

戦略的創造研究推進事業 CREST
研究領域「物質現象の解明と応用に資する新しい
計測・分析基盤技術」
研究課題「プラズモニック走査分析顕微鏡」

研究終了報告書

研究期間 平成18年10月～平成24年3月

研究代表者：河田 聡
(大阪大学大学院工学研究科、教授)

§ 1 研究実施の概要

(1) 実施概要

光学顕微鏡は、低エネルギーの光子を用いるため試料に優しく、大気中・液中での観察が行えるという特徴に加え、物質に対して得られる豊富なスペクトル情報から物質の分析・評価を簡便に行うことができる。一方で、低エネルギーであるということは波長が長いということであり、それ故、光子をサブミクロンよりも小さい領域に閉じ込めることは長い間出来なかった。

本研究は、金属ナノ構造内で励起された電子の集団的振動「プラズモン」を利用した新しいナノスケール光学イメージング技術とその周辺技術の開拓を目的として開始した。金属構造内でプラズモンが励起されると、構造表面近傍に光を伴った「表面プラズモンポラリトン(SPP)」として存在する。すなわち、SPP を介して、光をナノ空間に閉じ込めることができる。この局在光をナノサイズの光源として用い、光と物質の相互作用を金属構造近傍で誘起する。原子間力顕微鏡先端に金属ナノ構造を配置した探針を二次元走査することで、ナノスケールの空間分解能での光イメージング、とくに分子振動情報を与えるラマン分光イメージングを実現することを目指した。

目標を達成するために、装置開発と計測を担当する「A. ナノ顕微分光グループ」を中心として、SPP プローブの設計・加工を担当する「B. SPP デザイングループ」、金属ナノ構造作製を材料側からアプローチする「C. 機能性材料グループ」、計測により得られたスペクトルの解析法の整備を担当する「D. スペクトル解析グループ」の4グループによって構成される研究チームを編成した。

ナノ領域の物質の信号を効率よく得るためには、強い SPP を誘起する必要がある。SPP の強度は、金属ナノ構造の形状とサイズに強く依存する。このため、構造の最適設計と加工法の確立が、本研究の根幹であると位置付け、集中的に検討した。最終的に真空蒸着法の条件を最適化することで、強大な電場増強を高い歩留まりで得られるようになった。

これにより得られた金属ナノ探針を用いて、単層カーボンナノチューブ(SWCNT)の二次元ラマンイメージングを行い、20nm に迫る分解能で鮮明な画像を再現性よく得られるようになった(ナノ顕微分光グループ)。また、AFM マニピュレーションにより意図的に歪みを加えた SWCNT のイメージングから、チューブ上の構造歪みを分子振動数シフトとして検出し、その空間分布をナノ分解能で可視化することに成功した。密度汎関数法を用いた分子振動数計算により、歪みと振動数シフトの関係性を明らかにした(スペクトル解析グループ)。

SPP による光局在効果だけでは、10nm を超える空間分解能が困難であることを見だし、真のナノメートル分解能を目指すべく、新規イメージング法を提案した(ナノ顕微分光グループ)。この方法では、分子に対して力学的に圧力印加して分子の形態や化学結合、配向の変化を誘起し、それをスペクトルの摂動として計測する。スペクトルピークの生成・シフトを計測することにより、圧力印加領域の中に存在する分子を選択的に抽出し分光学的に分析する。カーボンナノチューブのイメージングに於いて、4nm の空間分解能を達成するに至った。

さらに、細胞イメージングへの応用を目指し、生細胞の内部を三次元イメージングする手法の開発にも取り組んだ。金属ナノ微粒子を細胞内に導入して生物学的機能を利用して細胞内で走査するという全く新しい走査様式を提案し、実際に細胞内のラマンイメージングを実現した(ナノ顕微分光グループ)。

このほか、金属ナノロッドアレイによるナノイメージング法の確立、金属ナノロッド/ポリマーコンポジット材料を用いた新規プラズモニック材料の開発、金属ナノ構造-分子間の化学的相互作用および化学的ラマン増強効果の理解など、今後の SPP を用いた光イメージング技術研究において、必要となるであろう技術基盤の確立や検討すべき諸課題の議論に先駆的に取り組んだ。

(2) 顕著な成果

1. カーボンナノチューブの歪み分布をナノ分解能で可視化することに成功 [論文投稿中]
概要: AFM マニピュレーションにより歪みを加えた単層カーボンナノチューブのラマンイメージングから、チューブ上の構造歪みを分子振動数シフトとして検出し、その空間分布をナノ分解能で可視化することに成功した。

2. 4nm の空間分解能のラマンイメージングを達成 [Yano et al., Nature Photonics, 2009.]

概要: 探針から試料に局所的に圧力を印加することにより構造を歪ませ、それによるスペクトル変化を選択的に抽出してプロットすることで、分解能の向上に成功。SPP だけで得られる分解能の壁を超えて 4nm の分解能を達成した。

3. 生細胞内の3次元 SPP イメージング法を開発 [Ando et al., Nano Lett., 2011.]

概要: 生細胞内に金属ナノ微粒子を導入し、細胞の生物学的機能を利用して細胞内を3次元走査し、ラマン分光像を得ることに成功した。従来技術を遙かにしのぐ、数 10 ミリ秒の時間分解能、数 10nm の位置計測精度を実現した。

§ 2. 研究構想

(1) 当初の研究構想

研究開始時は、金属ナノ構造内で励起した電子の量子的な集団振動「表面プラズモンポラリトン(SPP)」をプローブとして用いる新しいナノスケール顕微分析技術を開拓することを目指した。とくに、単一分子感度と1nmの空間分解能を有する顕微分析法の確立を目標とした。この実現に向けて、4つのグループ(A. ナノ顕微分光グループ、B. SPP デザイングループ、C. 機能性材料グループ、D. スペクトル解析グループ)を編成し、右図に示すようなグループ間の協力体制のもと、各グループが以下の個別計画とマイルストーンを設定した。

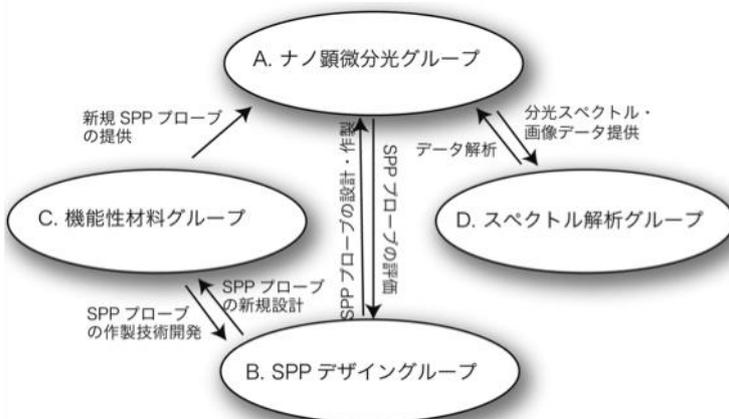


図 各グループ間の協力体制

A. ナノ顕微分光グループ

2006～2008 年度: ナノ顕微分光分析装置の設計・試作

2007～2008 年度: 力学的、化学的効果の検出、解析法の確立。

2009～2010 年度: DNA やカーボンナノチューブなど主なナノ材料の振動計算。

2008～2009 年度: ラマンバンドシフトでのイメージング。液中計測システムの構築。

2009～2010 年度: SPP による生体分子ナノイメージングの実現。

2010～2011 年度: 1分子観察の実現。

B. SPP デザイングループ

2006～2007年度: 数値計算による金属探針の設計と局所場の理論解析

2007～2009年度: 金属ナノ探針作製技術の確立

2007～2009年度: ナノメートルレベルの空間分解能、数分子レベルの検出感度の達成

2009～2011年度: 金属ナノ探針の顕微鏡への導入

C. 機能性材料グループ

2006～2008年度: 金属ナノ探針の開発のための機能性材料開発、配合最適化

2009～2010年度: プラズモニックナノコンポジット材料の作製

2011年度 : 自己組織化など新しい原理によるナノ加工技術の探求

D. スペクトル解析グループ

2006～2007年度 :スペクトル解析法のアルゴリズム構築と計算システムの仕様策定
 2006～2008年度 :スペクトル解析法のアルゴリズム開発
 2009～2010年度 :ナノ材料のラマンスペクトルデータベース構築
 2010～2011年度 :非線形フィードバックを組み込んだ超解像分析法の構築

(2)新たに追加・修正など変更した研究構想

- 実用性および再現性が高く、一般のユーザーが誰でも使える SPP 顕微分光装置を開発することに重点を置き、後半期は高い電場増強効果を有する SPP プローブの設計・作製に注力することに方針変更した。
- 魅力的な二次元 SPP カラー分光画像を再現性高く取得するプロジェクトを追加した。標準試料の作製にも取り組み、最終的にカーボンナノチューブやシリコン表面の歪み分をカラーでナノ分光分析イメージングすることに成功した。
- 生細胞内三次元ナノイメージング法の開発は、当初の計画では想定されていなかった新たな展開である。SPP 分析顕微鏡のバイオイメージング応用に関しては、当初は金属ナノ探針を用いて生細胞膜表面の二次元観察を行う予定であったが、細胞内部を3次元で観察することの新規性および重要性を見出し方針転換した。
- 金属ナノロッドアレイを用いたナノレンズの設計も当初の研究計画に無かった内容である。SPP を用いた拡大カラーナノイメージング法を提案するに至ったが、SPP 探針を用いた二次元イメージング法の開発に注力するため、20 年度までで打ち切った。

§ 3 研究実施体制

(1)大阪大学(ナノ顕微分光グループ)

①研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
河田 聡	大阪大学大学院 工学研究科	教授	H18.10～H24.3
井上 康志	大阪大学大学院 生命機能研究科	教授	H18.10～H24.3
Prabhat Verma	大阪大学大学院 工学研究科	教授	H18.10～H24.3
藤田 克昌	大阪大学大学院 工学研究科	准教授	H18.10～H23.3
齊藤 結花	大阪大学大学院 工学研究科	准教授	H23.4～H24.3
庄司 暁	大阪大学大学院 工学研究科	助教	H18.10～H24.3
石飛 秀和	大阪大学大学院 生命機能研究科	助教	H23.4～H24.3
市村 垂生	大阪大学大学院 工学研究科 理化学研究所 生命システム研究センター	研究員 研究員	H19.4～H23.3 H23.4～H24.3
矢野 隆章	大阪大学大学院 工学研究科 東京工業大学 大学院総合理工学研究科	研究員 助教	H19.4～H23.8 H23.9～H24.3
Proietti Zaccaria Remo	大阪大学大学院 工学研究科	研究員	H19.4～H20.3

下出 愛	大阪大学大学院 工学研究科	技術補佐員	H19.4～H24.3
野村 沙千	大阪大学大学院 工学研究科	技術補佐員	H19.4～H21.11
山口 崇子	大阪大学大学院 工学研究科	事務補佐員	H19.4～H23.4
田頭 春奈	大阪大学大学院 工学研究科	事務補佐員	H23.4～H24.3
浜田 啓作	大阪大学大学院 生命機能研究科	大学院生	H19.4～H20.9
中西 紗奈	大阪大学大学院 工学研究科	大学院生	H19.4～H20.3
Thomas Rodgers	大阪大学大学院 工学研究科	大学院生	H19.4～H21.3
Almar Palonpon	大阪大学大学院 工学研究科	大学院生	H19.4～H20.9
新岡 宏彦	大阪大学大学院 生命機能研究科	大学院生	H19.4～H21.3
安藤 潤	大阪大学大学院 工学研究科	大学院生	H20.4～H21.3
Meiling Zheng	大阪大学大学院 工学研究科	大学院生	H20.4～H22.9
熊本 康昭	大阪大学大学院 工学研究科	大学院生 RA 研究員	H20.4～H22.3
植月 一雅	大阪大学大学院 工学研究科	大学院生 RA 研究員	H20.4～H24.3
山中 真仁	大阪大学大学院 工学研究科	大学院生	H20.4～H23.3
河野 省吾	大阪大学大学院 工学研究科	大学院生	H20.4～H23.3
岡田 昌也	大阪大学大学院 工学研究科	大学院生	H22.4～H24.3
本田 光裕	大阪大学大学院 工学研究科	大学院生	H22.4～H24.3
森村 皓之	大阪大学大学院 工学研究科	大学院生	H23.4～H24.3
奥野 義人	大阪大学大学院 工学研究科	大学院生	H23.4～H24.3
Yu Jun	大阪大学大学院 工学研究科	大学院生	H23.4～H24.3
Yan Zhao-Xu	大阪大学大学院 工学研究科	大学院生	H23.4～H24.3

②研究項目

- SPP ナノ顕微分光装置の設計・試作
- 化学的効果、力学的効果の観察
- 生細胞内の三次元ナノイメージング
- 分子検出技術の確立

- ・ 再現性高い二次元 SPP ナノイメージング法の確立

(2) 理化学研究所 (SPP デザイングループ)

① 研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
早澤 紀彦	(独) 理化学研究所	研究員	H18.10~H24.3
田口 敦清	(独) 理化学研究所	研究員	H22.4~H20.12
小野 篤史	(独) 理化学研究所	研究員	H18.10~H20.12

② 研究項目

- ・ 金属ナノ探針の設計
- ・ 金属ナノ探針の作製
- ・ 顕微鏡への導入と特性評価
- ・ プラズモニックマテリアル構造の理論設計、材料の選定
- ・ 金属ナノ構造アレイ作製
- ・ プラズモニックマテリアルの作製、特性評価

(3) 中国科学院 (機能性材料グループ)

① 研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
段 宣明	中国科学院 理化技術研究所	教授	H18.10~H24.3
陳 偉強	中国科学院 理化技術研究所	助教授	H18.10~H24.3
董 賢子	中国科学院 理化技術研究所	講師	H18.10~H24.3
鄭 美玲	中国科学院 理化技術研究所	講師	H23.4~H24.3

② 研究項目

- ・ 金属ナノ探針のためのナノ構造作製
- ・ プラズモニックマテリアル用コンポジット材料開発
- ・ 新しいナノ加工技術の探求

(4) ナノフoton株式会社 (スペクトル解析グループ)

