

戦略的創造研究推進事業
個人型研究(さきがけタイプ)
追跡調査報告書

「場と反応」領域(1994年度発足)

2006年3月



はじめに

戦略的創造研究推進事業の個人型研究（さきがけ）は、時代を先駆ける科学技術の芽を創ることを目的とする事業であり、1991年に「さきがけ研究21」として発足してから15年の歴史を持っています。今後もさきがけを、時代の変化に応じてより発展させていくためには、これまで培われてきた制度の運営方法のうち、目的を達するために有効であった部分と、改善すべき部分を正確に認識（評価）する必要があると考えられます。このため科学技術振興機構（以下、JSTと略記）では、事後評価を補完するとともにさきがけの事業運営に資することを目的として、研究終了後一定期間を経た後、研究成果の発展状況や活用状況、参加研究者の活動状況等について調査を行うこととしています。なぜなら、本追跡調査の調査対象である基礎研究の場合、その成果が目に見える形で実を結ぶまでに長い時間を要することが多く、研究終了直後の事後評価だけではその成果を知ることが困難だからです。

さきがけの追跡調査では、時代を先駆ける科学技術の芽が創られるきっかけを提供することができたかどうかを評価することが最も重要です。このため、今回は下記の3点に焦点を絞って調査を行いました。

「過去の研究実績にとらわれず、研究者個人のアイデアを重視した採択」

「領域会議を通じた研究者ネットワークの構築」

「所属組織から独立して研究を実施することを通じた、研究者の自立・成長の促進」

さきがけにおける追跡調査は平成14年度から開始しましたが、その方法論はまだ確立されておりません。そのため、本追跡調査においても、前回の手法にとらわれることなく制度の目的に合った調査方法を模索するというスタンスをとっています。

今回の調査では、研究者に対するアンケートによってさきがけ前後の研究の発展状況を調査するだけでなく、第三者の視点から客観的な調査を行う事を目的として、領域アドバイザーの方々にも意見を伺いました。また、外部調査機関の協力のもと、発表論文数や主要成果論文の被引用件数等の数値データを他の研究者の統計値と比較し、さきがけ終了後の状況を客観的に把握することに努めました。

今回の調査にあたりご協力いただいた関係各位に深く感謝いたします。

2006年3月

独立行政法人 科学技術振興機構

戦略的創造事業本部 研究推進部 研究第二課

目次

1. エグゼクティブサマリー.....	1
2. 調査目的.....	4
3. 調査対象.....	4
3.1. 研究領域の概要	4
3.2. 参加研究者と研究課題一覧	4
3.3. 研究総括・領域アドバイザー	8
4. 調査方法と経過.....	8
4.1. 基礎データの収集.....	10
4.2. 研究者に対するアンケート調査および研究サマリーの作成	10
4.2.1. アンケート調査.....	10
4.2.2. 研究サマリー	11
4.3. 研究総括・領域アドバイザーに対するアンケート調査.....	12
4.3.1. 調査項目	12
4.3.2. 調査対象および回答者数	13
4.3.3. 調査期間	13
4.4. データの整理・補完・集計・分析.....	13
4.4.1. データの整理・補完.....	13
4.4.2. 数値データの集計・分析	14
4.5. 領域アドバイザーの意見調査.....	15
4.6. 研究総括による総評	16
5. 調査結果.....	16
5.1. 各課題の成果および現状	16
5.1.1. 採択時の位置づけ	16
5.1.2. 現時点での評価.....	18
5.2. 研究者ネットワークの形成	19
5.2.1. ネットワークの形成.....	19
5.2.2. 共著論文	19
5.2.3. 共同プロジェクト	20
5.3. 研究者の成長.....	21
5.3.1. 論文数の推移	21
5.3.2. 主要成果論文の被引用件数の年次推移	22
5.3.3. 原著論文被引用件数に関する評価	23
5.3.4. 特許出願件数の推移.....	24
5.3.5. グラント獲得金額の推移	25
5.3.6. 研究者の所属および職位の推移.....	26

5.3.7. 教授就任時の年齢	28
5.3.8. 受賞	28
5.4. 総括総評	31
6. 謝辞	34
参考資料（研究サマリー）	35

1. エグゼクティブサマリー

<制度概要>

さきがけ研究では研究総括のマネジメントのもと、研究総括・領域アドバイザーの助言を得て、同じ研究領域に集まった様々な機関やバックグラウンドの研究者と交流・触発しながら、個人が独立した研究を推進する。

<追跡調査目的>

本制度では下記の3点を特色として運用している。

- | |
|---|
| <ul style="list-style-type: none">① 過去の研究実績にとらわれず、提案内容を重視した採択② 領域会議¹を通じた研究者ネットワークの構築③ 所属組織から独立して研究を実施することを通じた、研究者の自立・成長の促進 |
|---|

本追跡調査では、各研究課題の事後評価を補完するとともにさきがけ研究の評価に資することを目的として、研究終了後一定期間を経た後、研究成果の発展状況や活用状況、参加研究者の活動状況等について調査を行い、本制度の特色が活かされたかどうかの検証を行うことを目的とする。なぜなら、本追跡調査の調査対象であるさきがけ研究の場合、その成果が目に見える形で実を結ぶまでに長い時間を要することが多く、研究終了直後の事後評価だけではその成果を知ることは困難だからである。

<追跡調査結果>

① 過去の研究実績にとらわれず、提案内容を重視した採択

研究総括及び領域アドバイザーへの意見調査から、採択当時、新たな領域開拓が期待された課題（以下、「萌芽的・挑戦的課題」）は20件であった。これら20件の萌芽的・挑戦的課題のうち、現時点で成果が認められ、新しい領域を開拓したと見られる課題は8件であった。ただし、他の課題についても、今後研究の認知度が上がっていくことが期待される。

② 領域会議を通じた研究者ネットワークの構築

さきがけ研究は個人で進める研究制度であるが、様々な分野の研究者との意見交換、議論を通して、研究に広がりを持たせることが可能となる。そのような交流を促進する上で研究者ネットワークが重要な役割を果たす。

表5.1.1.に示すように、31課題の研究分野は多岐に富んでおり学際的な研究領域が構築されたことは明白である。さきがけ研究者のアンケートの中で、自由記述のコメントを寄せた研究者（15名）のうち過半数の8名が、本制度を経験する中で役立ったと思うことに

¹1年に2回、研究総括、領域アドバイザー、研究者が一堂に会し、各研究者が研究内容・進捗状況を報告する合宿形式の会議

「領域会議を通じた研究者ネットワーク」を挙げている。その効果としては、同じ立場で研究に臨む研究者がいることで、研究上の困難を克服するモチベーションにつながったことや、異分野の研究発表はその時は理解できずとも後になって重要なヒントを与えてくれたというものであり、研究者自身の成長や研究テーマの進展にも大きく寄与していることが示された。また、さきがけ終了後に他のさきがけ研究者と共同プロジェクトを開始したケースや共著論文を発表したケースも複数あり、さきがけで形成されたネットワークによって研究者の研究活動の幅が広がっていることが示された。

③ 所属組織から独立して研究を実施することを通じた、研究者の自立・成長の促進

さきがけ研究では、研究期間中は JST に所属し(所属機関との兼務も可能)、研究機器等の調達も所属機関ではなく JST が直接行う。これは研究者が所属機関・研究室のヒエラルキーから解放され、独立して研究を行えるようになることで、研究者に 3 年の間、さきがけ研究に集中して取り組んでもらうことを目的としている。

実際に、さきがけ研究開始前、さきがけ研究中、さきがけ研究終了後～現在までで、発表論文数、特許出願数、獲得ファンド額などを比較したところ、いずれの項目においてもさきがけ終了後のアクティビティが向上していることが認められた。更に、さきがけ研究者の論文平均被引用件数を調べたところ、同分野の論文の平均値と比較して高い被引用件数を示している。

また、研究者のアクティビティを計る別の指標として、職位の推移に着目した。さきがけ後に教授となった研究者は 20 名で、その教授就任時の年齢をみると、40 歳から 45 歳が最も多くなっている。

<まとめ>

本追跡調査の結果から、研究成果、研究者の研究活動の両方の観点で本制度の目標が達成されていることが示された。しかしながら、研究総括や領域アドバイザーの見解として、必ずしも採択当初のねらい通りにいかなかったと見られる課題もある。その要因としては、技術的な困難を解決できなかったということ以上に、研究者個人の置かれている研究環境の影響が大きく、研究テーマや研究手法の巧拙とは異なる要因が関わっていた。

さきがけでは様々な研究環境の研究者が集まっているにもかかわらず、大半の研究者は優れた研究成果を挙げており、若手研究者の独創的な個人研究を支援し、成果につなげるという意味では、研究資金の提供に留まらず、個人研究に専念できるような環境の整備が重要であることが改めて浮き彫りになった。さきがけ研究制度の仕組みはこの観点での支援が盛り込まれており、このことも研究成果につながっていると考えられる。

本制度の仕組みは海外の有識者からも高い評価を受けている²。スウェーデンでは、将来

² JST 戦略的創造研究推進事業国際評価委員会報告書、平成 18 年 8 月公表予定、戦略的創造研究推進事業国際評価委員会

の研究リーダーとなる人材を育成することを目的に、若手研究者にまとまった研究資金と独立して研究を実施できる環境を与える“INGVAR Grants”制度³がSwedish Foundation for Strategic Researchによって2000年に設立された。2003年4月、この制度の対象となっている若手研究者と、さきがけ研究者を含む日本の若手研究者によるワークショップが開催され、活発な意見交換が行われた。また、アメリカ合衆国でも類似の制度が設立された。

本追跡調査時点で明確に成果を判断できるまでには至っていない課題もあるが、研究テーマごとに成果が判断できるまでに要する時間はそれぞれ異なっていると思われ、今後も継続して動向を注視していくことが重要と考えている。

³ Individual Grant for the Advancement of Research Leaders

2. 調査目的

戦略的創造研究推進事業の個人型研究(さきがけタイプ)(以下、さきがけ研究)において、事後評価を補完するとともに事業に係わる評価に資することを目的として、研究終了後一定期間を経た後の研究成果の発展状況や活用状況、参加研究者の活動状況等を調査し、客観的事実について収集する。

3. 調査対象

本調査では 1994 年度に発足した「場と反応」領域を調査の対象とする。

3.1. 研究領域の概要

分子や原子をとりまく物質的、エネルギー的な環境としての「場」と、原子や分子の相互作用およびそれに伴う物質の生成・変化の過程(反応)との関係に着目する。すなわち、反応の各過程におけるエネルギー状態、スピン状態、あるいは物質の相の変化などが場からどのような影響を受けているのか、さらには、その影響が、物質の生成・変化の過程での選択性、活性化、応答性、構造の秩序化や安定性などにどのように寄与をしているかを探求する。具体的には、物理的、化学的な場、生体の場などにおける原子や分子の挙動、状態変化、相互作用の解明、さらには場を用いた反応の時空間的制御および物質選択性の検討、機能的な場の設計および創出などの研究を含む。

3.2. 参加研究者と研究課題一覧

表 3.2-1、表 3.2-2、表 3.2-3 に参加研究者と研究課題一覧を示す。採択年度により 1 期生、2 期生、3 期生に分かれる。各研究期間は、1 期生：1994 年 10 月～1997 年 9 月、2 期生：1995 年 10 月～1998 年 9 月、3 期生：1996 年 10 月～1999 年 9 月である。

なお、2 期生、3 期生には、2 年間の期間延長が認められた研究者がおり、その期間は 2 期生：1999 年 5 月～2001 年 4 月、3 期生：2000 年 3 月～2002 年 2 月である。

表 3.2-1 参加研究者と研究課題一覧(1期生)

氏名	応募時の所属・役職	現在の所属・役職	さががけ研究課題名
居城 邦治	北海道大学電子科学研究所 講師	北海道大学 電子科学研究所 教授	DNA で分子エレクトロニクス素子をつくる
井上 公	工業技術院 電子技術総合研究所 研究官	(独)産業技術総合研究所 強関連電子技術研究センター 主任研究員	モット転移近傍の異常な金属状態
宇高 恵子	京都大学理学部 助手	高知大学 医学部 教授	ペプチドで T リンパ球の特異性をさぐる
小山 行一	富士写真フィルム株式会社 足柄研究所 主任研究員	桐蔭横浜大学 工学部 機能化学工学科 教授	タンパク質を利用する受光素子
瀬川 浩司	京都大学工学部 助手	東京大学 先端科学技術研究センター 教授	光や電子を自在に操るナノ構造分子システム
中里 勝芳	理化学研究所 太陽光エネルギー科学研究グループ 長期流動研究員	日本大学 文理学部 物理生命システム科学科 教授	酸素をつくるタンパク質の3D構造を観る
福谷 克之	東京大学物性研究所 助手	東京大学 生産技術研究所 教授	固体表面の反応を光と磁場で追う
藤井 紀子	武田薬品工業株式会社 契約研究員	京都大学 原子炉実験所 教授	老化と D-アミノ酸-白内障の根絶へ向けて-
持地 広造	株式会社日立製作所 中央研究所 主任研究員	兵庫県立大学 大学院工学研究科 教授	多価イオン照射で新しい固体表面をつくる
吉田 博	東北大学理学部 助教授	大阪大学 産業科学研究所 教授	電子励起で半導体の原子移動を制御する

表 3.2-2 参加研究者と研究課題一覧(2 期生)

氏名	応募時の所属・役職	現在の所属・役職	さきがけ研究課題名
小川 誠	早稲田大学教育学部 専任講師	早稲田大学 教育学部 教授	無機固体表面にナノ 空間を創る
小林 光	大阪大学基礎工学部 助教授	大阪大学 産業科学研究所 教授	界面を光電子分光法 で観る
笹木 敬司	大阪大学工学部 助手	北海道大学 電子科学研究所 所長	輝くミクロな球でナ ノ空間を観る
篠原 寛明	岡山大学工学部 助教授	富山大学 工学部 教授	電子を運ぶ人工のペ プチドや蛋白質を創 る
末岡 和久	北海道大学工学部 助手	北海道大学 大学院情報科学研 究科 教授	走査型トンネル顕微 鏡でスピンを観る
竹内 繁樹	三菱電機株式会社 先端技術総合研究所 研究員	北海道大学 電子科学研究所 助教授	量子計算の実現に向 けて
田中 雅明	東京大学大学院 工学系研究科 助教授	東京大学 大学院工学系研究科 教授	エピタキシャル成長 による半導体と磁性 体の一体化
田中 康隆	静岡大学工学部 助教授	静岡大学 工学部 助教授	簡単な分子で触媒や 素子をつくる
長谷川 幸 雄	東北大学金属材料研究所 助教授	東京大学 物性研究所 助教授	表面を動きまわる電 子
宗像 利明	理化学研究所 マイクロ波物理研究室 先任研究員	大阪大学 大学院理学研究科 教授	金属表面と分子との 化学結合を観る

表 3.2-3 参加研究者と研究課題一覧(3 期生)

氏名	応募時の所属・役職	現在の所属・役職	さきがけ研究課題名
相田 卓三	東京大学大学院 工学系研究科 助教授	東京大学 大学院工学系研究 科 教授	巨大分子のナノ空間 を利用する機能制御
石田 昭人	大阪大学産業科学研究所 助手	京都府立大学 大学院人間環 境学研究科 助教授	電子とエネルギーの 流れで分子の姿を見 る
伊藤 治彦	財団法人神奈川科学技術アカ デミー 研究員	東京工業大学 大学院総合理 工学研究科 助教授	ナノの光で原子を制 御する
井上 将彦	大阪府立大学工学部 助教授	富山大学 薬学部 教授	生体分子を人工分子 で認識する
植田 千秋	大阪大学大学院 理学研究科 助教授	大阪大学 大学院理学研究科 助教授	非磁性酸化物結晶の 磁場整列能率をさぐ る
小森 和弘	工業技術院電子技術総合研究 所 光技術部 主任研究官	(独)産業技術総合研究所 光技 術研究部門 グループリーダー	フェムトの時間域で 電子を操作する
高桑 雄二	東北大学科学計測研究所 助教授	東北大学 多元物質科学研究 所 助教授	ダイヤモンドを光で つくる
田和 圭子	工業技術院大阪工業技術研究 所 光機能材料部 研究官	(独)産業技術総合研究所 関西 センター 主任研究員	偏光で機能する高分 子を偏光分光法で観 る
中迫 雅由	理化学研究所 生物物理研究室 研究員	慶應義塾大学 理工学部 教授	蛋白質と水の界面構 造を観る
水谷 五郎	北陸先端科学技術大学院大学 材料科学研究科 助教授	北陸先端科学技術大学院大学 材料科学研究科 教授	光の倍音で見る世界
Oliver B. Wright	北海道大学工学部 教授	北海道大学 大学院工学研究 科 教授	光励起によるナノ・ スケール超音波表面 振動のマッピング

3.3. 研究総括・領域アドバイザー

表 3.3 研究総括⁴・領域アドバイザー⁵一覧（敬称略）

氏名	現所属	現役職	さきがけ研究との関係
吉森 昭夫	大阪大学	名誉教授	研究総括
安保 正一	大阪府立大学	教授	領域アドバイザー
井上 頼直	理化学研究所	元 理事	領域アドバイザー
北澤 宏一	(独)科学技術振興機構	理事	領域アドバイザー
小林 誠	高エネルギー加速器研究機構	元 理事	領域アドバイザー
潮田 資勝	北陸先端科学技術大学院大学	学長	領域アドバイザー
関 一彦	名古屋大学	教授	領域アドバイザー
堀越 佳治	早稲田大学	教授	領域アドバイザー
八木 克道	東京工業大学	名誉教授	領域アドバイザー
米山 宏	大阪大学	名誉教授	領域アドバイザー

4. 調査方法と経過

今回の調査では、A.採択されたテーマが、さきがけ研究終了後どの様に発展したか、B.さきがけを通じて研究者ネットワークが構築されたか、C.さきがけを通じて研究者がどのように成長したか、を知るために調査項目を設定した。

図 4 は調査方法をまとめたものである。まず(1)領域の概要や、研究者の最新の連絡先等の基礎データを調査した後、(2)研究者へのアンケート調査により発表論文、口頭発表リストなどのデータ⁶を提供してもらうとともに、研究サマリー⁷の作成を依頼し、(3)JST側で提供されたデータの整理および検索等によるデータの補完を行った。さらに(4)各研究課題が採択時にどの様に評価されていたかについて、研究総括・領域アドバイザーを対象としてアンケート調査を行い、(5)得られた結果を整理、分析した。最後に(6)領域アドバイザーの意見調査を行い、(7)研究総括による総評、を受けて報告書を作成した。

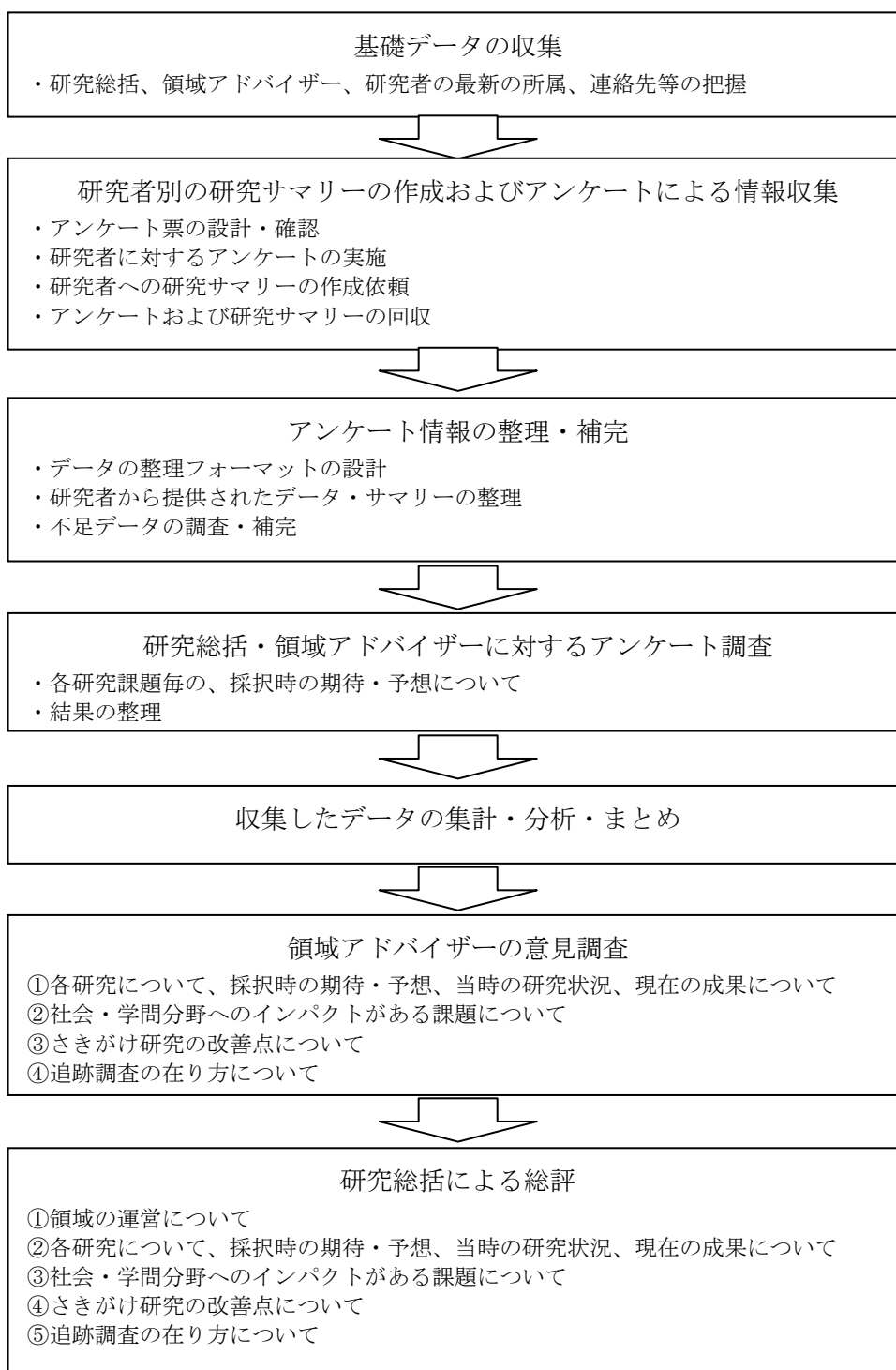
⁴ 研究総括：研究領域の責任者。研究課題・研究者の事前評価(選考)、事後評価の開催、研究期間中の研究推進を行う。

⁵ 領域アドバイザー：研究総括に協力し、研究課題・研究者の事前評価(選考)、事後評価、及び研究推進に関するアドバイスをを行う。

⁶ データ：発表論文、特許、経歴書、受賞、取得研究助成金等

⁷ 研究サマリー：研究概要、さきがけ前・中・後の活動・成果、研究分野の発展状況についてまとめたもの

図 4 調査の流れ



4.1. 基礎データの収集

研究総括、領域アドバイザー、研究者の所属、連絡先等については、JST 所有の「さきがけ研究 21」終了時の名簿をベースとし、インターネット検索等により最新情報を入手した。研究総括、領域アドバイザー、研究者について全員の連絡先を確認した。

4.2. 研究者に対するアンケート調査および研究サマリーの作成

A.採択されたテーマが、さきがけ研究終了後どの様に発展したか、B.さきがけを通じて研究者ネットワークが構築されたか、C.さきがけを通じて研究者がどのように成長したか、という観点から、研究成果、研究活動、経歴に関する情報を調査した。

4.2.1. アンケート調査

(1)調査項目

調査項目を表 4.2.1 に示す。これらの情報は、さきがけ研究者自身も保有していると考えられたため、手元にある資料の提供を求めた。研究者の成長を調べるにはさきがけ研究以前からのデータを収集する必要があるため、さきがけ研究開始 5 年前から 2005 年 7 月現在までのデータの提供を求めた。また、発表論文リストからさきがけ研究に関する主要成果論文を抽出するといった、付加的な情報についても求めた。

研究者から得られなかった場合、もしくは、欠落があった場合は、JOIS のデータベースや研究者およびその所属機関のホームページなどから検索して補充した。

表 4.2.1 アンケート調査における調査項目

-
- 研究者情報
氏名、所属機関、部署、役職、勤務先住所、電話番号、ファックス番号、E-メールアドレス、所属学会、さきがけ研究課題に関するキーワード
 - 発表論文リスト
原著論文、主要成果論文 5 件の抽出
さきがけ研究課題との関連
 - 口頭発表リスト
招待／基調講演の抽出
国内学会／国外学会の区別
 - 職歴
所属機関、部署、役職、常勤／兼務の別
 - 学位
取得年月、学位名、学位論文名
 - 研究助成金リスト

研究助成金名、研究テーマ名、期間、金額、役割

- 受賞リスト

受賞名、受賞機関名、受賞年月

さきがけ研究課題との関連

- 特許出願リスト

出願番号、発明の名称、登録年、登録番号、国内／外国出願の別、ライセンス実施の有無

- 研究者ネットワーク構築状況(他のさきがけ研究者との共同研究等)

論文：共著論文、協力関係の明示された論文

共同プロジェクト：プロジェクト名、期間、他のさきがけ研究者名、研究助成金名、金額

その他のネットワーク形成例

- その他の業績

シンポジウム、ワークショップ、分科会等の座長／総括

学会や研究グループの設立

マスコミ登場歴等

- さきがけ研究に対する意見、感想等

研究経歴におけるさきがけ研究の意味

さきがけ研究制度に対する評価等

(2)調査対象及び回答者数

4.1で連絡先を確認できた研究者31名に対して、アンケート調査への協力依頼状の送付、電子メールや電話での協力依頼を実施した。最終的には26名(84%)の参加研究者から回答を得た。

(3)調査期間

2005年7月～2005年12月

4.2.2. 研究サマリー

(1) 調査内容

A.採択されたテーマが、さきがけ研究終了後どの様に発展したか、という観点から、表4.2.2に示す整理項目に沿って、さきがけ前・中・後の研究活動の状況・成果等をまとめた研究サマリーを作成した。研究サマリーは研究者以外の人物が正確に作成することは困難であるため、研究者自身に作成を依頼した。また、研究総括による研究者訪問を10件程度実施し、研究者の発展状況の正確な把握に役立てた。なお研究サマリーは、4.6領域ア

ドバイザーの意見調査を実施する際に、領域アドバイザーの参考資料とした。また、本報告書の巻末に掲載した。

表 4.2.2 研究サマリーにおける整理項目

-
- 研究者氏名
 - さきがけ研究課題名
 - さきがけ研究期間
 - さきがけ研究の目的・位置づけ
 - さきがけ研究前の状況・成果
 - さきがけ期間中の状況・成果
 - さきがけ期間後の状況・成果
 - 当該研究分野の発展状況
-

(2)調査対象及び回答者数

4.1 で連絡先を確認できた研究者 31 名に対して、研究サマリー作成への協力依頼状の送付、電子メールや電話での協力依頼を実施した。最終的には 27 名(90%)の参加研究者から回答を得た。

