その波長が原子の特定の遷移に共鳴し、かつ線幅が遷移スペクトル幅程度である必要がある。我々が用いる  $^{87}\text{Rb}$  原子の場合、遷移波長は 795 nm であり、遷移スペクトル幅は 6 MHz 程度である。これらの波長・線幅をもつ直交偏光光子対を生成するために以下の開発研究を行った。

波長 795 nm の直交偏光光子対は、非線形結晶（type II PPKTP）に波長 397.5 nm のポンプ

光を入射し、自然パラメトリック下方変換を起こさせて生成した。ポンプ光は、非線形結晶 (type I PPKTP) を蝶ネクタイ型共振器内に設置し、波長 795 nm, パワー60 mW のレーザー光を入射し発生させた。ポンプ光の出力は 6 mW であり、共振器を用いない場合の 3 倍の出力を得た。数 THz 程度ある直交偏光光子対の周波数広がりを見窄化するために、複数の光学フィルターおよび 2 枚のエタロンを用いた。

直交偏光光子対の量子性を確認するために、二光子干渉測定を行った (図 4)。量子性の指標であるビジビリティを求めたところ 97.4% であり、高品質な直交偏光光子対が生成できた。さらに、直交偏光光子対の周波数広がり の程度を確認するために、直交偏光光子対を原子に共鳴吸収させる実験を行った。Rb ガス温度が 95°C のとき約 97% の光子対が吸収された。これにより、光子対の周波数は、セル中 Rb 原子の吸収スペクトルのドップラー広がり程度 (約 500 MHz) まで狭窄化されていることが確認できた。

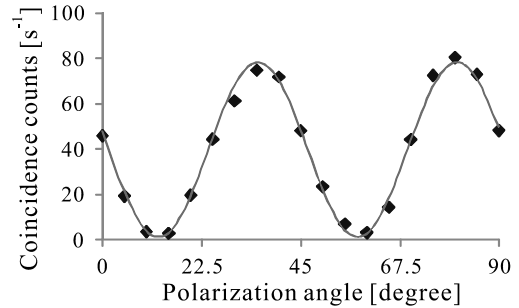


図 4 直交偏光光子対の二光子干渉

(4-2) 光保存装置の開発

原子を用いた光の保存では、電磁誘起透明化と呼ばれる現象を利用する。この現象では、3 準位原子に波長の異なる 2 種の共鳴光を入射し、一方の光 (コントロール光) の強度を操作することで、もう一方の光 (プローブ光) を原子中に保存することができる。3 準位原子として基礎データが豊富な <sup>87</sup>Rb を用い、簡便な装置構成にするために、ガラスセルに封入した原子サンプルを採用した。

プローブ光およびコントロール光として、波長 795 nm の 2 台の外部共振器型半導体レーザーを用いた。コントロールレーザーは Rb 原子の共鳴線に周波数ロックし、線幅を 1 MHz 以下に抑制した。プローブレーザーはコントロールレーザーと光位相同期させることで、2 台のレーザーの相対周波数揺らぎを抑制した。光保存の妨げとなる地磁気等の外部磁場を排除するため、Rb セルを 3 重のパーマロイ製の磁気シールド内に設置した。また、磁場を発生させないために温水セル温度制御システムを導入した。

プローブレーザー光とコントロールレーザー光を同軸に伝搬させ Rb セルに入射し、コントロールレーザー光を瞬時に遮断することで、プローブレーザー光を Rb 原子内に保存する。一定の時間が経過したのち再びコントロールレーザー光を入射すると、プローブレーザー光が再生される。図 5 に保存時間 5 μs の場合の光保存・再生の実験結果を示す。レーザー光の再生効率は 85% であり、高効率の光保存・再生システムが構築できた。

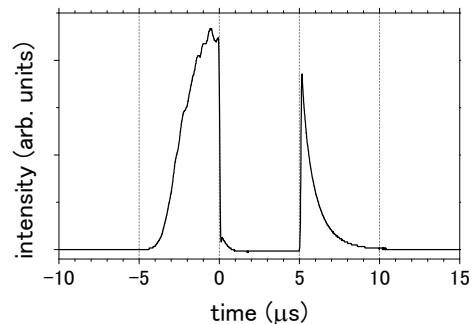


図 5 レーザー光の保存・再生。右側ピークが 5 μs 保存したのち再生された光。

直交偏光光子対の強度は極めて微弱であり、現行の実験系でこれを保存できるかを検討する必要がある。通常のレーザー光を用いてどこまで微弱なレーザー光の保存が現行システムで可能かを検証した。プローブレーザー光パワー2.6 nW のとき、再生光がほぼ確認できなくなった。直交偏光光子対は pW レベルのパワーと考えられるので、現行システムでの直交偏光光子対の保存・再生は難しいと考えられる。



### (5) 量子ドットによる量子デバイスの開発

単一光子源としてのコロイダル CdSe 量子ドット, シリコン (Si) 及び金 (Au) 微細導波路, 単一光子測定素子を 1 基板上にパッケージ化させた, 他に類を見ない室温動作光量子理論回路を実現することを目的とし, 2 つの部分課題, (1) Si 微細導波路の開発, (2) CdSe 単一光子源の開発を追及した. ICP による SOI 基板の加工を行い, 波長 630 nm の入射光子のシングルモード条件を満たした断面 320 nm 角, 長さ 1 mm 以上の Si 微細導波路の作成を目指した. この導波路のサイドウォールラフネスは 10 nm 程度と見積もられる. しかしながら次の技術的検討課題が明らかになり, 本プロジェクト期間中での改善は難しい. 電子線フィールド繋ぎ描画による Au 薄膜導波路およびストライプ結合構造をもつ素子の作成において, 繋ぎ精度が約 100 nm と大きく, 1 mm 以上の測定可能な素子の作成は難しいことがわかった. しかし手動でのマーク検出を用いた描画では繋ぎ精度を 50 nm 以下に抑えることがわかり, 現在観測可能な素子の作成を急いでいる. これは Au ナノストライプ方向性結合器の作成でも問題となっている. 上記と平行して, 単一光子源に用いる CdSe コロイダル量子ドットの導波路とのカップリングを想定した二次元配列化に着手した. 電子線レジストを用い, 量子ドットを幅 50 nm 程度の準二次元上に 1.5  $\mu\text{m}$  の長さでアレイ状に並べることに成功した. 現状ではアレイ状の量子ドットは二次元構造をとっていないが, 導波路とのカップリングには十分と考える. また, この量子ドットは 37 nm 厚の Au 薄膜からのポンプ光起源エバネッセント光と量子ドットへのカップリングを確認した.

### (6) フォトニック結晶の開発

我々は色素増感型太陽電池の高効率化のために TiO<sub>2</sub> 二次元フォトニック結晶を FTO 基盤上に作成することを目指し, 電子線レジスト上の微細マスクへの TiO<sub>2</sub> 微細構造の直接製膜技術の開発と評価を目的とした. TiO<sub>2</sub> フォトニック結晶構造の作成における核心技術である TiO<sub>2</sub> スパッタ製膜法の Ar:O<sub>2</sub> ガスの混合比を 2:1 とすることにより, 酸化チタンの組成をコントロールできるばかりでなく, 微細 EB レジストマスクを壊さない低温下での TiO<sub>2</sub> 製膜に成功した (図 6 上). この TiO<sub>2</sub> 微細構造を 500 度で焼成させることにより, アモルファスからルチル・アナターゼへの結晶化を確認し, またその外形は目立った変化が無いことを確認した (図 6 下). これは PMMA などの高温耐性を持つプラスチックなど温度条件の厳しい基板上にも TiO<sub>2</sub> 微細構造作成が可能なことを示し, 広範囲な応用が期待できる.

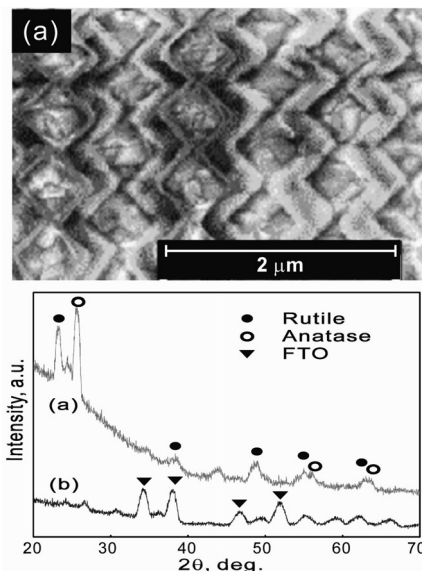


図 6 (上) TiO<sub>2</sub> 二次元フォトニック結晶. (下) 焼成後の TiO<sub>2</sub> の XRD 測定. 焼成によってルチル及びアナターゼのピークが現れた.

## 3. 班活動

各年度 3 回程度の班会議を行い, 進捗状況報告および研究方針について議論した. また必要に応じて, メール等を使った情報交換を行った. グループ外の本プロジェクトメンバーとの共同研究も進めた. 量子中継技術を実現する新規デバイスとして表面プラズモンポラリトン利用の多チャンネル単一光子発生デバイスを提案し, これに用いるコロイダル量子ドットの作成に関して物質応用化学科の大月氏と検討を重ねた. デバイス設計に必要なシミュレーションに関し電気工学科の大貫氏と議論を行った.