① 研究参加者

氏名	所属	役職	参加時期
太田 泰輔	ナノフoton株式会社	主任研究員	H18.10~H24.3

② 研究項目

- ・ スペクトル解析のためのアルゴリズム開発
- ・ ラマンスペクトルデータベース構築
- ・ 超解像分析法の開発
- ・ 分子振動計算

§ 4 研究実施内容及び成果

4.1 分子摂動効果を利用したナノ分光・イメージング法の開発(大阪大学)

(1) 研究実施内容及び成果(実施方法・実施内容・成果、成果の位置づけや類似研究との比較)

顕著な成果：分子摂動効果を利用したナノ分光・イメージング法を開発

金属ナノ探針の分子摂動効果を利用して試料分子をSPPナノ分光・イメージングする手法を開発した。試料分子に対して金属探針先端でピコニュートンオーダーの応力を印加すると、分子の構造や化学結合状態が変調され、ラマン散乱の振動数が変化することに着目した。この振動数変化を計測することにより、SPP増強電場下にある試料分子から力学的・化学的摂動下にある分子だけを選択的に検出する手法を考案した(図1(a))。

単層カーボンナノチューブ(SWCNT)を試料として用い、原理検証をおこなった。コンタクトモード原子間力顕微鏡(AFM)で操作した銀ナノ探針をガラス基板上に散布した単一の単層カーボンナノチューブに接触させて、印加応力を段階的に変化させながらラマンスペクトルを測定した結果を図1(b)に示す。印加応力を強めるにつれて、炭素原子間の伸縮振動モード(G-band)の振動数が低波数側に变化することが観測された。これはSWCNTが探針軸方向に歪曲したことを示しており、3.0 nNの力を印加した時にSWCNTは探針軸方向に0.1nm程度歪んでいることが弾性理論解析結果からわかった。

さらに、図2(a)に示すように、このSWCNTのチューブ軸に対して垂直方向に銀ナノ探針を一定の探針応力(2.4nN)下で一次元走査させながら、ラマン分光・イメージングをおこなった。G-bandの振動数シフト量を光学信号としてマッピングした結果(図2(b))、探針がSWCNTに近づくにつれてG-bandの振動数のシフト量が増加し、探針がSWCNTの直上に来たときにシフト量が最大となることがわかった。この振動数シフト量の空間プロファイルから空間分解能は4nmと見積もられ、従来のナノ光学顕微鏡では実現困難であった10nm以下の空間分解能を世界で初めて達成することに成功した。同時測定したAFMプロファイル(図2(c))よりも空間分解能が高かった。また、印加応力を変えて同様の測定を行った結果、印加応力が小さいほど、すなわち探針と試料間の接触面積が小さいほど空間分解能が高いことを見出した。さらに、印加応力を制御することによって接触面積が 1nm^2 以下になることをヘルツの接触理論計算によって見出し(図3(d))、原理的には1nmの空間分解能も実現可能であることを示した。印加応力時のスペクトル変化はSWCNTの直径やカイラリティに依存することも示した。

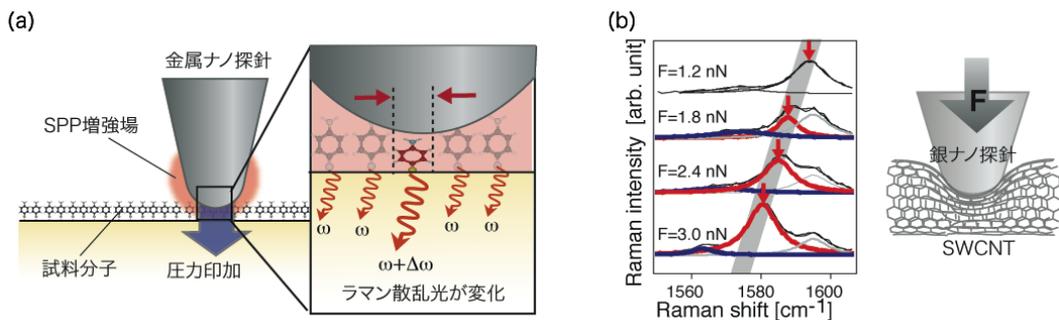


図1 (a) 探針加圧効果を利用したSPPの原理。(b) 探針応力印加時のSWCNTのラマンスペクトル変化。

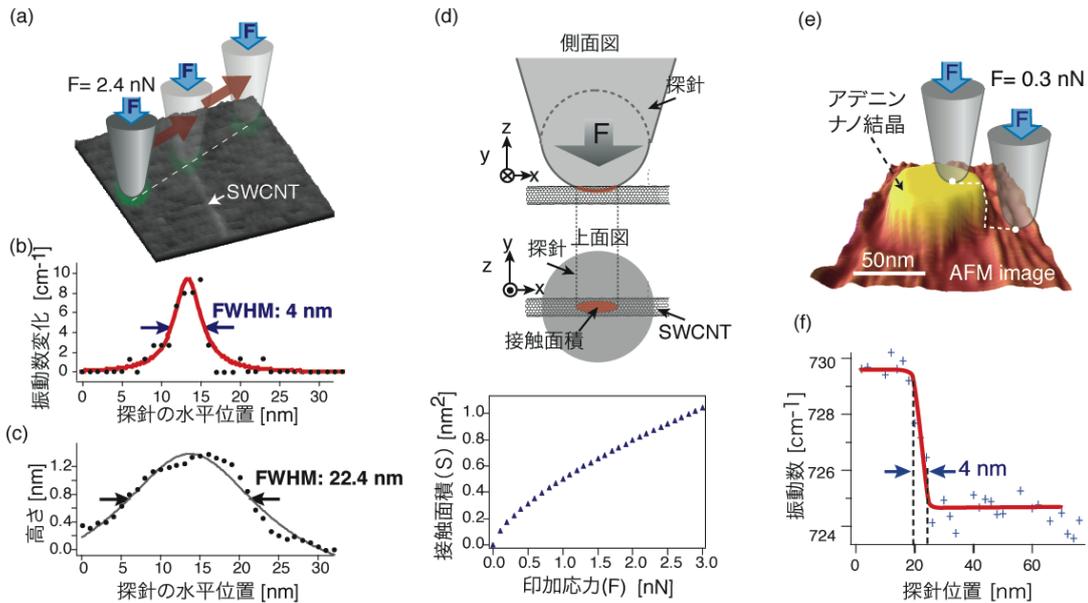


図2 (a) 応力印加を用いたSWCNTのナノイメージングの模式図、(b) G-band (ω_{G_+})の振動数シフトをもとに構築した光学プロファイル、(c) 光学像と同時に測定したAFM、(d) 探針-SWCNT間の接触面積の印加応力依存性 (Hertzの接触理論計算結果)。(e) アデニンナノ結晶のAFM像と(f) エッジ付近でのアデニン分子リングブリーディングモードの振動数シフトマッピング。4nmの空間分解能を実現。

SWCNT のような1次元細線構造だけでなく、2次元平坦構造であるアデニンナノ結晶の先端加圧ラマン分光イメージングもおこなった。図2(e)にアデニンナノ結晶のAFM像を示す。このナノ結晶のエッジ付近で銀ナノ探針を走査しながら、先端加圧ラマン分光イメージングをおこなった。アデニンナノ結晶はSWCNTよりも柔らかいため、SWCNTの測定時よりも低い0.3 nNの応力を印加して測定した。得られたスペクトルからアデニン分子の六員環・五員環リングブリーディングモード(RBM)の振動数を抽出し、探針の走査位置に対してプロットしたものを図2(f)に示す。探針が結晶のエッジ付近にさしかかった時、RBMの振動数がシフトした。これは、エッジ付近の結晶上では、アデニン分子が印加応力によって変形したことに起因する。この振動数変化の急峻なエッジレスポンスから、SWCNTの時と同様に4 nmの空間分解能が実現されていることがわかる。このように、本顕微鏡はSWCNTのような硬い試料からDNAのような柔らかい試料に至るまで試料の硬柔によらず測定できることを示し、本顕微鏡のナノ材料分析における有用性を示した。

SWCNT に応力を印加した時のスペクトル変化からSWCNTのナノ領域における弾性特性を測定することにも成功した。図3(a)に示すように、SWCNTに2 nNの応力を印加した後に印加応力を弱めると(i)の領域)、このSWCNTは可逆的な強度変化を示した。一方、2 nN以上の応力を印加すると(ii)の領域)、印加応力を弱めてもラマン散乱強度

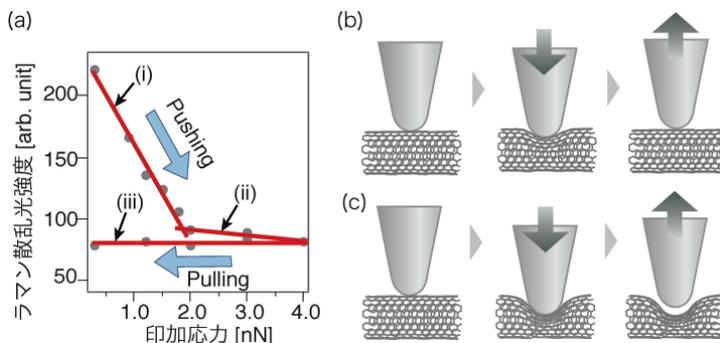


図3 (a) 探針をSWCNTに押しつけてから引き上げた時のラマン散乱光強度変化。応力印加時にSWCNTが(b) 弾性変形および(c) 塑性変形している様子が分光観測された。

は回復せず不可逆な強度変化を示した(iii)の領域)。これは、この SWCNT が 2 nN 以下の応力下では弾性変形(図3(b))し、2 nN 以上では塑性変形(図3(c))したことを示している。塑性変形を誘起する印加応力の閾値は SWCNT の直径によって異なった。これにより、本顕微鏡が分解能に加え分析能にも優れていることを示した。

成果：サブナノメートルスケールの探針-試料間距離領域で発現するスペクトル変化を観測

金属ナノ探針と試料分子間距離に依存する3つの近接場効果(電磁気学的・化学的・力学的効果)をその場観察することを目的として、金属ナノ探針と試料分子間距離を原子間力顕微鏡で制御しながら、近接場ラマン散乱を検出する手法を開発した。探針の高さ制御にタッピングモードAFMを用い、探針先端と試料間の距離変化に同期して変化するラマンスペクトルを時間分解測定する。図4(a)に装置の概要図を、図4(b)に測定の説明図を示す。ラマン散乱励起用のレーザー強度を音響光学素子(AOM)により時間ゲートをかけ時間分解測定を実現した(time-gated illumination)。複数のラマンバンドの振動数と強度の距離依存性を一度に測定することが可能となり、化学効果・力学効果に由来する振動数変化と電磁気学的効果に由来する強度変化観察および分析ができる。

これまでに単層カーボンナノチューブ(SWCNT)およびアデニン分子の近接場ラマンスペクトルの距離依存変化を測定した。図4(c)にアデニン分子のリングブリージングモードのラマンスペクトルの探針試料間距離依存性を示す。スペクトル I は、最大距離(155nm)での取得されたスペクトルで、近接場相互作用が含まれない。721cm⁻¹ のピークは、ファーフィールドスペクトルに一致する。II~IV のスペクトルはそれぞれ0.1nm, 0.0nm, -0.1nm の近接領域で取得された。これらのスペクトルにも共通して 721cm⁻¹ のファーフィールドスペクトルのピーク(ω_0)が共通して見られ、その高振動数側にそれぞれ新しいピーク(ω_1)が観察された。これらは、探針先端の銀とアデニン分子の相互作用によりシフトしたピークである。II~III はほぼ斥力ゼロの接触領域でのスペクトルであり、このとき主に化学的相互作用によってピークシフトする。さらに、IV では、斥力印加によりナノ微結晶を 1nm 押し込んでいる。これに伴い、リングブリージングモードのピークはさらに高振動数側にシフトしている。これらのピークシフトの振る舞いおよびシフト量は、過去の我々の化学的・力学的な相互作用を考慮した分子振動計算結果に一致する。また、II から IV にかけて、探針試料間距離の減少とともにピーク強度が増大している。この増大は、アデニン分子と銀原子間の電荷移動による化学的増強効果と、押し込みによる探針先端表面とアデニン微結晶の接触領域の増大によるものと推察される。以上のように、本手法により、探針試料接触領域(0nm)から相互作用の働かない遠方領域(>100nm)の間で、化学・力学的相互作用によるピーク出現およびシフトを、サブナノメートルの距離分解能・精度で計測できることを示した。

また、同じコンセプトに基づいて、照明光でなく検出器にタッピング動作に同期した時間ゲートをかけて時間分解計測する方法(time-gated detection)も提案した。アバランシェフォトダイオー

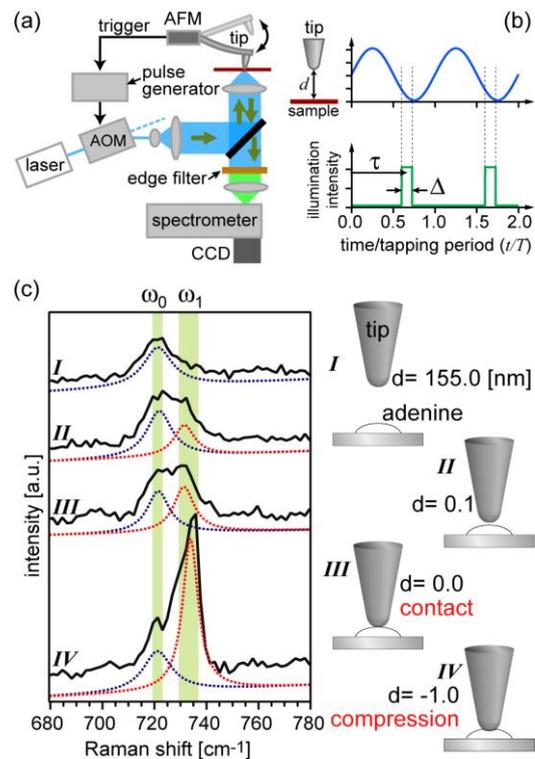


図4 近接場ラマンスペクトルの探針試料間距離依存変化の計測法。(a)測定装置、(b)測定法の説明、(c)アデニンナノ微結晶(高さ7nm)における測定結果。

ドと時間ゲート付きの光子カウンターを用いる。単一波長検出であるため、スペクトルシフトを直接観察できないが、その反面、時間方向のゲート数を電氣的に増やすことができるため、より高速に探針試料間距離依存性を調べることができる。SWCNT および 4ATP(4-aminothiophenol)を用いた検証実験により有用性を示した。