(3)調査期間

2005 年 7 月～2005 年 12 月

4.3. 研究総括・領域アドバイザーに対するアンケート調査

さきがけ制度の特色の一つである、「過去の研究実績にとらわれず、研究者個人のアイデアを重視した萌芽的・挑戦的な課題の採択」がどの程度行われたか、を検証する観点から、研究総括・領域アドバイザーを対象とするアンケート調査を実施した。その際、選考時の評価結果、および採択時の研究提案書を参考情報として提供した。

4.3.1. 調査項目

表 4.3.1 に示す項目についてのアンケート票を送付し回答を求めた。

表 4.3.1 調査項目

-
- 当該研究課題に対する、採択時の期待(以下の 3 者択一およびその理由に関する自由記述)

①採択時には時代の本流ではないが、新たな領域開拓が期待される萌芽的・挑戦的な課題であったか。

②既に参画する研究者が多い研究分野であるが、その中でトップレベルの研究を進める課題であったか。

③その他

- 当該研究課題に対する、難易度の評価(以下の3者択一およびその理由に関する自由記述)

①困難

②普通

③容易

4.3.2. 調査対象および回答者数

表 3.3 に掲げた研究総括、領域アドバイザー全員に対して、調査への協力依頼状や調査票の送付、電子メールや電話での協力依頼を実施した。研究総括には全課題について、領域アドバイザーには、課題採択時に査読を担当した課題について回答を求めた。最終的には8名(80%)の方から回答を得た。

4.3.3. 調査期間

2005年9月～2005年11月

4.4. データの整理・補完・集計・分析

4.4.1. データの整理・補完

4.2.1. アンケート調査で得られたデータを予め定めたフォーマットに整理した。さきがけ研究者から得られなかったデータについては、可能な範囲で調査しデータを補完した。情報収集に用いた手段は以下のものである。

①JOIS⁸による検索

②DIALOG⁹中のSciSearchによる検索

③特許庁のデータベース(国内出願特許)

④欧州の特許データベース ESP@cenet(海外出願特許)

⑤米国の特許データベース USPTO(海外出願特許)

⑥PATOLIS(海外出願特許)

⑦Google¹⁰による検索

⑧政府プロジェクトの報告書、公的研究機関の年報等

⑨総説、解説、参考書

⁸ <http://pr.jst.go.jp/db/jois/index.html>

⁹ <http://www.dialog.com/>

¹⁰ <http://www.google.com/intl/ja/>

⑩辞典類

⑪科学雑誌類

4.4.2. 数値データの集計・分析

4.2.1. アンケート調査によって得られたデータを基に、「さきがけ前」(5年間)、「さきがけ中」(3年間)、「さきがけ後」(終了後2005年まで)の期間毎に、さきがけ研究者全体でのデータを各種集計した。統計項目を表4.4.2-1に示す。主な調査項目は、C. さきがけを通じて研究者がどのように成長したか、の観点から、論文発表数等、研究活動の変化が分かるように設定した。ただし、主要成果の被引用件数の推移については、さきがけ研究によりどのような学術分野が拓かれたか、の観点から設定した。

また、調査者側で可能な範囲で特許・論文等の事前調査を行った。情報収集に用いた手段は以下のものである。

表 4.4.2-1 統計項目

-
- 論文数の推移
 - 主要成果論文の被引用件数の推移
 - 特許出願件数の推移
 - 特許成立の割合と特許の利用状況
 - グラント獲得金額の推移
 - 役職の年次推移
 - 受賞
 - その他研究活動
-

実際のさきがけ研究期間は、1期生(10名):1994年10月～1997年9月、2期生(10名):1995年10月～1998年9月、3期生(11名):1996年10月～1999年9月である(JST資料による)が、便宜上、暦年(1-12月)で集計した。

なお、2期生、3期生でさきがけ期間を延長(2年間)した研究者については、延長期間もさきがけ期間に含んだ。

表 4.4.2-2 さきがけ研究の調査対象期間

	1 期生	2 期生	3 期生
さきがけ前(5 年間)	1990－1994 年	1991－1995 年	1992－1996 年
さきがけ中 (3 年間、延長者は 5 年間)	1995－1997 年	1996－1998 年 延長者：1996－2000 年	1997－1999 年 延長者：1997－2001 年
さきがけ後(2005 年まで)	1998－2005 年	1999－2005 年 延長者：2001－2005 年	2000－2005 年 延長者：2002－2005 年
対象者数	10 名	10 名 (うち延長 2 名)	11 名 (うち延長 2 名)

4.5. 領域アドバイザーの意見調査

前項までの追跡調査結果を基に、領域アドバイザーの意見調査を実施した。各研究分野において深い研究経験と見識を持つ領域アドバイザーから意見を伺うことで、研究成果に対する客観的・相対的な評価を得ることが目的である。また、領域アドバイザーはさきがけ研究者の採択時からの状況を把握しているため、研究者の成長についての意見を伺うことを第二の目的とした。

意見調査は、研究者毎に採択時および現時点における評価、研究サマリー、論文被引用件数等の数値データ等を取り纏めた資料を、事前に領域アドバイザーに送付した上で参集していただき、座談会形式にて実施した。意図した調査項目は、表 4.5-1 に示したとおりであるが、座談会形式ということもあり、各領域アドバイザーから自由に意見を述べて頂いた。

表 4.5-1 領域アドバイザーの意見調査における調査項目

-
- 各研究者・研究課題に対する意見
採択時の期待・予想、期間中の研究状況、現在の成果への感想、等
 - 特に、現時点に於いて客観的に見て各々の分野で優れた成果を挙げていると評価出来る研究者
 - さきがけ研究が果たした役割
 - さきがけ研究制度、研究助成制度、追跡調査等に対する意見・提言
-

座談会に出席頂いた領域アドバイザーを表 4.5-2 に示す。JST 職員 6 名、調査担当者 3 名が出席した他、内容に深く切り込んだ意見が得られるよう研究総括にも参加して頂いた。

表 4.5-2 出席領域アドバイザー(敬称略)

井上 頼道(理化学研究所 元理事)
小林 誠(高エネルギー加速器研究機構 元理事)
潮田 資勝(北陸先端科学技術大学院大学 学長)
北澤 宏一(科学技術振興機構 理事)
堀越 佳治(早稲田大学理工学部電気・情報生命工学科 教授)

4.6. 研究総括による総評

表 4.6 に示す追跡調査の資料を研究総括にお送りし、4.5 領域アドバイザーの意見調査等も踏まえた上で、①領域を運営するに当たって配慮した点、②各研究者・研究課題に対する意見、③さきがけ研究制度、研究助成制度等に対する意見・提言などを中心に、総評を行っていただいた。

表 4.6 研究総括への送付資料

-
- 研究サマリー(4.2 参照)
 - 各研究者の統計資料(*)
 - 研究者全体の統計資料(5.3 参照)
 - 領域アドバイザーの意見調査(要旨)
-

(*)研究者の経歴等、個人情報も含まれるため、非公開情報として取り扱った。

5. 調査結果

5.1. 各課題の成果および現状

5.1.1. 採択時の位置づけ

追跡調査の実施にあたり、領域総括やアドバイザーに対して 31 課題の採択時の位置づけについてアンケートを送付し、回答をお願いした。選考に当たった領域総括や複数のアドバイザーによって多少の意見の相違は見られるが、採択時に少なくとも 1 名がさきがけ制度の特色である「萌芽的・挑戦的な研究課題」と評価したのは 20 名であった。残る 11 名は、既に参画する研究者が多かった研究分野の中でトップレベルの研究成果が期待された課題であった。すなわち、「萌芽的・挑戦的な研究課題」といえる課題が 3 分の 2 を占めており、「さきがけ」制度の特色を反映した課題選択であったと言える。

31 課題の内容は、非常に広い範囲に分布しており、物理分野が 14 課題、化学分野が 12 課題、生物分野が 5 課題である。

表 5.1.1. 31 課題のマッピング

物理系	化学系	生物系
■ モット転移近傍の異常な金属状態 (井上公)	■ DNAで分子エレクトロニクス素子をつくる(居城邦治)	■ ペプチドでTリンパ球の特異性をさぐる(宇高恵子)
■ 固体表面の反応を光と磁場で追う (福谷克之)	■ タンパク質を利用する受光素子(小山行一)	■ 老化とD-アミノ酸-白内障の根絶へ向けて-(藤井紀子)
■ 多価イオン照射で新しい固体表面をつくる(持地広造)	■ 光や電子を自在に操るナノ構造分子システム(瀬川浩司)	■ 電子を運ぶ人工のペプチドや蛋白質を創る(篠原寛明)
■ 電子励起で半導体の原子移動を制御する(吉田博)	■ 酸素をつくるタンパク質の3D構造を観る(中里勝芳)	■ 生体分子を人工分子で認識する(井上将彦)
■ 界面を光電子分光法で観る(小林光)	■ 無機固体表面にナノ空間を創る(小川誠)	■ 蛋白質と水の界面構造を観る(中迫雅由)
■ 輝くマイクロな球でナノ空間を観る(笹木敬司)	■ 簡単な分子で触媒や素子をつくる(田中康隆)	
■ 走査型トンネル顕微鏡でスピンを観る(末岡和久)	■ 金属表面と分子との化学結合を観る(宗像利明)	
■ 量子計算の実現に向けて(竹内繁樹)	■ 巨大分子のナノ空間を利用する機能制御(相田卓三)	
■ エピタキシャル成長による半導体と磁性体の一体化(田中雅明)	■ 電子とエネルギーの流れで分子の姿を見る(石田昭人)	
■ 表面を動きまわる電子(長谷川幸雄)	■ ダイヤモンドを光でつくる(高桑雄二)	
■ ナノの光で原子を制御する(伊藤治彦)	■ 偏光で機能する高分子を偏光分光法で観る(田和圭子)	
■ 非磁性酸化物結晶の磁場整列能率をさぐる(植田千秋)		
■ フェムトの時間域で電子を操作する(小森和弘)		
■ 光の倍音で見る世界(水谷五郎)		
■ 光励起によるナノ・スケール超音波表面振動のマッピング(Oliver B. Wright)		

5.1.2. 現時点での評価

さきがけ研究終了時に事後評価を行っているが、直後ではまだ評価が定まっていないケースも多くあり、終了後5年(1期生は7年、2期生は6年)を経た現時点でその評価がどう変わったかを見た。なお、2期生のうち2名(小川誠、竹内繁樹)、3期生のうち2名(石田昭人、小森和弘)は研究期間を2年間延長している。ここで述べる評価は、領域総括、アドバイザーへの意見調査によるものであり、主として、高い成果をあげたと見られる研究者をピックアップしてコメントしたものである。

1期生10名の中で、業績、当該研究分野でのリーダーシップ両面で高い評価を受けている研究者として、藤井紀子、吉田博、宇高恵子の名前があげられた。

藤井紀子(老化とD-アミノ酸-白内障の根絶へ向けて-)は、さきがけ制度の典型的な成功例と評された。採択時は製薬企業の契約研究員という不安定な身分であったが、現在は大学教授である。宇宙線によってL体からD体への変異が増えることが白内障の原因との仮説は当時として斬新であり、これでタンパク質の老化を説明できないかという発想が審査員を動かした。本研究分野で中心的な存在であり、D-アミノ酸の研究会を立ち上げた。

吉田博(電子励起で半導体の原子移動を制御する)は、第一原理計算に基づく、マテリアルデザインという領域で成果を出している。リーダーシップがあり、COEの代表者として所属する研究所全体をまとめるという点でも優れていると評された。

また、さきがけ研究期間以降、1期生の中で著しい成長を見せた研究者として宇高恵子(ペプチドでTリンパ球の特異性をさぐる)の名前があげられた。免疫分子機構の根幹を分子構造学的あるいは生物物理学的手段で正面から解明しようとする意欲的なテーマであったが、若手の個人研究ではその実現は相当に困難を極めると思われていた。そのような中で、自らの力で多くの協力者を得、当初の予想を見事に覆し、さきがけ後劇的に変わった研究者の一人であると評された。

2期生では、小林光、竹内繁樹、田中雅明の名前があげられた。

小林光(界面を光電子分光法で観る)は、半導体の欠陥準位をシアン化物イオン(CN⁻)と反応させてSi-CN結合を形成する新規欠陥消滅法を開発した。この新規欠陥消滅法を用いて、シリコン太陽電池やLSI、TFTの基本構造であるMOSデバイスの電気特性を向上させることに成功した。この研究課題で、2000年~2005年10月の間、CREST研究(研究課題:新規化学結合を用いるシリコン薄膜太陽電池)の研究代表者として研究を行った。

竹内繁樹(量子計算の実現に向けて)は、当時一般の研究者にはほとんど知られていない量子計算機というテーマで採択された。その後は、さきがけの2年間の延長後、さきがけ「光と制御」に採択され、さらにさきがけ「量子と情報」の領域アドバイザーに選ばれ、さらにCRESTのチームリーダーに選任された。さきがけを契機に研究者として大きく成長した典型であると評された。

田中雅明（エピタキシャル成長による半導体と磁性体の一体化）は、その後さきがけ「光と制御」に採択され、スピントロニクスで新しい領域を開拓した。精力的に研究を進めており、この分野を牽引していると評された。IBM 賞を受賞した。

3 期生では、相田卓三、井上将彦、田和圭子の名前があげられた。

相田卓三（巨大分子のナノ空間を利用する機能制御）は、さきがけ後 ERATO の領域代表者になり、いまや押しも押されぬリーダーの一人に成長したと評された。ERATO でも将来の技術のシーズにつながる成果と高く評価されており、ERATO の成功例の中に入っている。IBM 賞を受賞した。

井上将彦（生体分子を人工分子で認識する）は、さらにさきがけ「情報、バイオ、環境とナノテクノロジーの融合による革新的技術の創製」領域に参加し、DNA の欠損を電流を流して検出する方法を開発した。学会の場でも、常に議論の中心であり、バイタリティーもあると評された。

田和圭子（偏光で機能する高分子を偏光分光法で観る）は、表面プラズモンの研究にシフトして当初期待以上の成果を挙げ、その成長が評価された。

以上は大半が「萌芽的・挑戦的課題」と位置づけられた課題であり、中でも藤井紀子、吉田博、小林光、竹内繁樹、相田卓三、井上将彦の 6 名については、複数のアドバイザーが「萌芽的・挑戦的課題」と評価している。いずれもその後の活躍に対する評価がきわめて高く、さきがけの趣旨どおりに進展した代表例であるといえる。

5.2. 研究者ネットワークの形成

5.2.1. ネットワークの形成

アンケートに対する回答で、研究における共同関係を挙げた研究者は 9 組(竹内－笹木、竹内－瀬川、竹内－末岡、竹内－水谷、田中康隆－石田、田中康隆－井上将彦、田中康隆－藤井紀子、田中康隆－井上公、田和－石田)であった。とりわけ、竹内、田中康隆が積極的な活動を示した。

5.2.2. 共著論文

竹内－笹木が 14 報発表した。

- K. Kojima, H. F. Hofmann, S. Takeuchi and K. Sasaki, *Nonlinear Optics, Quantum Optics*, 32(4), 221-245, 2005.
- A. Chiba, H. Fujiwara, J. Hotta, S. Takeuchi and K. Sasaki, *Appl. Phys. Lett.*, 86(26), 261106/1-3, 2005.
- H. Oka, S. Takeuchi and K. Sasaki, *Phys. Rev. A*, 72, 013816/1-7, 2005.

- S. Takeuchi, R. Okamoto and K. Sasaki, *Proceedings of the 48th SPIE International Conference, Quantum Communications and Quantum Imaging*, 5161, 101-108, 2004.
- K. Tsujino, H. F. Hofmann, S. Takeuchi and K. Sasaki, *Phys. Rev. Lett.*, 92(15), 153602/1-4, 2004.
- A. Chiba, H. Fujiwara, J. Hotta, S. Takeuchi and K. Sasaki, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 43(9A), 6138-6141, 2004.
- K. Kojima, H. F. Hofmann, S. Takeuchi and K. Sasaki, *Phys. Rev. A*, 70, 013810/1-6, 2004.
- S. Takeuchi, R. Okamoto and K. Sasaki, *Appl. Opt.*, 43(30), 5708-5711, 2004.
- H. Oka, H. F. Hofmann, S. Takeuchi and K. Sasaki, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 43(11A), 7495-7500, 2004.
- H. F. Hofmann, K. Kojima, S. Takeuchi and K. Sasaki, *Journal of Optics B: Quantum and semiclassical optics*, 5, 218-221, 2003.
- K. Kojima, H. F. Hofmann, S. Takeuchi and K. Sasaki, *Phys. Rev. A*, 68(1), 013803/1-13, 2003.
- H. F. Hofmann, K. Kojima, S. Takeuchi and K. Sasaki, *Phys. Rev. A*, 68, 043813/1-7, 2003.
- K. Tsujino, S. Takeuchi and K. Sasaki, *Proceedings of the 7th international symposium on foundations of quantum mechanics in the light of new technology*, 76-79, 2002.
- K. Tsujino, S. Takeuchi and K. Sasaki, *Phys. Rev. A*, 66(4), 042314/1-6, 2002.

5.2.3. 共同プロジェクト

共同プロジェクトを表 5.2.3 に示した。

表 5.2.3 領域内研究者との共同プロジェクトの例

研究者氏名	プロジェクト名	研究助成金名
竹内繁樹 笹木敬司	基盤(A)(2)光圧誘起キャピラリー波を利用した分子弾性応答解析(2003~2005)	科学研究費補助金
	微小球共振器を用いた、固体量子位相ゲートの実現に関する基礎研究(2001~2006)	総務省 戦略的情報通信研究推進事業
	基盤 B(2)一般単一ナノ構造体のレーザー放射圧分光顕微鏡(2001~2002)	科学研究費補助金
	基盤 B(2)展開量子情報通信用の単一光子源の開発(2000~2001)	科学研究費補助金

田中康隆 石田昭人	アクリジン核を共有結合したポルフィリン の分子内エネルギー移動に関する研究	
--------------	--	--

5.3. 研究者の成長

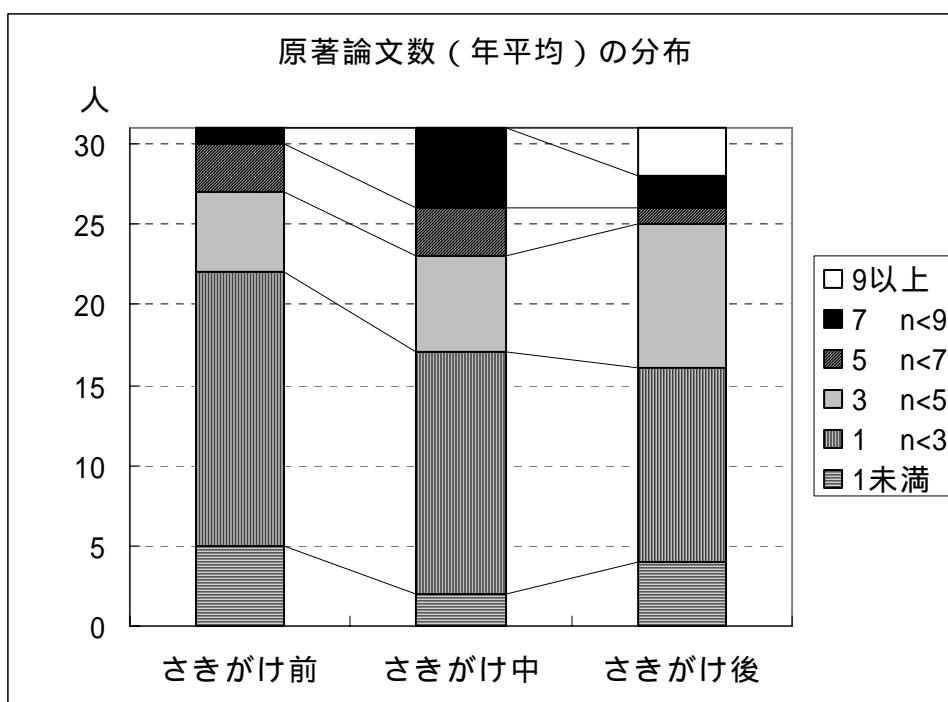
5.3.1. 論文数の推移

論文に関しては、評価対象者 31 名中 26 名(84%)の研究者から論文リストの提供を受けた。残りの 5 名については、研究室のホームページ、その他可能な情報をインターネットで検索したり、JST の報告書等に記載されている文献、科研費のデータベースに記載されている文献、等を参考にして出来るだけ補充し、全員の論文リストをそろえた。

論文リストの中には、原著論文以外に、総説・レビュー、研究資料、学会発表の Proceeding、書籍、等が混在しているものがあつた。研究者から原著論文の指定があつたものはその分類に従つたが、指定のないものについてはその内容を見て判断した。

今回追跡調査対象となつた「場と反応」領域の研究者 31 名の原著論文数のさきがけ前、中、後の推移を図 5.3.1. に示した。

図 5.3.1. 原著論文数のさきがけ前、中、後の推移



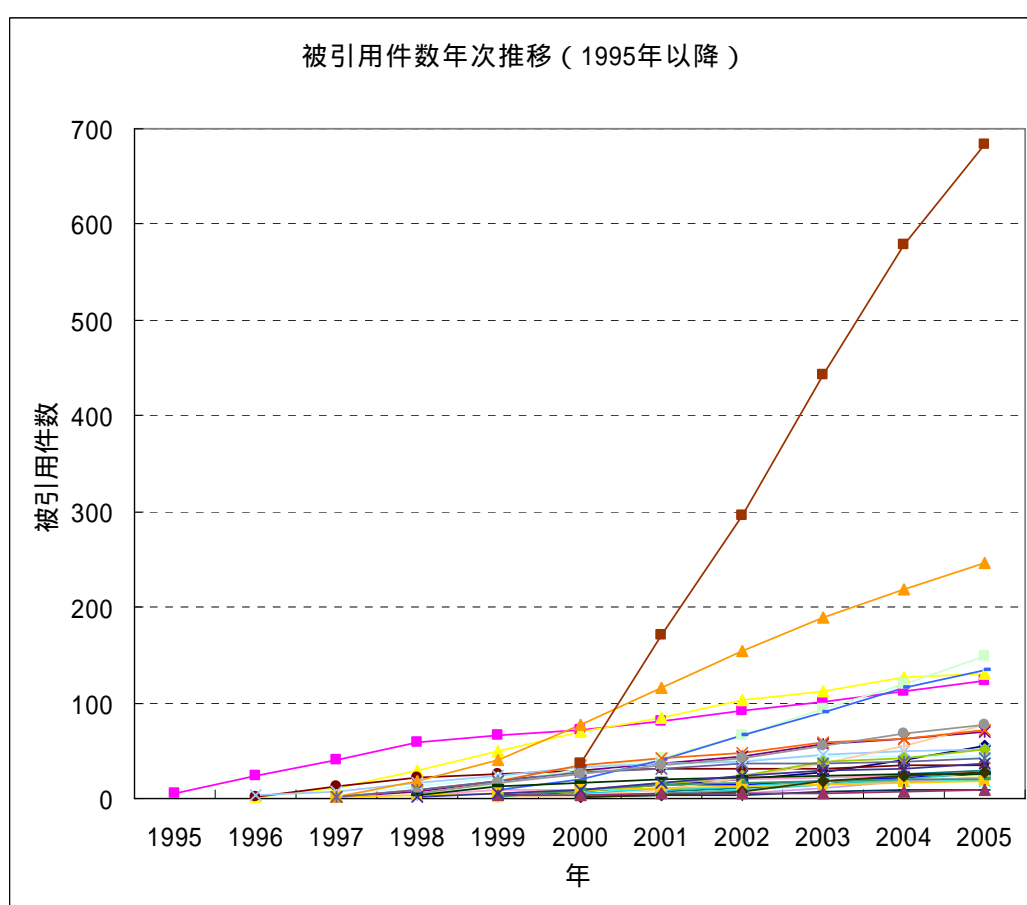
年平均 3 報以上原著論文を發表する研究者が増加しており、さきがけ後に年平均 9 報以上論文發表している研究者も 3 名いる。論文發表のアクティビティは増加していることを示している。

5.3.2. 主要成果論文の被引用件数の年次推移

論文の被引用件数は ISI のデータベースを用いて英文の原著論文全件について検索し、各論文について 2005 年 12 月末時点での被引用件数を算出した。ただし、ISI のデータベースに登録されていない論文誌もあり、必ずしも全てについてデータがそろっているわけではない。

さきがけ採択以降に発表された原著論文の中から、各研究者のさきがけ研究関連の主要論文を 1 報選び出し、その累積被引用件数の年次推移を調べた結果を図 5.3.2 に示した。

図 5.3.2 被引用件数の年次推移(主要論文の累積被引用件数)



2000年に発表された中迫雅由の論文¹¹の被引用件数が684件と群を抜いている。次いで相田卓三の1997年発表論文¹²の被引用件数が247件となっている。被引用件数101~200件論文が4報、51~100件が7報であった。

¹¹ Toyoshima, C., Nakasako, M., Nomura, H., Ogawa, H., Crystal structure of the calcium pump of sarcoplasmic reticulum at 2.6 Å resolution. *Nature* 405 647-655 (2000).

¹² Jiang, D. L., and Aida, T., Photoisomerization in dendrimers by harvesting of low-energy photons. *Nature* 388 454-456 (1997).