## エネルギー班

橋本拓也\*, 大月穰, 松下祥子, 浅田泰男, 西宮伸幸

## 1. 目的

エネルギー班では「ナノ」という共通キーワードの下に「健やか社会の構築」を目指して新エネルギーシステムに繋がる材料開発を実施してきた。「健やか社会」には十分なエネルギー供給が必要であるが、現在のところ主力となっている化石燃料システムは燃料枯渇の懸念、地球温暖化の原因となる排気ガスの増大などの問題がある。また原子力発電システムは福島事故で明らかになった通り、取り返しのつかない環境破壊や廃燃料の放棄方法に大きな問題を抱えたままである。

本研究では太陽光のエネルギーを用いるエネルギーシステムの構築を目標に、(1)太陽光から直接発電する素子として「ナノ構造」あるいは1種のナノ構造である「分子構造」を制御した材料を利用する色素増感太陽電池の開発(松下、大月)(2)太陽光から $H_2O$ を直接光分解して、温室効果ガスフリーでクリーンなエネルギーソースである水素を生産するプロセスの開発。手法としては「分子構造」を制御した材料を触媒とする方法(大月)およびアナバナなどの生物を用いる方法(浅田)(3)輸送・貯蔵に問題がある水素を安全に貯蔵するため、材料中のナノ空間設計を利用した水素吸蔵合金の開発。(西宮)(4)得られた水素を利用してクリーンな発電を実施するための燃料電池材料の開発。(橋本) ナノプロセスであるペッチーニ法を用いて高機能性の材料合成を実施する、を行ってきた。最終的な目標としてはFig.1に示すように、各々が有機的に関連した太陽エネルギー・水素エネルギーシステムの構築を目指しており、そのために各々の技術の高度化を主に行った。

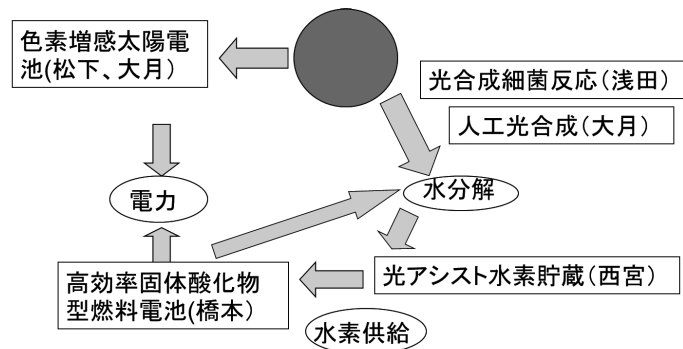


Fig. 1 開発目標とする太陽・水素エネルギーシステムの概念図。赤丸は太陽を示す。

## 2. 研究計画・結果・成果

詳細は各々の研究報告に譲り、本項では概要のみを記す。

## (1) ナノ構造を利用した色素増感太陽電池の高効率化(松下)

「自己組織化」を利用して作製したフォトニクス結晶を電極として用いた太陽電池では、1分子の色素あたりの変換効率が向上していることが示唆された。これを明確にするためには酸化チタンの微細加工が必要であるが、この技術は確立されていなかった。本プロジェクトでは酸化チタンの光・電子リソグラフィ技術が確立でき、フォトニクス結晶の有効性を実証する準備を整えることが出来た。

## (2) 新たな色素の開発による色素増感太陽電池の高効率化(大月)

色素増感太陽電池の高効率化のために新たな色素の開発を試みた。ペリレンカルボン酸無水物誘導体の有機色素とルテニウムのシクロメタル型錯体を検討し、長波長の光でも光電変換できることを実証し、効率3.1%を実現した。また新たなタイプの錯体の合成にも成功、実際に太陽電池用材料として働くか否かを検討している。

(3)  $H_2O$  光分解用新触媒材料の開発(大月)

$H_2O$  光分解用新触媒材料として光増感分子が自動的にコバルトイオン周辺に集合する分子を作成し、それが従来の材料より2倍近い水素発生能を持つことを実証した。

## (4) バイオ水素増収のための水素吸蔵合金の利用(浅田、西宮)

アナバナやスピルニナなどのシアノバクテリア類は、水分解により水素を排出することが

知られており、これを効率よく収集できれば、エネルギー生産に革命的な効果が起こる可能性が高い。本プロジェクトではバクテリアによる水素製造系に、カプセル化して耐久性を高めた水素吸蔵合金を添加したところ、水素収集率が最高で 6 倍程度と大きく上昇することを発見した。

(5) 光による合金への水素吸蔵および合金からの水素放出の制御（西宮）

水素吸蔵合金では吸蔵量の増大は勿論であるが、必要な場合に水素を簡単に放出する機能が要求されている。従来は温度上昇などで水素を放出させることが多かったが、本研究では一部の合金の水素吸収・放出特性が紫外線照射によって制御できることを発見した。特に酸化タングステンなどの光触媒を共存させると、水素放出温度を紫外線照射により下げることができることがわかった。

(6) 水素解離を促進する金属の開発（西宮）

水素をより多く吸蔵させるためには、水素分子を原子状に解離させて吸着させることが有効と考えられている。本プロジェクトでは吸着時に採用される温度 77K において、水素を原子上に解離させる能力を持つ金属として Pt が有効であること、Cr-Fe 合金などが有望であることを明らかにした。

(7) 中低温作動固体酸化物形燃料電池の新材料の開発（橋本）

固体酸化物形燃料電池は環境に優しいとされているが、現在の作動温度は 800°C 以上であり安定性や長期信頼性が課題となっている。作動温度が 600°C 程度になれば安定性の大幅な向上が期待できるが、そのためには全く新しい材料の開発が必要である。本プロジェクトでは従来採用されていたマイクロメータースケールのプロセス、固相反応法に代わってナノメータースケールプロセスである液相法の一つ、ペッチーニ法を用いて新たな固体電解質材料と電極材料を提案することに成功した。現在、これらを組み合わせて燃料電池セルを試作、特性解析を試みている。

### 3. 班としての活動および他の班との協力

本プロジェクトではエネルギー班内での共同研究のみならず、ナノ班などとも協力して成果を挙げることができた。

まずエネルギー班内での共同研究として、バイオ水素を専門にしていた浅田と水素吸蔵合金を専門にしていた西宮の間で前項の(4)の研究が遂行でき、特許共同出願に繋げることができた。また色素増感太陽電池については、自己組織化で作製した電極の変換効率測定および近接場共鳴効果と変換効率向上の対応は当時文理学部に在籍していた松下が主となり文理学部の橋本が一部をサポートした共同研究であり、論文を各々 *J. New Mat. Electr. Sys.* と *J. Porous Mater.* に掲載させることができた。

他の班との共同研究としては、ナノ班の理工学部・羽柴と本班の松下が色素増感太陽電池の電極材料である酸化チタンの光・電子リソグラフィ技術を確立することに成功、*Jpn. J. Appl. Phys.* に論文発表を行った。橋本は液相法の一つ、ペッチーニ法による新物質の合成を実施しているが、本手法のノウハウをナノ班の理工学部・岩田に提供したところ、本手法はレーザーアブレーションによる酸化物薄膜作製のターゲット合成に最適であることを発見した。

## 医療班

### 医療班メンバー

班長：医学部・千葉県がんセンター 永瀬浩喜；総合科学研究科 福田昇

班員：医学部小児外科：草深竹志、越永従道；泌尿器科：高橋悟、大日方大亮；放射線科：高橋元一郎、阿部克己、阿部修；医学部総合内科 相馬正義、藤原恭子、齋藤孝輔、五十嵐潤；薬学部：松本宜明、青山隆彦；生物資源科学部：加野浩一郎、舛廣善和；理工学部・千葉県がんセンター 渡部隆義

石橋直也、川島弘之、篠島由一、長谷川了、増子亜耶、王曉斐

### 研究概要

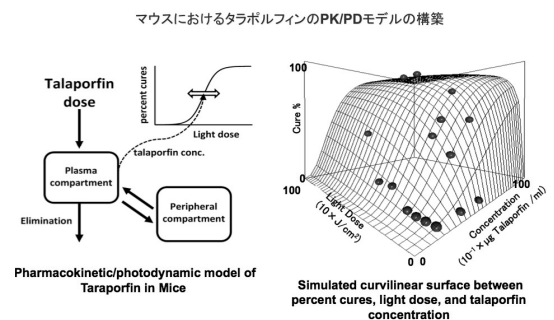
医療班は「化学と生物の融合による新規がん治療戦略」をテーマに理工学部、文理学部のグループで開発するナノ構造を用いた独創的先駆的技術を融合させ新しいバイオ技術として癌の診断法開発，医療応用を目指した。さらにゲノム化学に基づき、癌や進行性腎障害など難治疾患の新規バイオ医薬開発として「遺伝子制御薬ピロール・イミダゾール(PI)ポリアミドの創薬開発」を行った。

### 研究内容

1) **癌探索プローブの開発**：癌でコピー数が増加する遺伝子にプローブとしての PI ポリアミドの設計・合成を行った。神経芽細胞腫でコピー数が増える NMYC 増幅領域でヒトゲノム上でユニークな配列に特異的に結合する PI ポリアミドの合成に成功した。さらに理工学部大月グループとの共同研究でピロール基に 2 種類の蛍光物質を付加し、FRET 反応を利用した蛍光物質間のエネルギーの移動により近距離に存在するときのみに特定波長の蛍光を発するプローブを作成した(永瀬)。癌治療への応用として、光力学療法への応用によるがん治療を放射線を利用し深部の癌にも有効にする方法の開発で、ポルフィリン環構造を持つ化合物の候補を大月グループとともに作成し、癌細胞の放射線感受性の増大効果を確認した(永瀬、阿部、阿部、藤原、相馬)。

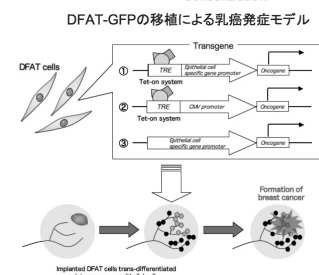
### 2) 光線力学治療化合物の薬物体内動態/薬効解析

(松本、青山)：腫瘍親和性および放射線増感作用を期待し大月班により合成された新規化合物 CT101019a の HPLC による血漿中濃度測定系を確立し、ラットにおける体内動態を検討し、ヒトでの薬物動態のシュミレーションを確立した。