成果: 応力印加時に発生する探針位置ずれを自動補正する機構を開発

金属探針先端で試料に応力を印加した時に発生する探針の位置ずれを自動補正する機構を開発し、サブナノメートルスケールの測定精度を実現した。図5(a)に示すように、金属探針にレーザー光を集光したときのレーザ散乱光成分を、エッジフィルターによってラマン散乱光と分離し、四分割フォトダイオードの中心に集光した。探針位置が試料面内で変化すると受光面内での集光位置が変化するため、四分割フォトダイオードの差分信号を測定することによって探針位置の変位を検出した。この変位量をカンチレバーの面内方向のピエゾスキャナにフィードバックし、探針の位置ずれを実時間でその場補正する機構を開発した。

開発した探針位置変位・補正機構を用いて、バネ定数が 0.1N/m の銀コートカンチレバー探針の印加応力を変化させた時の探針位置変位を測定した。図5(b)に示すように、印加応力を 3.0nN まで増加させた時、探針位置がカンチレバー軸方向に最大 10nm 変位した。さらに、位置補正を行いつつ同様の測定をした結果を図5(c)に示す。印加応力を 3.0nN まで増加させても、探針位置の変位は 1nm 以下であった。これにより、サブナノメートルスケールの位置精度で試料に応力を印加して、ラマン分光測定を行うことを可能とした。

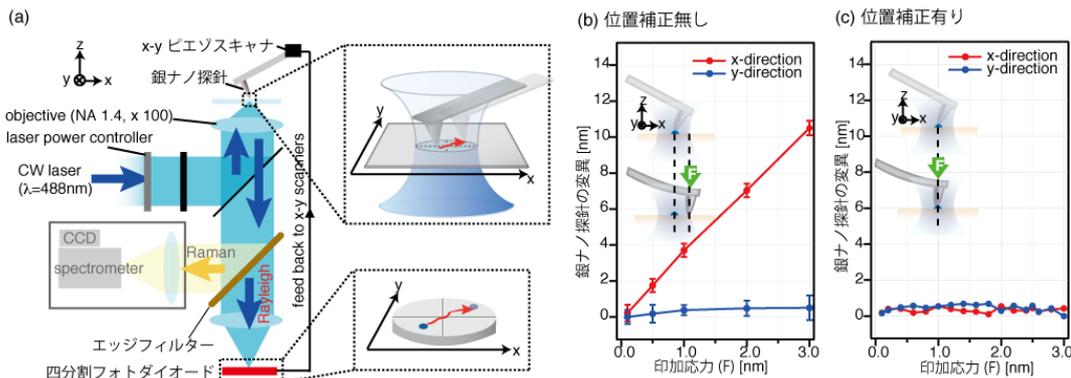


図5 (a) 探針位置ずれ補正機構を有するSPP分光装置の概略図。探針位置ずれ補正機構を用いなかった場合(b)と用いた場合(c)での、応力印加時の銀ナノ探針の変位。

成果の位置づけと類似研究との比較

SPPプローブを用いた近接場光学顕微鏡を開発する研究グループは世界中に幾つかあるが、今までのところいづれグループにおいても 10nm 以下の空間分解能でイメージングを実現していない。これは、SPP の閉じ込め領域の物理的限界と、金属プローブ先端の加工精度の限界による。また、近接場光学顕微鏡には、SPP プローブとは別に、微小開口型のプローブを用いるタイプのものがあるが、その空間分解能は SPP プローブ型に遥かに及ばない。表1に当グループを含む幾つかのグループの取り組みと達成をまとめる。このように、10nm はこの分野において、一つの壁になっていた。本研究における 4nm 分解能の達成は、世界で初めてこの壁を大きく越えたものであり、大きなブレイクスルーと言える。

(2) 研究成果の今後期待される効果

- DNA 分子を一つずつ分光・分析することによって DNA シークエンスが可能になる。
- 探針試料間距離スペクトル変化計測による表面増強ラマン散乱メカニズムの解明。
- 他の摂動を利用した新たな計測法の開発。

4.2 SPPプローブの設計および作製法の開発(大阪大学、理化学研究所、中国科学院)

(1) 研究実施内容及び成果(実施方法・実施内容・成果、成果の位置づけや類似研究との比較)

成果:プローブの下地材料を利用したプラズモン共鳴波長のチューニング

SPP 増強度を高める上で、金属構造の形状とともに重要な要素が、金属の下地となる材質である。すなわち、下地材料の屈折率によって SPP の共鳴波長が変化する。この効果を利用して、SPP プローブのプラズモン共鳴波長をチューニングする方法を提案した。従来、市販のシリコンカンチレバーに銀を真空蒸着してプローブを作製してきたが、本手法では、事前にシリコンを酸化させてから金属膜を蒸着する。酸化シリコン(SiO₂)の誘電率はシリコンより低いいため、Ag/SiO₂ プローブのプラズモン共鳴波長は、Ag/Si プローブに比べて短波長側にシフトする。FDTD を用いて、プラズモン共鳴波長の SiO₂ 膜厚依存性を調べた。

酸化シリコン層を利用したプラズモン共鳴波長チューニングの効果を検証するために、FDTD により電場計算を行った。図6(a)に計算モデルを示す。SPP プローブ先端を球形粒子でモデル化し、全直径と銀の膜厚をそれぞれ 50nm と 10nm に固定して、SiO₂ 層の膜厚に対する近接場散乱強度のスペクトルを計算した(図6(b))。この結果、SiO₂ 層の膜厚の増加と共に、プラズモン共鳴波長が短波長側にシフトすることが明らかになった。また、散乱強度も、SiO₂ 層の厚さとともに増大している。このことは、SiO₂ の吸収が Si に比べて低いいため、損失が減ったことによると考えられる。また、この計算により、SiO₂ の膜厚を正確に制御することで、所望のプラズモン共鳴波長を有する SPP プローブを作製できることが明らかになった。

シリコンは、水蒸気噴霧中で 1100°C に加熱することにより酸化した。実際に、シリコンカンチレ

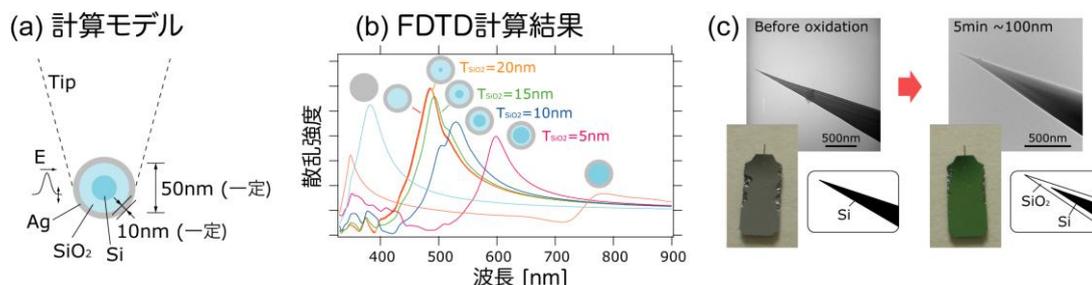


図6 シリコン酸化層を利用したプラズモン共鳴波長チューニング (a) 計算モデル、(b) SiO₂層の厚さに依存したスペクトル変化、(c) wet酸化前後のプローブのTEM像。

バーを酸化して、その先端の変化を透過型電子顕微鏡(TEM)により観察した。図6(c)に、酸化前と酸化後の TEM 像を示す。酸化後の TEM 像では、先端が二層構造になっている様子がわかる。この TEM 像から SiO₂ 層の厚さは約 100nm であることがわかった。

成果:金属ナノ結晶を用いた SPP プローブ作製法を開発

高い電場増強度を有する金属ナノ探針を再現性良く作製するために、単結晶金属ナノ粒子を探針先端に付着させて金属ナノ探針とすることを提案し、均一かつ再現性良い作製法の確立に取り組んだ。単結晶金属ナノ粒子は、自己成長により合成されるため形状・サイズを制御することができる。形状・サイズを適切に設定することでプラズモン共鳴波長をチューニング可能であり、大きな増強効果を得ることができる。合成法として、多価アルコール(ポリオール)により金属イオンを還元し、金属ナノ結晶粒子を析出・成長させるポリオール法を導入した。

SPP プローブとして利用するためのナノ結晶粒子をポリオール法により合成した。とくに、銀単結晶のポリオール合成において、反応溶液中に酸素ガスを供給することで、単結晶のキューブのみが高い効率で簡便に得られることを、本研究で初めて見いだした。欠陥の多い多重双晶を選択的に消滅させるために、溶液中に腐食性の塩を加え、そこに流量制御した酸素を供給する。この供給酸素の流量によってエッチング力を調整し、選択的にキューブのみを成長させることに成功した。図7(a)に合成された単結晶キューブの SEM 像を示す。均一な形状・サイズのナ

ノ構造を高い収率で再現性よく得られた。さらに酸素流量を変化させて、各種ナノ構造の合成にも成功した。この結果より、酸素流量調節のみでエッチング力を簡便に調節し、立方体構造、双三角錐構造、およびロッドなど様々な形状の銀結晶を合成することが可能となった(図7(a-d))。

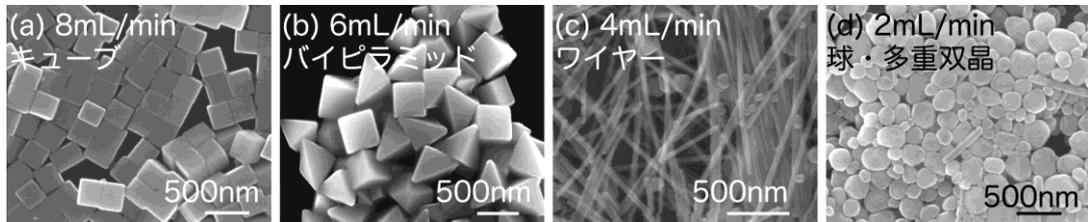


図7 酸素流量により形状制御された銀ナノ結晶のSEM像。酸素流量を(a) 8mL/min、(b) 6mL/min、(c) 4mL/min、(d) 2mL/min に制御して合成した結果、それぞれ(a) キューブ、(b) バイピラミッド、(c) ワイヤー、(d) 球および多重双晶が高収率で得られた。

成果:化学増強効果の向上に成功

金属ナノ構造でのラマン散乱増強は、SPPによる電磁気学増強だけでなく、金属と試料分子間の化学的な相互作用によっても増強する。この化学増強効果の向上を目指して、SPPプローブの金属表面の処理法を検討した。ハロゲン化物イオンにより銀ナノ微粒子表面を改質し、表面増強ラマン散乱および表面増強ハイパーラマン散乱の強度が飛躍的に向上することを実験的に示した。

銀ナノ微粒子による表面増強ラマン散乱において、ハロゲン化物イオンにより化学増強による散乱効率を最大 100 倍も向上することに成功した。試料として、ローダミン 6G、クリスタルバイオレットを用いた。通常のラマン散乱だけでなく、非線形ラマン散乱の一つであるハイパーラマン散乱についても、同様の化学増強の向上が得られることを初めて報告した(図8)。これは、SPP ナノ顕微分光において、探針をハロゲン化物イオンにより前処理することで、探針直下で銀と化学的相互作用する分子のみのラマン散乱を選択的に増強できることを意味する。

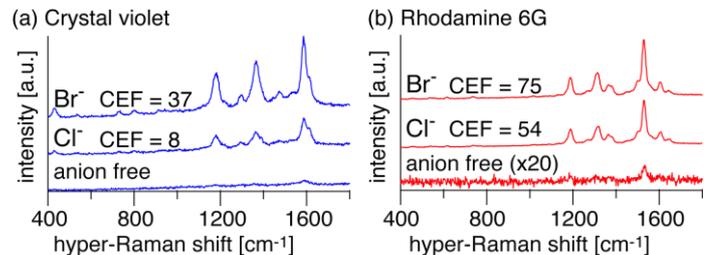


図8 ハロゲン化物イオン (Br^- , Cl^-) を添加したときの色素分子の表面増強ハイパーラマン散乱スペクトルと、それぞれの化学増強度(CEF)。(a) クリスタルバイオレット。(b) ローダミン 6G。

成果:金属イオン/高分子ポリマーコンポジット材料を用いた金属ナノ構造作製法を開発

SPPプローブの作製に利用する金属イオン/高分子ポリマーのコンポジット材料の開発に取り組んだ。金属イオンの光還元による金属ナノ構造作製のための、材料の新奇コンセプトを提案し、実験的に実現した。銀イオン溶液中に近赤外パルスレーザーを集光することで、集光スポット内で二光子還元により固体銀を析出する。集光スポットを任意に走査することで、任意形状の金属ナノ構造を作製する(図9(a))。とくに、本研究では銀イオン中に界面活性剤を混合したときに、界面活性剤が核の形成を促進し、且つ固体銀結晶の自己成長を阻害する役割を果たすことを初めて見出した(図9(b))。これにより、従来よりも微細な金属構造を微弱なレーザーパワーで作製できる。

界面活性剤として NDSS (n-decanoylsarcosine sodium)を用い、NDSS 無し、NDSS 低濃度(13 mM)、NDSS 高濃度(99mM)において作製される銀細線構造を比較した(図9(b))。このときレーザー光強度は一定とした。NDSS が無い場合は、銀の成長が集光スポットサイズを超えて広がり、

作製される細線の太さはマイクロメートルを超えている。また、低濃度の NDSS を導入した場合、形成される核が少なく、且つ成長が進まないため、細線は形成されなかった。これらに対して、NDSS を高濃度で含有すると、多くの核が形成されて、且つ成長が抑制されるため、NDSS が無い場合に比べて極めて細い細線が形成された。さらに、NDSS の濃度およびレーザーパワーを変えて、各条件で銀細線を作製した結果、最小で 120nm の銀ナノ細線を作製することに成功した (図10)。この結果は、本手法により回折限界以下の微細な金属ナノ構造を作製できることを意味する。さらに、任意の3次元構造の作製にも取り組んだ。図11(a)、(b)に作製した銀の柱および3次元構造の SEM 像を示す。大気中でも崩壊することなく3次元構造を維持できることが明らかになった。