5.3.3. 原著論文被引用件数に関する評価

5.3.2.で算出した被引用件数の総計を英文原著論文数で割り、各研究者について1報あたりの平均被引用件数を算出し、その結果を Essential Science Indicator (ESI) を用いて、分類ごとの平均被引用件数を分析したデータと比較した。

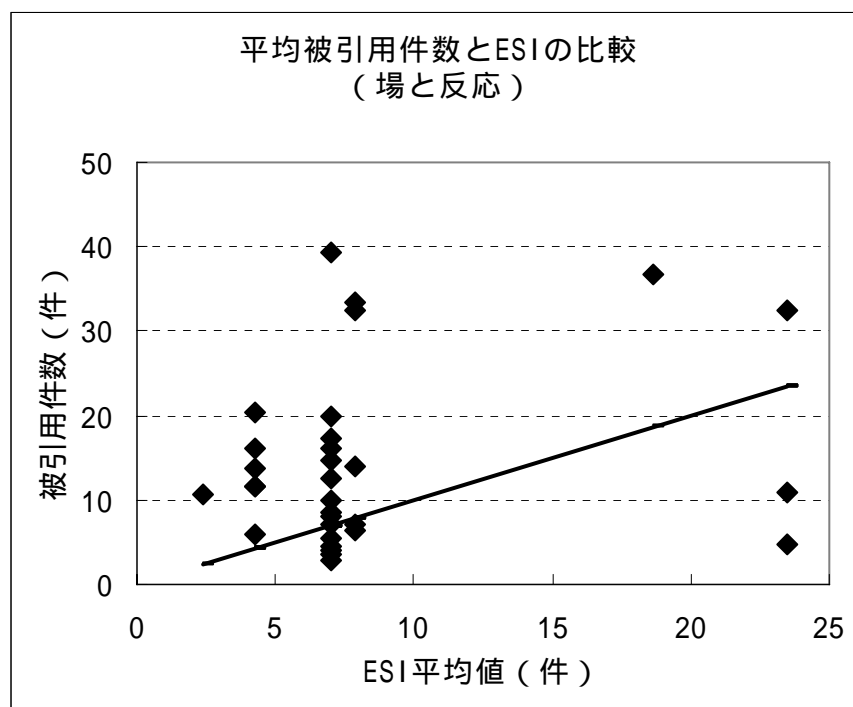
今回比較に用いた ESI のデータは、研究内容ごとの分類に基づき、その分類に該当する論文の全被引用件数を、その分類の全論文数で割ったものであり、1996年1月1日から2006年2月28日までのデータが対象となっている。表 5.3.3.に、ESI のデータ分類の詳細を以下に示す。

表 5.3.3 ESI のデータ分類と平均被引用件数

分子生物学・遺伝学	23.46	環境科学	7.6
免疫学	18.67	物理学	6.98
神経科学・行動科学	15.79	動物学・植物学	5.9
生物学・生化学	14.73	農芸化学	4.84
微生物学	13.47	分子化学	4.27
臨床医学	10.18	工学	3.09
薬理学・毒性学	9.11	数学	2.54
化学	7.9	情報処理	2.4

このデータ分類と平均被引用件数との関係から基準線が作成される。次に各研究者の研究テーマがどの ESI 分類に該当するかを判断した後、平均被引用件数データをプロットした。基準線よりデータが上にあれば、同分野の論文の平均よりも多く引用されていると考えることができる。その結果を図 5.3.3 に示した。

図 5.3.3 平均被引用件数と ESI データとの比較



評価対象研究者 31 名のうち、基準線より上に位置した研究者は 22 名、下に位置した研究者は 9 名であり、3 分の 2 以上の研究者について、論文の平均被引用件数は ESI 平均より高い結果となった。

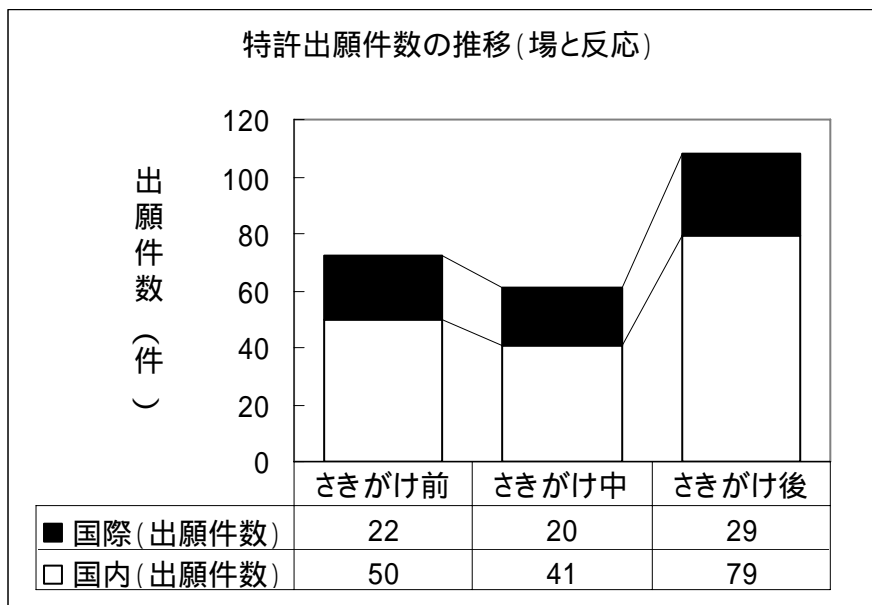
ただし研究者の研究内容は複数の分野にまたがる内容も多く、厳密に分類することは困難である。また、どのデータ分類に該当するかは個人の主観により変わるものであり、分類によって結果は大きく変わることを考慮しなければならない。

5.3.4. 特許出願件数の推移

特許出願件数は、特許庁のデータベースおよび研究者本人からの申告をもとにして集計した。特許出願件数は、発明の内容が同一の場合においても、日本出願、外国出願、PCT 出願(国際出願)を各 1 件として計算した。

さきがけ前、さきがけ中、さきがけ後の特許出願件数の推移を図 5.3.4 に示した。

図 5.3.4 特許出願件数の推移



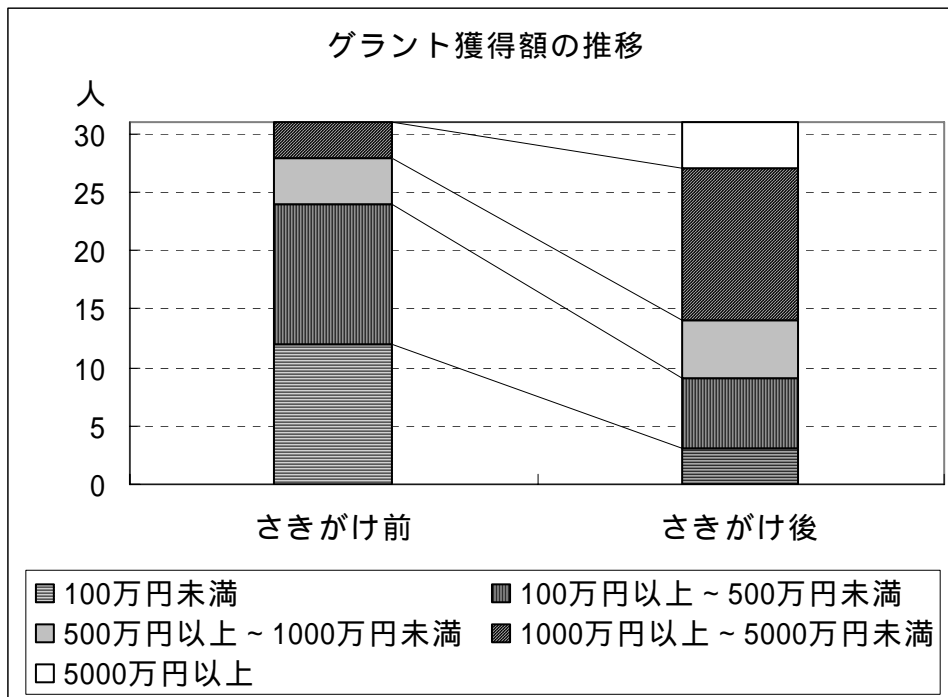
調査対象研究者 31 名中、特許出願が確認された研究者は 21 名である。対象期間の特許出願件数は 241 件にのぼり、「場と反応」領域は特許出願が非常に活発に行われている領域であるといえる。さきがけ前 5 年間に提出された特許 72 件のうち、国際出願 22 件中 8 件と、国内出願 50 件中 39 件の計 47 件は、当時企業に在籍していた 3 名(小山、持地、竹内)によるもので、出願人はいずれも当時の所属企業となっている。後述する職位の推移において、この 3 名の企業在籍者はいずれもさきがけ後大学に移っている。この点を勘案すると、さきがけ以降も研究者の間で活発な特許出願が行われていることを示している。

成立特許は 104 件あり、そのうち 81 件は JST が出願人となっているものである。

5.3.5. グラント獲得金額の推移

グラント獲得金額は、アンケート回答者についてはその申告値を採用し、アンケート無回答者については科研費データベースより調査した。さきがけ前、後の獲得額の年平均推移を図 5.3.5 に示した。

図 5.3.5. グラント獲得金額の推移



調査対象研究者 31 名中、さきがけ後も年平均 1000 万円以上のグラントを獲得している研究者が 17 名おり、過半数に達している。

さきがけ以降の大型プロジェクトへの参画として、小林光の CREST「新規化学結合を持つシリコン薄膜太陽電池」(研究代表者：2000～2005)、「極限ゲート構造によるシステムディスプレイの超低消費電力化」(研究代表者：2005～2008)、笹木敬司の CREST「量子相関光子ビームナノ加工」(研究分担者：2001～2005)、竹内繁樹の CREST「結晶量子コンピュータ」(研究分担者：1999～2005)、「光子を用いた量子演算処理新機能の開拓」(研究分担者：2003～2008)、小森和弘の CREST「光量子位相制御・演算技術」(研究代表者：2002～2006)などがある。また、田中雅明、竹内繁樹の 2 名は、さきがけ「光と制御」領域(2001.12～2005.3)にも採択されている。さらに、JST 戦略的創造研究推進事業の「情報、バイオ、環境とナノテクノロジーの融合による革新的技術の創製領域(個人型研究)」(2002.11～2006.3)において、長谷川幸雄が「ナノサイズ一次元構造の電子物性評価」、井上将彦が「精密分子認識に基づく人工 DNA の創成とナノ材料への応用」のテーマでそれぞれ採択されている。

5.3.6. 研究者の所属および職位の推移

研究者の所属および職位については、26 名(84%)の研究者から回答が得られた。その他の研究者についてはインターネットその他で検索した情報に基づき補充した。現在の所属と職位の推移を図 5.3.6-1, 図 5.3.6-2 に示した。

所属では大学が 20 名から 28 名に増加した。特に、応募時企業の研究者であった 4 名が

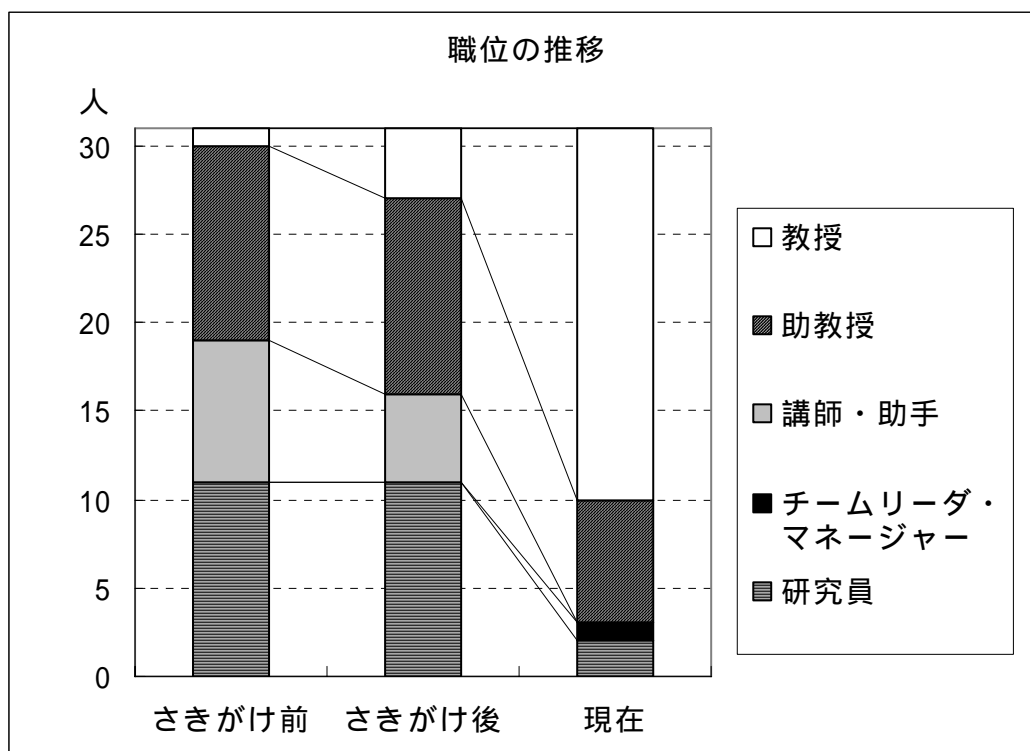
全員大学に移り、応募時公的研究機関の研究者7名のうち4名が大学に移った。

職位の推移では、大学教授が大幅に増加した。さきがけの経験がその後の研究に十分生かされ職位の上昇に寄与したことが伺われる。

図 5.3.6-1 所属の推移

		さきがけ応募時所属			現在所属 合計
		大学	公的 研究機関	民間 研究機関	
現在の 所属	大学	20	4	4	28
	公的研究機関		3		3
	民間研究機関				0
応募時所属合計		20	7	4	

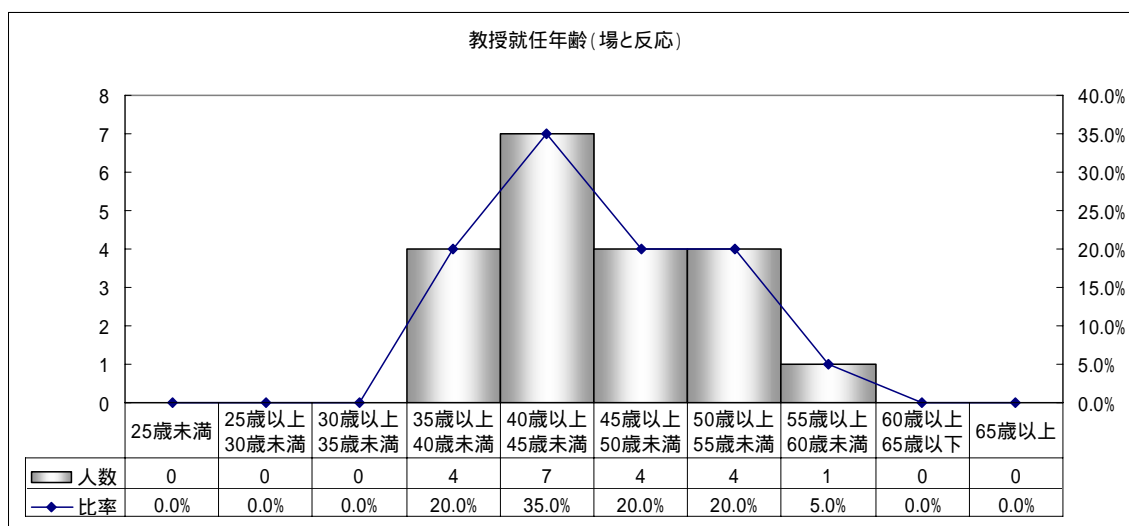
図 5.3.6-2 職位の推移



5.3.7. 教授就任時の年齢

「場と反応」領域では、さきがけ後に 20 名¹³の教授が誕生しており、その内訳は国立大学 15 名、公立大学 1 名、私立大学 4 名となっている。教授に昇進した研究者の教授就任時の年齢を図 5.3.7 に示した。「場と構成」領域でさきがけ以降教授に就任した 20 名の就任時の平均年齢は 44.7 歳であった。4 名が 30 代で教授になっている一方で、50 歳以上で教授になった例も 5 名いる。50 代以上で教授になった 5 名は、さきがけ応募時はすでに 40 代であった上、さらにそのうちの 3 名はさきがけ応募時は企業に在籍しており、その後大学に移った結果、教授就任年齢が高くなっている。

図 5.3.7 「場と反応」領域の教授就任時年齢の分布（平均 44.7 歳）



5.3.8. 受賞

表 5.3.8-1、表 5.3.8-2、表 5.3.8-3 は受賞リストである。全部で 44 件の受賞報告があった。

¹³ Oliver B. Wrightはさきがけ採択時に教授であったため、含まれていない。

表 5.3.8-1 さきがけ前の受賞

	受賞者	賞の名称	受賞年
1	相田 卓三	井上研究奨励賞	1984
2	笹木 敬司	第3回井上研究奨励賞	1987
3	田中 雅明	先端技術学生論文表彰制度文部大臣賞（最優秀賞）	1987
4	相田 卓三	日本化学会 進歩賞	1988
5	小森 和弘	電子情報通信学会論文賞	1988
6	藤井 紀子	社団法人新化学発展協会 老化に関する基礎研究	1989
7	田中 雅明	丹羽記念賞	1990
8	笹木 敬司	応用物理学会光学論文賞	1992
9	笹木 敬司	光技術研究振興財団研究表彰	1993
10	笹木 敬司	モエヘネシー・ルイヴィトン国際科学賞"芸術のための科学" ダビンチ優秀賞	1993
11	相田 卓三	高分子学会賞	1993
12	長谷川 幸雄	平成6年度「とやま賞」学術研究部門	1994
13	田中 康隆	高柳研究奨励賞	1995
14	長谷川 幸雄	第5回日本金属学会奨励賞 物性部門	1995
15	井上 将彦	有機合成化学協会 研究企画賞	1995
16	井上 将彦	日本化学会進歩賞	1995
17	石田 昭人	日本希土類学会第1回奨励賞	1996

表 5.3.8-2 さきがけ中の受賞

	受賞者	賞の名称	受賞年
1	井上 公	Tanaka Award for Young Scientists	1995
2	居城 邦治	日本化学会年会シンポジウム賞	1997
3	居城 邦治	高分子学会高分子奨励賞	1997
4	田中 雅明	学術奨励賞（武井賞）	1997
5	伊藤 治彦	日本物理学会論文賞	1997
6	末岡 和久	日本表面科学会技術賞「FIBによるGaAs-STM探針の作製」	1998
7	田中 康隆	有機合成化学協会 研究企画賞	1998
8	相田 卓三	SPACC Award	1998
9	相田 卓三	Wiley 高分子化学賞	1999
10	相田 卓三	日本IBM科学賞	1999

表 5.3.8-3 さきがけ以後の受賞

	受賞者	賞の名称	受賞年
1	藤井 紀子	第3回「日本女性科学者の会」奨励賞	1998
2	笹木 敬司	公益信託分子科学研究奨励森野基金分子科学研究森野基金奨励賞	1999
3	田中 雅明	矢崎学術賞	1999
4	田中 雅明	応用物理学会講演奨励賞	1999
5	相田 卓三	Nagoya Medal Seminar Award: Silver Medal	2000
6	伊藤 治彦	丸文研究交流財団学術賞	2000
7	田中 雅明	応用物理学会講演奨励賞	2001
8	田中 雅明	学術奨励賞（武井賞）	2001
9	相田 卓三	ゴールド・メダル賞	2001
10	田和 圭子	高分子学会高分子研究奨励賞	2001
11	田中 雅明	丸文研究奨励賞	2002
12	田中 康隆	東海化学工業会賞	2002
13	田中 雅明	応用物理学会講演奨励賞	2003
14	田中 雅明	日本IBM科学賞 <エレクトロニクス分野>	2003
15	竹内 繁樹	文部科学省平成17年度科学技術分野の文部科学大臣表彰 若手科学者賞	2005
16	相田 卓三	井上学術賞	2005
17	相田 卓三	American Chemical Society Arthur K. Doolittle Award (PMSE)	2005

5.4. 総括総評

吉森昭夫

“場と反応”領域の追跡調査について、元研究総括として総評を述べる。1999年度の当領域終了時には“場と反応”領域の31人の研究者の領域での活動を顧みて、大きな成果を収めたと数年後には思うことが出来るに違いないと内心思っていた。そして今回追跡調査が行われ、報告書の内容を見てやはりその期待は裏切られなかったように思う。以下に幾つかの点について、思うことを述べて総評とさせていただきたい。

まずこの追跡調査の在り方についてコメントしてみたい。この調査の特徴は客観的な数値に重きを置いたことにある。筆者はどちらかといえば、評価として例えば論文の数、被引用数、昇進の年齢などは余り信用したくない印象を持っていた。個々の研究者、個々の論文、年齢については、いろんなファクターがこのような数字に影響し、研究者、論文についての判断はあくまでその能力、内容に基づかねばならないと思っていた。個々の研究者、個々の論文についてはその考えは変わらないが、31名の研究者の集合に対して、そんな影響がならされて、このような数値の集まりが確かに意味を持つことをこの報告書は納得させるものがある。その意味で、客観的な数値に重きを置くという方針は成功であったと思われる。それだけでは勿論足りないものがあることは事実で、それを補うものが、各研究者が自ら記した研究サマリーと、領域アドバイザーおよび研究総括のコメントである。これを元に報告書の「5.1.2現時点での評価」が書かれた。これについては2点述べたいことがある。まずここに述べられている研究者の名前はあくまで例としてであって、同様な成果を挙げた研究者は他にもあるというコメントが1点、2点目は研究サマリーと研究総括のコメントのために、10名程度の研究者に対する調査担当者と研究総括による訪問インタビューが行われ、非常に有効であったことである。できれば全部の研究者に対する同様なインタビューが行われれば、客観的な数値による報告を補完する“現時点における評価”をもっと楽に充実したものにできたのではないか。同時にこのような調査の持つ意義についても研究者に浸透させることができ、調査担当者の苦労も減るのではないと思う。

報告書の冒頭に適切に述べられているように、さきがけ研究は大きな特色を持っている。

1. 過去の実績にとらわれず、申請の研究のアイデアを重視して採択する。2. 領域会議を通じた研究者ネットワークの構築。3. 所属組織から独立して研究を実施することによる研究者の自立の促進。以上の3点である。私が思うに、この特色はこの制度発足時に目的として設定されたものが期待通り機能しているものもあるが、実際にこの制度が実行されて、機能することが発見されたものもあるのではないかと考える。“場と反応”領域は第2世代のさきがけ研究領域であるが（第1世代の3領域の3年間の公募が終わって、次の3領域の公募が始まった）、制度としては既に安定した形になって、さきがけ研究の運営は非常に順調に進み、大胆な構想で始まったこのプログラムが出色のものであることをは

つきりと示し始めた時期であった。

1. はこの制度の中心的な目的で、“場と反応”領域ではこれがよく生かされていたと思っている。過去の研究経歴を問わなかった例として、博士の学位を持っていなかった研究者が3名、職をもっていなかったか、それに近かった研究者がやはり何名かあったことを挙げることが出来る。(当然のことながら全て博士の学位は得、また31名の研究者が現在は全て安定した職を得ている。)研究者が提案した研究が非常に新しいものであったことの現われとして、新しい分野の研究会、研究グループを立ち上げ、リーダーとなっている研究者を何人か挙げることが出来る。この領域は3年間平均して、採用予定者の約30倍の申請者数であった。9名の領域アドバイザーの貴重な助言を得ながら行った採用者の決定のポイントは、たとえば、ABC3段階評価を書類選考で2名の領域アドバイザーにお願いし、その結果から約20名の面接予定者を選ぶときに、AAを選ぶのは当然であるが、BBよりはACを選ぶことを心がけた。Aと評価された点を重視しようという考えであった。事実、結果としてACに対応する評価で成功した研究者を挙げることでもある。

2. はこの領域では、領域会議を通じた異分野交流の研究者ネットワークの構築ということになる。この特色はさきがけ研究プロジェクトを立ち上げたときは必ずしも非常に期待されたものではなかったと推測される。“場と反応”領域ではこの点でさきがけ研究プログラムに大きな貢献ができたと考える。理由はまずこの領域の分野構成による。追跡調査報告「5.1.1採択時の位置づけ」にあるように、物理系14課題、化学系12課題、生物系5課題と分類されるものの、それぞれの分野での広がりも大きく、境界で判定に苦しむものもあり、一言では物理化学生物にまたがる31課題ということになる。最初の領域会議を開く前に考えたことは、他分野の話に興味を持ってもらうにはどうしたらいいかということであった。お願いしたことは2点、第一に研究のその分野での位置づけから話を始めること、第二は頻出する術語には最初に簡単な説明をつけることであった。これだけで意外に討論が活発になり、30分講演で15分の討論時間が足りないくらいであった。最も大きなことはこの領域会議で異分野の研究者同志さらには領域アドバイザー、研究総括を含む親密で緊密な関係が構築されたことである。報告にあるように行われた共同研究もさることながら、無形の研究者ネットワーク、信頼関係は将来にわたって、各研究者の貴重な財産であろう。

3. の研究者の自立の促進も大きな効果である。研究総括(かつては領域総括と呼んでいたと記憶する)をお引き受けして、JSTから連絡を受けた項目の一つに、研究者を研究場所に訪問してくださいということがあった。このことが場合によっては大きな意味を持つことを実際に体験した。一般に研究者は孤立しているのではなく、グループに属しており、各グループにはリーダーがいる。大学であれば教授であったり、助教授であったりする。さきがけ研究の研究者は若い人が多く、“場と反応”領域では助手の人も多かった。その場合はさきがけ研究の研究者になることが微妙な状況を作ることになる場合がある。さきがけ研究は個人研究であるというのはこの制度の基本の一つである。従って、グループのプ

プロジェクトとの関係が問題になる。さきがけ研究のテーマがグループのプロジェクトとまったく関係がないということもあり得る。グループリーダーの完全な理解が得られていれば、問題はない。あいまいなまま、さきがけ研究が始まると摩擦が起こることになる。総括はグループリーダーに会ってお願いをすることになる。幸い“場と反応”領域で出会った問題は理解をしていただくことができ、難しくなった場合はなかった。グループのプロジェクトのテーマの中で個人的に新しい発想に到達し、さきがけ研究に応募し採用されるということはある得ないことではない。ただし、初めからプロジェクトの一環として構想されたものとの識別には細心の注意が必要であろう。

研究者の自立ということに大きな支えになるのは総括と領域事務所の存在である。技術参事、事務参事、アシスタントと専任の人たちが領域事務所にいて自分たちの研究を支えてくれることの心強さは、特に若い研究者にとって計り知れないものがある。

また研究総括もさきがけ研究のシステムとしてよく構想されたもので、すでに述べてきた役割も含めて、JSTと研究者の間で非常に効果的に機能できるようになっている。これは制度もさることながら、JSTのもつ基礎研究支持のフィロソフィーによるところも大きいのではないかと思う。さきがけ研究に刺激されて、欧米でもメンター (Mentor ; 研究総括) 付きのさきがけ研究風のプロジェクトが始まったことがこの報告書に述べられている。どのような形で始まり、どのような成功を収めるのか詳細を知りたいところである。時代とともにいい制度も手直しが必要になる。よく機能していた制度のキーになる部分はさらに磨き上げられることを願うものである。

6. 謝辞

本調査の実施に当たりましては、多くの方々に多大なるご協力をいただきました。

吉森研究総括には調査の内容検討の段階から貴重なご助言をいただき、座談会の開催、報告書の取りまとめに当たりましてもご尽力いただきました。領域アドバイザーの先生方には、アンケートにご回答いただき、座談会でも様々な角度からご意見をいただきました。また、今回の調査では、研究者の皆様に、アンケートへの回答および研究サマリーの作成を通じて、さきがけ終了後の研究の発展状況の把握にご協力いただきました。

お忙しい中ご協力くださいました関係者の皆様に、改めて心よりお礼申し上げます。

参考資料（研究サマリー）

（1）居城 邦治 （1期生）

【さきがけ研究課題】

DNA で分子エレクトロニクス素子をつくる

－DNAを場とした電子移動反応－

【さきがけ研究期間】

1994年10月～1997年9月

【さきがけ研究の目的・位置づけ】

DNAの内部はパイ電子に富む核酸塩基がスタッキングしていることから電子移動媒体としての機能が期待されている。DNAを介した電子移動反応（導電性を含む）を調べるために、DNAの固体基板への固定化法の開発、ならびに光誘起電子移動や電子導電性の測定法を開発を行い、DNAの分子素子としての可能性を検討した。

【さきがけ研究前の状況・成果】

水晶発振子によるDNA－脂質複合体フィルムの分子認識に関する研究

それまで生物学的にしか取り扱われていなかったDNAを、カチオン性の脂質とポリイオン複合体化することで有機溶媒に溶かし、キャストフィルム化することで、材料への応用の道筋を立てた(7,10,11)。このフィルムを水晶発振子の電極上に作製して、水溶液中でインターカレーターの吸着過程の解析を行った。その結果、発ガン性物質のセンサーとして使えることを示した。