### 3) 多能性前駆細胞 DFAT 移植による乳癌発症モデルマウスの作製 (加野)：乳腺上皮細胞へ転換する DFAT-GFP

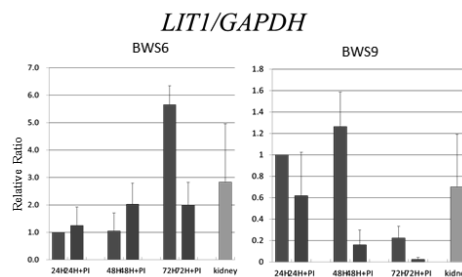
に癌原遺伝子を導入し、その発現をコンディショナルに調節することによって、より自然な乳癌の発生および進行を誘導可能な新規の乳癌発症モデルマウスの開発を行った。これを利用して軟部組織に対する薬剤により放射線感受性を向上させ、腫瘍細胞死を誘導できることを確認した。



4) MYC 結合 E-box に対する PI ポリアミドの開発 (藤原、永瀬)：E-box 配列 CACGTG を完全にまたは部分的に認識する PI ポリアミドはヒト骨肉腫細胞株、慢性骨髄性白血病細胞

株に対し増殖抑制効果を示す事を確認した。骨肉腫細胞株においては、増殖能、コロニー形成能、細胞移動能を低下させた。マウス皮下に MG63 を移植して作成した Xenograft の成長も Myc-6 の尾静脈投与により有意に抑制された。

5) 小児癌に対する新規抗癌 PI ポリアミド開発 (越永): ヒト BWS 線維芽細胞株 (BWS6, BWS9) に対して, LIT1 遺伝子プロモーター領域の CAAT box に結合するように作成した PI ポリアミド (h-CCAAT1, h-CCAAT3) を投与し p57<sup>KIP2</sup> 遺伝子の発現抑制を確認した。



6) PI ポリアミドを用いた新規前立腺癌治療薬の開発 (高橋悟、大日方): 前立腺癌において、Break Fusion Site による、融合遺伝子形成は ERG の発現量に重要な役割をはたし、細胞増殖、遊走能に関係していることが認められた。本研究では切断配列に結合する PI ポリアミドが融合遺伝子および ERG の発現を抑制し、さらに細胞増殖能、遊走能を抑える事が証明された。現在前立腺癌治療薬の開発を目指し、同 PI ポリアミドの in vivo での効果をヌードマウスを用いた腫瘍接種実験にて確認した。

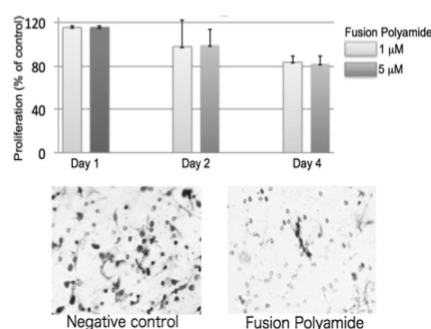
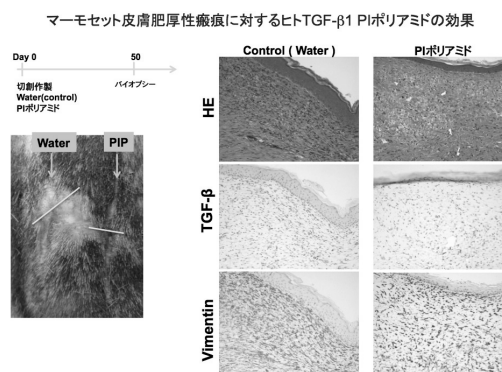
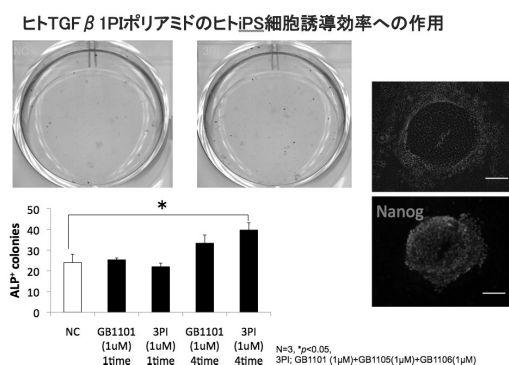


Fig.2 Effect of fusion polyamide on cell migration and anchorage-independent growth. Cell migration assay was performed to analyze the motility of fusion polyamide treated LNCaP cells and control cells. Migrated cells were stained with Giemsa staining solution

7) ヒト TGF-β1 に対する PI ポリアミドの前臨床試験 (福田、五十嵐): リード化合物としてヒトおよびマーモセット線維芽細胞で GB1101 をリードと決定した。実験動物中央研究所においてマーモセットに皮膚肥厚性瘢痕を作成し、ヒト TGF-β1 に対する PI ポリアミド GB1101 の瘢痕形成抑制を肉眼的、組織学的にも認めた。さらにヒト TGF-β1 PI ポリアミドをソルベースで軟膏化して皮膚組織への浸達と皮膚瘢痕抑制を認めた。

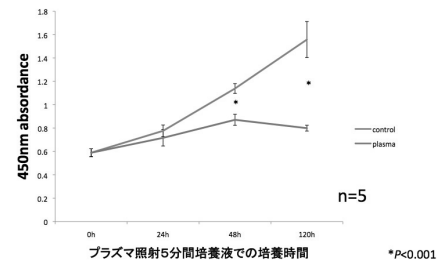


8) PI ポリアミドによる iPS 細胞誘導 (齋藤、舩廣、福田): ヒト TGF-β1 PI ポリアミドが PMA による EMT を抑制する事を確認下。センダイウイルスベクターを用いたヒト iPS 細胞誘導時に初期化因子とともに、もしくはフィーダー細胞にリシードした時にヒト TGF-β1 PI ポリアミドにより iPS 細胞の誘導効率が 180%増加したことを認めた。さらに舩廣の技術としてスタビロンでの初期化因子の細胞内導入による、ウイルスやプラスミドの無い日本大学方式の iPS 誘導法の開発を試みている。



9) プラズマによる皮膚悪性黒色腫の治療法開発 (齋藤、福田、理工浅井) : 皮膚悪性黒色腫に存在するメラノーマ幹細胞をターゲットに、メラノーマ幹細胞の活性酸素種耐性 CD44 を抑制する全トランスレチノイン酸(ATRA)を投与し、プラズマからの活性酸素種による、悪性黒色腫の治療法開発研究を行い、プラズマ照射細胞培養液にてメラノーマの増殖抑制を確認した。

プラズマ照射後のメラノーマ細胞の増殖抑制



### 医療班としての活動

- 1) 医学部にて毎週 1 回N.研究プロジェクトのミーティング
- 2) 生物資源科学部とのPIポリアミドおよびスタビロンによる日本大学方式iPS細胞誘導法のミーティングを月 1 回開催
- 3) 工学部戦略的研究基盤形成支援事業報告会でN.研究プロジェクト医療班成果を報告
- 4) 医学部内にてN.研究プロジェクト合同ミーティング (癌遺伝、放射線科、泌尿器科、小児外科) を開催、現在の研究プロジェクト進捗内容、研究計画の話し合いを開催
- 5) N.研究プロジェクト医療班成果および理工学部、生物資源科学部との共同研究を平成23年12月の第7回、平成25年11月の第8回日本大学先端バイオフィオーラムで報告
- 6) 平成24年度からPIポリアミドの軟膏化の為、医学部附属板橋病院薬剤部製剤室と共同研究
- 7) 平成24年、25年度 : 実験動物中央研究所とマーモセット実験施設として契約し共同研究
- 8) 医療班PIポリアミド開発メンバーと京都大学との共同研究
- 9) 平成25年11月 : バイオ医薬としてのPIポリアミドを J S Tにおける新技術説明会で発表
- 10) 平成25年12月 : ヒトTGF-β1に対するPIポリアミドを大阪にて 8 社の製薬会社に発表

## 超分子・自己組織班

伊掛浩輝\*, 伊藤彰義, 大月 穰, 塚本 新, 松下祥子

### 1. はじめに

本研究プロジェクトにおいて、基盤的な位置づけにある超分子・自己組織班では、基盤課題として、「ナノ物質系と光・量子融合領域の未踏科学開拓と新規技術創出」をテーマに、社会が持続的に発展をする上で欠かせない重要なテーマについて検討し、さらには本プロジェクトのアウトプットである三本の柱の「情報」、「エネルギー」、「医療」班と連携を密に、各分野のニーズに応じた材料設計をナノメートルレベルで行い、分野ごとに役立つ新規高性能高機能性材料の開発を行った。以下に各グループの5カ年の活動を振り返る。

### 2. 5カ年の取り組みと研究成果

#### ・超高密度記録媒体の開発(伊藤・塚本グループ)

未踏領域となる 2Tbit/inch<sup>2</sup> 以上の超高密度記録媒体を開発するためには、媒体の作製方法やそのための適切な材料の開発が必要である。伊藤・塚本グループでは、超高密度記録媒体の開発に向けて、テンプレート開発から稠密磁性薄膜の作製に至るテーマで検討を行った。

高分子ミセルの自己組織/集積化現象を利用して、シリカ微粒子が 3 次元的に規則配列した稠密基板を作製した(図 1)。その後、この基板を用いることで、ナノ構造金属材料を得るためのテンプレートの開発に着手し成功した(図 2)。超高密度記録には、高い磁気異方性を有する単結晶が必要であるが、本研究では、FeCuPt 規則合金微粒子を作製し検討した。超高密度記録には、磁性微粒子の粒子サイズだけでなく、L1<sub>0</sub> 規則相の単結晶かつ磁化容易軸(c 軸)が膜面垂直であることが必要であるが、急速昇温加熱によって作製することで、膜面に対し c 軸配向した単結晶 FeCuPt 規則合金微粒子の形成ができ、完全孤立磁性微粒子の面内粒子数密度を著しく増大させ、5.4 T particles/inch<sup>2</sup> を得た。また、製膜及び急速昇温加熱による熱処理プロセスを複数回に分けることで、微粒子化、高粒子数密度化ができ、平坦熱酸化 Si 基板上でも平均粒径約 10nm、面内粒子数密度約 3.2 T particles/inch<sup>2</sup> を得た。