さらに最近、界面活性剤として脂肪酸塩 (CnHn+2COONa) を用いると、微細構造を作製できることに加え、スムーズな金属表面が得られることもわかった。銀イオン溶液内に炭素原子数が n=4,5,7,9 の脂肪酸塩を添加し、フェムト秒レーザーを集光して、銀細線を作製して、その効果、および炭素原子数に対する依存性を調べた。その結果、炭素原子数 n が大きい方が、すなわち炭化水素鎖が長い方が、より微細で且つ表面がスムーズな構造を作製することがわかった。

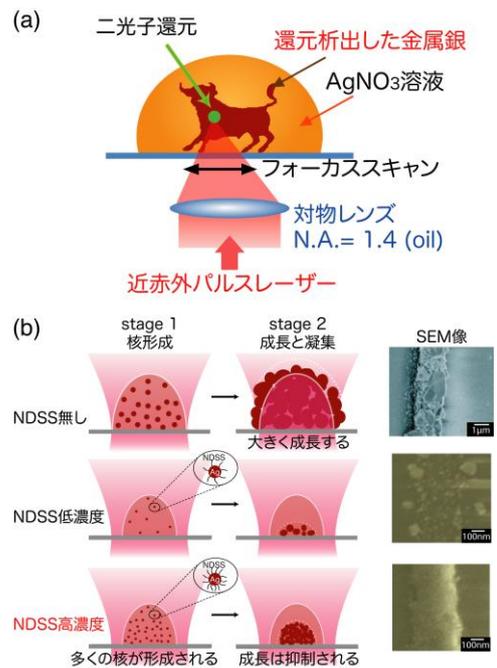


図9 (a) 二光子還元による3次元金属ナノ構造形成法。(b) 界面活性剤 (NDSS) の役割と、作製される銀構造の SEM 像。

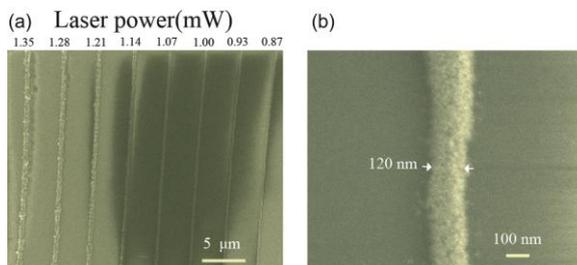


図10 二光子還元により作製した銀細線。(a) 銀細線のレーザー強度に対する依存性。(b) レーザー強度 0.87mW で作製された細線。120nm 細線の作製に成功。

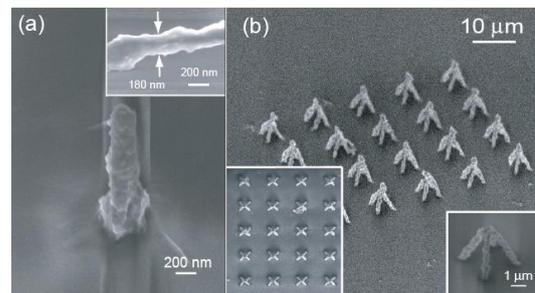


図11 界面活性剤を用いた二光子還元により作製した金属ナノ構造の電子顕微鏡像。(a) ナノ細線。(b) 3次元ナノ構造。

成果: 金ナノロッド/ポリマーコンポジット材料を用いた新規プラズモニック材料を開発

マイクロスケールで金ナノロッド/ポリマーコンポジットの立体構造を作製する方法を構築した。金ナノロッドは、形状の均一性が高く大量合成が可能である Seed-mediated growth 法を用いて合成した。メチルメタクリレートモノマーを主成分とする光硬化性樹脂中で 780 nm 付近に吸収ピークを有するようにアスペクト比を制御した (図12(a))。水中で合成された金ナノロッドの表面はチオール基を有する両親媒性のポリエチレングリコールで修飾することで、光硬化性樹脂中に均一に分散させた。金ナノロッドを分散させた光硬化性樹脂中に、近赤外フェムト秒パルスレーザー (780 nm) を集光照射した。照射光は金ナノロッドの形状変化が生じない強度に設定し

た。その結果、集光点に金ナノロッドの集合体が形成され、レーザー光を走査することにより任意の形状の3次元マイクロ構造が作製できた(図12(b))。走査型電子顕微鏡(SEM)像観察の結果、表面が5~17 nm のポリマーで覆われた金ナノロッドの集合体から成ることが明らかになった(図12(c))。光照射によって金ナノロッド表面に局所的に二光子重合反応が生じたためであると考えられる。レーザー光の焦点位置近傍に引き寄せられた金ナノロッドはポリマー膜で覆われ、ポリマー膜が糊のような役割を果たすことによって金ナノロッド同士が引き合うように次々と堆積して集合体を作り出したと考えられる。

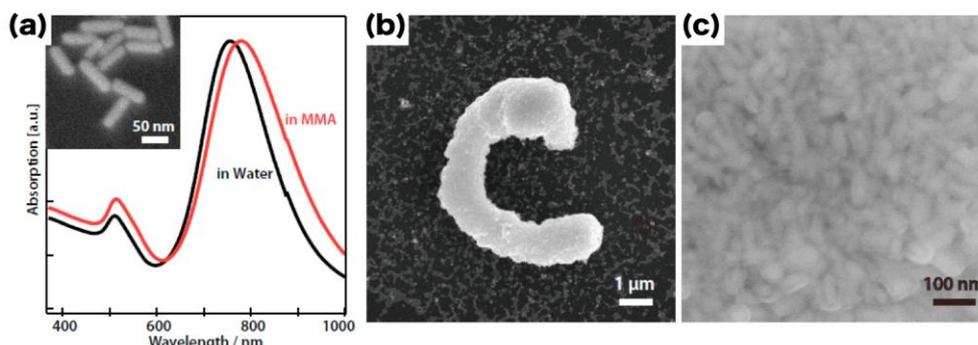


図12 (a)合成した金ナノロッドのSEM 像と異なる溶媒中での金ナノロッドの吸収スペクトル (b) 金ナノロッドの集合体で形成された3次元構造物と (c) その一部を拡大したSEM 像

成果:SPPプローブの加熱効果を検証

SPPプローブ(銀ナノ探針)にレーザー光(532nm, 10 mW, P偏光)を照射した時の探針温度を有限要素法によって計算した結果、図13(a)に示すように、先端温度が約900Kにまで上昇することがわかった。そこで、SPPプローブの加熱効果がSPP増強場に及ぼす影響を実験と理論計算の両輪から検証した。

銀ナノ探針に照射するレーザー光強度を増加させながら(即ち先端の温度を上昇させながら)、SWCNTのSPP増強ラマンスペクトルを測定し、ラマン散乱増強の温度依存性を調べた。図13(b)に示すように、探針先端の温度が上昇するにつれて、ラマン散乱の増強度が減少した。この原因を考察するために、金属の誘電率に温度依存項を追加し、銀探針のSPP増強場の電磁場解析をおこなった。探針先端温度を300Kから1000Kに変化させて計算したSPP共鳴スペクトルを図13(c)に示す。探針先端の温度が高くなるにつれて電場増強度が減少することがわかった。したがって、CNTのラマン散乱光の増強度が探針の温度上昇によって減少した主因は、SPPプローブの電場増強度の温度依存性である。

入射光波長が480nm(室温時のSPP共鳴波長)と500nmの場合の電場増強度の温度依存性を図13(c)から抽出したグラフを図13(d)に示す。入射光波長が480nmの場合は500nmの時と比べて単位温度上昇に対する増強度の減少が大きく、700Kを超えると500nmの方が電場増強度が強くなった。これは、SPP共鳴波長が温度上昇によって長波長側にシフトしたためである。したがって、700K以上の探針温度下で測定を行う場合は、室温でのSPP共鳴波長よりも若干長い入射光波長を用いた方が、高い増強効果を得られることがわかった。

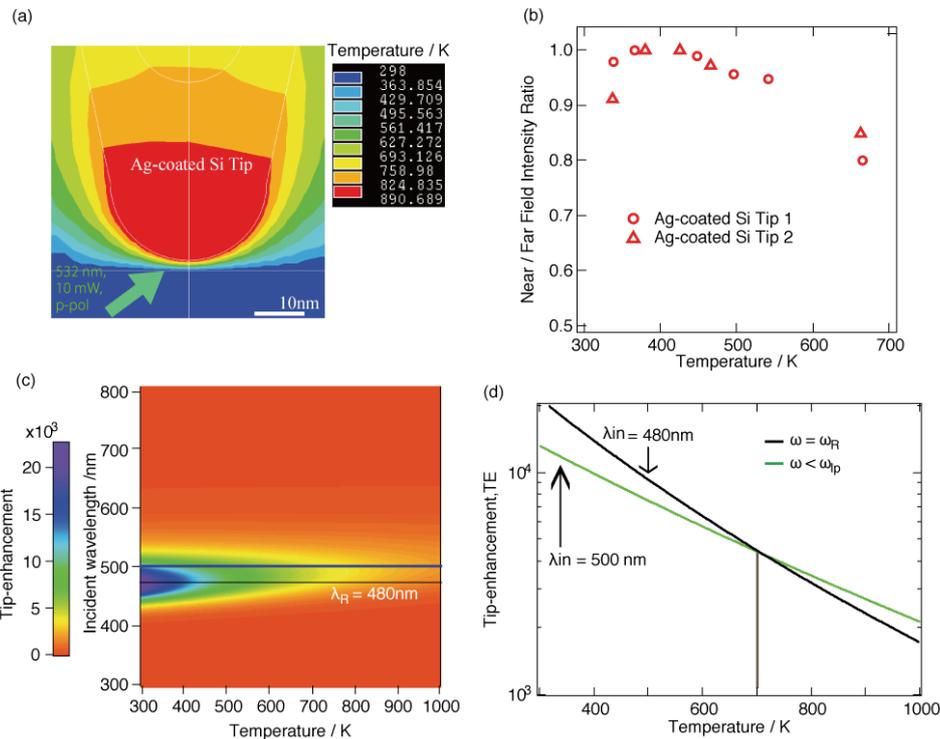


図 13 (a) レーザー照射時の銀ナノ探針先端の温度分布 (有限要素法計算結果)。 (b) ラマン散乱光増強度の探針温度依存性。 (c) SPP 共鳴スペクトルの温度依存性 (電磁場計算結果)。 (d) 入射光波長が480nmおよび500nmの時の電場増強度の温度依存性。

成果の位置づけと類似研究との比較

金属探針先端での SPP 電場増強効果に関する研究はこれまでに多くのグループによって行われてきたが、そのアプローチは電磁場計算解析を用いた構造設計が主であり、既存の技術では実際の作製が困難な探針構造が多く提案されていた。本研究では、高い SPP 電場増強効果を有する探針構造を設計すると共に、その探針を高い歩留まりで作製する手法を確立した。SPP 顕微鏡開発で最も困難で重要な課題を克服したことになる。

(2)研究成果の今後期待される効果

高い SPP 電場増強効果を有する探針の開発に成功したことによって、SPP 顕微鏡は「作る」段階から「使う」段階にフェーズシフトしていこう。本研究では主にカーボンナノチューブとアデニン分子をテスト試料として用いてきたが、他のナノカーボン材料、半導体基板、複合材料、生体高分子など様々な試料の計測へと展開できる。近い将来に実用化され、ナノテクノロジー・ナノサイエンスでの広い応用が期待される。

4.3 二次元”カラー” ナノイメージングの実現 (大阪大学、理化学研究所)

4.2 で開発した SPP プローブを用いて、SWCNT や歪みシリコン表面の二次元”カラー”イメージングを高い再現性で実現した。

成果：シリコン基板表面の歪み分布をナノ分光・イメージングすることに成功 (理化学研究所)

次世代 LSI 基板として期待されている結晶歪みシリコン表面の SPP 増強ラマン分光・イメージングをおこなった。歪みシリコンは不透明試料であるため、試料の斜め上方から励起光を入射し、ラマン散乱光を検出する反射型の SPP ラマン分光装置を設計・試作した (図 1 4 (a))。この反射型 SPP ラマン分光装置と銀ナノ探針を用いて SPP 増強したラマン散乱光を検出し、図 1 4 (b) のスペクトルを得た。SiGe 層の Si-Si フォノンモード信号はそのまま、歪みシリコン層の Si-Si フォノンモード信号のみを増強することに成功した。この歪みシリコン表面で銀ナノ探針を二次元走査し SPP 増強ラマンスペクトルマッピングを行い、歪みシリコン層の Si-Si フォノンモードの振動数をもとに画像を構築した (図 1 4 (c))。SPP プローブを用いない通常の顕微ラマンイメージ (図 1 4 (d)) では確認できないナノスケールでの歪み分布を可視化する事に成功した。これらのイメージ上の全ての計測ポイント (32×32point) でのラマンシフト値をダイアグラムにて表示した (図 1 4 (e))。SPP 増強ラマンスペクトルのラマンシフトの値は顕微ラマン信号に対して、幅広いシフト値を持っている。この理由は、顕微ラマンは回折限界により集光スポット内部で平均化されたラマンシフト値であるのに対し、SPP 増強ラマンスペクトルのラマンシフト値は、回折限界を超えたナノスケールでの局所歪みを表しているため、平均化されない幅の広いシフト値をとっているためである。これにより SPP 増強ラマンイメージはナノスケールの歪みを反映している事が確認できた。さらに図 1 4 (f) における知見として、SPP 増強ラマンスペクトルのラマンシフトは全体的に低波数側にシフトしている。このことは引っ張り応力が大きく見積もられている事に対応している。