【さきがけ期間中の状況・成果】

DNAを介した光誘起電子移動に関する研究

DNAの内部はパイ電子に富む核酸塩基がスタッキングしていることから電子移動媒体としての機能が期待されている。DNAを場とする光誘起電子移動の新たな測定手法として、電子ドナー、電子アクセプターを組み込んだカチオン性水面単分子膜とDNAとのポリイオン複合体膜を使うことを提案した(17,31,41)。種々の二重らせんや一本鎖のDNAまたはRNAを試料として用いた結果、グアニンのカチオンラジカル（ホール）が光励起によってでき、そのホールの移動によってDNAを電子が流れることを示唆する結果が得られた(33,46,47)。これを利用してDNAのセンサーを試作した。

【さきがけ期間後の状況・成果】

① 単一DNA分子のコンフォメーションの制御とナノ材料化に関する研究

ナノテクノロジー研究において自己集合や自己組織化を用いたボトムアップ手法は省エネルギーな微細加工技術として注目されている。二重らせんDNAは直径 2nm の高分子であることから、DNAのひも状構造に基づく新規な微細加工技術の開発を行っている。DNA水溶液表面にカチオン性両親媒性化合物を展開すると、両者の静電的な相互作用により気水界面でポリオン複合体膜が形成される(32)。基板を下水相から引き上げて複合体膜を基板に移し取ると、DNAが伸長固定化できることを発見した(51,53)。伸長固定化したDNAを選択的に無電解メッキすることで、銀のナノ細線を得た。細線の長さはDNAの分子量に依存して可変できる。このような微細構造を有する高分子-金属ハイブリッドはナノデバイスやナノセンサーに応用できると期待される。

② 核酸塩基の分子認識に基づく機能性分子集合体の形成に関する研究

DNAはアデニン-チミン、シトシン-グアニン間の相補的水素結合により二重らせん構造を形作っている。この分子認識を使うと機能性分子の精密配列が可能になると考えた。私は核酸塩基にアルキル鎖を結合した化合物が、気水界面で単分子膜を作り、下水相の溶質とまたは単分子内で水素結合による相補的塩基対を形成することを見出した(15,18,19,21,23,29)。さらに単分子膜では塩基対のスタッキング構造をつくることから、このような核酸塩基単分子膜を「DNAミメティック」と呼んでいる。下水相にオリゴヌクレオチド(DNA断片)を入れると、核酸塩基単分子膜と相補的塩基対を気水界面で形成し、オリゴヌクレオチドの塩基配列に従って配列することを実証した。これを利用することで分子量の制御された重合反応(36,38,43)や色素基の会合制御(34,42,48)を行うことができた。さらに環状のオリゴヌクレオチドを鋳型とすることで、光合成光捕集タンパク質に似た色素の環状配列が可能になった(49)。 (さきがけ研究 2 1 「変換と制御」)

③ 原子間力顕微鏡による核酸塩基の分子認識の計測に関する研究

従来、DNAの塩基配列の解析は化学的手法によって行われているが、物理的な手法で塩基配列を読み出すことができれば単一DNA分子の塩基配列を読み出すことが可能になると考えられる。そこで私は原子間力顕微鏡の探針の先端に核酸塩基を固定化し、基板表面に固定化された核酸塩基(35)との塩基対形成を物理的吸着力として測定した。チミンで修飾した探針でアデニンおよびチミンが固定化された基板表面を調べたところ、チミン表面の吸着力はアデニン表面より大きいことがわかった(40,44,50)。探針を試料表面に接触させたとき、探針の塩基と試料表面の相補的塩基が塩基対を形成し、次に探針を表面から引き離すときに塩基対が壊れると考えられる。すなわち、吸着力は探針と試料表面間の塩基対形成を反映していると言える。探針の先端を分子レベルまで先鋭化することで単一分子レベルの塩基対形成を計測できると期待される。

【当該研究分野の発展状況】

現在、ナノテクノロジー研究が盛んになる中、ボトムアップ型ナノテクノロジー材料としてDNAの重要性が増している。DNA断片のハイブリダイゼーションによる3次元ナノ構造の構築はDNAナノテクノロジーと呼ばれており、DNAの金属化によるナノワイヤーの構築と共に自己組織化的なナノ構造構築法として注目されている。

(2) 井上 公 (1期生)

【さきがけ研究課題】

モット転移近傍の異常な金属状態
—モット転移近傍における準粒子と場との相互作用の研究—

【さきがけ研究期間】

1994年10月～1997年9月

【さきがけ研究の目的・位置づけ】

電子相関の弱い「半導体」という電子系を用いた今日のエレクトロニクスが劇的に発展し続けているのは、「なぜ物質は(バンド)絶縁体になったり金属になったりするのか」を我々が正しく理解できているからである。一方で、世の中には電子相関の非常に強い物質もある。こうした物質の多くは従来の理解だと金属として振る舞うはずなのに、(モット)絶縁体(多くは磁性体)になってしまっているものがほとんどである。そこで「なぜモット絶縁体になるのか」の正しい物理的描像が得られれば、相関の強い電子系を用いた、現在の半導体エレクトロニクスでは考えつきもしなかった新概念の電子技術が切り開かれるかもしれない。ところがこのような系の基礎的理解は、新しい現象が発見されるたびに揺さぶられ、いまだにコンセンサスを得られていない。そこで、さきがけ研究で私は、そもそもの「モット転移の物理的描像」に対する問題意識を出発点にし、その平均場近似的な描像からは説明し難い興味深い現象について考察することを目的とした。

【さきがけ研究前の状況・成果】

金属からモット絶縁体への相転移は、多電子間に働くクーロン相互作用 U の産物であるから、通常バンド計算では十分に取り扱うことはできない。こうした多体効果を扱う理論的な試みとしては、無限次元ハバードモデルの動的平均場近似という手法が非常に有効だ¹⁴とされている。この平均場の描像によると、モット転移の近傍では電子の見掛けの質量(有効質量 m^*)が発散的に増大するために、電気伝導度がゼロになるのだ。ただしこの描像で気にかかるのは、本来は長距離力である電子のクーロン相互作用がほぼ完全に遮蔽を受けて例えば湯川型のような短距離力になってしまっているという前提である。この考え方は通常の金属においては十分に正しい。しかし、片方でクーロン相互作用の遮蔽の効果を通常の金属と同様だと仮定しながら、他方では強い電子相関による電子の局在を考えるというこの描像には疑問が残らないわけではない。このような平均場の描像がどの程度正しくて、どういった点で補正を受けなければならないのかを研究する方法については、

¹⁴ A. Georges, G. Kotliar, W. Krauth, M. J. Rozenberg, Rev. Mod. Phys. 68, 13 (1996)

これまで明確なアイデアがなかった。

【さきがけ期間中の状況・成果】

そこで私はさきがけ研究の取り組みで、まずペロブスカイト構造を有するバナジウム酸化物 $\text{Ca}_{1-x}\text{Sr}_x\text{VO}_3$ という物質を考案し、実際にその単結晶を作製すること¹⁵に成功した。この系では伝導のパスに寄与しない（乱れを引き起こさない） Ca^{2+} と Sr^{2+} を置換することにより、立方晶の SrVO_3 から斜方晶の CaVO_3 へと連続的に構造を変化させることができる。このときに VO_6 八面体が傾くため、Vの $3d$ 軌道が作るバンド幅(W)が狭くなって行く。このように系の電子数($3d$)を変えることなく、 W のみを制御することで結果的に系の電子相関の大きさ(U/W)のみを制御することができるわけである。さらに、 $\text{CaVO}_{3-\delta}$ がほんのわずかな酸素欠損($\delta \sim +0.12$)により低温での磁気抵抗が正から負へと劇的に変化する¹⁶こと、さらに同程度にわずかな酸素過剰($\delta \sim -0.05$)により絶縁体に転移すること¹⁷を発見した。こうした異常な振る舞いからも、この系における電子相関の影響は大きいと考えられるが、SrとCaの置換による U/W の増大ではモット転移を引き起こすまでにいたらない。したがって、 $\text{Ca}_{1-x}\text{Sr}_x\text{VO}_3$ においては、(遷移金属酸化物全般でよく見られるような)わずかな組成の不均質に伴う転移点近傍での金属層と絶縁相の混在などの悪影響を受けずに、 U/W の変化のみに伴う金属相での物性変化を探求することができるという利点がある。

私は実際にこの系を用いてモット転移近傍で準粒子スペクトルが U/W の関数としてどう変化するかを世界に先駆けて光電子分光¹⁸および光学応答の実験¹⁹によって明らかにする事に成功した。この二つの成果はその後のモット転移の研究論文において数多く引用され、10年後の今でもまだ引用され続けている。本研究の着眼点とその結果がともに評価されたものだと考えている。

【さきがけ期間後の状況・成果】

さきがけ研究終了後は、 $\text{Ca}_{1-x}\text{Sr}_x\text{VO}_3$ のPauli常磁性磁化率、電子比熱係数、電気抵抗率をより精密に測定し、有効質量とバンド質量の比 m^*/mb が x つまり U/W の値に対してどのように変化するかを調べていった。そこから、 $\text{Ca}_{1-x}\text{Sr}_x\text{VO}_3$ においては「Wilson比がほぼ2に等しい」「門脇Woodsの関係が成り立っている」という強相関電子系であるということの必要条件が得られたが、 m^*/mb の値そのものはわずかに1.5程度にとどまっており、 Sr_xVO_3 から CaVO_3 にかけての変化も非常に小さいという不思議な結果^{20,21}が明らかになった。

この結果は今もなお大きな議論を巻き起こしている。特に表面の電子状態とバルクの電

¹⁵ I. H. Inoue, H. Makino, I. Hase, Y. Aiura, Y. Haruyama, Y. Nishihara, Physica B **230-232**, 780 (1997).

¹⁶ A. Fukushima, F. Iga, I. H. Inoue, K. Murata, Y. Nishihara, J. Phys. Soc. Jpn. **63**, 409 (1994).

¹⁷ I. H. Inoue, K. Morikawa, H. Fukuchi, T. Tsujii, F. Iga, Y. Nishihara, Jpn. J. Appl. Phys. **32**, 451 (1994).

¹⁸ I. H. Inoue, I. Hase, Y. Aiura, A. Fujimori, Y. Haruyama, T. Maruyama, Y. Nishihara, Phys. Rev. Lett. **74**, 2539 (1995).

¹⁹ M. J. Rozenberg, I. H. Inoue, H. Makino, F. Iga, Y. Nishihara, Phys. Rev. Lett. **76**, 4781 (1996).

²⁰ I. H. Inoue, O. Goto, H. Makino, N. E. Hussey, M. Ishikawa, Phys. Rev. B **58**, 4372 (1998).

²¹ H. Makino, I. H. Inoue, M. J. Rozenberg, I. Hase, Y. Aiura, S. Onari, Phys. Rev. B **58**, 4384 (1998).

子状態の分離が重要なのだという議論と、スペクトロスコーピーなどの高エネルギースケールでの物理現象と伝導や比熱などの低エネルギースケールでの物理現象が同じものなのかという議論とがその中心となっている。

前者の問題の解明のため、私はインド科学大学のグループと共同して新しい光電子分光法の開発を行った。これは入射光のエネルギーを変え、光電子脱出長の運動エネルギー依存性を利用することで表面とバルクのスペクトルの分離を行う²²ものである。さらに光の偏光方向を利用して表面とバルクの分離を行う方法²³にもごく最近成功した。さらに最近東大物性研が開発した低エネルギーのレーザー光を用いたバルク敏感光電子分光にも試料を提供し、共同研究を進めている。これらの結果を無限次元ハバードモデルのような平均場近似と比較する事で、モット転移の近傍において準粒子状態密度および有効質量が実際にどのように変化するのかという描像がより鮮明になってきているところである。

後者の問題については、私はケンブリッジ大学のグループと共同で量子振動効果の実験を行い、ペロブスカイト型の遷移金属酸化物としては世界で初めて、私の作製した CaVO_3 単結晶において磁化の量子振動を観測²⁴する事に成功した。このデータを詳細に解析する事で CaVO_3 のフェルミ面の形状がわかるのだが、それはバンド計算から予想される斜方晶のものではなく、むしろ立方晶に見えるという驚くべき結果が明らかになった。これが電子相関によるものなのか、それとも他の原因によるものなのか、現在の理論計算の精度ではこのぐらいのエネルギースケールの問題にはほとんど手が出ないためなかなかフォローアップの論文が登場しなかったが、ごく最近になってようやくハバードモデルとバンド計算を組み合わせようという試みがなされるようになり、この問題にチャレンジしようという動きが見られるようになってきた。

【当該研究分野の発展状況】

私は現在、強相関電子系を用いたデバイスを念頭に置いた研究の方にテーマを転換しており、ここに書いたテーマに関して分野の状況を直接的にはフォロー出来ていないが、上記のように共同研究は進めており、そこを介して、この分野がさらに大きな発展を遂げようとしていることを感じている。こうした研究の延長上に私の現在の研究がうまく接続出来るかどうかは現在の私の大きな関心事となっている。

²² K. Maiti, D. D. Sarma, M. J. Rozenberg, I. H. Inoue, H. Makino, O. Goto, M. Pedio, R. Cimino, *Europhys. Lett.* **55**, 246(2001).

²³ K. Maiti, U. Manju, S. Ray, P. Mahadevan, I.H. Inoue, C. Carbone, D. D. Sarma, cond-mat/0509643.

²⁴ I. H. Inoue, C. Bergemann, I. Hase, S. R. Julian, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 236403 (2002).

(3) 宇高 恵子 (1期生)

【さきがけ研究課題】

ペプチドでTリンパ球の特異性をさぐる

【さきがけ研究期間】

1994年10月～1997年9月

【さきがけ研究の目的・位置づけ】

ランダムペプチドライブラリーを活用して、T細胞に抗原提示をするMHC分子のペプチド会合の特異性を探ったり、T細胞の抗原特異性を探ったりする技術を開発する。これらが達成できれば、がんや、難治性ウイルス感染症に対して、合成ペプチドを用いた標的免疫治療が可能になる。

【さきがけ研究前の状況・成果】

免疫応答には抗体が主体となる液性免疫と、がんやウイルス感染細胞のように自己の細胞が異常を来したものを攻撃するT細胞が主体となる細胞性免疫がある。T細胞には、細胞膜たんぱく質であるMHC（ヒトではHLAと呼ばれる）分子が提示する抗原たんぱく質由来のペプチドしか抗原として認識できない、という制約があるために、T細胞の抗原特異的な免疫誘導は、現在でも一部の生ワクチンが開発されているウイルス感染症にしか可能でない。そこで、MHC結合性ペプチドを用いた免疫誘導法の開発が希求されている。しかし、MHC分子には個人ごとに異なる型があり、型ごとに結合するペプチドが異なるため、治療も個人のHLA型に合わせて免疫源を変える必要があるため、開発が進んでいなかった。MHC結合性ペプチド予測は、当時のモチーフ法（他の方法は、現在に至るまで我々以外に有力なもの開発が進んでいない）では3割程度の的中率で、ワクチン開発に多大な労力、時間、資金を必要としていた。

【さきがけ期間中の状況・成果】

ランダムペプチドライブラリーを用いて5～6割程度の的中率をもつMHC結合性ペプチドの予想法を開拓し、免疫実験で実証した。これを活用して、WT1がん抗原を標的としたがんの標的治療を開発した（WT1免疫治療はその後臨床試験が進み、現在、阪大の杉山治夫教授を班長として厚生労働省の指定研究が始まって2期目になる）。また、マウスの3つのMHC型について自動予測サイトを作り、国立遺伝学研究所にあるデータベース（DDBJ）に置いて世界の研究者に公開した。

【さきがけ期間後の状況・成果】

ペプチドライブラリー法ではペプチドのアミノ酸の位置ごとの特異性しか探れず、アミノ酸配列に依存した特異性の変化は予想不能であった。そのため、特に境界領域のペプチドについて予想能に限界があった。そこで、アミノ酸の配列情報を得るため、日本電気（NEC）の理論研究グループと共同で、隠れマルコフモデルを基盤とした質問学習アルゴリズムを開発し、200本程度のペプチド結合実験を追加することにより、予想的中率6-8割の配列予想ができるようになった。単独では6割程度の場合も、ライブラリー法と配列解析の両方で絞り込むと、予想的中率が85%を超える予想が可能になった。また、このアルゴリズムはペプチド結合実験を追加するとの中率の改善が随時可能である。またこの自動予想法は情報処理能にすぐれ、ゲノムワイドの探索も容易である。

ヒトに応用するため、現在までにHLAの3つの型（日本人の8割強をカバーできる）について自動予想アルゴリズムを完成した。現在、残りの型についても解析を進めている。

予想アルゴリズムを活用して、がんや難治性ウイルス感染症に対するペプチドワクチンの開発を進めている。現在までに2つの腫瘍抗原と、C型肝炎ウイルスのゲノムワイドの解析から得られたワクチン候補ペプチドについて特許出願済み。今年度発足した文部科学省の新興再興感染症研究拠点プログラムにおいては、鳥インフルエンザ、デング熱、マラリア等の原因抗原についてゲノムワイドのペプチドワクチン候補探索の委託を受け、研究班全体の支援を担当している。それが終われば、東大医科研の中村祐輔教授と共同で、有望ながん抗原について、ゲノムワイドのHLA結合性ペプチド探索を行う計画を検討している。

ペプチドワクチン候補が探索できた後、患者T細胞の誘導能を試し、臨床試験で実際に治療効果のあるワクチンに絞らなければワクチンとして実用化できない。そこで、高知大、愛媛大の臨床教室と共同体制を組み、高知大では、WT1ペプチドを用いたがんのペプチド免疫治療をH17年1月より開始した。来年度は愛媛大で、WT1とC型肝炎ウイルスに対する標的治療の臨床第I/I相試験を開始するべく論文と臨床試験の準備を進めている。

これまでに他施設で試されている抗原ペプチドには至適な結合能を持ったものが必ずしも選ばれておらず、効果に限りがある。また、上記で探索した細胞傷害性T細胞（CTL）の認識するペプチドのみでは、免疫応答は十分に惹起できないことがわかっており、ヘルパーT細胞や抗原提示細胞を活性化する免疫賦活剤をCTL認識ペプチドに添加することが免疫誘導の鍵となっている（世界的にも開発途上）。この免疫賦活剤の開発を現在、阪大微研会と共同で進めており、年度内に試験治療開始を目標としている。

【当該研究分野の発展状況】

MHC（HLA）結合性ペプチド予想に関しては、いまだに公に利用できるものは10年以上前のRammensee法を超えるものがなく、ワクチン開発の打開目標として残されている。ペプチド結合実験結果を使った情報解析により予想プログラムを作る試みは世界で

も注目され、米国でも重点研究が昨年発足したと聞いたが、もとにするペプチド結合データに偏りがあり、文献から拾った情報だけでは我々の予想能を超えるものにはならないと予想される。また、米国 **Scripps** 研究所では結合実験と組み合わせた情報解析を始めているが、現在のところ、我々がNECと共同開発したような **data mining** 技術を導入して効率化をはかったものではない。

がん抗原などは、標的抗原がヒトゲノムに限られ、一度網羅的なHLA結合性ペプチドの解析を終えてしまえば、永久に使える情報源としてワクチン開発に資することができる。今後、公的資金を得て解析を終えてしまえば、恒久的に世界の医療に役立つ情報となると思う。

(4) 小山 行一 (1期生)

【さきがけ研究課題】

タンパク質を利用する受光素子

【さきがけ研究期間】

1994年10月～1997年9月

【さきがけ研究の目的・位置づけ】

感光性タンパク質(バクテリオロドプシン)が生み出す特異な光電応答(微分応答)のしくみを解明する。

【さきがけ研究前の状況・成果】

微分応答性を利用した視覚センサの作製等、工学的利用を行った。

【さきがけ期間中の状況・成果】

約20種類の変異タンパク質からの応答を比較しプロトン放出に関わるアミノ酸残基を特定し、Glu-204(204番目のグルタミン酸)と共にGlu-194が関与していることを明らかにした。

トータルの応答機構として、光照射によりタンパク質がプロトンを放出したり取り込んだりする過程を電極表面が感知し(電極表面のpHが下がると応答の方向は正に、pHが上がると方向は負)、電極内部で生じた変位電流を検出していることを明らかにした。

【さきがけ期間後の状況・成果】

バクテリオロドプシンばかりでなく、ハロロドプシン、フォボロドプシン等からの微弱応答から、タンパク質の機能の解明を行った。

【当該研究分野の発展状況】

バクテリオロドプシンは1分子で機能する分子機械と位置づけられており、実時間ホログラム等の光学デバイス、3次元メモリー等の記憶素子などの応用分野で期待されている。

(5) 中里 勝芳 (1期生)

【さきがけ研究課題】

酸素をつくるタンパク質の 3D 構造を観る

—二次元結晶化した光合成系 II 超分子複合体の静的・動的構造解析—

【さきがけ研究期間】

1994 年 10 月～1997 年 9 月

【さきがけ研究の目的・位置づけ】

光合成光化学系 II 複合体による酸素発生反応は植物にとっては二酸化炭素を有機物に還元するための水素および電子の供給源として、またすべての呼吸型生物にとっては、呼吸のための酸素ガスを再生産してくれるなど、地球上生物の生存に重要な役割を果たしている。それ故、光合成光化学系 II 複合体の立体構造とその反応の仕組みを理解することは生物学的に重要であるのみならず、未来の人工光合成開発にとって欠くことのできない水酸化触媒の分子設計に重要な指針を提供するはずである。しかし、光化学系 II 複合体の立体構造は未だ原子解像レベルで明らかにされていいない。さきがけ研究では、高等植物及び紅藻由来の化学系 II 複合体を用いた二次元結晶化と低温電子顕微鏡による高分解能電子線三次元構造解析に挑んだ。

【さきがけ研究前の状況・成果】

高等植物 (ホウレンソウ) 由来の光化学系 II 複合体を二次元結晶化する手法を見出していたが、結晶のサイズは小さくまた結晶性はそれほど良いものではなく、構造解析に耐えるものではなかった。

【さきがけ期間中の状況・成果】

主にホウレンソウ由来光化学系 II 複合体の二次元結晶化条件の探索と二次元結晶の電子顕微鏡による構造解析を行った。

- 1) 結晶性が比較的良い μm サイズの系 II 複合体二次元結晶を作製する条件を見出し、無染色結晶の低温電子顕微鏡像の解析から、当時としては最も高い分解能 (20 \AA) で化学系 II 複合体のプロジェクションマップが得られた(1、2)。
- 2) 二次元結晶中に存在する化学系 II 複合体のタンパク質を分析したところ、CP47,D1,D2,Cyt.b559, psbI であることが判明した(2)。
- 3) 化学系 II 複合体二次元結晶の負染色試料を用いた電子線三次元構造解析により、化学系 II 複合体の立体構造を分解能 20 \AA で明らかにした (3、4)。
- 4) 膜タンパク質を二次元結晶化するための自動界面活性剤除去装置を開発し (5)、その

装置の特許を出願した (6)。

5) 紅藻 *Cyanidium caldarium* の光化学系 II 複合体を単離精製し、系 II 複合体に Cyt_c-550 と 12 kDa タンパク質が結合していることを明らかにした (7、8)

6) 化学系 II 複合体 CP47 と膜表在性 33 k D タンパク質とが静電的相互作用で結合していることを明らかにした (9、10)。

【さきがけ期間後の状況・成果】

高等植物および緑藻由来の種々のサブユニット組成からなる光化学系 II 複合体を単離精製し、それらの二次元および三次元結晶化を進めている。最近、タンパク質を三次元結晶化するための新たな結晶化装置の開発にも取り組んでいる。良質な三次元結晶を得るためには、結晶化溶液の過飽和度を制御して、核の形成速度や結晶の成長速度を制御する必要があるが、一般に用いられている蒸気拡散法、透析法、液-液拡散法やバッチ法等では困難である。そこで、結晶化溶液中のタンパク質濃度と沈殿剤濃度の情報及びタンパク質の溶解度曲線の情報に基づいて、結晶化過程で過飽和度を自動的に制御できるマイクロ透析タンパク質結晶化装置を開発し、その特許を出願した (12、13、14)。現在、この装置の製品化に向けて企業と検討中である。

【当該研究分野の発展状況】

(3) さきがけ研究期間中に見出した光化学系 II 複合体 (CP47,D1,D2,Cyt.b559, psbI) の二次元結晶化方法 (1、2) は、その後 Rhee らに用いられ、1997年に光化学系 II 複合体 (CP47,D1,D2,Cyt.b559,psbI) 二次元結晶の低温電子顕微鏡像の解析から分解能 8 Å のプロジェクションマップが報告された (Nature 387, p.522-526 (1997))。翌年、その二次元結晶を用いた低温電子線三次元構造解析により光化学系 II 複合体 (CP47,D1,D2,Cyt.b559, psbI) の立体構造が分解能 8 Å で報告され、高等植物の光化学系 II としては初めて膜を貫通している 23本の α -helix の相互位置関係や多数のクロロフィルのおおよその結合位置が明らかになった (Nature 396, p.283-286 (1998))。その後現在まで、高等植物の光化学系 II 複合体については分解能 8 Å を越える構造解析は報告されていない。尚、シアノバクテリア (ラン藻) の酸素発生能を有する光化学系 II 複合体の立体構造については、現在分解能 3 Å に近いレベルでの構造解析が進められている。

- (1) K.Nakazato et al. Photosynthesis:from Light to Biosphere, Vol. III, p.317-320 (1995)
- (2) K.Nakazato et al., J.Mol.Biol. 257, p.225-232 (1996)
- (4) K. Mayanagi et al., J.Struct.Biol. 123, p.211-224 (1998)
- (5) K. Nakazato et al., Photosynthesis:Mechanisms and Function, Vol.II, p.929-932 (1998)

- (6) K. Nakazato et al., *J.Appl. Cryst.* 31, p.644-645 (1998)
- (7) 中里勝芳、特許願 174884 号(1997), 特許取得特許第 3565683 号(2004)
- (8) I.Enami et al., *Biochim.Biophys.Acta.* 1232, p.308-316(1995)
- (9) I. Enami et al., *Photosynthesis:from Light to Biosphere, Vol.II,*
p.357-360 (1995)
- (10) H. Ohta et al., *Photosynthesis:from Light to Biosphere, Vol.II,*
p.361-364 (1995)
- (11) T. Miura et al., *J.Biol.Chem.* 272, p.3788-3798 (1997)
- (12) K.Nakazato et al., *J.Synchrotron Radiation* 11, part1, p.34-37 (2004)
- (13) 中里勝芳、特許願 2003-097984 号(2004)
- (14) 中里勝芳、国際出願 PTC/JP2003/013057 (2003)

(6) 福谷 克之 (1期生)