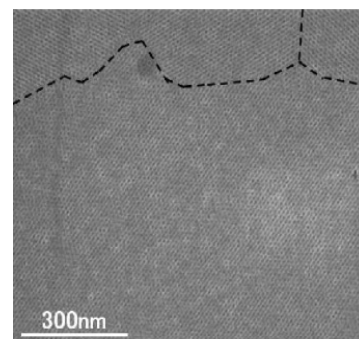


図 1 走査型電子顕微鏡 SEM 面内観

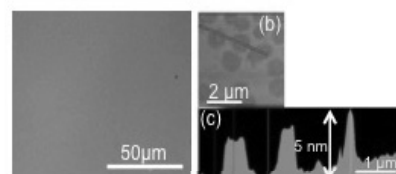


図 2 SEM 及び原子間力顕微鏡

#### ・自己集合化現象を利用したナノ分子系の光・量子機能の開拓(大月グループ)

分子運動のダイナミクスを単一分子レベルで捉えるために STM を用いて、分子一つの回転運動の可視化に成功した(図 3)。また、単一分子の発光を検出することで、この発光を利用した分子の配向、回転を電極で制御するシステムについて検討している。また、単一光子源として量子ドットを波長間隔以上離れて 2 次元的に規則配列した構造体の作製も試みている。次に、超分子による光エネルギー変換系の構築として、これまでピリジリル基をもつクロロフィル誘導体が自己集合して二重らせん構造を形成することを単結晶 X 線構造解析により明らかにした。この構造は、DNA のような二重らせんを想起させるユニークな分子組織体で、オキサゾール基をもつクロロフィル誘導体では階段状の集合構造を形成することがわかった。また、種々のクロロフィル誘導体を合成し、分子構造と集合構造の関係を明らかにし、光捕集アンテナ構築のための基礎的知見を明らかにした。その他、色素増感太陽電池の有機光増感剤の改良として、構造を系統的に変化させた色素について、構造と特性、効率との関係を明らかにした。加えて、増感剤としての新たな錯体

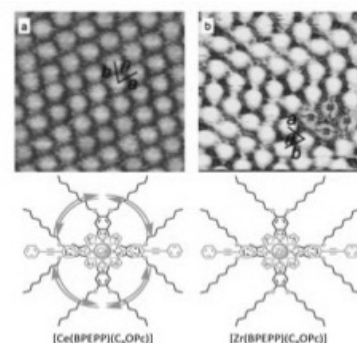


図 3 分子の回転運動の可視化。

合成を行い、金属錯体色素でも高効率化を図った。新規色素の合成として、癌をターゲットとした光線力学療法をめざして、プローブへの応用について検討している。耐光性に優れた新規発光性色素を合成し、これらの色素をピロール・イミダゾールポリアミドに結合させて、ターゲットとなる DNA を選別し、DNA との相互作用、細胞内での分布などについて検討している。

・微粒子自己集積体・フォトニック結晶による光学デバイス作製(松下グループ)

フォトニック結晶を用いた光デバイスの構築に向けて、光電変換効率が構造界面でどのように影響されているのか、また、入射光によって励起した電子の寿命はどのように変化するのかを検討してきた。自己組織/集積化現象を利用して、シリカなどの 3 次元緻密集積体を作製し、その後、フッ化水素でエッチングすることで可視光線領域でのプラズモン制御に必要な規則的な突起構造を持つ微粒子が作製できた(図 4)。また、平面波展開法を用いてフルフォトニックバンドギャップ並びにコンプリートフォトニックバンドギャップが存在する酸化チタン-電解液フォトニック結晶体を計算上発見した。また、演算の因子に酸化チタンの屈折率の波長分散を組み込むことで、新たなフォトニックバンド図を作成するとともに、演算結果についても汎用性を持たせることができた。次に、これらの演算結果に基づいて、酸化チタン単結晶を作製し、フォトニックバンド図を反射スペクトル法によって作製した。これらの結果を利用し、新たな発光抑制する光電気化学フォトニック結晶として、2 次元面内で完全に光を閉じ込めるコンプリートフォトニックバンドギャップを持つ規則構造体の作製ができた。作製したフォトニック結晶については色素増感型太陽電池に組み込み、結晶構造が一色素、一光子当たりの光電変換効率の向上に寄与していることがわかった。

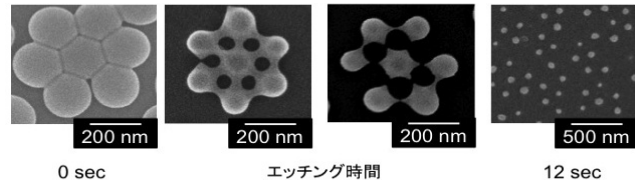


図 4 フッ化水素水溶液による等方性エッチ

・バイオベースポリマーとしてのポリ乳酸系フィルムの光学材料開発(伊掛グループ)

生分解性機能を有し、結晶性高分子であるポリ-L-乳酸(PLLA)の光学的性質への新たな試みとして PLLA 配向フィルムの作製を行った。本報では、磁場の透過性の良さを利用し、10T の磁場照射下で PLLA フィルムを作製した。その際、磁場照射及び熱処理条件を適宜調整することで高結晶化、高配向化が促進されることを見出した。続いて、配向フィルムの光学的性質として、He-Ne レーザ(波長 632.8nm)を用いてレーザ透過強度とフィルムの回転角との関係について検討した。その結果、レーザ透過強度が 90° 周期的に変化し、配向フィルムの偏光特性が見出された。次に、光学材料に要請される力学的性質及び耐熱性に優れた新たなポリ乳酸の開発に着手した。PLLA とキラリティの異なるポリ-D-乳酸(PDLA)から形成されるステレオコンプレックス(sc)結晶を有する sc-PLA を用いた光学フィルムを作製した。sc-PLA は PLLA 単独に比べて力学強度や耐熱性に優れ、キャスト溶媒を適宜選別することで、sc 結晶のサイズが調整でき、図 5 に示すように溶媒に 1,4-ジオキサランを用いると結晶サイズが大きくなり不透明であるが、クロロホルムでは sc 結晶が微細なため 400~800nm の可視光線を 85%以上も透過するような透明なフィルムとなった。また、一方で、sc-PLA フィルムの使用後のリサイクル方法についても検討を行った。さらに、sc-PLA の耐熱性の向上を目的に、シランカップリング剤によって PLA 両末端にトリエトキシシリル基を導入したプレポリマーを合成し、これとシリカとをゾル-ゲル法によってハイブリッド化した。ハイブリッド化しても sc 結晶の形成には影響なく、ナノメートルサイズでシリカが複合化していることがわかった。また、複合したシリカによってハイブリッドは 3 次元ネットワーク構造を形成しており、sc-PLA よりも耐熱性が高く、高温域でゴム弾性挙動を示すなど優れた性能を発現することがわかった。

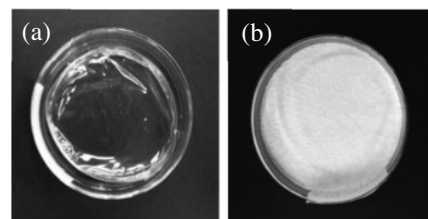


図 5. キャスト溶媒の異なる sc-PLA フィルムの写真。(a) クロロホルム、(b) 1,4-ジオキサラン。



## ナノ物質・ナノデバイス班

鈴木薫\*, 高野良紀, 浅井朋彦, 岩田展幸, 羽柴秀臣, 茶園茂, 十代建, 故望月章介

### 1. 研究目的

ナノ物質・ナノデバイス班では、「超分子」、「フォトニック結晶」、「高分子配列」、「生体分子モーター」、「二次元層状物質」、「ナノカーボン」、「広バンドギャップ半導体」、「ヘテロ構造半導体」、「量子ドット」、「金属接合単分子」等を対象として、化学合成、自己組織化、ナノ構造転写、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。これらのナノ物質群について、構造解析、物性計測実験と量子力学理論によるモデル構築、計算とが一体となって光・量子物性を解明する。このナノ物質系と光・量子融合領域の科学的解明を共通基盤として、本研究の重点課題として推進する。情報、エネルギー、医療に利用するための、機能材料、計測法、理論、シミュレーション法を開発する。さらに、新規フォトニック材料、高温超伝導材料、光ガス（酸素、水素）貯蔵／放出材料、ナノセンサーアレイなど、すでに高い見込みがある独自の材料、デバイス開発に加えて、新しい科学開拓に基づく革新的な技術シーズを創成する。

### 2. 研究計画

**ナノ物質：** ①電子回折、放射光X線回折による高温・各種ガス下での精密結晶構造解析を実施し、微小な結晶構造の変化や相転移が電気特性や磁気特性に与える影響を解明し、【エネルギー班】の高強度燃料電池材料を中心とした材料の高機能化のための構造制御の指針を明らかにする。②超伝導体が見つかった、希土類-遷移金属-オキシニクタイト系二次元層状物質について、良質な単相試料および単結晶試料を作成し、元素置換や電子ドーピングによってより高い超伝導転移温度を目指し、超伝導発現機構を解明する。この物質群について物質構造、電子構造、機能の相関を解明する。さらに、【情報班】の単一光子発生／検出デバイスへの応用のための基礎データを得る。③金属酸化物ナノ粒子における紫外光に誘起された欠陥生成・価数変化を伴った酸素の解離吸着・会合脱離現象を光学的手法によって解明し、光制御酸素貯蔵・放出デバイスを開発する。