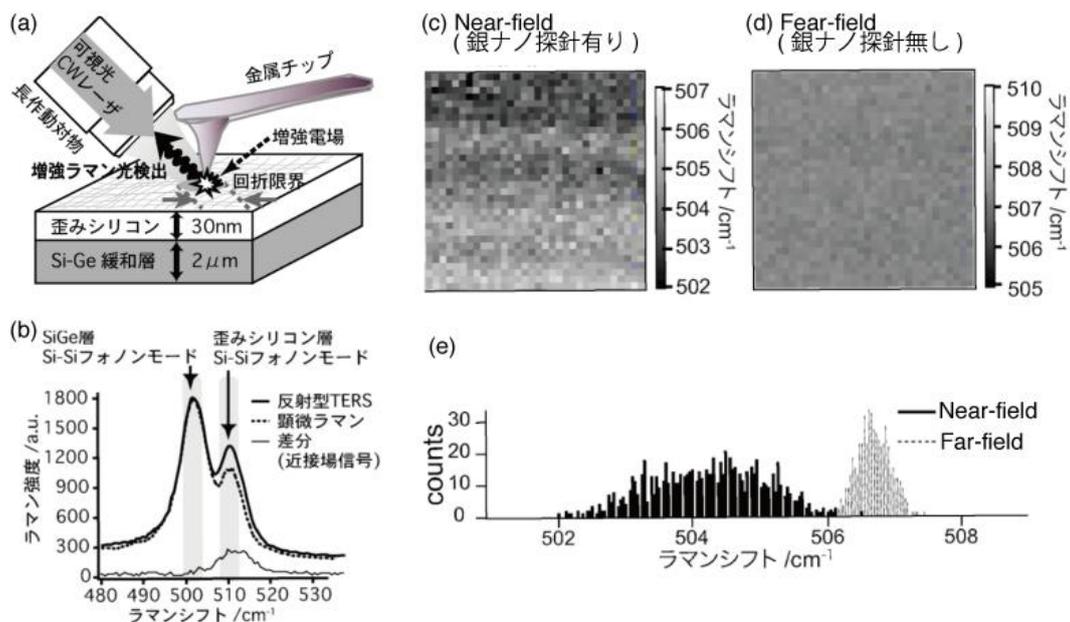


図 1 4 (a) 反射型 SPP 増強ラマン分光装置を用いた歪みシリコン表面測定の概略図。(b) 歪みシリコン表面の SPP 増強ラマンスペクトル。(c) 銀ナノ探針を用いて測定した SPP 増強ラマン振動数イメージ。(d) 銀ナノ探針を用いずに測定した顕微ラマン振動数イメージ。(e) ラマンシフト値のヒストグラム。

成果の位置づけと類似研究との比較

従来のプローブ顕微鏡や電子顕微鏡などのナノを見る顕微鏡では、試料物質の構造(凹凸)をイメージングすることに特化していた。我々が開発した SPP 顕微鏡は物質の凹凸構造だけでなく試料物性をカラーで画像化することができるため、高分析能を併せ持ったナノイメージング法が実現された。

SPP 探針を用いた近接場顕微鏡を開発しているグループは世界中にいくつかあるが、それらの測定は一点もしくは数点の測定に留まり、二次元画像として発表された例は少なかった。今回、再現性良く二次元画像を取得する技術を確認したことによって、汎用性および実用性に優れた装置を具現化することに成功した。

(2) 研究成果の今後期待される効果

分子科学、バイオサイエンス及び半導体デバイス開発分野でのナノ分析イメージング装置としての実用化が期待される。

4.4 生細胞内三次元ナノイメージング法の確立(大阪大学 ナノ顕微分光グループ、ナノフoton スペクトル解析グループ)

(1) 研究実施内容及び成果

顕著な成果：金属ナノ粒子を用いた三次元イメージング法の開発(大阪大学 ナノ顕微分光グループ)

金属ナノ粒子を SPP プローブとして細胞内に導入し、細胞内の粒子近傍にある分子のラマン散乱光を検出する手法を開発した。細胞内をイメージングするためには粒子を細胞内で走査する必要があるが、細胞内の流動性とブラウン運動により金ナノ粒子をランダム走査する方法を採用した(図15)。細胞内をランダムに移動する粒子の位置とラマンスペクトルを実時間同時計測する装置を開発し、生細胞内のラマンイメージングをおこなった。

生細胞内への金属ナノ粒子の導入法として、細胞のエンドサイトーシス(食作用)を用いた。エンドサイトーシス機能を有するマクロファージ細胞の培養液に SPP プローブ(粒径 50nm の金ナノ粒子)を付加し 24 時間培養した。金ナノ粒子を付加する前後に測定したマクロファージ細胞の暗視野像を図16に示す。金ナノ粒子付加後1日経過した場合(図16(b))、金ナノ粒子を示す輝点が細胞内に観察され、エンドサイトーシスによる金ナノ粒子の細胞内への導入が確認された。

金ナノ粒子導入前後のマクロファージ細胞のラマンスペクトルを同一の実験条件(励起光強度 $10\text{mW}/\mu\text{m}^2$ 、励起波長 785nm 、露光時間1秒。)で測定した結果を図17に示す。細胞内に導入された金ナノ粒子の SPP 電場増強効果によってマクロファージ細胞のラマン散乱光が大幅に増幅され、SPP プローブを用いた生細胞の高感度測定に成功した。さらに、金ナノ粒子導入前のラマンスペクトルを、励起光強度を70倍、露光時間を60倍に増やして高感度測定し、先ほどの金ナノ粒子導入後のラマンスペクトルと比較した(図18)。その結果、金ナノ粒子を導入する

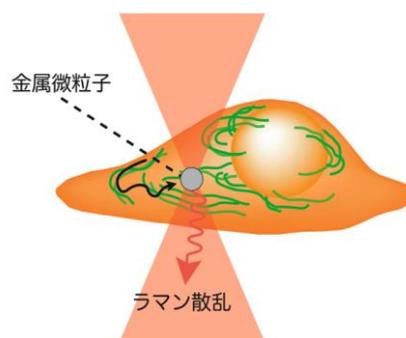


図15 生細胞内3次元ナノイメージング法の原理図

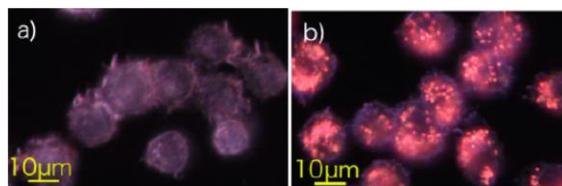


図16 マクロファージ細胞の暗視野像：(a) 金ナノ粒子導入前、(b) 金ナノ粒子導入後

と、観測されるラマンバンドが圧倒的に減少することがわかった。これにより、金ナノ粒子を用いると、粒子近傍の分子のみを空間分解能高く検出できることを示した。

細胞内を移動する金ナノ粒子の位置とラマンスペクトルを実時間同時計測し、ラマン分光・イメージングをおこなう装置を試作した。図19(a)に示すように、試作した顕微分光装置は、粒子位置計測用の暗視野顕微光学系と試料内の分子の検出をおこなうラマン分光光学系から構成される。測定した暗視野像から粒子位置を検出し、ガルバノミラーによってレーザー光をその粒子位置に集光してラマンスペクトルを測定できるように設計した。さらに、焦点位置を意図的にずらした2枚の暗視野像から、金ナノ粒子のz座標を取得する暗視野顕微光学系も設計、試作し、SPPプローブの三次元位置検出法を確立した。2枚の暗視野像に見られる同一粒子の散乱光強度の差が、粒子のz座標にあわせて線形に変化することに着目し、z方向の粒子位置を測定した。得られたz座標を元に、ピエゾアクチュエータを用いて対物レンズをz方向にフィードバックし、生細胞内の粒子を三次元的に捕捉・追尾した。

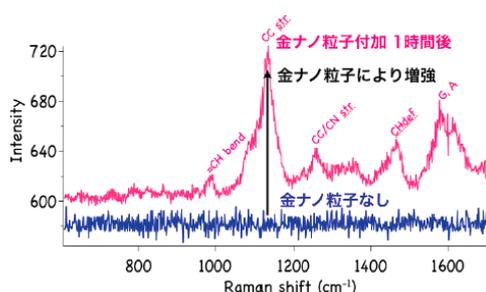


図 17 金ナノ粒子を付加し 1 時間培養した細胞のラマンスペクトル(赤線)と金ナノ粒子を付加しない細胞のラマンスペクトル(青線)

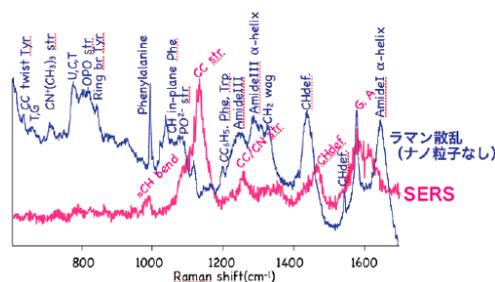


図 18 金ナノ粒子を付加しない細胞から得られたラマンスペクトルを図 17 のものより 4200 倍程高い感度で測定(青線)は図 17 と同じ。

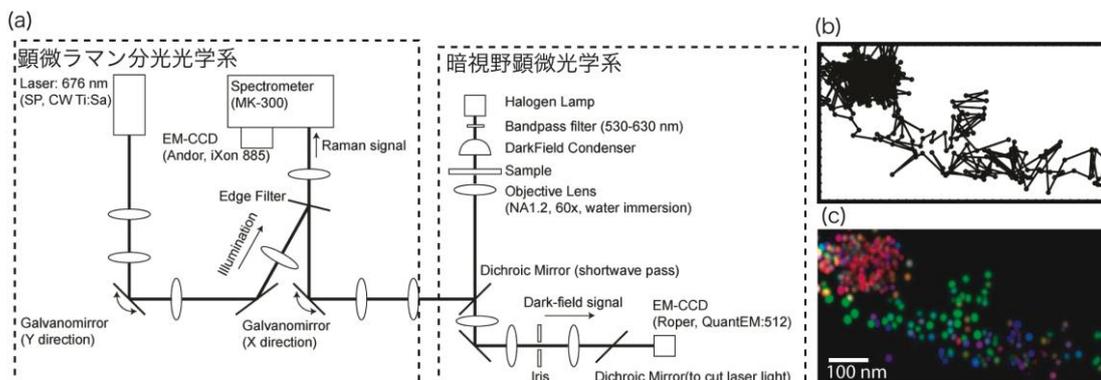


図 19 (a) 試作した装置の光学系、(b) 暗視野測定により得られた細胞内での金ナノ粒子の軌跡、(c) 粒子の軌跡に対応させて 3 つのラマンバンド (R: 977cm^{-1} , G: 1457cm^{-1} , B: 1541cm^{-1}) の強度で構築したラマン像

試作した装置を用いて、マクロファージ細胞内に導入した金ナノ粒子の位置と、そこからのラマン散乱光を同時に測定した。250ミリ秒間隔で粒子位置とラマンスペクトルの同時測定をおこなった結果、図19(b)に示すような金ナノ粒子の軌跡が得られた。さらに、同時測定したラマンスペクトルから3つのラマンバンド(977cm^{-1} :リン酸, 1457cm^{-1} :脂質, 1541cm^{-1} :蛋白質)の強度を抽出し、図19(b)の軌跡に対応させてRGB表示したラマン像を図19(c)に示す。この結果、細胞内の粒子位置に依存して観測される分子成分が異なることがわかり、細胞内の組成分布を高感度・高分解能でイメージングできる可能性が示された。

SPPプローブ(50nmΦの金ナノ粒子)を用いた生細胞イメージングの時間分解能向上のため、粒子追尾の高速化、及びSERSスペクトル計測の高速化に取り組んだ。粒子位置を捉える暗視野顕微光学系にEM-CCDを採用し、細胞内の金ナノ粒子を50msecの時間分解能で追尾することに成功した。時間分解能の向上により、SPPプローブは細胞内で、(a)直線的な運動、(b)一点に留まる運動、(c)ランダムな運動の3種類の特徴的な挙動が観測された。これらの運動中に測定した粒子の軌跡とラマンスペクトルを図20に示す。粒子が直線的な運動している時は輸送に関わる分子由来のラマンバンドが観測され(図20 (a))、一点に留まっている時は細胞器内の分子由来のラマンバンドが観測された(図20 (b))。一方、ランダムな運動時は細胞機能とは関連性のないラマンバンドが観測された(図20 (c))。これらの結果は、図20 (d)に示す様に、直線的な運動はオルガネラ輸送に対応し、一点に留まる運動はリソソームへの集積・消化に対応していることを示唆している。

さらに、オルガネラ輸送中のラマンスペクトルの時間変化を解析した結果、粒子の挙動に対応して継続して現れるピークと、突如出現し数100ミリ秒程度で消失するピークに分けられることがわかった。輸送中に継続して見られたラマンバンドは、細胞の輸送機能に関わる分子に起因する。一方、突如出現・消失したラマンバンドは、輸送機能には無関係な分子が粒子に近接・離反することに起因する。これらの結果から、SPPプローブの細胞内での挙動とラマンスペクトル変化を高時間分解能で測定することによって、細胞機能を解析できることを示した。

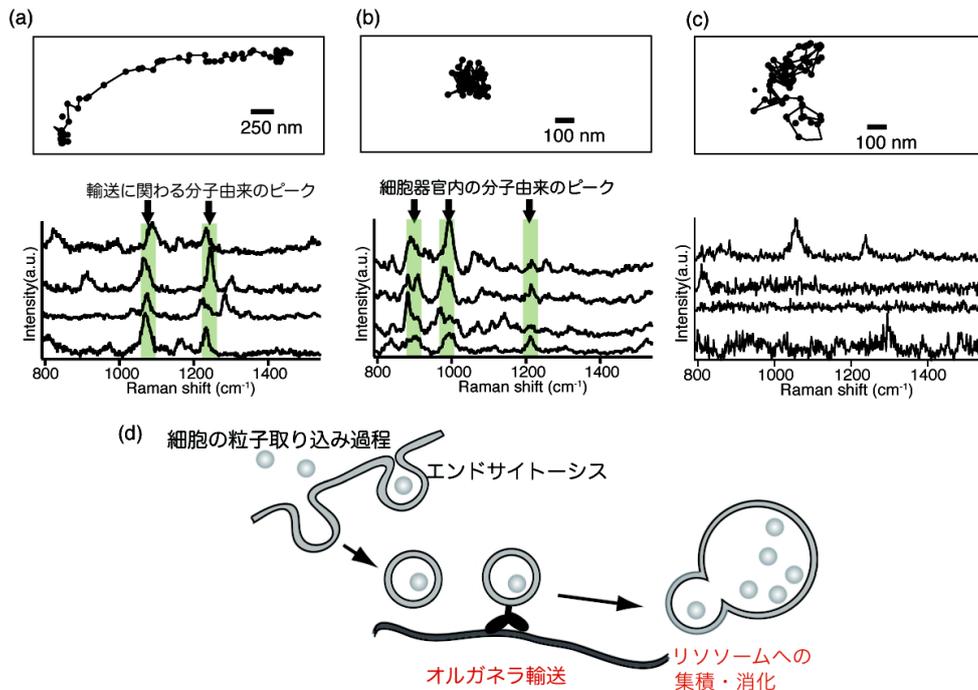


図20 マクロファージ細胞内に取り込まれた金ナノ粒子(50nmΦ)の挙動とその時のラマンスペクトル: (a)一方向的な運動、(b)一点に留まる運動、(c)ランダムな運動。(d)細胞内に取り込まれた金ナノ粒子の挙動を示した模式図。