【さきがけ研究課題】

固体表面の反応を光と磁場で追う
—磁場中における光励起表面反応—

【さきがけ研究期間】

1994年10月～1997年9月

【さきがけ研究の目的・位置づけ】

化学反応は結合の切断，原子の移動，新しい結合の形成の組み合わせからなる。化学結合が本質的にスピンを持つ電子で形成されることを考えると，反応に磁気効果が現れることが期待される。本研究では，固体表面での光励起過程に着目し，分子のスピン状態を高感度に検出可能な共鳴イオン化法・蛍光法を用いて，分子の脱離・解離ダイナミクスにおける磁気効果の研究を行う。

【さきがけ研究前の状況・成果】

不対電子を持つ一酸化窒素分子と持たない一酸化炭素分子の光励起脱離と解離のダイナミクスに関する研究を行った。

【さきがけ期間中の状況・成果】

研究期間途中で研究場所の変更があったため，主に研究室の立ち上げ，超高真空装置・レーザーシステムの整備を行った。具体的な研究は，研究期間終了後に実施することになった。

新たに整備した実験設備

1. 磁場下において光励起過程の実験が可能な超高真空装置。
2. 光励起前後の分子の状態を高感度に検出可能な超高真空対応の反射吸収赤外分光装置。
3. NO, CO, H₂ 分子の内部状態が測定可能なレーザー共鳴イオン化システム。

【さきがけ期間後の状況・成果】

一酸化窒素分子については顕著な効果は観測されなかったが，水素分子の核スピンの着目して研究を進展させ，金属表面での核スピン転換時間の精密測定に成功した。同位体効果および理論値との比較から，スピン転換機構が電子移行を伴う超微細相互作用に起因することを明らかにした。さらに光励起効果を調べ，光誘起オルト-パラ転換をあらたに発見した。また，脱離分子の内部状態測定から，分子脱離のメカニズム解明を行った。さらに最近ではスピン転換の磁気効果を調べるべく，レーザー誘起蛍光法の開発に成功した。

水素—表面系の研究を進める過程で、共鳴イオン化法に加えて、共鳴核反応法の開発を進め、高分解能深さ分析を実現した。これらの研究をベースに、2005.10 より JST-CREST 代表者として「水素のナノスケール顕微鏡」を開始する予定である。

(7) 藤井 紀子 (1 期生)

【さきがけ研究課題】

老化と D-アミノ酸—白内障の根絶へ向けて—
—タンパク質の高次構造形成により生じた反応場における D-アミノ酸生成と老化現象の
関連について—

【さきがけ研究期間】

1994 年 10 月～1997 年 9 月

【さきがけ研究の目的・位置づけ】

筆者らはヒトの水晶体中で加齢に伴ってその主要成分である α -クリスタリン中に部位特異的に D- β -アスパラギン酸(D- β -Asp) が生成されること(ラセミ化、異性化反応)を見出した。水晶体中ではこのような異性体の生成が原因となり、タンパク質の高次構造に影響を与え、不溶化、凝集を招き水晶体混濁、白内障が惹起されると考えられる。本研究ではこのような異常アミノ酸生成反応が、どのようにして穏和な条件下の生体内で、非酵素的に生じるのかを解明することを目的とした。

【さきがけ研究前の状況・成果】

ヒト水晶体 α A-クリスタリン中の Asp-151, Asp-58 残基¹⁾、及び α B-クリスタリン中の Asp-36, Asp-62 残基²⁾ は D-体へと反転し、同時に β -結合へと異性化していることを筆者らが初めて見出した。

【さきがけ期間中の状況・成果】

タンパク質中での部位特異的な D- β -Asp 生成反応はタンパク質の一次構造と立体構造の双方に依存すると考えられた。即ち、1) 一次構造の影響では Asp 残基の隣接残基が小さいアミノ酸であるとき、L- α -Asp は 5 員環イミドを形成し、このイミド上でラセミ化し、開環時に異性化して D- α -Asp、D- β -Asp、L- α -Asp、L- β -Asp の 4 種類の異性体ができる事が明らかとなった³⁾。さらに、2) ペプチド中でのラセミ化反応と異なり、タンパク質中ではタンパク質の立体構造が形成するキラルな反応場により D-Asp が優先的に生成される部位が存在することが初めて明らかとなった⁴⁻⁵⁾。また、この反応はすでに 0 歳代から開始し、これらの異常アミノ酸の量は 30 代、60 代、80 代と増加していくことが明らかとなった⁶⁾。さらに、これらの反応は紫外線照射によって促進されることもわかった⁷⁾。

【さきがけ期間後の状況・成果】

さきがけ期間の研究成果は、タンパク質中での D-アミノ酸生成は従来考えられていたほ

ど、起こりにくい反応ではなく、条件さえ整えば、生体内のような穏和な条件でも容易に生成されることを初めて示したものであった。また、複雑多岐にわたる老化現象を D-アミノ酸という分子で追跡できる可能性を示したものである。

さきがけ終了後は、

1) 紫外線や放射線の照射によってタンパク質中にD-β-Asp残基が惹起され、高次構造に影響を与え、それが原因でタンパク質の機能を低下させるという構造から機能変化までの一連の変化の関連づけを行った⁸⁻⁹⁾。

2) 水晶体以外の他の加齢組織におけるD-β-Asp含有タンパク質の探索を開始することにした。そのため、まず、D-β-Asp含有タンパク質を特異的に認識する抗体を調製し¹⁰⁾、紫外線照射影響の大きい皮膚においてこの抗体を用いて、免疫組織染色を行った。その結果、D-β-Asp含有タンパク質は老人の顔の皮膚に存在することが明らかとなった¹¹⁾。幼児の顔の皮膚、並びに高齢者であっても腹、背中など、紫外線非曝露部位ではD-β-Asp含有タンパク質が、存在しなかったので、皮膚のタンパク質中でのD-β-Asp生成は加齢と紫外線の両者によって生成されるものと考えられた。

3) 最近、水晶体の培養細胞が産生する複数のタンパク質中にD-β-Aspが含まれていることを見出し、それらのタンパク質を同定することに成功した¹²⁾。

4) 現在、αA-クリスタリン並びにαB-クリスタリンの組み替え体を調製し、これらの結晶化を行っている。

これらタンパク質の立体構造の解明により D-Asp を誘導する反応場の構造が明らかになるものと思われる。

【当該研究分野の発展状況】

さきがけ研究開始時には、高等動物の生体内D-アミノ酸に関連する研究は非常に少なかったが、過去、10年くらいの間当該研究分野は飛躍的に発展した。遊離のD-アミノ酸は様々な生理的役割を担っていることが明らかになってきた。その合成、分解に関わる一群の酵素の研究も日本人研究者の得意とするところである。また、生理活性を有するD-アミノ酸含有ペプチド、加齢に伴って生じるタンパク質中でのD-アミノ酸など、国内外を問わず、多種多様な興味深い研究が盛んに行われるようになってきた¹³⁾。こうした背景を受けて、今年度はD-アミノ酸研究会も設立され、多くの研究者の関心を集めた。当該分野は国際的にも主導的立場にある。

1. N. Fujii et al. J. Biochem. 116, 663-669 (1994)
2. N. Fujii et al. Biochim. Biophys. Acta 1204, 157-163 (1994).
3. N. Fujii et al. Int. J. Pep. & Protein Res. 48, 118-122 (1996).
4. N. Fujii et al. Biophys. Biochem. Res. Commun. 239, 918-923 (1997)
5. N. Fujii et al. Biophys. Biochem. Res. Commun. 263, 322-326 (1999)

6. N. Fujii et al. *Biochem. Biophys. Res. Comm.* 265,746-751 (1999).
7. N. Fujii et al. *Exp. Eye Res.* 65,99-104 (1997).
8. N. Fujii et al. *Photochem. Photobiol.* 74, 477-482 (2001).
9. N. Fujii et al. *Molecular Vision* 10, 814-820 (2004).
10. N. Fujii et al. *Molecular Vision* 6, 1-5 (2000).
11. N. Fujii et al. *Biochem. Biophys. Res. Comm.*294, 1047-1051 (2002).
12. T. Takata et al. *Biochem. Biophys. Res. Comm.*, 334, 1022-1031 (2005).
13. ファルマシア 特集 D-アミノ酸 41, (9) 831-884 (2005)

(8) 持地 広造 (1 期生)

【さきがけ研究課題】

多価イオン照射で新しい固体表面をつくる
—多価イオン励起表面反応—

【さきがけ研究期間】

1994 年 10 月～1997 年 9 月

【さきがけ研究の目的・位置づけ】

低速多価イオンの照射によって表面に起きる化学反応の特長を調べ、ナノテクノロジーへの応用の可能性を探る。

位置づけ：基礎研究、探索研究

【さきがけ研究前の状況・成果】

小型の多価イオンの試作に成功していた。

【さきがけ期間中の状況・成果】

上記の多価イオン源、および東京都立大の多価イオン源を利用して、イオン照射によって表面から脱離する化学種の計測、およびイオン照射表面の原子構造について解析した。この結果、多価イオンの価数、すなわちイオンの内部エネルギーによって脱離反応の効率あるいは表面原子構造変化の程度が変わることを明らかにした。

【さきがけ期間後の状況・成果】

試験研究として、さきがけ期間に取得した設備を借用し、関連研究を行った。具体的には、多価イオンの代わりに STM 探針から放出させた電界放射電子ビームを励起源として利用し、表面励起反応の特性を検討した。

【当該研究分野の発展状況】

JST の国際共同研究（多価冷イオン研究プロジェクト、代表者：大谷俊介先生）に発展し、電子ビーム励起多価イオン源の開発、イオン励起分光、表面励起などの研究を包括的に進めた。

(9) 小川 誠 (2期生)

【さきがけ研究課題】

無機固体表面にナノ空間を創る

【さきがけ研究期間】

1995年10月～1998年9月

【さきがけ研究の目的・位置づけ】

無機化合物と有機化合物の界面における自己組織化を利用して分子サイズの空空間を有するナノ複合構造を設計し、特定の化学種を選択的且つ効率的に吸着する物質を合成し、従来の結晶質多孔体では実現できない空間サイズの構造制御を行うことを目的とした。

【さきがけ研究前の状況・成果】

層状結晶と有機化合物との複合化について、反応方法の検討、また新しい化合物の合成に関する研究を行った。特に層状ケイ酸塩と色素との複合化について系統的な検討を行った。

【さきがけ期間中の状況・成果】

メソポーラスシリカ薄膜の合成を世界で初めて報告した。

アルミニウム、チタニウムを含有するメソポーラスシリカ薄膜を合成し、表面酸性、陽イオン交換性、光触媒特性を付与することに成功した。(1)

また層状ケイ酸塩の有機修飾を行い、吸着に伴い分光特性が変化する機能性吸着剤を設計することに成功した。(2) 層状ニオブ酸塩の面内異方性を利用して、色素会合体の配向を制御することに成功した。(3)

【さきがけ期間後の状況・成果】

メソポーラスシリカへの光機能ユニットの固定

メソポーラスシリカMCM-41の細孔表面に存在するシラノール基のシランカップリング剤との反応を利用してナノ空間にフェニルエチル基を固定した。それをクロロ硫酸との反応でフェニル基に硫酸基を導入した後、細孔への $[\text{Ru}(\text{bpy})_3]^{2+}$ の吸着を試みた、未処理のMCM-41ではほとんど吸着しないのに対し、表面修飾後は導入された酸点の量に対応して定量的に $[\text{Ru}(\text{bpy})_3]^{2+}$ が吸着した。 $[\text{Ru}(\text{bpy})_3]^{2+}$ の導入量に応じて、発光極大波長、発光強度が変化する様子が観察された。

メソポーラスシリカの形態設計

酸性条件下アルコキシシランの重縮合により得られる粘稠溶液をポリエチレン板上にキャストし乾燥，熟成後これを剥がしとることにより自己保持性膜が得られる。これを空气中 500°C で加熱することによりメソポーラスシリカの厚膜（膜厚数十 μm ）を得た。この際前駆溶液にアルミニウム源となる塩化アルミニウムを加えることで、ケイ素の一部をアルミニウムで置換することができた。

またシリカの球状粒子を得るのによく用いられる Stöber 法に超分子鑄型法を取り入れ、真球状のメソポーラスシリカ粒子の合成にも成功した。鑄型としてはヘキサデシルトリメチルアンモニウムを用いサイズ分布はよくそろっており現在までに数十 nm から μm サイズの粒子を得ている。

【当該研究分野の発展状況】

メソポーラスシリカという新しい多孔質材料が、ますます広範囲な研究の対象になっており、最近になっても発表論文数は増え続けているようである。本研究の最も初期の成果である、溶媒揮発法によるメソ構造体の合成については、さきがけの成果のうちはじめに出版となった論文が 200 回以上引用されていることからわかるように現在も盛んに研究されている。工業的な応用も盛んに試みられている。小川もいくつかの企業との共同研究を遂行中である。また本年（2005年6月）メソポーラス膜に関する国際会議がフランス、ストラスブール市で開催（小川も組織委員として参加）されるなどますます盛んに研究されるようになった。

無機有機複合化に関する研究も、いくつかの書籍が出版されるなど相変わらず盛んに行われている。本研究で実現した層状物質の表面を使った有機化合物の組織化についても、高分子材料のフィラーとしての可能性が検討されるなど、応用を目指した研究が行われるのと同時に、様々な分工学的手法を含む分析によって、分子の配向、隣接分子間距離など従来はその評価が難しいと思われていたことに関する情報も得られるようになった。分子配列制御法の一つとして今後もますます研究が進むものと思われる。

(10) 小林 光 (2期生)

【さきがけ研究課題】

界面を光電子分光法で観る

ーバイアス電圧印加時の XPS 測定による界面反応の研究ー

【さきがけ研究期間】

1995年10月～1998年9月

【さきがけ研究の目的・位置づけ】

X線光電子分光法(XPS)を用いて、半導体界面に存在する微量の界面準位を観測する。このため、「バイアス電圧印加時のXPS測定」という新しい分光学的手法を開発する。さらに、界面準位を消滅させる方法の開発を目的とした。

【さきがけ研究前の状況・成果】

<3nm白金/～2nm SiO₂/シリコン>MOS構造のシリコンをアース電位にして、白金にバイアス電圧を印加しながらXPS観測をすることによって、従来の電気的手法では不可能であった極薄SiO₂/Si界面に存在する界面準位のエネルギー分布が観測できる可能性を見出し出していた。

【さきがけ期間中の状況・成果】

半導体界面準位を中心に、以下の研究を行った。

- ① バイアス電圧印加時のXPS測定を用いて、シリコンを種々の溶液に浸漬することによって形成した極薄化学酸化膜について、初めて界面準位を観測することに成功した。
- ② バイアス電圧印加時のXPS測定を用いて、極薄熱酸化膜の界面準位を観測することに成功した。界面準位のエネルギー分布は、SiO₂膜の原子密度に、界面準位密度は界面のラフネスに大きく依存することが分かった。
- ③ 種々の薬液にシリコンを浸漬することによって形成した化学酸化膜のうち、硝酸酸化膜が最も低い界面準位密度を持つことが分かった。
- ④ SiO₂/シリコン界面に存在する界面準位を消滅させる新規方法として、KCN水溶液に浸漬してCN⁻イオンをシリコンダングリングボンドに選択的に反応させる「シアン処理」を開発した。
- ⑤ 金属基板と金属薄膜の間にアセトニトリル、四塩化炭素などの液体を閉じ込めることによって、液体のXPSスペクトルを観測した。

【さきがけ期間後の状況・成果】

半導体中の界面準位等の欠陥準位は、太陽電池、LSI、薄膜トランジスタ(TFT)等の半導体デバイスの特性を大きく劣化させる。半導体の欠陥準位をシアン化物イオン(CN⁻)と反応させてSi-CN結合を形成する新規欠陥消滅法を開発した。この新規欠陥消滅法を用いて、シリコン太陽電池やLSI、TFTの基本構造であるMOSデバイスの電気特性を向上させることに成功した。この研究課題で、平成12年～17年10月の間、CRESR研究(研究課題:新規化学結合を用いるシリコン薄膜太陽電池)の研究代表者として研究を行なった。

KCNを用いた欠陥準位の消滅法では、半導体デバイスの電気特性を大きく劣化させるK⁺イオンが溶液に含まれるため、半導体プロセスへの実用化が困難であった。K⁺イオンによる汚染が全く問題にならないHCN水溶液による半導体欠陥消滅法を開発した。さらに、pH調整したHCN水溶液は、半導体表面から金属を除去する大きな効果を持つことを見出した。したがって、HCN水溶液は、半導体中の欠陥準位を除去すると同時に、半導体洗浄に用いることができることがわかり、JSTの大学発ベンチャー推進事業で(研究課題:欠陥消滅機能を持つ半導体洗浄液の実用化研究、研究期間:平成16～18年)、この新半導体洗浄液の実用化に関する研究を行なっている。

さきがけ研究機関中、硝酸を用いた溶液酸化で形成した化学酸化膜が最も低い界面準位密度を持つことを見出していた。シリコンの硝酸酸化に関する研究を続けて、濃度68重量%の共沸硝酸でシリコンを酸化することによって形成した膜厚1.3nm程度の極薄酸化膜は、リーク電流密度が通常の熱酸化膜に比較して1/4～1/20と格段に低く、次世代LSIのゲート酸化膜に用いることができる可能性を見出した。この硝酸酸化法で形成したSiO₂膜ではじめて極薄化学酸化膜について、電気容量-電圧(C-V)曲線を観測することに成功した。また、最初濃度の低い硝酸でシリコンを酸化し、その後共沸硝酸で酸化する二段階硝酸酸化法を開発して、この方法を用いて120℃の低温で10nm以上の膜厚を持つSiO₂膜を形成できることを見出した。この方法で形成した酸化膜は、従来の酸化膜の低温形成法であるCVD法に比較して格段に良質のSiO₂膜が形成でき、TFTのゲート酸化膜に利用すれば薄膜化による大幅な消費電力の低減が可能となる。この研究課題で、平成17年10月～平成22年の研究機関で、JSTのCREST研究の研究代表者(研究課題:極限ゲート構造によるシステムディスプレイの超低消費電力化)として研究を行ない始めた。

【当該研究分野の発展状況】

SiO₂/シリコン界面の界面準位やシリコン中の欠陥準位は、水素中400℃程度で加熱する水素処理によって消滅させる方法が一般的である。水素処理では、シリコンダングリングボンドからSi-H結合を形成することによって欠陥準位が消滅する。しかし、Si-H結合は比較的弱く、600℃以上の加熱や放射線照射によって切断して再び欠陥準位が生成するという問題点がある。

シリコンデバイスの洗浄は、強酸やアルカリを用いて表面を少しエッチングすることによって重金属汚染やパーティクル汚染を除去する方法が取られている。この方法では、汚

染物の再付着が起こり、大量の洗浄液を用いる必要がある。また、エッチングが半導体プロセスを非常に複雑にしている。洗浄によって表面が荒れ、欠陥が生成することもある。

SiO₂膜を低温で形成する方法として、CVD法が一般的である。CVD法で形成した酸化膜は、膜質が悪くその上界面特性も悪いために、TFTのゲート酸化膜として十分な良好なリーク電流特性を得るためには、50nmと厚い酸化膜を形成する必要があり、消費電力増加や演算処理速度の低下をもたらしている。また、CVD法でも400℃以上の高温を要するために、TFTの基板としてガラス基板が用いられており、PETなどのプラスチック基板を用いることができない。

(11) 笹木 敬司 (2期生)

【さきがけ研究課題】

輝くマイクロな球でナノ空間を観る

【さきがけ研究期間】

1995年10月～1998年9月

【さきがけ研究の目的・位置づけ】

微小球に特有な”光共振現象”を利用して球内部の原子・分子の自然放出過程やエネルギー移動ダイナミクスを制御するとともに、レーザー発振微小球のフォトンネリング現象を利用することによって、従来の顕微分光計測技術の限界を大きく打ち破る感度・精度でナノメートル空間における光物理・光化学現象を解析する新しい手法を開発する。

【さきがけ研究前の状況・成果】

レーザー光の放射圧を利用して微小構造体を自在に操り、パターンニング、フローコントロール、構造体アセンブリング等を行う新しい技術の開発を行った。また、微小球の光閉じ込め現象を利用してレーザー発振現象を誘起し、そのダイナミクスの解析を行った。

【さきがけ期間中の状況・成果】

- A. 高分子微小球にドーピングした芳香族分子の自然放出過程が共振器量子電気力学効果により増強する現象を観測することに成功した。また、2種類の芳香族分子間のエネルギー移動ダイナミクスについても観測を行った結果、双極子・双極子相互作用によるエネルギー移動の効率がバルクにおける観測値に比べて数十倍高くなることを明らかにした。
- B. 微小球レーザー発振の長時間安定性、ポンプ光と発振光の波長域の分離を目的として、希土類イオンをドーピングしたガラス微小球の作製を試み、レーザーマニピュレーション用近赤外光を用いた多光子励起により青色領域の安定したアップコンバージョンレーザー発振光を得ることに成功した。
- C. レーザー発振微小球とガラス基板との距離をレーザーマニピュレーションにより制御しながら発振スペクトルを測定した結果、エバネッセント場の強度分布に対応した発振ピークの強度変化が観測された。このことから微小球とガラス基板の間で光局在場を介したフォトンネリングが起こっていることが確認され、近接場顕微鏡のプロブとしての有効性が示された。
- D. エバネッセント場を用いた3次元ナノメートル光位置検出法を新たに考案し、レーザー発振微小球の揺らぎを直接測定するシステムを開発した。また、微粒子の熱揺らぎにボルツマン分布を適用して微粒子に作用するポテンシャルを瞬時に高精度で解析する手法を

開発し、エバネッセント場の放射圧ポテンシャル計測や静電力測定による表面電荷密度の解析に応用した。

【さきがけ期間後の状況・成果】

さきがけ研究終了後に、竹内繁樹氏と同じ研究室で共同研究を進めることになり、竹内氏の量子情報における研究成果と笹木の微小球光閉じ込めに関する成果を有機的に組み合わせ、微小球共振器を用いた光量子位相ゲートの研究を行ってきた。笹木のさきがけ研究課題に直接関係する展開としては、色素溶液中に分散した微小球やツリウムイオンドーパガラス微小球のレーザー発振、微小球共振器の温度コントロールによる共振周波数の高精度制御、テーパファイバ結合微小球共振器におけるファノ効果の観察、等の研究を行ってきた。また、放射圧を用いたポテンシャル計測法を応用して、消光ファトンフォース単一微粒子吸収計測、マイクロ流路におけるフロー計測、光圧誘起キャピラリー波を利用した分子弾性応答解析等を提案してきた。

参考文献

- H. Fujiwara and K. Sasaki, J. Appl. Phys., 86, 2385 (1999).
K. Wada, K. Sasaki and H. Masuhara, Appl. Phys. Lett., 76, 2815 (2000).
K. Sasaki, J. Hotta, K. Wada and H. Masuhara, Opt. Lett., 25,18, 1385-1387 (2000).
Y. Matsuo, H. Takasaki, J. Hotta and K. Sasaki, J. Appl. Phys., 89, 5438 (2001).
K. Wada, K. Sasaki and H. Masuhara, Appl. Phys. Lett., 81,10, 1768 (2002).
H. Fujiwara, H. Takasaki, J. Hotta and K. Sasaki, Appl. Phys. Lett. 84, 13 (2004).
A. Chiba, H. Fujiwara, J. Hotta, S. Takeuchi and K. Sasaki, Jpn. J. Appl. Phys., 43, 6138 (2004).
A. Chiba, H. Fujiwara, J. Hotta, S. Takeuchi and K. Sasaki, Appl. Phys. Lett., 86, 261106 (2005).

【当該研究分野の発展状況】

微小球光共振器を利用した光デバイス／非線形光デバイスは極めて高い Q 値と微小モード体積を有することから、将来が期待される量子情報分野のみならず、実用化に近い光通信や光情報処理の分野でも大きな注目を集めており、先月開催された国際学会 CREO-PR でも関連する多くの研究発表がなされた。放射圧を利用したマニピュレーションや微弱力測定の技術はバイオへの応用が期待されており、北大21世紀 COE「バイオとナノの融合する新生命科学研究拠点」においてバイオの研究者と共同研究し、細胞骨格系の解析やバイオ分子修飾微粒子の摩擦係数測定など新しい研究フィールドへの広がりを見せている。

(12) 篠原 寛明 (2期生)

【さきがけ研究課題】

電子を運ぶ人工のペプチドや蛋白質を創る

—電子伝達ポリペプチドを用いる蛋白質 - 電極間電子移動—

【さきがけ研究期間】

1995年10月～1998年9月

【さきがけ研究の目的・位置づけ】

これからのバイオエレクトロニクスを担う新規なナノバイオ分子材料として、電子を運ぶポリペプチドや人工酸化還元タンパク質の創製を目指した。次世代の分子エレクトロニクスデバイス材料や、生体情報を計測あるいは制御するバイオエレクトロニクスシステムの創生を担うことが期待される。

【さきがけ研究前の状況・成果】

ポリペプチドや天然タンパク質の側鎖に化学修飾法により、酸化還元機能基を導入し、電子伝達機能を有する分子材料として利用していた。

【さきがけ期間中の状況・成果】

本さきがけ研究において、4塩基コドン法を利用する細胞外合成法により、酸化還元機能を有する非天然アミノ酸を部位特異的に組み込んだ人工酸化還元タンパク質の合成に成功し、その金属電極との電子移動を確認できた。また固相合成法により酸化還元アミノ酸を構成要素とするペプチドの合成にも成功し、その酸化還元機能を明らかにできた。

【さきがけ期間後の状況・成果】

終了後に、立体的にかさ高い電子供与製の非天然アミノ酸も、アミノ酸側鎖のスペーサーの検討により、部位特異的に導入した変異タンパク質の合成に成功した。

【当該研究分野の発展状況】

さらに蛍光性非天然アミノ酸の部位特異的導入により、抗原を認識して結合すると速やかに蛍光強度が減衰する抗体タンパク質を合成することにも成功し、これからの分子センサの開発方向を示している。

参考文献

1) 篠原寛明, 藤井 朗, バイオエレクトロニクスインターフェイスシステム, BIO

INDUSTRY, 22 (10), 15-26 (2005).

2) H.Hamada, N.Kameshima, A.Szymanska, K.Wegner, L.Lankiewicz, H.Shinohara, M.Taki, and M.Sisido, Position-Specific Incorporation of Highly Durable and Blue-Laser Excitable Fluorescent Amino Acid into Proteins for Fluorescence Sensing, *Bioorganic & Medicinal Chemistry*, 13, 3379-3384 (2005).

3) 篠原寛明, タンパク質材料, ナノマテリアルハンドブック (国武豊喜監修: NTS, 東京) 第10章第2節1. pp.756-771 (2005).

4) A. Fujii, H. Shinohara, T. Hohsaka, and M. Sisido, Synthesis and Interfacial Electron Transfer of Nonnatural Redox Proteins in Which a Nonnatural Amino Acid is Incorporated at a Specific Site, *Interface*, 2003, 96-97 (2003).

5) A. Fujii, H. Shinohara, T. Hohsaka, M. Sisido, Synthesis and Characterization of Mutants of Streptavidin in Which a Nonnatural Amino Acid Carrying Ferrocenyl Group was Incorporated at a Specific Site, in "Biomolecular Chemistry, A Bridge for the Future (Proc. of the ISBC 2003)" Scientific Program Committee of ISBC 2003, Editor, pp.292-293, MARUZEN Co. Ltd., Tokyo (2003).