**ナノデバイス：** ①新しいナノ構造作製法を開発し、デバイス作製への展開をおこなう。ナノセンサーアレイ作製の基礎技術として、カーボンナノチューブやナノロッドを平面や立体的に配線する技術を確立する。②主要なナノ構造形成技術として利用されるプラズマについて、分光トモグラフィ法によるプラズマの空間構造の瞬時定量可視化を実現し、プラズマ生成・制御法を確立する。③磁化プラズマにおける量子光学現象を実証し【量子理論・計算班】と協力して、量子光学の未解決問題を解明する。④ヘテロ構造半導体を用いた半導体または超伝導半導体量子ドットを組み込んだ THz 帯光プラズマ励起量子ビットデバイスを開発し、【情報班】の量子情報デバイスに応用する。⑤近接場光技術、単一光子検出技術をもつ【情報班】とも協力し、究極のナノデバイスである生体分子モーターが一方向だけに運動する機構を一分子ナノ計測技術で解明する。

### 3. 班の活動

高野により超伝導性が見い出された希土類-遷移金属-オキシニクタイト系二次元層状物質について、良質な単相試料および単結晶試料から鈴木がパルスレーザー堆積法により薄膜を作成する。このとき、バルクよりも薄膜の方が元素置換や電子ドーピングが容易となるため、より高い超伝導転移温度を目指す。さらに、羽柴や【情報班】の単一光子発生／検出デバイスへの応用のための基礎データを得る。浅井が開発した磁化プラズマにより【エネルギー班】の西宮と協力して水素吸蔵合金を薄膜化し、鈴木が成膜した可視光照射型水素発生触媒膜と組み合わせでデバイス化を計る。また、望月が開発した光誘起酸素吸蔵・脱離材料や橋本が開発した Cr 系酸化物ナノ微粒子をインターコネクターとして燃料電池デバイスへの応用を

目指す。鈴木が開発した金属内包カーボンナノチューブや岩田が開発したカイラリティ制御半導体/導体カーボンナノチューブ及び十代が開発したナノらせん構造をセンサーや電界効果トランジスタなどへデバイス化する。また、茶圓のバイオモーターとの融合を探索する。

#### 4. 研究結果

鈴木は ①磁気力顕微鏡用のプローブを加工するために、エタノール中に浸したシリコン基板に直流通電を行う際の陰極に強磁性金属箔を挟み、カーボンナノチューブに強磁性金属を内包させた。Ni 内包 CNT は直線的で、直径 10~80 nm・長さ 100~800 nm の高アスペクト比で高密度に生成された。ステンレス (SUS304) 合金においては層状構造の内包 (A 層: 結晶性  $Fe_{2(1-x)}Cr_{2x}O_3$ , B 層: 多結晶性  $Fe_{2(1-x)}Cr_{2x}O_3$ , C 層: 結晶性  $Fe_{(1-x)}Cr_x$ ) が確認された。②カーボンナノチューブ/ロッド・ダイヤモンド状炭素によるダイオードの作製では図 1 の様にリンをドーピングした直線状カーボンナノチューブ/ロッドが森林状に群生し、1 本を折りガリウムイオン ( $Ga^+$ ) を集束させて注入することでダイオードを作製した。またバックゲートを取り付けることにより n 型の CNT になっていることが判明した。③ランタンやストロンチウムをヘビードープした酸化チタンをレーザー誘起前方転写法によりフレキシブルな高分子フィルム上に成膜した。また、エネルギー班の西宮教授が研究中的の水素吸蔵複合材料を浅井准教授が研究中的の磁化同軸プラズマ源により成膜した。④酸化亜鉛薄膜の赤外光支援パルスレーザー堆積法による p 型化において、YAG レーザの第 2 高調波である波長 532 nm よりも短い波長でレーザー

アニールすることで結晶性が改善され、第 4 高調波である波長 266 nm により結晶性が最も向上することを見出した。⑤低周波大気圧低温プラズマによる歯周病菌の殺菌について検討し、プラズマを噴出させるノズルの直径を  $500\mu m$  と細くすることによって歯周ポケットへのプラズマ照射を可能にする方法を開発した。また、レーザー照射によるミミズの破片分離・再生と土壌元素モニタリングセンサーについて研究している。⑥レーザーと集束イオンビーム加工でナノノズルを圧電素子に穿孔させることにより、ナノ・マイクロバブルの粒径制御に成功し、バブルの直径を数百  $\mu m$  ~ 数  $\mu m$  の範囲において一定で直線的に噴出させることに成功 (図 2) し、時間の経過によりマイクロバブルが圧壊してナノバブルになることを確認した。

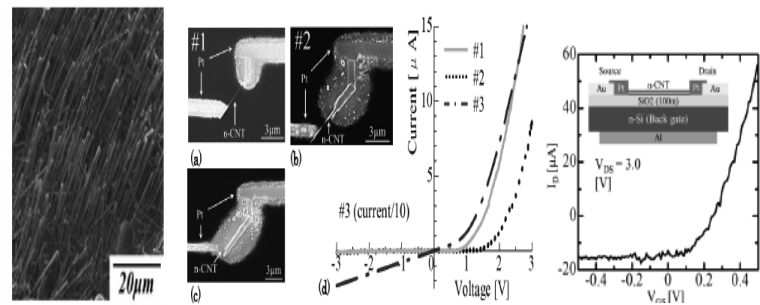


図1 CNTフォレスト ダイオード 電圧-電流特性 バックゲート特性

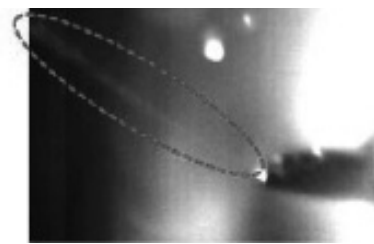


図2 ナノ・マイクロバブルの噴出

高野は鉄砒素系超伝導体の中で主に 1111 系および 111 系とよばれる超伝導体に着目し、以下の研究を行った。

- (1)  $La_{1-x}OFeP$  における La 欠損による超伝導
- (2)  $Sr_{1-x}R_xFeAsF$  ( $R=La, Pr, Nd, Sm$ ) の結晶構造と超伝導特性
- (3)  $SrFeAsF_{1-x}$  の作製と電気伝導特性
- (4)  $Sr_{1-x}R_xFeAsF_{1-y}$  ( $R=La, Nd, Sm$ ) の常伝導及び超伝導特性
- (5)  $LaFe_{1-y}Zn_yAsO$  の結晶構造と電気伝導特性
- (6)  $LiFe_{1-x}Co_xAs$  および  $Li_{1-x}Y_xFeAs$  の作製と電気的性質
- (7)  $SrFFe_{1-x}Ni_xAs$  の電気的性質

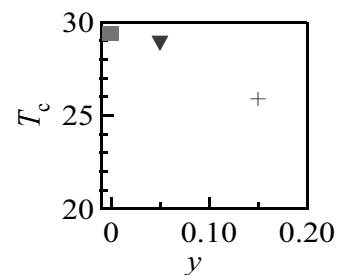


図3  $Sr_{0.6}La_{0.4}FeAsF_{1-y}$  における  $T_c$  と  $y$  の関係

(8)  $\text{Sr}_{0.5}\text{Nd}_{0.5}\text{FeAsF}$  超伝導線材応用への基礎物性評価

(9)  $\text{Ca}_{1-x}\text{R}_x\text{FeAsF}$  ( $\text{R}=\text{Nd}, \text{Sm}$ ) の超伝導特性

(1)において、従来報告されている超伝導転移温度のバラつきが試料の非化学量論性によることを明らかにした。(2)において、初めて  $\text{R}=\text{Nd}$  とした資料を作成し、その超伝導特性を明らかにした。(8)において、その線材応用の可能性を調べた。(3)および(4)において、フッ素欠損による電子ドーピングは  $\text{LaFeAsO}$  の酸素欠損に伴う電子ドーピングあるいは  $\text{SrFeAsF}$  における希土類置換による電子ドーピングとは本質的に異なることを明らかにした。図3は  $\text{Sr}_{0.6}\text{La}_{0.4}\text{FeAsF}_{1-y}$  における  $T_c$  と  $y$  の関係を示す。

浅井は磁化同軸プラズマガン (MCPG) や逆磁場テーパピンチ法 (FRTP) により生成される磁化プラズモイドの特性の理解と応用を目指し、鈴木・西宮と共同で提案し開発を進めて来た、MCPG を用いた高融点金属の合金薄膜生成法について NUBIC を通して出願した (特願 2012-195690)。堆積速度はスパッタ法などと同程度の  $0.1\text{nm/s}$  程度を、石英基板上に生成したアルミ薄膜では真空蒸着法に対し約 4.2 倍となる臨界剥離荷重 (42mN) を実現 (図4) した。さらに、炭素系薄膜への応用研究を展開し、水素フリーダイヤモンド様炭素薄膜や高硬度薄膜などの応用について、企業との共同研究を開始した。大気圧 LF ジェットの医療応用について医療班との検討を進め、癌腫治療のための基礎実験用の大気圧プラズマ装置の開発を終え、プラズマによって癌幹細胞の細胞死を誘導するための手法について、検証を進めている。磁化プラズモイドの超アルヴェン速度移送実験装置の開発を進め、初期プラズマの生成に成功、ミュオン触媒核融合 ( $\mu\text{CF}$ ) の新規炉心シナリオの原理検証のための基礎実験・ $\mu\text{CF}$  に必要なテラ級超強磁場高応答キッカーシステムを検証し、米国 TriAlpha Energy 社との間で、委託研究費の受け入れを含む共同研究契約を締結、装置開発を開始した。