成果:生体ラマンスペクトル解析法の開発(ナノフoton スペクトル解析グループ)

生体のラマンスペクトルには多種の生体分子の分子振動が含まれている。これは、焦点スポット内に存在する生体分子すべての分子振動が積算されるためである。ラマン散乱強度の弱いバンドは、ラマン散乱強度の強いバンドや自家蛍光のために、測定が困難となる。本研究では、煩雑な生体分子のラマンスペクトルの多変量解析をおこない、高SN比の分光画像を構築する手法を開発した。

ラマン分光画像を2次元行列データ(空間×スペクトル)として扱い、その行列を特異値と直

交系である特異ベクトルに展開した。特異値分解してえられた成分は、信号を含む成分と雑音のみの成分に分離できるため、雑音成分の特異値を0として再度2次元行列を算出し、測定したラマン分光画像のSN比の向上を図った。特異値分解はベクトルを直交展開するため、空間分布とスペクトルはともに負の値を持つ。しかし、実際は負の値をもつことはない。そこで、負の値を持たない非負条件を拘束条件とし、多変量解析の1つである Alternative least squares 法 (ALS 法)を用いて各成分の空間分布とスペクトルを求めた。非負拘束条件を加えた ALS 法の計算では、同一の空間位置に複数の成分が含まれている場合は成分分離が困難なため、各成分の空間分布が正しく得られない。そこで、非負拘束条件だけでなく空間拘束条件も加えた ALS 法の計算をおこなった。回折限界によって決まる空間分解能以下の解像度で取得した分光画像では隣り合うピクセルは類似した値を持つため、これを空間拘束条件として用いた。

HeLa 細胞のラマン分光測定データに特異値分解を適用し、信号成分と雑音成分に分離し、信号成分のみを用いて再構築することで、分光画像のノイズ除去を行った。成分分解後の各成分の特異値を図21 (a)に示す。第 8 成分以上では細胞の空間分布を示していなかったため信号成分は第 7 成分までとした。第 8 成分以上をノイズ成分とみなしそれらの特異値を0として分光画像を再構築した結果を図21(b)に示す。この場合、特異値分解を用いたノイズ処理を行う前の分光画像(図21(c))と比べて、SN比が大幅に向上した。また、特異値分解を行ったときの信号成分を含む成分数を、レーザー光強度、露光時間を変えて測定し、評価した。試料が細胞の場合、成分数は最大で9つ、最小でも4つ含まれることがわかった。

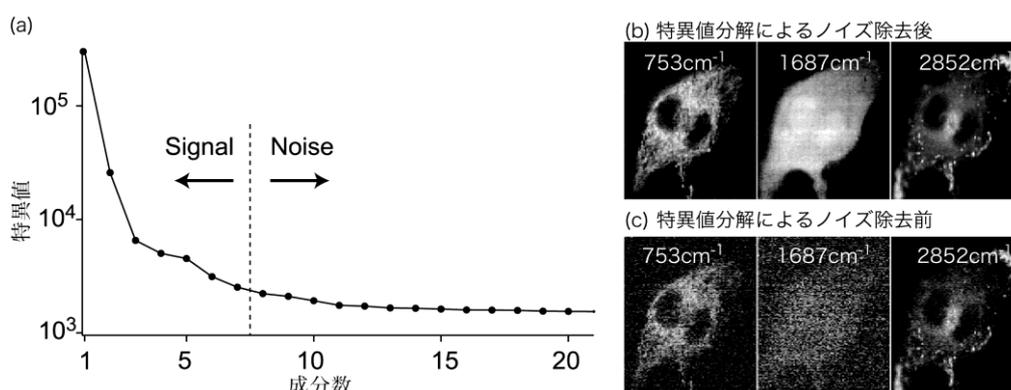


図21 (a) HeLa細胞のラマン分光画像データの特異値分解した時の各成分の特異値。特異値分解によるノイズ除去をおこなう前後のHeLa細胞のラマン分光画像:(a)ノイズ除去後,(b)ノイズ除去前。

さらに、拘束条件を加えた ALS 法を適用し、HeLa 細胞中の各成分の空間分布・スペクトルを得た。拘束条件として非負拘束条件のみを用いた結果を図22 (a)に、非負拘束条件と空間拘束条件を用いた結果を図22(b)に示す。空間拘束条件を用いることによって、空間分布の成分分離が効果的におこなわれ、同じ場所に複数の成分が含まれる場合でも、細胞内のチトクロム C (第一成分)、脂質 (第二成分)、タンパク質 (第三成分) の各成分を空間分布・スペクトル共に、分離することに成功した。また、ALS 法の計算の前処理、初期値をそれぞれ評価し、ALS 法に最適な条件を求めた。以上の結果から、非負拘束条件と空間拘束条件を用いた ALS 法は SPP 顕微鏡によって得たラマン分光データ解析には有効な手法であることを示した。

上述のアルゴリズム開発に加え、スペクトル解析用のソフトウェア開発にも取り組み、背景光となる蛍光の除去機能、主成分分析機能、スペクトルの平滑機能、ラマン散乱データベースの参照機能、ピーク検出機能等を付加し、ラマン散乱スペクトル解析ソフトウェアとしての汎用性の向上にも努めた。

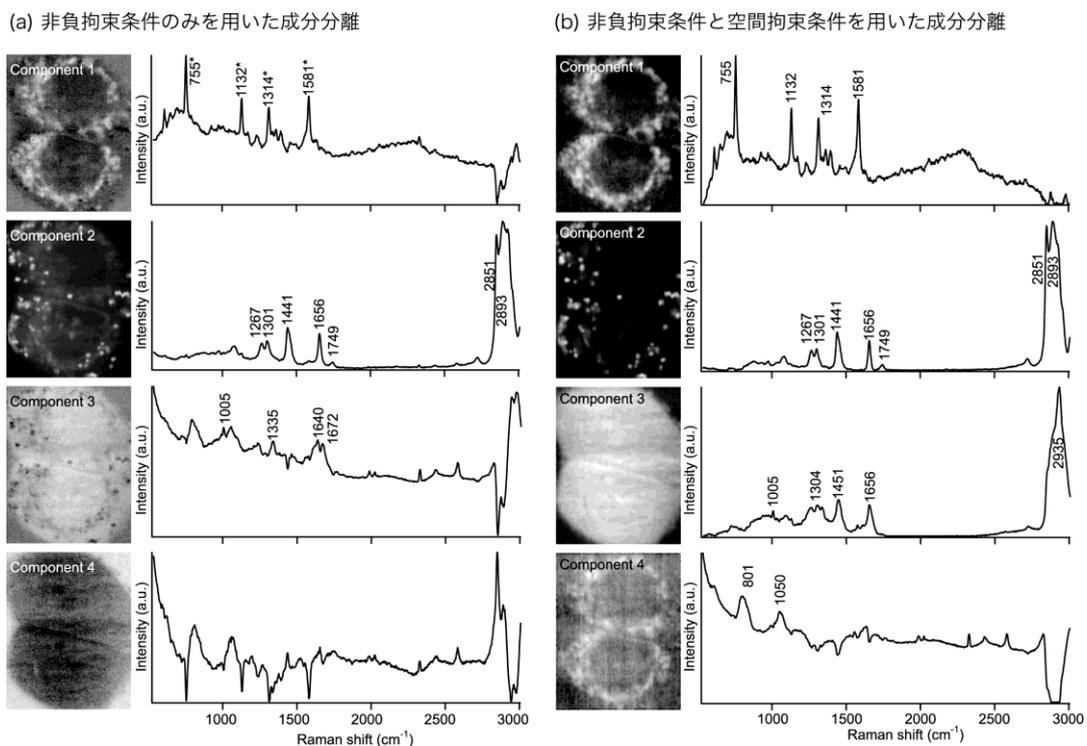


図22 拘束条件を加えたALS法により成分分離して得られた各成分の空間分布とラマンスpekトル:(a)非負拘束条件のみを用いた場合,(b)非負拘束条件と空間拘束条件を用いた場合

成果の位置づけと類似研究との比較:

本研究では、従来のラマン散乱、および表面増強ラマン散乱を用いた生体分子検出の感度を飛躍的に増大させた。従来技術においては、細胞内の分子の位置とラマン散乱スペクトルの同時検出には、もっとも高速なものでも数分の時間を要していたが、本研究で開発したシステムでは数10ミリ秒の時間分解能、数10nmの位置計測精度を実現した。粒子プローブとそこからの増強ラマンスpekトルは連続的に約24時間の観察が可能であり、長時間の細胞内の環境変化や、粒子近傍での分子の活動をモニタリングできる。

また、本研究成果は、プローブ粒子を任意に走査せずとも、その軌跡から生体内の構造や、細胞機能を可視化できる新しいイメージングを実現した。従来のカンチレバー等を用いたプローブ顕微鏡では生きた細胞内を3次元的に観察することは出来なかったが、ナノ粒子の挙動とそこからのラマン散乱スペクトルの同時検出により、細胞内の生体分子を高い空間分解能で観察することに成功した。

(2)研究成果の今後期待される効果

本研究の成果により、生体内の分子を無標識、高感度かつ高い時間分解能、空間分解能で検出することが可能になった。プローブとして用いる金属ナノ粒子の動態を利用し、生体内の様々な輸送機構や、捕食、排出といった細胞の機能の詳細な解析に利用できる。また、金属ナノ粒子表面を、タンパク質や薬剤により修飾すれば、細胞の免疫活動や薬剤への応答を分子レベルで解析することが可能になり、基礎医学、創薬分野での研究開発への応用が期待できる。

4.5 金ナノロッドアレイを用いたスキャンレス SPP ナノイメージング

(1) 研究実施内容及び成果(実施方法・実施内容・成果、成果の位置づけや類似研究との比較)

成果: スキャンを必要としない SPP ナノイメージング法を開発

SPP を利用した新規な2次元ナノイメージング法として、長距離画像伝送、超解像イメージング、カラーイメージング、拡大イメージングを同時に実現する金属ナノレンズを新たに提案した。提案した金属ナノレンズは、銀ナノロッドアレイの積層構造である。画像の伝送、イメージングには、個々の銀ナノロッドに誘起される局所的表面プラズモン共鳴を利用している。ナノロッドをアレイ化することにより光の2次元分布をアレイの反対側に結像する。共鳴波長は、銀ナノロッドのロッド長によって決まる。単一ロッドの理想形状における共鳴帯域はわずか数ナノメートルと非常に狭く、単一波長でのみ動作するが、このロッドを積層することにより、共鳴帯域数百ナノメートルと広帯域化されることを新たに発見した。FDTD 法を用いた電磁場計算により、可視領域で広帯域でナノイメージングできる金属ナノレンズを設計し、その伝送特性を検証した。

図23に、金属ナノレンズによる2次元イメージングの FDTD 計算結果を示す。ナノ光源の分布が、金属ナノレンズを伝搬し、反対側に結像されている(a)。長い1本のロッドよりもそれを分割してそれぞれの間にギャップを設けた積層構造にすることで(b)、モード数を減らしてかつ帯域を広げられる (c)。この計算結果で得られた領域はちょうど可視光全域をカバーしており、可視域全体でのイメージング、すなわちカラーイメージングを実現できることを意味する。さらに、拡大イメージング可能な金属ナノレンズも設計した。像を拡大するためには、物体側のアレイピッチに対する観察側のアレイピッチの比率を大きく取る必要がある。拡大の際、レンズ中心部に相当するロッド長と周囲のロッド長の長さが異なり、伝送可能な周波数帯域が異なる。しかし、図11(d)のような、ロッドサイズおよびギャップ長を選んでやれば、帯域ずれはわずかとなり(e)、このレンズで可視域の広い領域で拡大カラーイメージングが可能となる。

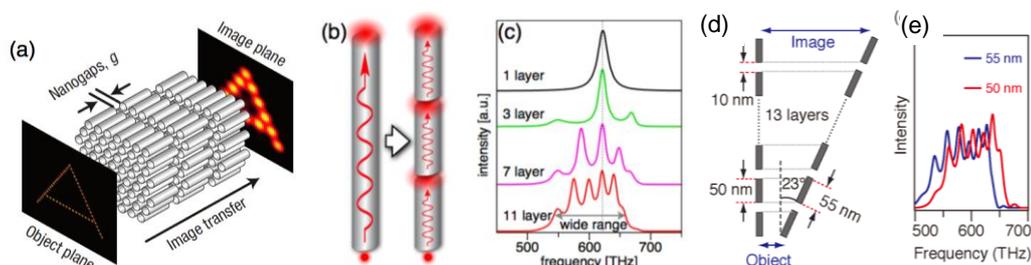


図23 (a) 金属ロッドアレイを用いたナノレンズ。ロッドを細分化(b)すると、伝搬可能な周波数帯域が広がる(c)。(d) ロッドを扇形に配すると拡大イメージングできる。この際、周波数帯域がシフトするが(d)、そのシフト量は十分小さい。

成果の位置づけと類似研究との比較:

光伝送素子として汎用的に用いられている光ファイバーの場合、その径は光の波長より小さくすることはできないが、金属ナノレンズを構成するロッドの径はいくらでも細くすることができ、光の回折限界を超えたナノスケールの分解能を実現できる。しかし、従来の金属ナノレンズではその観察像は物体と等倍であり、またその色彩も離散的な波長に限られていた。本研究では、金属ナノロッドを扇形状に束ねロッドの長さ方向にナノサイズのギャップを設けることによって、これまでの数ナノメートルという超高分解能のレンズの特性を損なうことなく、観察像の拡大およびカラー・イメージング化を実現した。