(13) 竹内 繁樹 (2期生)

【さきがけ研究課題】

量子計算の実現に向けて

— 単一光子状態を用いた量子場制御の研究 (延長期間課題名: 量子計算の実現に向けて) —

【さきがけ研究期間】

1995年10月～1998年10月 および 1999年5月～2001年5月 (2年間延長)

【さきがけ研究の目的・位置づけ】

さきがけ研究において、量子計算アルゴリズムを実行可能なプロトタイプの、線形光学素子を用いた実現をめざした。その過程において、単一光子状態の量子状態制御、計測技術の開発を行った。

【さきがけ研究前の状況・成果】

さきがけ研究前は、1993年に量子計算アルゴリズムの論文に出会い、そのアルゴリズムの物理的な実現方法の着想を得たのみであった。当時まだ25～27歳であり、修士時代に超伝導接合対を用いた有機超薄膜(LB膜)のフォノンストップバンドの研究や、93年の三菱入社以降、量子計算の研究と並行して、高速リアルタイム微小NMRイメージング技術の研究を行っていたが、量子計算や量子光学実験での実績・成果はなかった。

【さきがけ期間中の状況・成果】

- A. 入力されたビット列の性質を瞬時に判定する Deutsch-Jozsa 量子計算アルゴリズムについて、外部入力が 4bit の場合に対応した線形光学素子による光学系を考案した(PhysComp,1996)。また、系を拡張する方法も示し、そのエラー増大についての考察を行った(Phys. Rev. A, 2000 2報)。
- B. 結晶の角度に工夫をすることで、これまでの方法に比べて明るく収束性の良い光子ビーム対を形成することに成功した(Opt. Lett. 2001)。この方法では、単位時間当たりの光子数が大きく、またビームの形状の対称性もよく利用しやすい。
- C. ERATO 山本量子揺らぎプロジェクトとの共同研究で、 $88 \pm 5\%$ と、世界最高の量子効率をもつ光子検出器の開発に成功した(Appl. Phys. Lett. 1999 および ibid.)。また、先に述べた明るい単一光子源を応用し、この検出器が、一度に複数個の光子が入射した場合に、その光子数を区別できることを定量的に検証した。

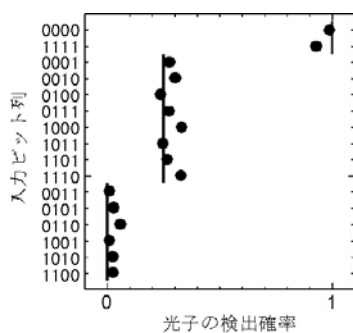


図1 光子1つを用いて4ビットの入力を判定する Deutsch-Jozsa 量子計算機の実験結果。この量子計算機は、入力が「均一」(すべて0、またはすべて1)の場合、出力部で光子を必ず検出し、また「等分」(0と1の数が同じ)の場合、決して光子を検出しない。少ない誤り率で想定どおり動作した。

- D. 4bit の入力に対応した Deutsch-Jozsa アルゴリズム(内部は 3qubit に相当)を実行可能なプロトタイプの構築を行い、その動作検証に成功した。(Phys. Rev. A, 2000, 2 報)

【さきがけ期間後の状況・成果】

A. 線形光学素子を用いた量子計算

99-05 CREST 電子光子等の機能制御「北川チーム」(北大グループリーダー)、03-08 (予定) CREST 量子情報処理「井元チーム」(北大グループリーダー)

単一の光子を用いる方法では拡張性に問題があるため、複数の光子を量子ビットとして用いる方法の研究を開始した。その結果、「線形光学素子だけを用いたシンプルな量子ゲート回路の発案(Phys. Rev. A, 2002)」や「2光子間にもつれ合いを生じさせる量子フィルタ(Phys. Rev. Lett. 2002)」の発明を行った。またごく最近、偏光により反射率異なるビームスプリッタを用いた「干渉系不用の量子ゲート素子の実現(Phys. Rev. Lett. 2005)」に成功した。

B. 単一原子の非線形性を用いた量子位相ゲートと、その微小球共振器による実現

01-05 さきがけ光と制御 (研究代表者) 01-06 総務省量子情報通信研究 (現 SCOPE) (研究代表者)

線形光学素子には、成功確率が低く、また成功確率増大のためには非常に複雑な能動的光学回路が必要になる欠点がある。これを解消すべく、「単一原子の非線形性を用いた量子ゲート素子の提案(J. Opt. B, 2003)」、その「全量子力学的解析と効率の導出(Phys. Rev. A 2004 3 報)」などを行った。また、「テーパファイバと結合した微小球共振器」を用いた実現にも取り組み、最近 **Q 値として 10 の 8 乗を超える共振器を実現**(Appl. Phys. Lett. 2005 他)している。

C. 光子数状態の生成と制御

01-05 さきがけ光と制御 (研究代表者)

場と反応で開発した光子ビーム対の応用として、「パルス内に光子が一つだけの状態である『単一光子状態』を、高い確率で生成する装置」の実現にむけた実験研究に取り組み、実現した(Appl. Opt. 2004 他)。また、光子数状態の量子制御に関する研究に取り組み、「2光子状態間のもつれ合い状態を生成し、それを単なる2つのもつれ合った光子対から区別して**検出することに世界で初めて成功**(Phys. Rev. Lett. 2004)した。

【当該研究分野の発展状況】

さきがけの提案時には、「量子計算」「量子情報」という概念は、物理・応用物理の研究

者にもほとんど知られていなかったが、現在では専門の学会も多く、専門外からも広く関心を持たれている。

研究グループも、国内外に数多く存在するようになっているが、特に光子を用いた量子計算に関しては、**Zeilinger** (オーストリア)、**Milburn** 及び **White** (オーストラリア)、**Winefurter** (ドイツ)、**Franson** および **Pitmann** (アメリカ)、および井元・小芦 (日本) らがあげられる。

(14) 田中 雅明 (2期生)

【さきがけ研究課題】

エピタキシャル成長による半導体と磁性体の一体化

【さきがけ研究期間】

1995年10月～1998年9月

【さきがけ研究の目的・位置づけ】

原子レベルでの制御が可能な結晶成長技術に様々な新手法を組み合わせることによって、従来は不可能であった強磁性体（磁性金属や磁性半導体）と半導体との異種物質ヘテロエピタキシーを実現し、原子レベルで構造・膜厚を制御した磁性体／半導体エピタキシャル超構造を形成する。両方の材料の特長を結合させた物性機能の探索を進め、デバイス応用への指針を示すとともに、従来の半導体エレクトロニクス分野にスピントクノロジーという新しい自由度をもたらすことを目的とした。

【さきがけ研究前の状況・成果】

半導体物理と磁性体物理は、固体物理学の中で2大分野でありながら、両者の間では交流がほとんどなく、研究分野も研究者も学会も重なるところはきわめて少なかった。この状況を反映して、工学的応用面でもそれぞれ別々に研究が進められてきた（例えばトランジスタやLSIは半導体、テープやディスクは磁性体）。両者の融合的な研究分野としてはわずかに、II-VI化合物半導体にMnなどの磁性イオンを混入させた希薄磁性半導体があるのみで、これも強磁性秩序が現れるキュリー温度が極低温の物質しか得られないため、純粹基礎科学的な関心は持たれてきたものの、工学の研究者にとっては魅力あるものではなかった。一方、半導体における結晶成長技術はこの25年間で驚くべき進歩を遂げ、例えば分子線エピタキシー(MBE)によって原子層制御が可能になった。さらにごく最近では、申請者を含む数人の米国・日本・フランスの研究者の努力によって、半導体と金属といった異種物質を組み合わせたエピタキシャル成長が可能になりつつあった。

本研究者は1992年以降、Mnを含む2元の金属間化合物(MnGa, MnAs, MnAs)の強磁性体としての性質とIII-V化合物半導体との整合性の良さに着目し、強磁性金属間化合物／半導体ヘテロ構造の研究を行った。分子線エピタキシー(MBE)法における結晶成長機構の特質を考察し、成長初期に極薄膜を堆積する独特の手法を開発・適用することによって、従来不可能とされていた異種物質（結晶構造、格子定数、化学結合、電子構造が異なる磁性金属と半導体）から成る種々の複合ヘテロ構造のエピタキシャル成長に初めて成功しつつあった。(1995年当時)

【さきがけ期間中の状況・成果】

(1) Mn を含む 2 元金属間化合物(Mn-III, Mn-V, III=Ga, Al, V=As)の強磁性体としての性質と III-V 化合物半導体との整合性の良さに着目し、強磁性金属間化合物／半導体ヘテロ構造のエピタキシャル成長に初めて成功した。独自のテンプレート法を用いることにより、結晶の方位や磁気異方性など磁気的特性を制御できることを示した。

(2) 分子線エピタキシーの手法を駆使することによって、結晶構造・化学結合・電子構造などが大幅に異なる異種物質の組み合わせであるにもかかわらず、強磁性金属(MnAs)／半導体(GaAs)／強磁性金属(MnAs)から成る単結晶の多層ヘテロ構造を GaAs 及び Si 半導体基板上に成長することに初めて成功した。

(3) 新しい III-V 族ベースの強磁性半導体 GaMnAs 薄膜と GaMnAs を含む超格子構造、量子ヘテロ構造の作製に初めて成功し、III-V 族磁性半導体としては初めて量子効果を明瞭に観測した。

(4) 新しい III-V 族ベースの磁性半導体 GaMnAs および GaMnAs を含む超格子構造の磁気光学効果の増大を初めて観測し、そのバンド構造を明らかにした。

などである。また、

(5) 上記の研究業績が国際的にも評価され、さきがけ研究期間中に 5 つの国際会議から招待講演を依頼された。また、1997 年 10 月には、日本応用磁気学会より、「III-V 族希薄磁性半導体(GaMn)As のエピタキシャル成長と磁性・電気伝導特性」等の一連の論文・業績により、平成 9 年度学術奨励賞（武井賞）を受賞した。

・展望

本研究では磁性体／半導体エピタキシャル超構造を形成するための結晶成長技術、原子レベルでの構造や電氣的・光学的・磁気的性質など物性機能の一部が明らかになった。これを基礎にして、半導体と磁性体の機能を一体化・集積化するための基盤技術・材料技術を確認し、その物性機能を自在に設計できるようにして、デバイス応用の研究へ展開してゆきたいと考えている。

・成果発表等

論文 27 件（出版済 16 件、予定 5 件）、国際会議発表 21 件（招待講演 5 件、一般講演 16 件）、

国内学会発表 53 件、特許出願 1 件、総説・解説論文 5 件

【さきがけ期間後の状況・成果】

さきがけ研究で支援をしていただいたことが、あらゆる方面にわたってその後の研究の発展や展開に役立った。期間後（おおよそ 1998 年以降）の成果の要点を以下に述べる。

(1) 強磁性体／半導体から成る複合ヘテロ構造の成長、スピン依存伝導、デバイス応用 Mn を含む 2 元の金属間化合物(MnGa, MnAs, MnAs)の強磁性体としての性質と III-V 化

合物半導体との整合性の良さに着目し、強磁性金属間化合物／半導体ヘテロ構造の研究を行った。その最も顕著な例は、六方晶 NiAs 型結晶構造をもつ強磁性金属 MnAs と GaAs から成るヘテロ構造であり、上記の成長手法を用いることにより、半導体基板上で強磁性薄膜・多層膜結晶の面方位や磁気異方性など磁気的特性を自在に制御できることを示した。また、GaAs および Si 半導体基板上において、強磁性金属単結晶薄膜を利用した不揮発性メモリの原理的な動作を示した。さらにこの手法を発展させることによって、強磁性金属 (MnAs)／半導体(GaAs, AlAs)／強磁性金属(MnAs)から成る単結晶の多層ヘテロ構造を成長し、スピンバルブ効果やトンネル磁気抵抗効果 (TMR) を室温で観測した (Appl. Phys. Lett. **74**, 64 (1999); Appl. Phys. Lett. **80**, 1969 (2002))。このように半導体ベースの複合ヘテロ構造でスピン依存伝導現象を発現させたことにより、半導体をベースとしたスピン伝導デバイスへの可能性を開いた。

(2) III-V 族ベースの強磁性半導体およびその量子ヘテロ構造

強磁性半導体 GaMnAs を含む超格子構造や量子ヘテロ構造の作製に成功し、III-V 磁性半導体としては初めて量子サイズ効果を明瞭に観測した。また、III-V 族磁性半導体 (GaMnAs) の大きな磁気光学効果を見出し、初めてそのバンド構造を明らかにした。さらに、GaMnAs 強磁性半導体をベースとした強磁性トンネル接合素子を作製し、そのトンネル磁気抵抗効果(TMR)を明瞭に観測 (半導体では初めての TMR 効果を観測) するとともに、その TMR 比が 75% という極めて大きな値を示すことを見出し、強磁性半導体ヘテロ構造が顕著なスピン依存トンネル現象を示すことを明らかにした (“Large Tunneling Magnetoresistance in GaMnAs/AlAs/GaMnAs Ferromagnetic Semiconductor Tunnel Junctions”, Phys. Rev. Lett. **87**, 026602 (2001))。

(3) 半導体ヘテロ構造における強磁性転移温度の高温化と電界・光による磁性制御

1999 年以降、半導体バンドエンジニアリングと波動関数工学の概念を磁性ヘテロ構造の設計に拡張した。MnデルタドープGaAsを含むp型選択ドープヘテロ構造を作製、p型AlGaAs層からMnデルタドープGaAs層へ2次元正孔ガス(2DHG)を供給しMn局在スピンと2DHGの波動関数を重ねることによってキャリア誘起の強磁性秩序を実現し、III-V族磁性半導体材料としてはこれまでで最も高い強磁性転移温度 ($T_c=172$ K) を実現した (“Ferromagnetism and High Curie Temperature in Semiconductor Heterostructures with Mn-delta-doped GaAs and p-type Selective Doping”, Phys. Rev. B **67**, 241308(R) (2003))。最近、同様のヘテロ構造でさらに高い $T_c=192-250$ K を観測した (Phys. Rev. Lett. **95**, 17201 (2005))。このヘテロ構造をベースに、チャンネルにMnデルタドープ層をもつ電界効果トランジスタ(FET)を作製し、100 K以上の高温において、ゲート電界により電氣的に常磁性から強磁性への転移を起こさせること、および光照射により強磁性秩序を増強することに成功し、電氣的および光による磁性制御を用いたスピンドバイスへの可能性を示した (Jpn. J. Appl. Phys. **43**, L233 (2004))。

(4) GaAs:MnAs ナノグラニューラー構造を用いた半導体磁気光学結晶の開発と磁気光学

デバイス

1999年以降、半導体磁気光学結晶の研究を行った。III-V族の磁性半導体を高温でアニールすることにより、GaAs:MnAs ナノグラニューラー構造を形成し、それが III-V 族ヘテロ構造と極めて整合性が良いこと、室温で極めて大きな磁気光学効果を示すこと（単位膜厚当りのファラデー回転角が現在光アイソレータ等で使われる YIG や CdMnTe の 10 倍以上）を明らかにした。さらに、GaAs:MnAs ナノグラニューラー構造を半導体多層膜反射鏡 (DBR) で挟んだ多層構造（半導体ベース磁気光学結晶）を作製し、光の局在を利用することにより所望の波長において大きな磁気光学効果（室温でファラデー回転角 4 deg/μm、カー回転角 1.54 deg という半導体材料としては最高値）を得ることに成功し、III-V 族化合物半導体をベースとした集積化型磁気光学デバイス応用への指針を示した（“Enhancement of Magneto-optical Effect in a GaAs:MnAs Hybrid Structure Sandwiched by GaAs/AlAs Distributed Bragg Reflectors: Epitaxial Semiconductor-based Magneto-phonic Crystal”, *J. Crystal Growth* **227-228**, 839 (2001).）。

（5）スピントランジスタの提案・解析とシリコン(IV族)ベース・スピンエレクトロニクスの開拓研究

2002年以降、スピン自由度を活用した3端子デバイス（スピントランジスタ）の研究を行った。特に、スピン偏極率の高い強磁性体をソース/ドレイン電極にもつショットキー接合型の MOSFET を考案し（スピン MOSFET と命名）、大きな磁気電流比と増幅機能をもつシリコン LSI と整合性の良いスピントランジスタができることを理論解析によって示した（*Appl. Phys. Lett.* **84**, 2307 (2004)）。これを用いた超高密度の磁気ランダムアクセスメモリや再構成可能な論理回路を提案・動作解析した（*Jpn. J. Appl. Phys.* **43**, 6032 (2004)）。これらの研究は、現代のエレクトロニクスで圧倒的な重要性をもつシリコン MOSFET と整合性の良いスピンデバイスとして初の提案であり、シリコンをベースとしたスピンエレクトロニクス研究の意義を世界に先駆けて示したものである。“Spintronics: recent progress and tomorrow's challenges”, *Journal of Crystal Growth* **278**, 25 (2005) は、半導体スピンエレクトロニクス（スピントロニクス）分野の進展につき、ここに至るまでの著者の最近の研究成果を中心にまとめたレビュー論文であり、スピン機能材料の進展、高い強磁性転移温度を示す半導体材料、シリコンベースの Spin MOSFET デバイスとその再構成可能な論理回路への応用、将来展望を示した。

以上の業績により、1997年10月 学術奨励賞・武井賞（日本応用磁気学会）、1999年3月 矢崎学術賞（矢崎科学技術振興記念財団）、2002年3月 丸文研究奨励賞（丸文研究交流財団）、2003年11月 日本IBM科学賞を受賞した。指導した大学院学生の受賞として、応用物理学会講演奨励賞4回（1999年、2001年、2003年、2006年）、日本応用磁気学会・学術奨励賞（武井賞、2001年）、平成17年(2005年)度 猪瀬賞がある。

【当該研究分野の発展状況】

下記の review paper や解説論文を参照してください。その後大きく発展した（発展しつつある）ことがわかり頂けるかと思います。

- M. Tanaka (Invited paper), "Ferromagnet (MnAs) / III-V Semiconductor Hybrid Structures", *Semiconductor Science and Technology* **17**, 327 (2002).
- 田中雅明、"半導体スピエレクトロニクス -現状と展望-" 応用物理 73 巻 第 4 号 基礎講座<スピエレクトロニクス>基礎小講座 pp.508-517 (2004).
- M. Tanaka (Invited paper), "Spintronics: Recent Progress and Tomorrow's Challenges", *J. Crystal Growth* **278**, pp.25-37 (2005).
- S. Sugahara and M. Tanaka, "Spin metal-oxide-semiconductor field-effect transistors (spin MOSFETs) and their integrated circuit applications", *ACM Transactions on Storage* (2006), in press.
- S. Ohya and M. Tanaka, "TMR in Semiconductors", *Handbook of Magnetism and Advanced Magnetic Materials*, Vol. 5 Spintronics and Magnetoelectronics, edited by Helmut Kronmuller and Stuart Parkin, John Wiley & Sons Ltd. (Chichester, UK), in press.

(15) 田中 康隆 (2期生)

【さきがけ研究課題】

簡単な分子で触媒や素子をつくる

【さきがけ研究期間】

1995年10月～1998年9月

【さきがけ研究の目的・位置づけ】

複雑な分子を設計し有機合成をして、触媒や分子素子機能を期待する分子を得るには、多大な労力、時間、お金が必要となる。設計した目的分子が仮に合成できたとしても、それが予想通りの触媒や分子素子としての機能を発現するかどうかは当然保証の限りでない。その結果に基づき、再設計・再合成・再機能評価というようなさらに労力と時間を要する過程を経ねばならない。分子を設計する際、できる限り容易に合成でき、かつその修飾（改良）も簡単にできる分子系を選択すべきである。そうする事により、開発までの時間と労力を大きく低減する事ができ、大きな見地から考えるとエネルギー的にも非常に有利な過程という事ができる。そこで「さきがけ研究」では、容易に合成・修飾が可能な分子として、フェノール類から一段階で合成が可能な「カリックスアレーン」と慣用名で呼ばれる分子を中心として、研究課題に取り組んだ。

【さきがけ研究前の状況・成果】

上述の「カリックスアレーン」と呼ばれる分子群を応用して、まだ世界でも例が希であった「人工イオンチャンネル」の合成に成功していた²⁵。また、同様の分子群を応用して、特定の糖分子や極性分子のみをその分子上に固定化したり触媒反応を起こさせたりする、「糖類の分子認識と触媒反応」に関して世界に先駆けて報告していた²⁶。

【さきがけ期間中の状況・成果】

- 1) 先ず上述したカリックスアレーンと呼ばれる分子群が溶液中で特定の糖分子や極性分子固定化する、言い換えるとカリックスアレーンは特定の糖分子や極性分子と一定の化学量論比で多点水素結合を介する錯体を形成する事をヒントとして、この系から溶媒を一切除いた場合の挙動について観察を行った。つまり、カリックスアレーンと糖分子や極性分子を固体状態とする混ぜた場合の錯体形成の効率を溶液中と比較したところ、固体状態とする混ぜた場合のほうが遙かに効率よく錯体形成する事が判明した。さらに、糖や極性分子が光学活性である場合、その絶対配置が糖や極性分子からカリックスアレ

²⁵ Y.Tanaka et al., Angew.Chem.Int. Ed, 34 ,p.693-694, (1995)

²⁶ Y.Aoyama et al., J.Phys.Chem., J. Am Chem. Soc., 111 ,p.5397-5404, (1989)

ーンに分子間転写し、カリックスアレーンの吸収領域の円二色性を測定する事で、錯体を作っている糖や極性分子の絶対配置が決定できる事が分かった^{27,28,29}.

- 2) カリックスアレーン類に長鎖アルキル基を付与すると両親媒性となり、水中に分散させると「人工細胞」であるベシクルを容易に形成する事が分かった³⁰. 通常の細胞膜は物質を通さない障壁としての働きがあるが、このベシクルはカリックスアレーンが有する直径およそ 2.5 Å の多孔性のベシクルである事も判明した.

分子メモリーを目的として、カリックスアレーン類同様一段階で合成できる分子であるジアザペンタフェン類を合成した. この分子は右ねじれ体と左ねじれ体の一对のエナンチオマーとして存在する事から、外部刺激例えば偏光照射により右ねじれと左ねじれを制御する事で、分子メモリーとしての応用の可能性を示した³¹.

【さきがけ期間後の状況・成果】

カリックスアレーン類に関しては光学活性カリックスアレーンの合成を行った. 不斉選択的な物質の捕捉や特に光学活性カリックスアレーン合成の際に、あらかじめ極少量の鏡像体純粋な光学活性カリックスアレーンを添加しておくこと、生成してくる光学活性カリックスアレーンも添加したものと絶対配置が同じであるという「不斉増幅」に研究の中心を置いている.

また、ジアザペンタフェン類でも同様にラセミ体のジアザペンタフェンの結晶に、極少量の鏡像体純粋なジアザペンタフェンを加えて固体状態ですり混ぜると、極少量加えた鏡像体純粋なジアザペンタフェンの絶対配置がラセミ体すべてのジアザペンタフェンに伝搬する「不斉転写」の現象を見いだしている.

両現象とも地球上の生物体を構成する殆どの分子がホモキラルである事の証明につながると考えられ、興味深い現象と考えている.

【当該研究分野の発展状況】

ホモキラルな状態は、生物体出現の観点からも大いに興味を持たれており、化学的に「不斉増幅」や「不斉転写」の研究も題材としている Kagan, Noyori, Soai, Rikken, Ghadiri ら著名な研究者によって精力的に研究されている.