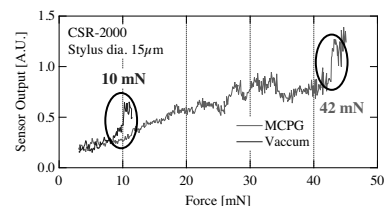


図4 Al 薄膜の付着強度評価

岩田は原子レベルで平坦な界面を有する酸化物人工超格子を作製することで、電界で磁気特性を制御する超低消費電力デバイス、強誘電性と強磁性の複数の長距離秩序を持つ多機能マルチフェロイックデバイスの開発として、超格子作製には原理レベルで薄膜成長を制御する非常に高度な成膜技術を必要とするため、超高密度ターゲットの作製技術、層状成長技術、精密結晶構造解析後、 $\text{ABO}_3$  ( $\text{A}=\text{Ca}, \text{La}, \text{B}=\text{Fe}, \text{Mn}$ ),  $\text{REMO}_3$  ( $\text{RE}=\text{La}, \text{Bi}, \text{M}=\text{Fe}, \text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x$ ) を用いて超構造作製技術の開発を探求した。エネルギー班・橋本との共同研究により、ペッチーニ法を用いた超高密度ターゲットの作製に成功し、 $\text{LaFeO}_3$  (LFO) : 95.5%、 $\text{CaFeO}_x$  (CFO) : 96.4%、 $\text{BiFeO}_3$  (BFO) : 95.2%、 $\text{BiFe}_{1-x}\text{Mn}_x\text{O}_3$  (BFMO) : 96.6%を得た。 $\text{ABO}_3$ 、 $\text{REMO}_3$  をパルスレーザー堆積 (PLD) 法によって交互積層した。X 線回折 (反射)、逆格子マップにより、すべての超格子は Cube-on-Cube で成長し、超格子サテライトピーク、ラウエ振動を観測し、結晶性の良い超構造が作製できたことを確認した。超構造の面内シート抵抗、ホール抵抗の温度依存性および磁場依存性から界面の磁氣的交換相互作用が温度の低下と共に増加することを確認した。[CFO/BFMO]超格子では、図5のように  $\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x$  1 個に対する磁化は 300K において  $0.055\mu_B$  でバルク値の約 4 倍となった。キュリー温度も約 450K と室温以上を確認した。究極に小さい 1nm オーダーの FET 作製のため、自由電子レーザー (FEL) 照射および表面処理技術、基板表面原子配列を利用して、電気特性、成長位置、配向性を同時制御した単層カーボンナノチューブ (SWNT) の選択成長を試みた。SWNT はエタノールをカ

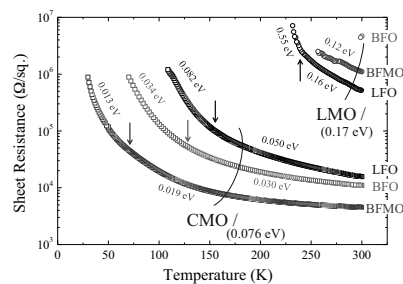


図5 人工超格子に関するシート抵抗の温度依存性

一ボンソースとし、化学気相成長(CVD)法によって、酸化膜付き Si 基板、サファイア、人工水晶基板上に成長させた。サファイア基板にはバンドル化した SWNT が配向した。特に波長 800nm の FEL を照射すると 4 種類のカイラリティを持った半導体性 SWNT 成長に限定された。FEL 未照射では、合計約 30 種類のカイラリティを持った金属性・半導体性 SWNT が成長した。FEL の波長可変性、数百フェムト秒の鋭いマイクロパルスが選択成長に有効に働いた結果で、成長中カイラリティ制御に成功した初めての報告例である。さらに、電極間のみを親水処理することによって、カイラリティ制御された SWNT を所望の位置に選択成長させることに成功した。

羽柴は量子ドットのプラズマ励起を用いた THz 単一光子検出のために、半導体量子ドット(QD)を用いた THz 帯単一光子検出器の検出効率の向上と、QD の高次プラズマ励起の様相を明らかにし高温動作への可能性を探索した。この検出器は THz 光子吸収により QD がプラズマ励起すると 1 電子をトンネルバリアを介して排出する。このポテンシャルバリア形状を排出方向に長くすることで、2次元電子系上の熱揺らぎによるトンネル効果を抑制しダークカウントの低下に大きく寄与する事を示した。多くの入射光子による高次プラズマ励起頻度が電子の排出レートより大きい場合、励起エネルギーは量子ドット中の電子温度の上昇に寄与しドットは熱浴として働く事を示唆することが明らかになり、検出器の受光感度を示す NEP が $\sim 10^{-19}$   $\text{WHz}^{-1/2}$  と、従来より一桁良い値を得た。色素増感太陽電池の高効率化のために  $\text{TiO}_2$  二次元フォトニック結晶を FTO 基盤上に作成することを目指し、電子線レジスト上の微細マスクへの  $\text{TiO}_2$  微細構造の直接製膜技術の開発と評価(図6)した。 $\text{TiO}_2$  スパッタ製膜法の  $\text{Ar}:\text{O}_2$  ガスの混合比を 2:1 とすることにより、酸化チタンの組成をコントロールできるばかりでなく、微細 EB レジストマスクを壊さない低温下での  $\text{TiO}_2$  製膜に成功した。この  $\text{TiO}_2$  微細構造を 500 度で焼成させることにより、アモルファスからルチル・アナターゼへの結晶化を確認し、またその外形は目立った変化が無いことを確認した。

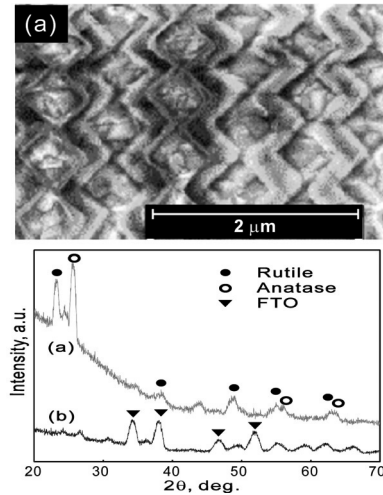


図6  $\text{TiO}_2$ 二次元フォトニック結晶

茶園はバイオナノマシン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従来の測定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行った。まず多分子イメージングによる生体分子モーターの作動原理の研究では種々の滑りの活性化エネルギーの計測からミオシン分子の動きが熱揺動エネルギーでなされていることを示唆し、ATP 分解反応をイメージングすることによりミオシン分子の動きが ATP 分解反応に影響することを明らかにした。細胞膜上の上皮成長因子受容体蛋白の1分子イメージングにおいて、最適な蛍光ラベル蛋白を見いだした。更に、図7に示すカーボン隔膜による走査型電子顕微鏡で生きたままの細胞をナノメートルオーダーの空間分解能で観察する技術を開発した。

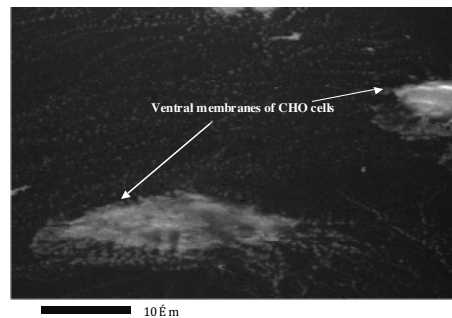


図7 培養細胞のSEM写真

十代はキラル中心を持たないアキラルな分子からキラルなナノ構造体であるナノらせん構造を得る分子に着目し、キラル発現の機構およびらせん化の制御を目指し研究を行い、銀トリルアセチリドがキラル中心を持たないアキラルな分子であるのにも係らず、その結晶がナノらせん構造になることを見出した。再結晶を行う溶媒を系統的に変化させることで、捻じれたナノらせん構造と捻じれていないナノリボン構造を制御して作成することに成功（図 8）し、キラル発現の機構解明に対して足掛かりを得た。

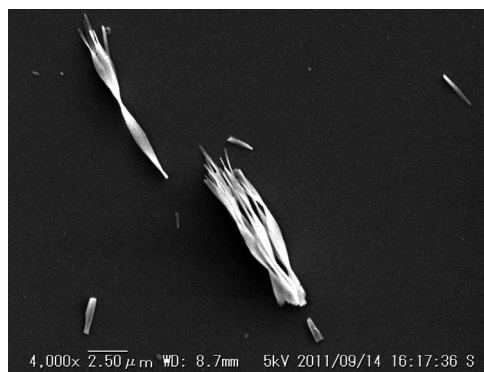


図 8 銀トリルアセチリドナノリボン構造

望月は酸化セリウム  $\text{CeO}_2$  とこれをベースとした酸素吸蔵物質として知られている  $\text{CeO}_2$ - $\text{ZrO}_2$  固溶体を対象にして、これらの物質の固体、薄膜、ナノ粒子等について、光学的性質と紫外レーザー光に誘起された酸素放出・吸蔵現象及びフォトメモリー現象等の実験的研究を行い、これら物質のフォトルミネッセンス特性を明らかにした。また、新規の長残光性高輝度白色発光物質を探索すべく  $\text{NiO}$ 、 $\text{ZrO}_2$ 、 $\text{NiO-ZrO}_2$  オトルミネッセンスの基本特性を明らかにした。

## 5. アピール・トピックス

論文は *J. Am. Chem. Soc.* や *Nanotechnology* および *BIOPHYSICS* など 92 件、著書は「先端固体レーザー」や「クラスター伝導体—銅アセチリドナノワイヤー—」表面技術など 4 件、知的財産：特許出願は「合金薄膜生成装置」特願 2012-195690 や「微小バブル発生装置、微小吐出孔ノズル及びその製造方法」特願 2012-204982 など 8 件、外部資金の獲得状況：獲得研究費は科学研究費補助金や（財）カシオ科学振興財団および財団法人双葉電子記念財団など 22 件、受賞・メディア等は日本希土類学会賞（塩川賞）や日本大学理工学部学術賞および科学技術振興機構の「日本大学 新技術説明会」など 11 件であった。