(2) 研究成果の今後期待される効果

金属ナノレンズは、蛍光や発光の空間分布を画像として拡大伝送できる。十分な拡大率を持たせれば、伝送された像を通常のレンズを用いた顕微鏡で観察可能となる。すなわち、市販の

蛍光顕微鏡の試料に金属ナノレンズを組み込むだけで、ナノ分解能の光学イメージングを実現できる。スキャンを必要としないので、一枚の画像の取得時間は通常の蛍光顕微鏡と変わらない。応用分野は、生物、医学、半導体産業など計り知れない。

§ 5 成果発表等

(1)原著論文発表 (国内(和文)誌0件、国際(欧文)誌82件)

1. Jun Ando, Katsumasa Fujita, Nicholas I. Smith and Satoshi Kawata, "Dynamic SERS imaging of cellular transport pathways with endocytosed gold nanoparticles," *Nano Lett.*, Vol. 11, No. 12, pp 5344-5348 (2011).
2. Kyoko Masui, Satoru Shoji, Kenji Asaba, Thomas C. Rodgers, Feng Jin, Xuan-Ming Duan, and Satoshi Kawata, "Laser fabrication of Au nanorod aggregates microstructures assisted by two-photon polymerization," *Optics Express*, Vol. 19, Issue 23, pp. 22786-22796 (2011).
3. Mitsuhiro Honda, Yuika Saito, Nicholas I Smith, Katsumasa Fujita, Satoshi Kawata, "Nanoscale heating of laser irradiated single gold nanoparticles in liquid," *Optics Express*, vol. 19, pp.12375-12383 (2011).
4. M.-L. Zheng, K. Fujita, W.-Q. Chen, X.-M. Duan, and S. Kawata, "Two-Photon Excited Fluorescence and Second-Harmonic Generation of the DAST Organic Nanocrystals," *J. Phys. Chem. C*, Vol. 115, No. 18, pp. 8988-8993 (2011).
5. Wei-Kang Wang, Mei-Ling Zheng, Wei-Qiang Chen, Feng Jin, Yao-Yu Cao, Zhen-Sheng Zhao, and Xuan-Ming Duan, "Microscale Golden Candock Leaves Self-Aggregated on a Polymer Surface: Raman Scattering Enhancement and Superhydrophobicity" *Langmuir*, Vol. 27, p. 3249 (2011).
6. Mitsuhiro Honda, Yuika Saito, Nicholas I Smith, Katsumasa Fujita, Satoshi Kawata, "Nanoscale heating of laser irradiated single gold nanoparticles in liquid," *Optics Express*, vol. 19, pp.12375-12383 (2011).
7. Alvarado Tarun, Norihiko Hayazawa, Taka-Aki Yano, and Satoshi Kawata, "Tip-heating-assisted Raman spectroscopy at elevated temperatures," *J. Raman Spectrosc.* 42, pp. 992-997 (2011).
8. Miyu Ozaki, Jun-ichi Kato, and Satoshi Kawata, "Surface-Plasmon Holography with White-Light Illumination," *Science*, vol. 332, No. 6026, pp.218-220 (2011).
9. Kazumasa Uetsuki, Prabhat Verma, Taka-aki Yano, Yuika Saito, Taro Ichimura, and Satoshi Kawata, "Experimental identification of chemical effects in surface enhanced Raman scattering of 4-aminothiophenol," *J. Phys. Chem. C*, Vol. 114, p.7515 (2010).
10. Alvarado Tarun, Norihiko Hayazawa, and Satoshi Kawata, "Site-Selective Cutting of Carbon Nanotubes by Laser Heated Silicon Tip," *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol. 49, p.025003 (2010).
11. Yasuaki Kumamoto, Atsushi Taguchi, Nicholas Isaac Smith, and Satoshi Kawata, "Deep UV resonant Raman spectroscopy for photodamage characterization in cells," *J. Biomed. Opt. Exp.*, vol. 2, No. 4, pp.927-936 (2010).
12. Prabhat Verma, Taro Ichimura, Taka-aki Yano, Yuika Saito, and Satoshi Kawata, "Nano-imaging through tip-enhanced Raman spectroscopy: Stepping beyond the classical limits," *Laser & Photon. Rev.*, Vol. 4, pp. 548 - 561 (2010).
13. Yuika Saito, Prabhat Verma, Kyoko Masui, Yasushi Inouye and Satoshi Kawata "Nano-scale Analysis of Graphene Layers by Tip-enhanced Near-field Raman Spectroscopy"

- J. Raman Spectrosc. Vol. 40, pp. 1434-1440 (2009).
15. Atsushi Taguchi, Norihiko Hayazawa, Kentaro Furusawa, Hidekazu Ishitobi, and Satoshi Kawata,
"Deep-UV tip-enhanced Raman scattering,"
J. Raman Spectrosc. Vol. 40, pp. 1324-1330 (2009).
 16. Taka-aki Yano, Prabhat Verma, Yuika Saito, Taro Ichimura, and Satoshi Kawata,
"Pressure-assisted tip-enhanced Raman imaging at a resolution of a few nanometres,"
Nature Photonics, Vol. 3, pp. 473-477 (2009).
 17. Yao-Yu Cao, Xian-Zi Dong, Nobuyuki Takeyasu, Takuo Tanaka, Zhen-Sheng Zhao, Xuan-Ming Duan and Satoshi Kawata,
"Morphology and size dependence of silver microstructures in fatty salts-assisted multiphoton photoreduction microfabrication,"
Appl. Phys. A, Vol. 96, pp. 453-459 (2009).
 18. Satoshi Kawata, Yasushi Inouye and Prabhat Verma,
"Plasmonics for near-field nano-imaging and superlensing"
Nature Photonics, Vol. 3, pp. 388-394 (2009).
 19. Yao-Yu Cao, Nobuyuki Takeyasu, Takuo Tanaka, Xuan-Ming Duan, and Satoshi Kawata,
"3D Metallic Nano-Structure Fabrication By Surfactant-Assisted Multi-Photon-Induced Reduction,"
Small, Vol. 5, pp. 1144-1148 (2009).
 20. Taro Ichimura, Shintaro Fujii, Prabhat Verma, Taka-aki Yano, Yasushi Inouye, and Satoshi Kawata,
"Subnanometric near-field Raman investigation in the vicinity of a metallic nanostructure,"
Phys. Rev. Lett., Vol. 102, 186101 (2009).
 21. Norihiko Hayazawa, Kentaro Furusawa, Atsushi Taguchi, Hiroshi Abe, and Satoshi Kawata,
"Tip-enhanced two-photon excited fluorescence microscopy with a silicon tip,"
Appl. Phys. Lett. Vol. 94, 193112 (2009).
 22. Takeo Minamikawa, Mamoru Hashimoto, Katsumasa Fujita, Satoshi Kawata, and Tsutomu Araki,
"Multi-focus excitation coherent anti-Stokes Raman scattering (CARS) microscopy and its applications for real-time imaging,"
Opt. Express, Vol. 17, pp. 9526-9536 (2009).
 23. Takayuki Okamoto, Janne Simonen, and Satoshi Kawata,
"Plasmonic crystal for efficient energy transfer from fluorescent molecules to long-range surface plasmons,"
Opt. Express, Vol. 16, pp. 8294-8301 (2009).
 24. Yuika Saito, and Prabhat Verma,
"Imaging and spectroscopy through plasmonic nano-probe,"
Eur. Phys. J. Appl. Phys., Vol. 46, 20101 (2009).
 25. Katsumasa Fujita, Sawako Ishitobi, Keisaku Hamada, Nicholas I. Smith, Atsushi Taguchi, Yasushi Inouye, and Satoshi Kawata,
"Time-resolved observation of surface-enhanced Raman scattering from gold nanoparticles during transport through a living cell,"
J. Biomed. Opt., Vol. 14, 024038 (2009).
 26. Atsushi Taguchi, Norihiko Hayazawa, Yuika Saito, Hidekazu Ishitobi, Alvarado Tarun, and Satoshi Kawata,
"Controlling the plasmon resonance wavelength in metal-coated probe using refractive index modification,"
Opt. Express, Vol. 17, pp. 6509-6518 (2009).
 27. Jun Ando, Nicholas I. Smith, Katsumasa Fujita, and Satoshi Kawata,
"Photogeneration of membrane potential hyperpolarization and depolarization in non-excitable cells,"
European Biophysics Journal, Vol. 38, pp. 255-262 (2009).
 28. Hidekazu Ishitobi, Takamasa Kai, Katsumasa Fujita, Zouheir Sekkat, and Satoshi Kawata,
"On Fluorescence Blinking of Single Molecules in Polymers,"

- Chem. Phys. Lett., Vol. 468, pp. 234-238 (2009).
29. Almar Palonpon, Taro Ichimura, Prabhat Verma, Yasushi Inouye and Satoshi Kawata, "Halide-ion-assisted Increase of Surface-enhanced Hyper-Raman Scattering: A Clear Observation of the Chemical Effect," *J. Raman Spectrosc.*, Vol. 40, pp. 119-120 (2009).
 30. Norihiko Hayazawa, Kentaro Furusawa, Atsushi Taguchi, and Satoshi Kawata, "One-Photon and Two-Photon Excited Fluorescence Microscopy Based on Polarization-Control: Applications to Tip-Enhanced Microscopy," *J. Appl. Phys.* Vol. 106, 113103 (2009).
 31. Z. Sekkat, H. Ishitobi, M. Tanabe, S. Shoji, and S. Kawata, "Surface Nanofabrication in Photosensitive Polymers at the diffraction limit of light and down to 47 nm by Metal Tip-Enhanced Near Field light: Light Induced Nanomovement of Polymers," *M. J. Condensed Matter* Vol. 11, pp. 111-117 (2009).
 32. Norihiko Hayazawa, Alvarado Tarun, Atsushi Taguchi, and Satoshi Kawata, "Development of Tip-Enhanced Near-Field Optical Spectroscopy and Microscopy," *Jpn. J. Appl. Phys.* 48, 08JA02 (2009).
 33. Alvarado Tarun, Norihiko Hayazawa, and Satoshi Kawata, "Tip-enhanced Raman spectroscopy for nanoscale strain characterization," *Anal. Bioanal. Chem.*, Vol. 394, pp. 1775-1785 (2009).
 34. Satoshi Kawata, Atsushi Ono, and Prabhat Verma, "Subwavelength colour imaging with metallic nanolens," *Nature Photonics* Vol. 2, pp. 438-442 (2008).
 35. Yuika Saito, Minoru Kobayashi, Daigo Hiraga, Katsumasa Fujita, Shogo Kawano, Nicholas Smith, Yasushi Inouye, and Satoshi Kawata, "Z-polarization sensitive detection in micro Raman spectroscopy by radially polarized incident light," *J. Raman Spectrosc.* Vol. 39, Issue 11, pp. 1643-1648 (2008).
 36. Yuika Saito, Masashi Motohashi, Norihiko Hayazawa, Satoshi Kawata, "Stress imaging of semiconductor surface by tip-enhanced Raman spectroscopy," *J. Microsc.*, 229, 217-222 (2008).
 37. Almar Palonpon, Taro Ichimura, Prabhat Verma, Yasushi Inouye, Satoshi Kawata, "Direct Evidence of Chemical Contribution to Surface-enhanced Hyper-Raman Scattering," *Appl. Phys. Express*, Vol. 1, Art. No. 092401 (2008).
 38. Atsushi Taguchi, Shintaro Fujii, Taro Ichimura, Prabhat Verma, Yasushi Inouye, and Satoshi Kawata, "Oxygen-assisted shape control in polyol synthesis of silver nanocrystals," *Chem. Phys. Lett.*, Vol. 462, pp. 92-95 (2008).
 39. Alvarado Tarun, Norihiko Hayazawa, Masashi Motohashi, and Satoshi Kawata, "Highly efficient tip-enhanced Raman spectroscopy and microscopy of strained silicon in nanoscale," *Rev. Sci. Instrum.*, Vol. 79, No. 013706 (2008).
 40. Masashi Motohashi, Norihiko Hayazawa, Alvarado Tarun, and Satoshi Kawata, "Depolarization effect in reflection-mode tip-enhanced Raman scattering for Raman active crystals," *J. Appl. Phys.*, Vol. 103, No. 034309 (2008).
 41. Atsushi Ono, Kyoko Masui, Yuika Saito, Takao Sakata, Atsushi Taguchi, Masashi Motohashi, Taro Ichimura, Hidekazu Ishitobi, Alvarado Tarun, Norihiko Hayazawa, Prabhat Verma, Yasushi Inouye, and Satoshi Kawata, "Active Control of the Oxidization of a Silicon Cantilever for the Characterization of Silicon-based Semiconductors," *Chem. Lett.*, Vol. 37, No. 1, pp. 122-123 (2008).
 42. Jun Ando, Godofredo Bautista, Nicholas Smith, Katsumasa Fujita, and Vincent Daria, "Optical trapping and surgery of living yeast cells using a single laser," *Rev. Sci. Instr.*, Vol. 79, 103705 (2008).