²⁷ Y.Tanaka et al., Chem. Commun, p. 160-161, (2003)

²⁸ Y.Tanaka et al., J.Soc.Powder Tec., Jpn., 42 ,p.390-395, (2005)

²⁹ 田中康隆ら, 日本国特許, 平 11-237375

³⁰ Y.Tanaka et al., Angew.Chem.Int. Ed, 38 ,p.504-506, (1999)

³¹ Y.Tanaka et al., J. Chem. Soc., Perkin Trans. 1, ,p. 2471-2472, (1998)

(16) 長谷川 幸雄 (2期生)

【さきがけ研究課題】

表面を動きまわる電子

ー表面を場とする2次元電子系に関する研究ー

【さきがけ研究期間】

1995年10月～1998年9月

【さきがけ研究の目的・位置づけ】

ある種の表面には表面数原子層に電子が局在し二次元的かつ自由電子的に振る舞う系が存在する。そうした二次元電子系の振る舞いや吸着子・ステップとの相互作用を観察し、それらの知見から電子系を制御することを、低温超高真空走査トンネル顕微鏡 (STM) を主たる手法として行うことを目的とした。

【さきがけ研究前の状況・成果】

研究代表者による表面二次元電子系の電子定在波の観察ののち同種の表面系に関する注目が集まり、例えば、表面二次元電子系を持つ表面上での原子マニピュレーションにより原子柵を作り電子を閉じ込めた Crommie らの研究などが話題を集めていた。

【さきがけ期間中の状況・成果】

正確なトンネル分光測定を可能とする低温超高真空走査トンネル顕微鏡 (STM) 装置の立ち上げを行い、それらを用いて電子系形成に於いて重要な役割を担う仕事関数を局所的にプローブする手法を開発し、仕事関数がステップ近傍において局所的に減少すること (J. F. Jia et al., Phys. Rev. B58 1193 (1998)) や、薄膜形成により変調すること (Y. Hasegawa et al. Surf. Sci., 386, 328 (1997)) などを見出すことができた。

【さきがけ期間後の状況・成果】

さきがけ期間中は、液体ヘリウム4により冷却されたSTMの作成を進めたが、現在は、さらにヘリウム3や希釈冷凍機 (E. Ishikawa et al., e-J. of Surf. Sci. and Nanotech., 2, 151 (2004)) など温度の低い領域で動作するSTMの開発を進めており、それらを用いて、二次元電子系による電子定在波の性質が薄膜形成により改変されること (T. Suzuki et al. Phys. Rev. B64, 081403R (2001)) などを見出している。また、低温での装置の安定性や高精度化を生かして、原子マニピュレーション (M Ono et al. e-J. of Surf. Sci. and Nanotech., 2, 165 (2004)) や、論争のあった Si(001) 表面構造に関する議論に決着をつける観察を行う (M. Ono et al. Phys. Rev. B67, 201306R (2003)) などの結果を出している。

一方、局所仕事関数に関する研究に関しては、原子間力顕微鏡 (AFM) を用いたケルビ

ンプローブ法のほうが相対値しか得られないものの精度が高いとの認識から、超高真空 AFM の開発に取り組み、単一共有結合検出による高分解能化(T. Eguchi and Y. Hasegawa, Phys. Rev. Lett., **89**, 266105 (2002))や、ケルビン法による原子間の電荷移動による静電ポテンシャルの変化を捕らえる(T. Eguchi et al. Phys. Rev. Lett., **93**, 266102 (2004))などの結果を出している。

【当該研究分野の発展状況】

表面二次元電子系の研究は現在もなお盛んに行われており、例としては、ステップ等による閉じ込め準、電子系を介した表面原子間の相互作用、電子系の寿命、電子系と磁性原子との相互作用である近藤効果の研究などなど、走査プローブ顕微鏡のコミュニティーのみならず表面科学・ナノサイエンスさらには物性物理に対して常に注目を集める話題を提供し続けている。

(17) 宗像 利明 (2期生)

【さきがけ研究課題】

金属表面と分子との化学結合を観る

【さきがけ研究期間】

1995年10月～1998年9月

【さきがけ研究前の状況・成果】

研究開始以前は、装置的にも研究費的にも行き詰まりが厳しい状況であった。手がかりは見えても発展させる手だてがなかった。さきがけは、その状況を大きく転換するきっかけとなった

【さきがけ期間中の状況・成果】

期間中には、装置の導入、改良が主となり、成果は多くなかった。しかし、2光子光電子分光法という手法で表面吸着分子の電子励起状態を観測できることを初めて示すことができた。

【さきがけ期間後の状況・成果】

さきがけで整えた装置を元に、科学技術振興調整費の研究班に加わることができた。これにより、装置が充実した。さらに、これらを背景に、科学技術振興調整費の課題を新たに立ち上げ、レーザーを光源とした顕微光電子分光法の開発を行った。他に例のない高性能な装置を開発することができた。

【当該研究分野の発展状況】

表面吸着分子の非占有電

(18) 石田 昭人 (3期生)

【さきがけ研究課題】

電子とエネルギーの流れで分子の姿を見る
—エネルギー・電子移動超分子イメージング—

【さきがけ研究期間】

1996年10月～1999年9月

【さきがけ研究の目的・位置づけ】

光触媒や光機能性電極の表面において、エネルギー・電子移動反応を単一分子レベルで直接観測することは研究者の夢であったが、回折限界のために数百 nm 以下の領域の情報は得られず、現象の解析は推測の域を出ず、新機能実現のための戦略立案も試行錯誤に頼る以外なかった。そこで、本研究では光近接場相互作用を利用して分子の励起状態と酸化還元状態のイメージングを行うことを目的とした。

【さきがけ研究前の状況・成果】

ラジカルの反応性研究を基礎として、希土類光触媒の開発を行っていた。光近接場については文献調査は十二分に行っていたが、研究実績は皆無であった。また、分光技術に関しては十分な蓄積があったが、顕微分光技術についても経験、実績は皆無であった。

【さきがけ期間中の状況・成果】

他の多くの研究者とは異なり、実績が皆無であったため、研究概念の実証を最優先し、最も実現性の高い課題に絞り込んで研究に着手した。対象としたのは当時脚光を浴びつつあった光近接場の中でもいささか特異な分野であった「表面プラズモン」である。これは、金や銀の表面に局在する一種の光近接場であるが、あえてこれを選んだのは、次世代デバイスにおいては分子-光-金属3者が共存する可能性が最も大きく、プラズモン電場の応用が必ずや主流になると読んだからである。実際、後述するようにプラズモンの科学は「プラズモニクス」として大きな発展を見せることとなった。本研究は、当時全く顧みられなかったプラズモンの光化学領域への応用の初の例となった。対象としたのはポルフィリン自己組織化単分子膜のみである。これも、興味ある展開は色々考えられたものの、概念の実証を第一に考え、さらに、本研究者は単独で研究を行わざるを得ない立場にあったため、研究対象を極力絞り込む戦略をとったからである。

【さきがけ期間後の状況・成果】

所属の変更と建物改築などで約1年半もの空白ができてしまったものの、研究期間の延長をいただいたこともあり、本研究をさらに発展させることができた。研究期間内は不可

能であった生体系の分子を使った研究の展開を図った。特に、研究期間内では平滑表面を用いていたのに対し、光波長サイズの構造体を用いてプラズモン電場を局在させることを応用し、直径 500nmの金の丸穴の中で蛍光免疫分析と遺伝子分析の実証に成功した。³²これは化学・生化学領域への応用の初の例となった。さらに、分析のみならず、光反応による有用物質の合成をめざして、葉緑体チラコイドの固定化とプラズモン励起による酸化還元酵素反応系の駆動にも成功し、マイクロチップ上で光合成反応を行う「ナノリーフ」の概念を実証できた。³³臨床分析への応用においては、 μ TASの検出部分として、金ナノ構造体を応用する研究を展開している。³⁴

【当該研究分野の発展状況】

プラズモンの応用については「プラズモニクス」という新しい概念が打ち立てられ、ナノフォトニクスにおけるトピックスの1つとなっている。そこで、本研究者らはプラズモニクス研究会を設立し、本研究代表者は中心メンバーとして活動している。プラズモニクスは物理、化学、生物の境界領域であるが、化学系の研究者は少なく、今後の発展が期待される分野であるといえる。

³² Surface Plasmon Enhanced Excitation of Photofunctional Molecules in Nanospace towards Molecular Plasmonics, Fujii, A; Ishida, A *Elsevier Nanophotonics Series*, vol 2., 2005, in press.

³³ Surface Plasmon Enhanced Excitation of Photofunctional Molecules in Nanospace towards Molecular Plasmonics, Ishida, A; Fujii, A *Proc. SPIE*, (2005), in press.

³⁴ ナノ・マイクロを複合した μ TASによる抗癌剤のリアルタイムモニタリングシステムの開発プロジェクトが平成17年度経産省地域新生コンソーシアムに採択され、本研究者は検出系のグループリーダーとして活動中

(19) 伊藤 治彦 (3期生)

【さきがけ研究課題】

ナノの光で原子を制御する
ー物質表面における原子と光のダイナミズムー

【さきがけ研究期間】

1996年10月～1999年9月

【さきがけ研究の目的・位置づけ】

物質表面近傍に局在する近接場光と原子との局所選択的相互作用について研究し、高精度原子操作への応用を図る。

【さきがけ研究前の状況・成果】

光との共鳴相互作用を用いて原子の運動を制御する研究が世界的に進み、超低温・超高密度の気体原子集団が生成できるようになった。その応用として原子レーザーや微細加工などが提案された。しかし、後者に関しては光の回折効果によってナノスケール加工が困難な状況にあった。回折限界の克服のためには近接場光が必要であったが、近接場光を用いて原子を制御する研究はほとんど行われていなかった。また、近接場領域での原子との相互作用も理論的に十分に解明されていなかった。

【さきがけ期間中の状況・成果】

近接場光を用いた高精度原子制御・操作法を考案し、数値解析を行うとともにデバイス作製および実証実験を行った。

- 1) 原子の個別操作に向けて；ファイバプローブを用いた単一原子トラップを提案し、理論解析を行った。また、実際に単一原子操作用ファイバプローブを試作し、誘起した近接場光強度分布を計測した。その結果から Rb 原子に対するトラップポテンシャルを評価した。
- 2) 近接場光原子操作用冷却原子源の形成：冷却原子ビームを形成するための近接場光を用いた原子ファネルを考案し、理論解析を行った。さらに近接場光誘起 Sisyphus 冷却の解析を行った。実際に、原子ファネル素子の設計・製作およびファネル実験用超高真空装置の設計・製作を行った。
- 3) ナノファブリケーションに向けて；中空光ファイバ原子誘導路を用いた原子堆積実験用の超高真空装置を設計・製作した。また堆積原子を観察するための超高真空中で動作する AFM 装置を設計・製作した。
- 4) 原子と近接場光との相互作用理論：ポラリトン・エキシトンを介した近接量子理論を考察し、近接場光強度の湯川関数変化を導いた。

【さきがけ期間後の状況・成果】

- 1) 原子の個別制御に向けて：新たに **bow-tie** 型原子トラップを開発し、理論解析および近接場光誘起実験を進めている。FDTD 計算から、3次元トラップの可能性を見いだしている。
- 2) 近接場光ファネル：近接場光を用いた原子ファネルの実証実験を行い、 10^7 atom/cm²s のフラックス強度を有する冷却Rb原子ビームの出力に成功した。現在さらにフラックス強度を高めるために、ファネルのマイクロ化を進めている。
- 3) ナノファブリケーションに向けて：新たに方向制御のための原子偏向器を提案し、SOI基板を加工してスリット型偏向器を作製した。さらに実際にRb原子を用いた実証実験を行い、偏向角を制御した。原子偏向技術をもとに、原子のナノフォーカシングのための近接場光レンズを提案し、その開発を進めている。
- 4) ナノフォトニックデバイス作製に向けて：量子近接場光理論に基づき考案されたナノフォトニックスイッチや量子ゲートの作製のために開発した原子制御技術の応用を進めている。
- 5) 原子機能デバイスの開発に向けて：**Bow-tie** 原子トラップおよびナノファネル（ナノ化した原子ファネル）の集積化によって、原子自身を素子として用いる原子機能デバイスの開発を進めている。

【当該研究分野の発展状況】

近接場光を用いた原子制御・操作技術を基盤として、新しい学際領域であるアトムフォトニクスを展開が見込まれている。ナノ光科学の分野では、ナノ寸法加工からナノ領域での現象発現への飛躍が進められている。特にナノ光デバイスや量子機能デバイスの作製が期待されているが、アトムフォトニクスを用いてそれらを実現する研究が始められつつある。

1ビットの情報処理に関与する原子数が2020年には1個になると見積もられている。2020年問題解決に向けて近接場光を用いた原子の個別制御技術は非常に有用と考えられる。アトムフォトニクスを駆使して、原子自身を素子化して使用する原子機能デバイスを開発し、究極的な情報処理システムへ発展させる。

(20) 井上 将彦 (3期生)

【さきがけ研究課題】

生体分子を人工分子で認識する

【さきがけ研究期間】

1996年10月～1999年9月

【さきがけ研究の目的・位置づけ】

生物は種々の分子の秩序だった集まりであり、生命現象はその機能である。分子の秩序ある集まりは、選択的な分子間での相互作用（分子認識）によってもたらされている。本研究では、最新の計算機化学と有機合成化学を基に、生体分子を認識できる人工分子の開発を検討した。

【さきがけ研究前の状況・成果】

平面性の高い核酸塩基等、相互作用場を構築し易い生体分子を認識することができる人工分子の開発は行われていた。しかしながら、糖質、ヌクレオチドの様な3次元的に複雑な分子を認識する人工分子の開発は遅れていた。

【さきがけ期間中の状況・成果】

(1) 最も複雑な生体分子の一つである糖を、水素結合を主相互作用力として用いて選択的に認識する人工分子の開発に成功した^{1,2}。

(2) 水の中で有機分子を認識することができる分子間相互作用場を構築し、その一般的な合成ルートを確立した³。

(3) ヌクレオチド・オリゴヌクレオチドなどのDNA関連分子を特異的に認識する人工分子を設計・合成し、それを用いたオリゴヌクレチドの分離・精製法の開発へと展開した^{4,5}。

本研究は、従来にない分子間相互作用場の人工的な構築という学問的な興味にとどまらず、生体分子の分離・精製への応用など、実用的な観点からも大きな進展が期待できる。

【さきがけ期間後の状況・成果】

さきがけ期間修了後、上記(1)～(3)の研究をさらに発展させた⁶⁻¹¹。その後2000年12月に、富山医科薬科大学薬学部の教授に転出した。異動はその研究者に必然的に新しい環境を提供する。研究方向の大幅な転向や展開には絶好の機会でもある。本申請者はこの異動を好契機としてとらえ、それまでの小さな人工分子の化学から、生体分子を直接のターゲットとした化学へと研究をシフトした。幸い、2002年10月にJSTの戦略的創造研究推進事業（情報、バイオ、環境とナノテクノロジーの融合による革新的技術の創製、領域総括：潮田資勝）に採択していただき、新しい分野での研究を進める上で十二分

なサポートを現在いただいている。そしてそこではさきがけ研究で養った経験と知識が反影されて、最初から生体分子をターゲットとしていた研究者とは一味違った研究を展開中である。戦略研究では「精密分子認識に基づく人工DNAの創成とナノ材料への応用」を課題として、人工DNAのサイエンスとしての基礎研究と、テクノロジーとしての応用研究を同時並行的に行っている¹²⁻¹⁵。

【当該研究分野の発展状況】

光や電気に応答する人工 DNA を開発し、次世代のテーラー・メイド医療の実現に資する分子材料を提供しようとする研究が、ここ数年で非常に活発になってきている。特に SNPs (一塩基多型) の検出を標的とした人工 DNA の研究は、ポスト・シーケンス時代の重要な課題の一つであり、世界中で研究・開発競争が繰り広げられている。

【参考文献】

- (1) Inouye, M.; Takahashi, K.; Nakazumi, H. *J. Am. Chem. Soc.* **1999**, *121*, 341–345.
- (2) Inouye, M.; Chiba, J.; Nakazumi, H. *J. Org. Chem.* **1999**, *64*, 8170–8176.
- (3) Inouye, M.; Fujimoto, K.; Furusyo, M.; Nakazumi, H. *J. Am. Chem. Soc.* **1999**, *121*, 1452–1458.
- (4) Inouye, M.; Hyodo, Y.; Nakazumi, H. *J. Org. Chem.* **1999**, *64*, 2704–2710.
- (5) Inouye, M.; Itoh, M. S.; Nakazumi, H. *J. Org. Chem.* **1999**, *64*, 9393–9398.
- (6) Inouye, M.; Takase, M. *Angew. Chem. Int. Ed.* **2001**, *40*, 1746–1748.
- (7) Takase, M.; Inouye, M. *Chem. Commun.* **2001**, 2432–2433.
- (8) Takase, M.; Inouye, M. *J. Org. Chem.* **2003**, *68*, 1134–1137.
- (9) Abe, H.; Mawatari, Y.; Teraoka, H.; Fujimoto, K.; Inouye, M. *J. Org. Chem.* **2004**, *69*, 495–504.
- (10) Inouye, M.; Waki, M.; Abe, H. *J. Am. Chem. Soc.* **2004**, *126*, 2022–2027.
- (11) Abe, H.; Masuda, N.; Waki, M.; Inouye, M. *J. Am. Chem. Soc.* **2005**, *127*, 16189–16196.
- (12) Fujimoto, K.; Shimizu, H.; Inouye, M. *J. Org. Chem.* **2004**, *69*, 3271–3275.
- (13) Fujimoto, K.; Muto, Y.; Inouye, M. *Chem. Commun.* **2005**, 4780–4782.
- (14) Inouye, M.; Ikeda, R.; Takase, M.; Tsurii, T.; Chiba, J. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **2005**, *102*, 11606–11610.
- (15) Maeda, H.; Mizuno, K.; Fujimoto, K.; Shimizu, H.; Inouye, M. *Chem. Eur. J.* **2006**, *12*, 824–831.

(21) 植田 千秋 (3期生)

【さきがけ研究課題】

非磁性酸化物結晶の磁場整列能率をさぐる

—反磁性酸化物における磁気異方性の起源と磁場整列特性—

【さきがけ研究期間】

1996年10月～1999年9月

【さきがけ研究の目的・位置づけ】

物質の磁気異方性を高感度で検出するシステムを開発し、これを用いて反磁性磁化率の異方性($\Delta\chi$)_{DIA}を酸化結晶全般にわたって集積する。集積した値に基づいて、($\Delta\chi$)_{DIA}の起源を説明する一般則を確立する。これに基づいて、現存する膨大な種類の非磁性酸化物が磁場配向し得ることを明確にする。

【さきがけ研究前の状況・成果】

微弱な($\Delta\chi$)_{DIA}の検出を目的として、 $\Delta\chi$ の感度向上を図っていた。すなわち既存の測定法では、試料を吊るすファイバーのネジレ復元力を基準として磁氣的トルクを検出するのに対し、ネジレ復元力が無視できる条件での新たな測定法を提唱した。この方法で検出した数個の($\Delta\chi$)_{DIA}値に基づいて、その起源を考察した。すなわち酸化結晶中の個々の結合軌道が一定の反磁性異方性を有すると仮定して、上記の測定値を定性的に説明した。これと平行して液体に分散させた微結晶の磁氣的安定軸が $\Delta\chi$ のために磁場 B にする過程を定量的に解明しようとした。液体中に分散させた結晶(モル数 N)は、磁氣的エネルギー $N\Delta\chi B^2$ が、回転のブラウン運動のエネルギー $k_B T$ を一桁上回った時に達成される。ここから配向に要する磁場強度 B_s は、 $B_s = (15k_B T / N\Delta\chi)^{1/2}$ に従うことを提案した。

【さきがけ期間中の状況・成果】

- 1) 正確な($\Delta\chi$)_{DIA}値を多数集積する目的で、高温域での $\Delta\chi$ - T 測定を実施し高温極限から($\Delta\chi$)_{DIA}を決定する方法を開発した。これにより試料中に含まれる常磁性イオンに起因する異方性($\Delta\chi$)_{PARA}を分離でき、その結果、($\Delta\chi$)_{DIA}検出の感度が 1×10^{-9} emu/gまで向上した。¹⁻³
- 2) 前項の($\Delta\chi$)_{DIA}に関する一般則を、化学結合の種類ごとに個別に再検討することを提案し、測定値の解析の定量性を部分的に高めることに成功した。
- 3) 希薄な宇宙空間におけるダストの磁場配向を検証する目的で、Heガス中に分散させた微結晶を磁場で配向させるシステムを開発した。これを用いて室温での測定を実現した。⁵ 従来の配向実験は、室温の液体中でのみ実施されてきた。

【さきがけ期間後の状況・成果】

- 1) さきがけで開発した手法により、14個の無機物について $(\Delta\chi)_{\text{DIA}}$ 値を決定した。その結果に基づき前項の一般則に関する考察を発展させた結果、3種の基本的な化学結合、すなわち酸素4配位の共有性結合、6配位のイオン性結合および水素結合について結合軌道一本当りの $(\Delta\chi)_{\text{DIA}}$ 値を決定した。 $\Delta\chi$ が未測定が無機物の大多数は、 $1 \times 10^{-9} \text{emu/g}$ 以上の異方性を有することが予想される。^{3,4,8,11}
- 2) 前項で提案した B_s を支配する3つのパラメータ N 、 T および $\Delta\chi$ の効果を実験的に検証することで、配向に必要な十分な磁場強度を明確にした。^{7,9} $\Delta\chi$ については上記 10^{-9}emu/g レベルの $(\Delta\chi)_{\text{DIA}}$ 値をもつ微結晶（直径1ミクロン）、テスラ程度の低磁場で配向することを、コランダム、方解石、ジプサム、水晶、KDPなどの物質について検証した。¹¹ また純粋な反磁性粒子の場合、その B_s は $T^{1/2}$ 、 $N^{1/2}$ に比例して減少することを確認した。
- 3) 結晶が常磁性イオンを含む場合、 $\Delta\chi$ 値は $(\Delta\chi)_{\text{PARA}}$ のために増大する。さらに $(\Delta\chi)_{\text{PARA}}$ がキュリー・ワイス則に従うため、温度低下による B_s 減少の効果は2)の反磁性結晶に比べ格段に大きくなった。^{7,10}（さきがけ期間中には、 $(\Delta\chi)_{\text{PARA}}$ が $(\Delta\chi)_{\text{DIA}}$ 検出の障害となっていたが、自然界あるいは実用面において低磁場での整列を検討する場合には、逆に有効な要素となる）。
- 4) さきがけ期間中に開発した、Heガス中で粒子配向を測定する装置を利用して、 $T \sim 80 \text{ K}$ での配向を実現した。^{5,6} これにより2)、3)における B_s の温度依存性が検証できた。
- 5) 無機物の $(\Delta\chi)_{\text{DIA}}$ には 10^{-10}mu/g レベルのものが数多く存在し、さきがけで開発した手法では感度が足りない。このため、微小重力を用いて試料を浮遊させることにより、上記のネジレ復元力を完全に排除して高感度を達成する。この測定原理を検証する予備実験を実施し、¹⁰ さらに感度を 10^{-12}mu/g レベルまで向上させるシステムを開発中である。

以上、さきがけ研究およびその後の研究の結果、大多数の物質の微結晶は超伝導磁石を必要としない実用的な低い磁場強度で、配向することが明確となりつつある。¹¹

【当該研究分野の発展状況】

近年、 $\Delta\chi$ による物質の磁場配向を利用して、新機能を有した物質を創生する試みが盛んになりつつある。例えばこれを主目的のひとつとする特定領域研究「強磁場新機能の開発」が進行中である（筆者は計画研究メンバーとして参加）。こうした物質合成過程を定量的に理解する場合、材料の正確な $(\Delta\chi)_{\text{DIA}}$ の検出、および B_s （あるいはこれに類する定量的基準）を基盤とした解析が重要になると考えられる。⁹

-
1. Diamagnetic Anisotropy of Silicates Composed of Tetrahedral Networks (2000)C.Uyeda et al.JPSJ.,**69**, 1019.
 - 2.Diamagnetic Anisotropy of Simple Inorganic Oxides Composed of Octahedral Networks Detected

- by Field-Induced Harmonic Oscillation in the High-Temperature Region (2000) C.Uyeda et al. JJAP, **39**, L514.
3. Diamagnetic Anisotropy of Derived form the Hydrogen Bond (2000) C.Uyeda et al, JJAP **39**,L1234-L1237.
 4. Diamagnetic Anisotropy of Derived form the Single Chemical Bonds in the Silicate Tetrahedral Net works
(2000) C.Uyeda, K.Ohtawa, K.Okita and N.Uyeda, JPSJ,**70** 889-892.
 5. Magneto-Rotation Experiment of Diamagnetic Single-Crystals Suspended in the Gas Medium for Examining Dust Alignment in Interstellar Region. (2001) C.Uyeda et al, JPSJ .,**70** 1226-1229.
 6. Magneto-Rotation Experiment of Diamagnetic Single-Crystals Suspended in the Gas Medium for Examining Dust Alignment in Interstellar Region. (2003) C.Uyeda et al, Astron. Astrophys. **400** 805-810.
 7. Temperature Dependences Observed for Magneto-Rotation Process of Micron-Sized Kaolinite (2003) C.Uyeda and M.Sakakibara, Phys. Chem. Minerals, **30**, 425-429.
 8. Diamagnetic Anisotropy of Derived form the Single Chemical Bonds (2003) C.Uyeda. JPSJ, **72** 2334-2337.
 9. Magnetic Alignment of Non-ferromagnetic Particles Caused by Paramagnetic and Diamagnetic Anisotropy Achieved at Low Field Intensity Due to Reduction of Temperature(2004) C.Uyeda et al JJAP **42**, 980-984.
 10. Stabilization of the Position of a Solid Body isolated in Micro-Gravity and Field Induced Rotational Oscillation Caused by Diamagnetic Anisotropy C.Uyeda et al, JJAP , **42**,(2003) L1236-1228.
 11. Magneto-Rotation of Nonmagnetic Micro-crystals Caused by Diamagnetic Anisotropy, C.Uyeda, K.Tanaka and R.Takashima, Applied Physics Letters, 86 (2005) 094103

(22) 小森 和弘 (3期生)

【さきがけ研究課題】

フェムトの時間域で電子を操作する

【さきがけ研究期間】

1996年10月～1999年9月

【さきがけ研究の目的・位置づけ】

本研究は、ピコ秒以下の時間域で動作可能な超高速光・電子素子の実現に向けて、新しい動作原理として半導体中でのコヒーレント現象の制御（コヒーレントキャリア制御）を取り上げ、その為の素子の構成法および制御法についての提案を行なった。

具体的には、半導体ナノ構造を用いて人工的な電子系を形成し、光位相が制御された超短光パルス列を用いて各準位への励起制御を行うことによる励起電子の重ね合わせ状態の人工操作法の提案を行った。

【さきがけ期間中の状況・成果】

1) 半導体結合ナノ構造の作製法を開発し、コヒーレント現象の制御に利用可能な人工的な多準位電子系の形成技術を確立した。

2) 光パルスシンセサイジング法を用いた位相同期パルス列の形成法を開発し、位相誤差が小さく安定した位相同期パルス列の形成が可能になった。

3) 位相同期超短光パルス列を制御光として用いることによって、半導体結合量子構造中のコヒーレントキャリア（励起子）のフェムト秒時間域での人工操作の初期実験に成功した。

【さきがけ期間後の状況・成果】

(1) さきがけ延長研究：『フェムトの時間域で電子を操作する』

(2) CRESTプロジェクト：『光量子位相制御・演算技術』2001年度～2006年度

【当該研究分野の発展状況】

フェムト秒領域での量子ナノ構造中の電子状態の制御は、テラヘルツ電磁波発生素子研究、量子情報用の光制御型量子ゲート素子へ応用され、サブピコ秒クラスの全光スイッチ研究、単一フォトンエミッターへの応用も検討されていて、幅広い分野で研究が進展している。特にテラヘルツ電磁波発生素子への応用に関しては、半導体を光励起した際の非線形過程を利用したテラヘルツ電磁波パルス光源とそれを利用したテラヘルツイメージングシステムの研究に発展している。

(23) 高桑 雄二 (3期生)

【さきがけ研究課題】

ダイヤモンドを光でつくる

—負性電子親和力を用いたダイヤモンド気相成長の自己励起素過程—

【さきがけ研究期間】

1996年10月～1999年9月

【さきがけ研究の目的・位置づけ】

ダイヤモンドは地上で最高の硬度や熱伝導などのバルク特性に加え、負性電子親和力や生体親和性などの優れた表面特性をもつため、切削工具だけでなく電子源やDNAチップなどとして広範な分野での産業・民生利用が期待されている。しかし、これらの重要に対応できるダイヤモンド薄膜の量産プロセス技術が現在までのところ実現されていないので、さきがけ研究ではダイヤモンド気相合成プロセスの技術革新を目的として、ダイヤモンド成長機構の解明と、それに基づいた気相合成プロセスの原理の提案と実証を進めた。

【さきがけ研究前の状況・成果】

- (1) ダイヤモンド表面での水素吸着・脱離過程の実験的研究を行い、表面吸着水素の挙動を調べた。
- (2) SiH_4 , Si_2H_6 , SiH_2Cl_2 を用いたSi気相合成における気相成長機構、とりわけ、律速反応と励起過程、さらには、積層欠陥や回転位などの結晶欠陥の発生機構の研究を行った³⁵。
- (3) エピタキシャル成長・エッチング・酸化などのプロセス中に表面反応過程を「その場」観察できる手法を開発し、表面に吸着した水素・塩素・酸素の挙動と役割について研究を行った³⁶。

【さきがけ期間中の状況・成果】

ダイヤモンド成長機構の解明では吸着水素の挙動と役割に着目して理論・実験の研究を進め、その成果に基づいて、ダイヤモンド表面の負性電子親和力による電子放出(場)に着目したプラズマ生成と、それを用いたダイヤモンド気相合成プロセス(反応)の原理を提案し、実証実験を進めた。

- (1) ダイヤモンド気相合成中に表面状態を「その場」観察できる複合表面解析装置を開発し、表面組成・表面構造・表面電子状態・構造欠陥を一緒に調べることを可能とした³⁷。
- (2) ガスソース分子線エピタキシー法を用いたダイヤモンド気相成長の研究から、表面吸着

³⁵ Y. Takakuwa et al., J. Electrochem. Soc. **141** (1994) 2567-2572.

³⁶ 高桑雄二他, 日本物理学会誌 **53** (1998) 758-766.