## 6. 結論

以上のように各々の研究成果は研究目的を達成する結果を得た。ナノ物質としては ①鉄砒素系超伝導体の 1111 系二次元層状物質 ( $\text{La}_{1-x}\text{OFeP}$  や  $\text{Sr}_{1-x}\text{R}_x\text{FeAsF}$  ( $\text{R}=\text{La}, \text{Pr}, \text{Nd}, \text{Sm}$ ) など) 単相・単結晶試料 ②色素増感太陽電池用二次元  $\text{TiO}_2$  フォトニック結晶 ③水素発生用光触媒のランタン・ストロンチウムをヘビードープした酸化チタンや高効率発光素子用の p 型酸化亜鉛薄膜 ④アキラルな分子からキラルなナノ構造体である銀トリルアセチリドナノリボン構造を制御 ⑤酸素吸蔵物質の  $\text{CeO}_2$ - $\text{ZrO}_2$  固溶体を生成した。また、ナノデバイスとしては ⑥磁気力顕微鏡用の強磁性金属ニッケルまたはステンレス合金内包カーボンナノチューブプローブや直線状カーボンナノチューブ/ロッドダイオードおよび 4 種類のカイラリティを持った半導体性 SWNT ⑦多機能マルチフェロイックデバイス用の  $\text{ABO}_3$  ( $\text{A}=\text{Ca}, \text{La}, \text{B}=\text{Fe}, \text{Mn}$ )、 $\text{REMO}_3$  ( $\text{RE}=\text{La}, \text{Bi}, \text{M}=\text{Fe}, \text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x$ ) 超構造や  $[\text{LaFeO}_3(\text{LFO}) / \text{CaFeO}_x(\text{CFO}) / \text{BiFeO}_3(\text{BFO}) / \text{BiFe}_{1-x}\text{Mn}_x\text{O}_3(\text{BFMO})]$  超格子 ⑧半導体量子ドット ( $\text{GaAs}/\text{AlGaAs}$ ) を用いた THz 帯単一光子検出器を作成した。さらに、装置やシステムとしては ⑨磁化同軸プラズマガンや磁化プラズモイドおよび大気圧 LF ジェットの成膜・医療応用 ⑩ナノ・マイクロバブルの粒径制御による水浄化 ⑪ATP 分解反応のイメージングによるミオシン分子の動作・細胞膜上の上皮成長因子受容体蛋白の 1 分子イメージングにおける最適な蛍光ラベル蛋白の探索・カーボン隔膜による走査型電子顕微鏡で生きたままの細胞を観察する技術を開発した。

## 量子理論・計算班

石田浩, 大貫進一郎, 佐甲徳栄\*, 山崎恆樹

## 1. 班としての研究成果の総論

量子理論計算班は、光と物質の相互作用の本質およびナノ物質の物性を理論的に解明することを目的として、量子力学・電磁気学理論および大規模数値計算を駆使した研究を推進した。研究成果のハイライトは以下の通りである。

## 2. 固体表面と吸着ナノ分子系の電子・スピン物性 (石田浩)

微細加工技術の進歩により、結晶表面上に分子を自由に配列させたり、原子膜を一層ずつ成長させることが可能になった。こうしたナノ構造やヘテロ界面においては、エネルギー準位の離散化、対称性の低下、波動関数の境界条件の変化、強い電子間相互作用、スピン軌道相互作用、外部の電磁場等により、新奇な量子現象が発現し、それらを用いた電子・スピンデバイスの開発も進んでいる。こうしたナノサイズのデバイスの開発や新物質の探索において、実験を予想・解析するための理論計算の重要性が高まっている。本研究では、「表面・界面での電子相関による多体効果を扱う」、「半無限の結晶表面・界面を扱う」という二点に重点を置いて、従来の理論計算とは一線を画した固体、ナノ物質、表面・界面系の電子構造計算手法の開発と整備を進めた。

## (2-1) 金属/Mott 絶縁体界面の電子状態

デバイス応用の観点から重要な問題は、トンネル接合などデバイスの絶縁体層を強電子相関から生じる Mott 絶縁体で作成したとき、通常のバンド絶縁体と同様にデバイスが動作するかということである。強相関を扱う理論手法として、動的平均場理論 (DMFT) が広く用いられている。バルク結晶に関しては、隣接サイト間の電子相関をも考慮したクラスター DMFT 計算が標準的になりつつあるが、これまで表面・界面系の計算は、単一サイト DMFT に限られていた。我々は、本研究において表面・界面系の電子構造をクラスター DMFT により初めて計算した。その結果、電極に挟まれた原子層の金属/絶縁体転移の様子や電気伝導率が、単一サイト DMFT の場合とは定性的に異なることが分かった。また、半無限金属表面に吸着した Mott 絶縁体の単原子吸着層の電子構造を計算した結果、単一サイト DMFT では、吸着層は金属との近接効果により容易にフェルミ液体になるが、クラスター DMFT の計算から、吸着層がより低温まで非フェルミ流体にとどまることが分かった。

## (2-2) ハバード分子のクーロンブロッケードと近藤効果

金属電極間を架橋する単一分子の電気伝導度の測定が可能になった。理論サイドでは、密度汎関数法 (DFT) と Landauer 公式を用いて、単一分子のバリスティック伝導率が容易に計算されるが、必ずしも実験との一致はよくない。原因の一つは、DFT では記述できない分子内のクーロン反発力による電子相関である。これらの多体効果を調べるため、半無限 2 電極を架橋するサイトの Hubbard 分子を考え、この分子のバイアス電圧 0 極限 (熱平衡状態) での電子構造を、厳密対角化法により系の Green 関数を計算することにより、温度の関数として調べた。例として 3 サイトの直鎖分子の場合、分子の状態密度は、3 分子軌道から生じる 3 ピークからなるが、Coulomb ブロッケードにより各ピークは 2 つに分裂する。更に温度が低下すると、近藤共鳴準位が出現して、Coulomb ブロッケードによる擬エネルギーギャップが消失する様子が計算で得られた。

## (2-3) 金属表面バンドの Rashba 効果

結晶表面において、スピン軌道相互作用が電子構造に重要な役割を果たす場合がある。一つは、トポロジカル絶縁体のバルクバンドギャップを横切る表面局在バンドであり、もう一つは、Au や Bi など非磁性体の表面局在バンドのスピン分極である。後者は、Rashba 効果と呼ばれている。DFT による Rashba 効果の第一原理計算は、従来、結晶表面を薄膜モデルで

近似して行われた。しかし、薄膜モデルでの計算では表面局在バンドや表面共鳴バンドの詳細は調べられない。そこで我々はエムベディッド Green 関数法に基づく半無限結晶表面の第一原理 DFT 計算により、結晶表面の Rashba 効果を調べた。例として光電子分光により Rashba 効果が初めて観測された Au(111)表面と、Ag(111)表面上に Bi が吸着した系の表面バンド構造の計算結果を図 1 に示す。図 1 は表面原子の原子球における  $k$  分解状態密度  $\rho(\epsilon, \mathbf{k})$  の強度マップを、横軸に  $k$ 、縦軸に  $\epsilon$  を取って描いたものである。暗い領域はバルクエネルギーバンドを表面に射影したときのエネルギーギャップである。このギャップ内に、表面での空間反転対称性の欠如により、クラマース縮退が解かれてスピン分極した表面局在バンドが現れるのが分かる。

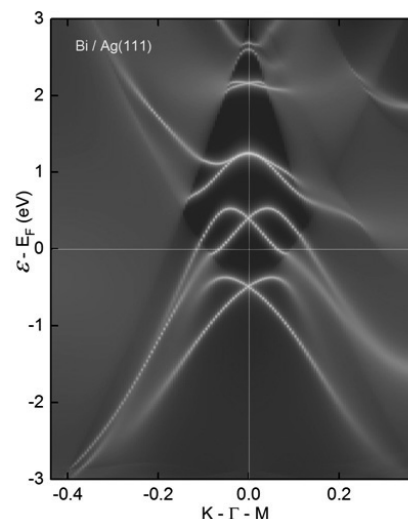


図 1 Bi/Au(111)表面の Rashba 効果

### 3. ナノ電磁界シミュレーションによる光と物質の相互作用の解析 (大貫進一郎)

ナノスケールの対象物に光が入射した場合の光-物質間相互作用を高速かつ高精度に数値解析できるシミュレーション法を開発し、本プロジェクトの超高密度磁気記録や量子通信に利用する光デバイスの設計を行った。これらの研究成果は、平成 25 年度理工学部学術賞や日本磁気学会より 2013 年論文賞として表彰された。

#### (3-1) 積分方程式法に基づく電磁界時間応答解析

積分方程式法と数値逆ラプラス変換法を併用した高速かつ高精度な電磁界時間応答解析法を開発した(J. Electromag. Waves and Applic., 2012)。提案手法は、計算誤差の制御が容易であり、任意の時間刻み幅および解析時間が選択可能である。また、提案手法に高速アルゴリズムと並列計算を併用することで、従来法に比べて 100 倍以上の高速化に成功した。高密度光直接記録用のプラズモニックアンテナの設計に適用し、ナノサイズの局所的な円偏光の生成を検証した。

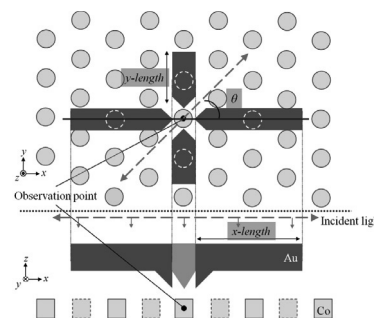


図 2 光直接記録による高密度記録方式

#### (3-2) 超高密度磁気記録に向けたプラズモニックアンテナと粒子媒体の設計

光直接記録方式による超高密度磁気記録の実現に向け、情報班の中川教授と共同で、局所的な円偏光を高効率に生成できるプラズモニックアンテナと多数の粒子から成る記録媒体を設計した(電気学会論文誌 A, 2014)。図 2 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差が 90 度となるようにアンテナ長を選定した。このアンテナに直線偏光を入射した場合、アンテナギャップ間の記録粒子一つにのみ局所的な円偏光が生成できることを確認した。提案した記録方式では、光直接記録を用いた 2Tbit/inch<sup>2</sup> の高密度記録が可能となる。

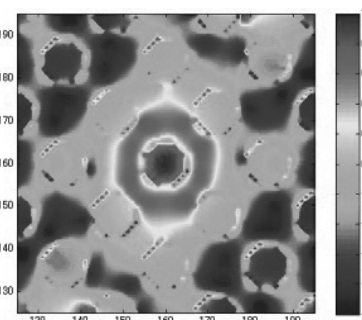


図 3 粒子状記録媒体中の円偏光度

また、情報班の塚本准教授と共同で、マイクロマグネティクスシミュレーションにより、粒子媒体中の磁化反転現象も併せて解析した。図 3 の解析例は、印加した外部磁界により磁化ベクトルが反転する様子を示す。

### (3-3) レーザ場中におけるナノ物質のマルチフィジクス解析

FDTD 法に基づくマックスウェル - シュレディンガー混合数値解析法を量子理論・計算班の佐甲准教授らと共同で開発し、レーザ場中におけるナノプレートのマルチフィジクス解析を行った(Int. J. Numer. Model., 2013). ポテンシャル構造に起因するトンネル効果が、薄膜内の電流密度および近傍の電磁界に与える影響を検討し、従来の古典的な数値解法と比較することで提案手法の有用性を明らかにした. 図4は薄膜内の電流密度の計算例で、提案手法でのみ正確な解析が可能となる. また、光による電子状態の制御を目的とし、光パルスの新しい設計法を提案した. ナノチューブ内の電子に、提案法により設計した光パルスを照射することで、高効率に電子を目的状態へ制御できることを明らかにした(図5, 6).

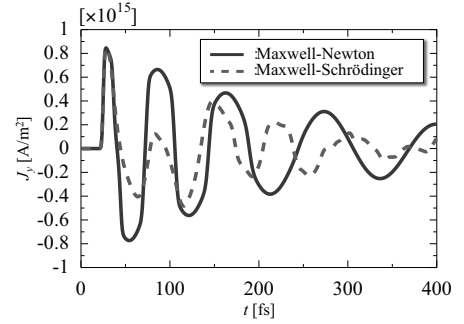


図4 ナノプレート内電流密度の時間応答

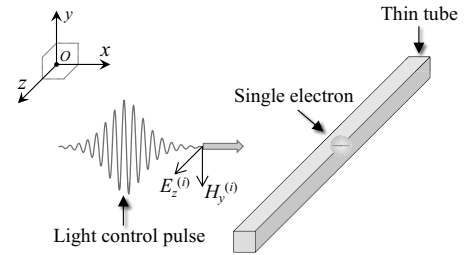


図5 ナノチューブと座標系

### (3-4) 高感度光検出器に向けたプラズモニック導波路の設計

金属ストライプとニオブ細線により構成される光検出器を設計した. 本デバイスは、電磁エネルギーを金属ストライプ近傍に集中し、この電磁エネルギーをニオブ細線内で熱エネルギーに変換することで、高効率な光検出を行う.金属ストライプを用いることで、ニオブ細線内のジュール熱が 50 倍程度高くなることを明らかにした.

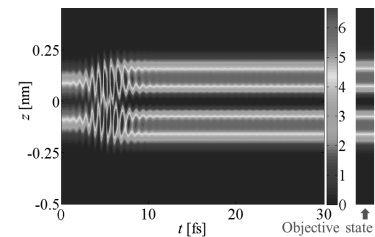


図6 光パルスによる電子状態の制御

## 4. 人工原子および自然原子におけるフントの規則と角度相関の起源 (佐甲徳栄)

少数の電子をナノスケールの人工的な低次元ポテンシャル井戸に閉じ込めた人工原子（量子ドット）は、量子力学原理に基いて動作する次世代ナノデバイスの基本素子としての大きな役割が期待されており、その量子構造の解明は最も本質的な研究テーマである. 本プロジェクトでは、人工原子および自然原子における電子スピン配列を決定する「フントの規則」に着目し、その起源の解明に取り組んだ. そして、スピンの反平行な一重項状態の波動関数において共役フェルミ孔と呼ばれる空孔が存在することを見出し、この共役フェルミ孔の存在によってフント則の起源が説明できることを明らかにした.

### (4-1) フント則の起源

前期量子論の時代に原子分光学分野で経験的に導かれたフントの規則は、同じ軌道配置を有し、異なるスピンを持つ状態間のエネルギー順序を予言する三つの規則であり、特にスピンに関する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. 一方、この規則が成り立つメカニズムについては、一電子演算子と二電子演算子の相対的な重要性に関する、数十年に及ぶ長い議論の歴史にも関わらず、未だ統一した理解が得られていない. このため本研究では、He 様原子系および対応する 2 電子人工原子を対象として、このフントの第一規則が成り立つ起源の解明に取り組んだ.

人工原子あるいは量子ドットは、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有限多電子系であり、多くの場合近似的に 2 次元調和ポテンシャル中に束縛された複数電子としてモデル化される. 本研究では、この人工原子と He 様原子の詳細な比較を行うために、2 次元調和ポテンシャルおよび 2 次元クーロンポテンシャルに束縛された 2 電



子系の固有エネルギーおよび波動関数を完全 CI 法によって計算した。得られた CI 波動関数から、二電子の相関を完全に記述する「内部波動関数」を抽出しその構造を調べた。その結果、閉じ込めが強い極限において、スピンの平行な三重項状態のみならず、スピンの反平行な一重項状態においても、波動関数の確率密度が零となる「共役フェルミ孔」と呼ばれる空孔が存在することが初めて見出された (図 7, *Phys. Rev. A* 2011)。そして、この共役フェルミ孔の存在によって、一重項状態の波動関数は三重項状態よりも空間的に広がり、そのため、より高いエネルギー値を持つこと、すなわちフントの第一規則が成り立つことを明らかにした (*J. Phys. B* 2012)。この論文は英国物理学会が選出する IOP セレクトに選ばれ、また欧州物理協会が発行する *Europhysics News* で紹介された。またこの成果により、日本物理学会からの依頼を受けてフント則の起源について解説記事を執筆し、2013 年の学会誌に掲載された (日本物理学会誌 2013)。

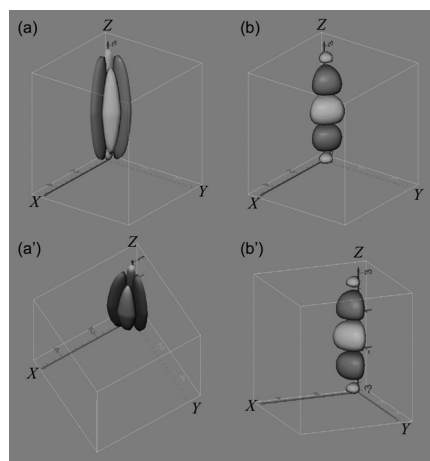


図 7 二電子の内部空間における共役フェルミ孔 (赤) と通常のフェルミ孔 (ブルー)。

### 5. フォトニック結晶導波路のスイッチング効果と欠陥部へのエネルギー効率 (山崎恒樹)

フォトニック結晶構造は光の波長程度をもつナノ領域の光回路デバイスとして近年注目を集めている。特に、フォトニック結晶構造を用いたスイッチング効果や光閉じ込め効果へのデバイス応用が期待されている。本研究では、多数の周期的円柱配列からなる中間層に様々な誘電体構造(誘電体角柱, 誘電体円柱, 誘電体ひし形柱)等を内蔵し、散乱問題と導波問題を解析する事により、光スイッチング効果や光閉じ込め効果を得られる最適な誘電体構造について検討した。

#### (5-1) 誘電体角柱を内蔵した場合のスイッチング効果

中間層内部に内蔵した誘電体角柱の誘電率を変化した場合について、入射角  $\theta_0$  を変化した時の 0 次電力透過係数  $|T_0|^2$  を計算した。その結果、TM 波では  $\theta_0 \cong 9^\circ (\epsilon_3/\epsilon_0 = 3)$ , TE 波では  $\theta_0 \cong 26^\circ (\epsilon_3/\epsilon_0 = 2)$  でスイッチング作用が得られることがわかった。また規格化周波数  $p/\lambda$  を変化した場合について調べたところ、TM 波では低周波 ( $0.58 < p/\lambda < 0.66 (\epsilon_3/\epsilon_0 = 2,3)$ ) と高周波領域 ( $1.2 < p/\lambda < 1.3 (\epsilon_3/\epsilon_0 = 2,3)$ ) の 2 か所でスイッチング作用が得られ、TE 波の場合には、低周波領域 ( $0.53 < p/\lambda < 0.55 (\epsilon_3/\epsilon_0 = 2,3)$ ) でスイッチング作用が得られることが示された。

#### (5-2) 様々な誘電体導波路構造における光閉じ込め効果

誘電体円柱とエアホール円柱配列で構成した欠陥部を有する誘電体導波路について、光閉じ込め効果を検討した。誘電体円柱配列およびエアホール円柱配列の従来構造を含めた誘電体導波路の構造の中から、各構造における伝搬特性とエネルギー分布を精度よく解析した。中間層に内蔵した誘電体構造による欠陥部のエネルギー閉じ込め効果について、TE mode の最適な構造を探索した結果、構造(B)の欠陥部に対するエネルギーは、構造(A)の従来型に比べて集中している事が見出された (図 8)。

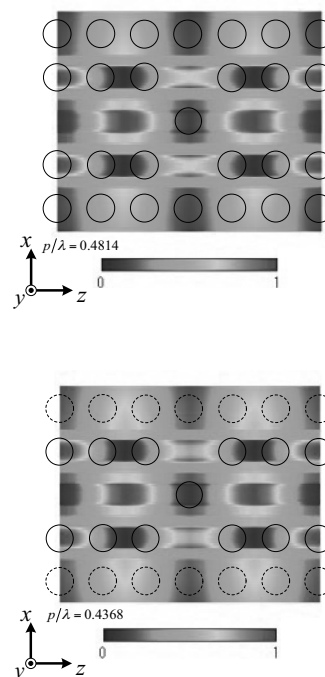


図 8 構造 A (上) と B (下) に対する伝搬域中でのエネルギー分布