³⁷ 高桑雄二他, 東北大学科学計測研究所報告 **46** (1997) 21-48.

水素の脱離が律速反応であること、つまり、900-1200°Cの高温でもダイヤモンド成長表面は殆ど水素終端されていること、そして、水素原子照射による水素引き抜き反応が成長促進に効果的なことを見いだした³⁸。

(3) ダイヤモンド表面での吸着水素の微視的挙動を解明するために、第一原理計算による吸着水素の熱脱離、水素原子による引き抜き反応、サブサーフェスでの拡散、電子状態などの研究を行った³⁹。

(4) 水素雰囲気下の高温ダイヤモンド表面の電子状態を「その場」観察することに成功し、800-900°Cの高温でも負性電子親和力が持続し、多量の二次電子放出が可能なことを明らかにした。

(5) 高圧合成ダイヤモンド基板を用いて、ダイヤモンド表面の近傍のみ(数 mm)にプラズマを発生できることを見いだした。これは直流放電プラズマ生成において陰極表面からの二次電子放出効率が高いことに起因するもので、ダイヤモンド表面の水素終端による負性電子親和力が不可欠であること示した。さらに、この表面局所プラズマを用いてエッチングだけでなく、成膜も可能なことを見いだした。

【さきがけ期間後の状況・成果】

(1) 高温ダイヤモンド表面からの電子放出の基礎過程の研究を行い、ダイヤモンド表面からの二次電子放出効率が負性電子親和力だけでなく、バンドベンディングにも強く依存し、表面終端水素だけでなく、サブサーフェスの水素も重要な働きをしていることを明らかにした。今後、ダイヤモンド表面での水素について、吸着・脱離の挙動だけでなく、不純物純などの電子状態も調べることも必要である⁴⁰。

(2) さきがけ研究で出願した特許(特開 2000-103695)が多くの論争を経て、最近登録された(特許第 3642385:平成 17年 2月 4日)。これはダイヤモンド光合成の基本特許となるものであるが、実用プロセスを開発するために必要とされる技術について特許出願をした(特開 2004-47610)。

(3) さきがけ研究で提案した「ダイヤモンド薄膜の光合成技術」の量産化プロセスを開発するために、日立造船(株)、月島機械(株)、東邦化研(株)、(有)機能材料科学研究所と共同研究を行った。とりわけ、東邦化研(株)との共同提案が、JST⁴¹と経済産業省・関東経済産業局⁴²に課題採択され、3インチ基板についての大面積ダイヤモンド薄膜の成膜プロセスの開発を行った。また、東葛テクノプラザ・千葉県企業局(柏)の研究開発支援も受けている。

(4) さきがけ研究で開発した光電子分光技術を基に、CREST⁴³の「新しい光電子分光装置

³⁸ 西森年彦他, 日本物理学会誌 **52** (1997) 591-598.

³⁹ C. Kanai et al., Jpn. J. Appl. Phys. **38** (1999) L783-L785.

⁴⁰ C. Kanai et al., Jpn. J. Appl. Phys. **42** (2003) 3510-3513.

⁴¹ JST研究成果最適移転事業・成果育成プログラムB(独創モデル化)「大面積ダイヤモンド薄膜の光合成技術の開発」(東邦化研/東北大学)(2003年度)

⁴² 経済産業省・中小企業・ベンチャー挑戦支援事業のうち実用化研究開発事業「光合成技術を用いた大面積基板上へのダイヤモンド薄膜の合成」(東邦化研/東北大学)(2004年度)

⁴³ JST戦略的創造研究推進事業(CREST)「バルク敏感スピン分解超高分解能光電子分光装置の開発」(研究者代表:東北大学教授 高橋隆)(2005-2009)

の開発」に共同研究者として参加することになった。

【当該研究分野の発展状況】

ダイヤモンドはフラーレンやナノチューブも含めた次世代炭素材料は、NEDOの「フロンティアカーボン・テクノロジー」としての国家プロジェクトが推進されただけでなく、現在も「極限ダイヤモンド・デバイス」として進められている。多くの大学や企業でもダイヤモンド研究が進められているが、日本の中心的な研究施設として、産業技術総合研究所にナノカーボン研究センターとダイヤモンド研究センターが設置された。海外でも欧米を始め、韓国・中国で盛んに研究が進められている。このようにダイヤモンドは基礎物性から応用まで広範囲な研究が展開され、次世代の産業・民生材料としての期待は極めて大きい。その中でネックとなっているのは大面積ダイヤモンド薄膜の量産プロセス技術の開発であるため、ダイヤモンド気相成長機構の解明と量産プロセスの開発は今後も熱心に展開されると考えられる。

(24) 田和 圭子 (3期生)

【さきがけ研究課題】

偏光で機能する高分子を偏光分光法で観る
—高分子中での光応答性分子の分光学的研究—

【さきがけ研究期間】

1996年10月～1999年9月

【さきがけ研究の目的・位置づけ】

アゾ系色素のような光応答性分子を分散させた高分子膜に偏光照射を行うと、過渡的な光学的異方性が生じる。この異方性を利用したリアルタイムホログラフィーなどへの応用研究は1980年代から始められた。アゾ系色素の偏光誘起異方性は直線偏光照射による選択的な光異性化によって引き起こされることは明らかであるが、偏光誘起異方性の大きさや応答時間の支配因子については十分には分かっていなかった。本研究ではin-situ偏光分光法を用いて光応答性分子の配向因子を求める方法を開発し、その配向挙動を明らかにすることを目指した。

【さきがけ研究前の状況・成果】

通商産業省工業技術院大阪工業技術研究所に採用後、新しい研究テーマとしてアゾ系色素含有高分子における偏光誘起異方性の研究に取り組んだ。さきがけ研究として採択されるまでの1年半は、予備的な実験や実験アイデアをだす期間であったため、本テーマにかかる成果はこの期間にはなかった。

【さきがけ期間中の状況・成果】

さきがけ研究のプロジェクトにより、新しい装置(安定性が高く、偏光照射下でのin-situ測定可能なFT-IR等)を購入することができ、これらによって実験データを蓄積することができた。また、偏光照射下でのin-situ偏光FTIR測定によって、アゾ系色素の配向因子を求める評価手法の開発を行った⁴⁴。この因子を求めることで、高分子中におけるアゾ系色素分子のtrans体、cis体、それぞれの分子配向を議論することが可能となった。具体的には、アゾ系色素分散型高分子薄膜中⁴⁵において、

1) 高分子マトリクスに依存した異性化過程が明らかとなった。Push-pull型のアゾ

⁴⁴ (a) K. Tawa, K. Kamada, T. Sakaguchi, K. Ohta, *Applied Spectroscopy*, **52**, 1536-1540 (1998). (b) K. Tawa, K. Kamada, T. Sakaguchi, K. Ohta, *AIP Conference Proceedings*, **430**, 535-538 (1998).

⁴⁵ (a) K. Tawa, K. Kamada, T. Sakaguchi, K. Ohta, *MRS Symposium Proceedings*, **488**, 885-890 (1998). (b) K. Tawa, K. Kamada, T. Sakaguchi, K. Ohta, *Macromolecular Symposia*, **137**, 147-154 (1999). (c) K. Tawa, K. Kamada, T. Sakaguchi, K. Ohta, *Polymer*, **41**, 3235-3242 (2000). (d) K. Tawa, K. Kamada, K. Ohta, *J. Photochem. Photobiol. A: Chemistry*, **134**, 185-191 (2000). (e) K. Tawa, K. Kamada, K. Ohta, *Fourier Transform Spectroscopy, Proceedings of 12th International Conference*, 167-170 (2000).

系色素の異性化過程は高分子のもつ極性基によって大きく影響を受けることがわかった。

2) 高分子マトリクスに依存した異方性が発現することが明らかとなった。

Push-pull 型のアゾ系色素の異方性の大きさは trans 体・cis 体どちらにおいても、高分子の自由体積の大きさに依存することがわかった。また色素分子のどの部分が動きやすいかについては、高分子マトリクスの極性基の影響（静電的相互作用）が大きいこともわかった。

【さきがけ期間後の状況・成果】

さきがけ期間終了後に高分子側鎖にアゾ色素が修飾されたポリスチレンおよびポリウレタンの系で偏光誘起異方性についての実験を進め、その結果、分散系よりも大きな異方性が観測された。ここでは主鎖は殆ど配向しないことも示され、アゾベンゼン側鎖だけが配向していることも明らかとなった。これらの結果は、*Macromolecules*をはじめとする雑誌^{46,47}に発表された。また、2000年12月よりおよそ1年半の間、ドイツ・マックスプランク高分子研究所のKnoll教授のもとに留学したが、その際、側鎖型ポリスチレンの超薄膜（膜厚およそ100nm）における偏光誘起異方性を表面プラズモン分光（SPR）および導波路分光を用いて3次元で解析することにも成功した。その結果、膜平面に対し垂直な方向にアゾ分子がより並ぶことが明らかになり、この結果も*Macromolecules*⁴⁸に発表することができた。また、アゾ色素を含むLB膜の光スイッチング挙動と構造との関係に関しても、SPRと導波路分光を用いて3次元解析を行うことができた⁴⁹。これらの一連の高分子薄膜における偏光誘起異方性については、高分子学会の雑誌「高分子論文集」における特集号（ニューウェーブ）でレビュー⁵⁰を書くことも依頼された。

その後（2002年以降）は超薄膜を高感度に観測することのできる表面プラズモン分光・表面プラズモン蛍光分光を利用した測定手法を利用して、DNAチップ（DNAハイブリダイゼーションにおける速度論やミスマッチ検出）⁵¹、薄膜における超分子形成（ロタキサン超薄膜）⁵²、固液界面における脂質二分子膜の形成過程の評価⁵³など、ナノオーダーの超薄膜の構造とダイナミクスについての研究を進め、それぞれの結果を学術雑誌に発表している。

【当該研究分野の発展状況】

高分子における偏光誘起異方性については、現在も日本では関隆弘教授(名古屋大学)、池

⁴⁶ K. Tawa, K. Kamada, K. Kiyohara, K. Koji, D. Yasumatsu, Z. Sekkat, S. Kawata, *Macromolecules*, **34**, 8232-8238 (2001).

⁴⁷ K. Tawa, N. Zettsu, K. Minematsu, K. Ohta, S. Namba, Q. Tran-Cong, *J. Photochem. Photobiol. A: Chemistry*, **143**, 31-38 (2001).

⁴⁸ K. Tawa and W. Knoll, *Macromolecules*, **35**, 7018-7023 (2002).

⁴⁹ Y. Zong, K. Tawa, B. Menges, J. Rühle, W. Knoll, *Langmuir*, **21**, 7036-7043 (2005).

⁵⁰ 田和圭子, *高分子論文集 特集号「高分子科学・工学のニューウェーブ」*, **59**(8), 499-509 (2002).

⁵¹ (a) K. Tawa and W. Knoll, *Nucleic Acids Research*, **32**, 2372-2377 (2004). (b) K. Tawa, D. Yao, W. Knoll *Biosensors and Bioelectronics*, **21**, 322-329 (2005).

⁵² K. Tawa, N. Kuboyama, A. A.-M. Saleh, M. Tanaka, *MRS-J proceedings*, **30**, (2005) in press.

⁵³ K. Tawa and K. Morigaki, *Biophysical J.*, in press.

田富樹教授(東工大)、川月教授(兵庫県立大学)らのもとで進められている。海外でも J.A.Delaire, J. Stumpe, P. Rochon, L. Nikolava, L.M.Blinov らによって液晶系や高分子側鎖系など様々な状態のマトリクスで、非線形光学効果についての研究も含め、幅広く研究が展開されている。

(25) 中迫 雅由 (3期生)

【さきがけ研究課題】

蛋白質と水の界面構造を観る
—低温結晶解析で探る蛋白質の水和と物性—

【さきがけ研究期間】

1996年10月～1999年9月

【さきがけ研究の目的・位置づけ】

生物の生理現象の元となる様々な化学素反応を担う蛋白質は、水環境下で立体構造形成され、その機能を発現している。蛋白質の構造形成や生理反応の場を提供している水が、蛋白質にいったいどのような影響を及ぼしているのかといった点について、極低温下での結晶構造解析技術を開発・展開し、生理的、蛋白質物性的に興味ある蛋白質の低温結晶構造解析を行いながら、蛋白質分子を取り巻く水分子と蛋白質の相互作用形態の解明や、水和水の蛋白質ダイナミクスへの影響解明を目指した。

【さきがけ研究前の状況・成果】

極低温下での結晶構造解析技術を開発して実験を行った結果、蛋白質の水和水検出に低温結晶解析が大きな威力を発揮することを見出していた。

【さきがけ期間中の状況・成果】

(1) 極低温下での結晶構造解析技術を開発・展開した。

(2) 生理的、蛋白質物性的に興味ある蛋白質の低温結晶構造解析を行った。代表的なものとして、イネいもち病菌のシタロン脱水酵素、細菌ロドコッカスの光応答性ニトリルヒドラーゼ、超高度好熱細菌のグルタミン酸脱水酵素、ウサギ筋小胞体のカルシウムポンプ、マウス抗体F_vフラグメントなどがあげられる。これらの中でもカルシウムポンプの立体構造解析は、大型陽イオン輸送蛋白質の立体構造解析の最初の例である。グルタミン酸脱水酵素の解析では、同酵素が基質を捕捉するために行う運動を6つのスナップショットとして捉えることができた。また、ニトリルヒドラーゼでは、これまでの錯体化学の常識を越えた、光と一酸化窒素分子によってオンオフされる鉄含有活性中心の立体構造を解き明かすことに成功した。

(3) 蛋白質分子を取り巻く水分子と蛋白質の相互作用形態を解析した。高分解能で低温構造解析された蛋白質では、蛋白質周辺に非常に沢山の水和水を検出することができた。水和構造解析プログラムシステムを開発し解析を行った。水和水と蛋白質表面の極性原子団が水素結合を介してクラスターを形成し、それらクラスターは更に巨大なネットワーク

構造を作っていた。これらの解析を通じて、結晶中でも溶液中でも、蛋白質分子を一層覆う水分子が、バルク水とは異なる物性を有して、常に蛋白質表面に存在することを示すことができた。

【さきがけ期間後の状況・成果】

さきがけ研究において、低温解析が蛋白質の水和構造解析に重要な寄与を示すことができた。現在でも、蛋白質水和構造の解析を継続して実施しており、最近では、分子動力学計算と結晶解析の相補的利用も行っている。これまでに得られた水和構造を分類整理して水和構造のデータベースを作成し、あらゆる蛋白質の水和構造予測を試みている。

一連の研究発表について、2003年12月に英国王立協会において、招待講演を行った。また、規模の大きな国際会議のシンポジウムにも招待されている。

【当該研究分野の発展状況】

蛋白質の水和について興味を持っている研究者は多いが、具体的な研究展開を行っている研究者は少ない。今後の構造生物学の進展を考慮すれば、より蛋白質の構造・機能相関研究には物理化学分野の解析が不可欠になると考えられ、将来的に大きな発展が期待される。

(26) 水谷 五郎 (3期生)

【さきがけ研究課題】

光の倍音で見る世界

— SHG 顕微鏡で見る表面界面 —

【さきがけ研究期間】

1996年10月～1999年9月

【さきがけ研究の目的・位置づけ】

光と物質およびその表面が非線形に相互作用する現象はその存在こそ既知であったが、この現象を通じて物質の新たな性質を明らかにすることができることが予想されたにもかかわらず、観察への応用はなされていなかった。本研究では、表面の光第二高調波を観察する顕微鏡 (SH 顕微鏡) 法の表面科学への応用を考え、超高真空中で動作し二次元の像を観察できる装置を開発することにあつた。また次にこの顕微鏡を用いて、触媒反応表面、金属や半導体の微細構造、生物体の観察を行い、この方法の有効性を示すことを目的におき、「SH 顕微鏡で見えている物理現象は何か」ということを明らかにすることを念頭においた。

【さきがけ研究前の状況・成果】

走査型の SH 顕微鏡、すなわち励起光をレンズで試料上の一点に集光し、移動ステージで試料を走査しながら SH 像を得る顕微鏡はすでに完成し、様々な試料について測定を開始しつつあつた。

【さきがけ期間中の状況・成果】

1) SH 顕微鏡の3つのプロトタイプ構築

SH 顕微鏡としては3つのプロトタイプを構築した。1つめはさきがけ研究前から用いていたもので、励起光をレンズで試料上の一点に集光し、移動ステージで試料を走査しながら SH 像を得る顕微鏡 (Type I) であり、さきがけ研究でその性能を向上させた。2つめは通常型の光学顕微鏡を光学系に用いるものであり (Type II)、生物体などの繊細な試料の観察に用いた。3つめはカセグレン型の天体望遠鏡様の長距離顕微鏡を光学系に用いるもの (Type III) であり、主に超高真空中の試料の観察に用いた。Type III を開発中に、真空中使用のレンズカップリングアセンブリーを開発し特許を取得したが、結果的に、市販の長距離顕微鏡の方が有益で、以後の使用はしなかった。

2) 超高真空中における Pt(110) 面上の触媒反応の観察

Type III の光学系と、本さきがけ研究で開発した専用の超高真空槽を用いて、超高真空 SH 顕微鏡を構築した。空間分解能は約 $6 \mu\text{m}$ であつた。そして、表面反応として空間パタ

ーンが観察されることで有名なPt(110)上のCOの酸化過程について、SH像の観察を行った。超高真空中で二次元のSH像が観察されたのは世界で初めてであった。反応にともない、Pt(110)面上に局所的にSH発生が強い領域が現れ、触媒反応によるCOの局所的吸着が観察されたと結論づけた⁵⁴。

3) SH顕微鏡による種々の無機材料の観察

紙面の関係で詳述できないが、Pt(110)上のCO以外にも種々の無機材料の観察を行った。数十nm程度の厚さの金属多層膜の系では、異種金属間の接触電位差が像として見えることがわかった⁵⁵。銀の回折格子の像においては、溝の底からSH光が強く発生していることがわかり、通例言われていた避雷針効果によって、溝の頂点に於いて入射光の電場が強くなる、という描像に再考の余地があることを示した⁵⁶。また、GaAs(110)のへき開面においては、マイクロなスラブ構造がSH像として強調して見えることがわかった⁵⁷。

4) SH顕微鏡による植物の観察

本研究では世界で初めて、植物のSH像を観察した⁵⁸。その結果植物中においてSH光を強く発生するのはでんぷん粒子であることがわかった。従って、SH顕微鏡はでんぷんを選択的に観察する装置となることがわかった。元来、でんぷんの基本単位であるグルコピラノースは、光学活性分子なのでSHGを発するが、同じグルコピラノースを基本単位とするセルロースがあまり強いSH光をださず、でんぷんのみが見える理由は、でんぷんの内部構造におけるグルコピラノースの配列が結晶のように規則的で、非線形単結晶のように機能しているのではないか、ということをも提案した⁵⁹。

【さきがけ研究終了後の状況・成果】

1) 世界で二例目となる超高真空中におけるSH像の観察

われわれは、水素終端したSi(111)面において、紫外光により水素が脱離した領域の像を観察した。これが、超高真空中におけるSH像の観察としては、世界で二例目となった。脱離像の紫外光強度の依存性より、観察されている脱離現象が光誘起熱脱離であることがわかった。

2) 光和周波(SF)顕微鏡への発展

領域会議における吉森領域代表のアドバイスにより、SH顕微鏡を光和周波(SF)顕微鏡へ

⁵⁴ Y. Sonoda, G. Mizutani, H. Sano, S. Ushioda, T. Sekiya, and S. Kurita, Jpn. J. Appl. Phys. 39(3), L253-L255 (2000)

⁵⁵ H. Tanaka et al, Progress in Crystal Growth & Characterization of Materials 33, 129-132 (1996)

⁵⁶ H. Sano, M. Kume, and H. Nakagawa, and G. Mizutani, J. Appl. Phys. 91(7), 4229-4232(2002).

⁵⁷ H. Sano et al, Journal of Applied Physics 87(4), 1614-1619 (2000).

⁵⁸ G. Mizutani et al, J. Lumin. 87-89, 824-826 (2000).

⁵⁹ G. Mizutani and H. Sano, in "Science, Technology and Education of Microscopy, an Overview" (Microscopy Series No.1 Vol.2) ed. A. Mendez-Vilas (FORMATEX, Badajoz, Spain, 2003) pp.499-504.

発展させた。まず、赤外光源の整備、光和周波の一点測定、空気中の S F 像の測定、そして超高真空中での S F 像の測定まで開発は進んでいる。空気中の S F 像の測定では、種々の糖類の S H 像中での識別のデモンストレーションに成功した⁶⁰。

【当該研究分野の発展状況】

理由は必ずしも明らかではないが、本研究で扱っている非線形光学顕微鏡はあまり普及せず、S H・S F 顕微鏡とも超高真空の研究例が未だ非常に少ない。S F 顕微鏡による観察も、物質識別を試みたものはわれわれによるものが 2 例目と、なかなか発展がみられないのが現状である。

⁶⁰ G. Mizutani et al, *Spectrochimica Acta Part A* (in press).

(27) Oliver B. Wright (3期生)

【さきがけ研究課題】

光励起によるナノ・スケール超音波表面振動のマッピング
—原子スケール振動リアルタイムマッピング—

【さきがけ研究期間】

1996年10月～1999年9月

【さきがけ研究の目的・位置づけ】

The aim of this project is to investigate new methods for imaging involving acoustic excitation with a lateral resolution approaching ~ 1 nm or less at such high frequencies. The ultimate goal is to image 100 GHz-10 THz coherent vibrations at surfaces with atomic lateral resolution.

Two different approaches have been adopted:

(i) Real time imaging of longitudinal waves and surface waves in thin metal films: Longitudinal acoustic pulses in the 5-500 GHz frequency range, and surface acoustic waves in the 100 MHz-1 GHz frequency range are generated and detected in sub-micron-thickness films with tightly focused beams from an ultrashort pulse laser. The aim of this research is to image these waves in real time with micron lateral spatial resolution and to probe the ultrashort timescale dynamics of electrons in metals.

(ii) Optical Heterodyne Force Microscopy (OHFM): this relies on the use of a modified atomic force microscope in which the cantilever base is vibrated at a MHz acoustic frequency at the same time as light chopped at a nearby frequency is focused on the sample. Detection of the cantilever vibration at the difference between the ultrasonic and optical chopping frequencies allows the thermal expansion of the sample to be locally imaged using this near-field acoustic technique.

【さきがけ研究前の状況・成果】

The imaging of ultrasonic vibrations at solid surfaces is a topic of great interest because with 'acoustic eyes' one can image subsurface structures and probe anisotropies invisible to conventional optical microscopes. Although many techniques in the kilohertz range such as medical ultrasonic imaging are in widespread use, there exist many unexploited applications in imaging involving acoustic techniques at higher frequencies from the megahertz range up to the gigahertz range and above.

【さきがけ期間中の状況・成果】

(i) Real time imaging of longitudinal waves and surface waves in thin metal films:

A modified Sagnac interferometer was developed to probe ultrasonic waves, making use of a simple common path design, allowing both the amplitude and phase variations of the reflected optical beam from the sample to be monitored. Implementing a two-colour pump and probe technique allows the use of a single microscope objective to focus optical excitation and detection beams to a ~ 1 μm spot size on the sample, giving a comparable μm -order lateral resolution. Bulk longitudinal coherent acoustic phonon pulse generation and propagation normal to the surface was investigated in the time domain. Measurements on gold films allow acoustic echoes to be resolved, arising mainly from the picosecond timescale motion of the surface of the gold film at frequencies ~ 5 GHz. The echo shape could be quantitatively and analytically

understood on the basis of an analytical model of the electron-phonon dynamics of the phonon generation in the film, and a value of the electron-phonon coupling constant derived.

In addition, a second type of experiment was performed, in which the sample is pumped and probed from *opposite* sides. By scanning the position of the pump beam the lateral propagation of surface acoustic waves were visualized in real time. These measurements were applied to a polycrystalline film of gold on a silica substrate. Circular surface displacement ripples due to excitation by the periodic train of pump pulses are observed, travelling radially outwards. These pseudo-Rayleigh surface waves have an acoustic frequency is in the ~ 300 MHz to 1 GHz regime. The sound velocity of the surface waves was measured, and the value agreed closely with that expected from the group velocity of the waves calculated from the dispersion relation. Recent results have also been obtained with gold films on anisotropic crystalline LiF and TeO₂ substrates, showing elliptical surface acoustic wave patterns.

(ii) Optical heterodyne force microscopy

OHFM images were taken in parallel with those of a technique called ultrasonic force microscopy (UFM) that does not require optical excitation. UFM is sensitive only to elastic properties, and allows the separation of features of the OHFM images that are caused by differences in thermal properties rather than elastic properties. Images of HOPG were obtained, and a lateral resolution of 10 nm was obtained at 3 MHz chopped optical excitation. The OHFM images show structure not visible in the topography or UFM images. These features are interpreted to arise from subsurface cracks that enhance the thermal expansion and allow the region above the crack to expand more easily. In order to confirm our interpretation, a calibrated patterned thin film sample of silica was prepared on a silicon substrate with a chromium capping layer. This sample unequivocally confirmed that subsurface thermal features can be locally imaged with nanometre lateral resolution from photothermally induced vibrations.

【さきがけ研究終了後の状況・成果】

Since the end of the project I have continued research into surface acoustic wave imaging and into optical heterodyne force microscopy.

(i) Real time imaging of longitudinal waves and surface waves in thin metal films: we have made further progress by modifying the measurement system to allow access to the sample from one side only with a single microscope objective. This has allowed many new measurements to be made, in particular on the real time imaging of surface waves on phononic crystals and on acoustic resonators that support whispering gallery modes. This research has led to several publications and conference papers and at present a paper will shortly be submitted to the journal *Physical Review Letters*. We have also developed a new method for generating and detecting picosecond shear waves, that we recently published in *Physical Review Letters*.

(ii) Optical heterodyne force microscopy: we have extended this research to probe the mechanisms involved in the signal generation in more detail. In particular we have succeeded in imaging the lateral diffusion of thermal waves on the nanoscale using a modified setup in which the optical illumination is incident from the bottom side of a metal film sample on a transparent substrate. A theoretical model is being developed to demonstrate that not only sample vibrations but also tip vibrations must be considered to explain the observed results. Two international conference talks have been made on this subject and journal paper is in preparation.

【当該研究分野の發展狀況】

Other groups have made progress in these fields. A method for imaging surface waves at lower frequencies but with a faster frame rate was proposed by the group of C. Glorieux at the Catholic University of Leuven, Belgium. In addition, stroboscopic SAW imaging by interferometry is now well developed for imaging SAW filters at frequencies up to a few GHz, and the use of synchrotron radiation for imaging SAW at similar frequencies was developed by a group in Israel and successfully applied to observing the interaction of SAW with a single dislocation in a crystal.

Concerning Optical Heterodyne Force Microscopy, related local probe thermal imaging methods are under development in several laboratories around the world, but no-one has succeeded so far in matching our measurements at MHz frequencies and sub-micron thermal diffusion lengths. Using smaller cantilevers we hope that it will be possible to extend our method to higher frequencies and smaller length scales.