43. Masahito Yamanaka, Shogo Kawano, Katsumasa Fujita, Nicholas I Smith, and Satoshi Kawata, "Beyond the diffraction limit biological imaging by saturated excitation (SAX) microscopy," *J. Biomed. Opt.*, Vol. 13, 050507 (2008).
44. Thomas Rodgers, Satoru Shoji, Zouheir Sekkat, and Satoshi Kawata, "Selective aggregation of single-walled carbon nanotubes using the large optical field gradient of a focussed laser beam," *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 101, 127402 (2008).
45. Hirohiko Niioka, Nicholas I. Smith, Katsumasa Fujita, Yasuhi Inouye, and Satoshi Kawata, "Femtosecond laser nano-ablation in fixed and non-fixed cultured cells" *Opt. Express*, Vol. 16, pp. 14476-14495 (2008).
46. Remo Proietti Zaccaria, Prabhat Verma, Satoshi Kawaguchi, Satoru Shoji, and Satoshi Kawata, "Manipulating full photonic band gaps in two dimensional birefringent photonic crystals", *Opt. Express*, Vol. 16, pp. 14812-14820 (2008).
47. Hidekazu Ishitobi, Satoru Shoji, Tsunemi Hiramatsu, Hong-Bo Sun, Zouheir Sekkat, and Satoshi Kawata, "Two-photon induced polymer nanomovement," *Opt. Express*, Vol. 16, pp. 14106-14114 (2008).
48. Jing Feng, Takayuki Okamoto, Ryo Naraoka, and Satoshi Kawata, "Enhancement of surface plasmon-mediated radiative energy transfer through a corrugated metal cathode in organic light-emitting devices," *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 93, pp. 051106-051108 (2008).
49. Yuka Ikemoto, Taro Moriwaki, Hidekazu Okamura, Takahiko Sasaki, Naoki Yoneyama, Atsushi Taguchi, Yasushi Inouye, Satoshi Kawata, and Toyohiko Kinoshita, "Broad band infrared near-field spectroscopy at finger print region Using SPring-8," *Infrared Phys. Technol.*, Vol. 51, pp. 417-419 (2008).
50. Keisaku Hamada, Katsumasa Fujita, Nicholas Smith, Minoru Kobayashi, Yasushi Inouye, and Satoshi Kawata, "Raman microscopy for dynamic molecular imaging of living cells," *J. Biomed. Opt.*, 13, 044027 (2008).
51. Robert Westlund, Cesar Lopes, Eva Malmstrom, Thomas Rodgers, Yuika Saito, Satoshi Kawata, Eirik Glimsdal, and Mikael Lindgren, "Efficient Nonlinear Absorbing Platinum(II) Acetylide Chromophores in Solid PMMA Matrices," *Adv. Func. Mat.*, Vol. 18, pp. 1939-1948 (2008).
52. Nicholas I. Smith, Yasuaki Kumamoto, Shigeki Iwanaga, Jun Ando, Katsumasa Fujita, and Satoshi Kawata, "A femtosecond laser pacemaker for heart muscle cells," *Opt. Express* Vol. 16, pp. 8604-8616 (2008).
53. Sana Nakanishi, Satoru Shoji, Hirofumi Yoshikawa, Zouheir Sekkat, and Satoshi Kawata, "Size dependent of transition temperature in polymer nanowires," *J. Phys. Chem. B.*, Vol. 112, 3586 (2008).
54. Satoru Shoji, Hidemasa Suzuki, Remo Proietti Zaccaria, Zouheir Sekkat, and Satoshi Kawata, "Optical polarizer made of uniaxially aligned short single-wall carbon nanotubes embedded in a polymer film," *Phys. Rev. B*, Vol. 77, 153407 (2008).
55. Takayuki Okamoto, Janne Simonen, and Satoshi Kawata, "Plasmonic band gaps of structured metallic thin films evaluated from a surface plasmon laser using the coupled-wave approach," *Phys. Rev. B*, Vol. 77, 115425 (2008).
56. Zheng-Bin Sun, Xian-Zi Dong, Wei-Qiang Chen, Sana Nakanishi, Xuan-Ming Duan, and Satoshi Kawata, "Multicolor polymer nanocomposites in situ synthesis and three-dimensional microstructures fabrication," *Adv. Mater.*, Vol. 20, No. 5, pp. 914-919 (2008).
57. Kenji Takada, Koshiro Kaneko, Yu-Dong Li, Satoshi Kawata, Qi-Dai Chen, and Hong-Bo Sun,

- "Temperature effects on pinpoint photopolymerization and polymerized micronanostructures," Appl. Phys. Lett., Vol. 92, No. 041902 (2008).
58. Qi Ya, Xian-Zi Dong, Wei-Qiang Chen, Satoru Shoji, Sana Nakanishi, Xuan-Ming Duan, and Satoshi Kawata,
"Dual Photonic Bandgap and Reversible Tuning of 3D Photonic Crystal Fabricated by Multiphoton Polymerization with Photoresponsive Polymer,"
Appl. Phys. A: Mater. Sci. Proc., 93(2), 393-398 (2008).
 59. Zheng-Bin Sun, Xian-Zi Dong, Wei-Qiang Chen, Sana Nakanishi, Xuan-Ming Duan, and Satoshi Kawata,
"Multicolor Polymer Nanocomposites: In Situ Synthesis and Three-Dimensional Microstructures Fabrication,"
Adv. Mater., 20(5), 914-919 (2008).
 60. Zheng-Bin Sun, Xian-Zi Dong, Wei-Qiang Chen, Satoru Shoji, Xuan-Ming Duan, and Satoshi Kawata,
"2D and 3D Micro/Nanostructure Patterning of CdS-Polymer Nanocomposites with Laser Interference Technique and In Situ Synthesis,"
Nanotechnology, 19(3), 035611 (2008).
 61. Taka-aki Yano, Taro Ichimura, Atsushi Taguchi, Norihiko Hayazawa, Prabhat Verma, Yasushi Inouye, and Satoshi Kawata,
"Confinement of enhanced field investigated by tip-sample gap regulation in tapping-mode tip-enhanced Raman microscopy,"
Appl. Phys. Lett., Vol. 91, No. 121101 (2007).
 62. Taro Ichimura, Hiroyuki Watanabe, Yasuhiro Morita, Prabhat Verma, Satoshi Kawata, and Yasushi Inouye,
"Temporal fluctuation of tip-enhanced Raman spectra of adenine molecules,"
J. Phys. Chem. C, Vol. 111, No. 26, pp. 9460-9464 (2007).
 63. Norihiko Hayazawa, Masashi Motohashi, Yuika Saito, Hidekazu Ishitobi, Atsushi Ono, Taro Ichimura, Prabhat Verma, and Satoshi Kawata,
"Visualization of localized strain of crystalline in nano-scale by tip-enhanced Raman spectroscopy & microscope,"
J. Raman Spectrosc., Vol. 38, Issue 6, pp. 684-696 (2007).
 64. Ryota Matsui, Prabhat Verma, Taro Ichimura, Yasushi Inouye, and Satoshi Kawata,
"Nano-analysis of crystalline properties of GaN thin-film using tip-enhanced Raman spectroscopy,"
Appl. Phys. Lett., Vol. 90, Art. No. 061906 (2007).
 65. Norihiko Hayazawa, Hidekazu Ishitobi, Atsushi Taguchi, Alvarado Tarun, Katsuyoshi Ikeda, and Satoshi Kawata,
"Focused Excitation of Surface Plasmon Polaritons Based on Gap-Mode in Tip-Enhanced Spectroscopy,"
Jpn. J. Appl. Phys. 46, 12, 7995-7999 (2007).
 66. Katsumasa Fujita, Minoru Kobayashi, Shogo Kawano, Masahito Yamanaka, and Satoshi Kawata,
"High-resolution confocal microscopy by saturated excitation of fluorescence,"
Phys. Rev. Lett., Vol.99, 228105 (2007).
 67. Atsushi Ishikawa, Takuo Tanaka, and Satoshi Kawata,
"Magnetic excitation of magnetic resonance in metamaterials at far-infrared frequencies,"
Appl. Phys. Lett., Vol. 91, No. 113118 (2007) .
 68. Hidekazu Ishitobi, Mamoru Tanabe, Zouheir Sekkat, and Satoshi Kawata,
"Nanomovement of azo polymers induced by metal tip enhanced near-field irradiation,"
Appl. Phys. Lett., Vol. 91, 091911 (2007).
 69. Sana Nakanishi, Satoru Shoji, Satoshi Kawata, Hong-Bo Sun,
"Giant Elasticity of Photopolymer Nanowires,"
Appl. Phys. Lett., Vol. 91, 063112 (2007).
 70. Hidekazu Ishitobi, Mamoru Tanabe, Zourheir Sekkat, Satoshi Kawata,
"The anisotropic nanomovement of azo-polymers,"

- Opt. Express, Vol. 15, pp.652-659 (2007).
71. Atsushi Ishikawa, Takuo Tanaka, Satoshi Kawata,
"Frequency dependence of the magnetic response of split-ring resonators,"
J. Opt. Soc. Am. B, Vol.24, pp.510-515 (2007).
 72. Z.-B. Sun, X.-Z Dong, S. Nakanishi, W.-Q Chen, X.-M. Duan, S. Kawata,
Log-pile photonic crystal of CdS-polymer nanocomposites fabricated by combination of
two-photon polymerization and in situ synthesis,"
Appl. Phys. A, Vol. 86, pp.427-431 (2007).
 73. Jie Gu, Yulan Wang, Wei-Qiang Chen, Xian-Zi Dong, Xuan-Ming Duan, S. Kawata,
Carbazole-based 1D and 2D hemicyanines: synthesis, two-photon absorption properties and
application for two-photon photopolymerization 3D lithography,"
New J. Chem., Vol. 31, pp.63-68 (2007).
 74. Nobuyuki Takeyasu, Takuo Tanaka, and Satoshi Kawata,
"Fabrication of 3D metal/polymer microstructures by site-selective metal coating,"
Appl. Phys. A 90, 2, 205-209 (2007).
 75. Jin-Feng Xing, Wei-Qiang Chen, Xian-Zi Dong, Takuo Tanaka, Xiang-Yun Fang, Xuan-Ming
Duan, and Satoshi Kawata,
"Synthesis, optical and initiating properties of new two-photon polymerization initiators:
2,7-Bis(styryl)anthraquinone derivatives,"
J. Photochem. Photobiology A: Chem. 189, 23, 398-404 (2007).
 76. Katsuyoshi Ikeda, Yuika Saito, Norihiko Hayazawa, Satoshi Kawata, and Kohei Uosaki,
"Resonant hyper-Raman scattering from carbon nanotubes,"
Chem. Phys. Lett. 438, 109-112 (2007).
 77. Jing Feng, Takayuki Okamoto, Janne Simonen, and Satoshi Kawata,
"Color-tunable electroluminescence from white organic light-emitting devices through coupled
surface plasmons,"
Appl. Phys. Lett. 90, 8, 081106 (2007).
 78. Takuo Tanaka and Satoshi Kawata,
"Three-Dimensional Multilayered Optical Memory Using Two-Photon Induced Reduction of
Au³⁺ Doped in PMMA,"
IEEE Trans. Magn. 43, 2, 828-831 (2007).
 79. Hidekazu Ishitobi, Zouheir Sekkat, and Satoshi Kawata,
"Ordering of azobenzenes by two-photon isomerization,"
J. Chem. Phys., Vol. 125, 164718 (2006).
 80. Satoshi Kawata and Prabhat Verma,
"Optical Nano-Imaging of Materials: Peeping Through Tip-Enhanced Raman Scattering,"
CHIMIA, Vol. 60, NO.11, pp. 770-776 (2006).
 81. Takeo Minamikawa, Naoki Tanimoto, Mamoru Hashimoto, Tsutomu Araki, Minoru Kobayashi,
Katsumasa Fujita, and Satoshi Kawata,
"Jitter reduction of two synchronized picosecond mode-locked lasers using balanced
cross-correlator with two-photon detectors",
Appl. Phys. Lett., Vol. 89, No. 19, Art. No. 191101 (2006).
 82. Norihiko Hayazawa, Hiroyuki Watanabe, Yuika Saito, and Satoshi Kawata,
"Towards atomic site-selective sensitivity in tip-enhanced Raman spectroscopy,"
J. Chem. Phys., Vol. 125, 244706 (2006).

(2)その他の著作物(総説、書籍など)

【解説論文】

1. 河田聡,
"プラズモニクスの未来を探る,"
応用物理, Vol. 80, No. 9 pp.0757-0765 (2011).
2. 市村垂生, 河田 聡,
"近接場ラマン顕微鏡によるナノメートル観察,"

- 生物物理, Vol. 50, No. 6, pp.300-301 (2010).
3. 河田聡, 市村垂生,
“プラズモニクスとナノイメージング,”
OPTRONICS, Vol. 29, No. 341, pp. 81-84 (2010).
 4. 河田聡,
“プラズモニクス: 新しいナノフォトニクス,”
学術の動向, Vol. 15, No. 9 pp.75-77, (2010).
 5. 安藤 潤, 藤田克昌,
“金属ナノ粒子を用いた細胞の増強ラマンイメージング,”
レーザー研究, Vol. 38, No. 6, pp.427-432 (2010).
 6. 藤田克昌, 安藤 潤,
“プラズモニクスで映し出す細胞内の分子,”
 7. オプトロニクス,
Vol.29 No. 341, pp.104-107 (2010).
 8. 藤田克昌,
“ラマン散乱を用いた無標識分子イメージング,”
日本レーザー医学会誌, Vol. 30, No.4, pp.416-420 (2010).
 9. 藤田克昌, 河田 聡,
“生体分子のマイクロ/ナノ分光イメージング,”
応用物理, Vol.78, No.12, pp. 1118-1122 (2009).
 10. 河田 聡, 市村垂生, 矢野隆章,
“プラズモニクスと近接場顕微鏡: 温故知新,”
光技術コンタクト, Vol. 47, No. 11, pp. 10-16 (2009).
 11. 藤田克昌,
“回折限界をどう超えるか -超解像蛍光イメージング-,”
光学, Vol. 38, No. 7 (2009).
 12. 河田聡,
“プラズモニクスとナノ分光学,”
分光研究, Vol. 58, pp. 106 (2009).
 13. 河田聡,
“ナノプラズモニクス: どこから来てどこへ行くのか,”
オプトロニクス, Vol. 28, No. 2, pp. 138-144 (2009)
 14. 河田 聡, 齊藤結花, 井上康志,
“局在プラズモンを用いた近接場ラマンイメージング: 可視光を使ってナノを見る,”
日本物理学会誌, Vol.63, No.9, pp. 678-686 (2008).
 15. 藤田克昌,
“細胞の無標識分子イメージング,”
顕微鏡, Vol. 43, No. 4, pp. 268-272 (2008).
 16. 河田 聡,
“特集: プラズモニクスが拓く光デバイスの新展開,”
レーザー研究, Vol.36, No.3, pp. 111-116 (2008).
 17. 藤田 克昌,
“光の限界を超えたレーザー顕微鏡,”
別冊化学 分子イメージング, pp. 88-89 (2007).
 18. 市村 垂生, 河田 聡,
“DNA を光でどこまで見ることができるか?”
高分子, Vol. 56, pp. 441-445 (2007).
 19. 河田 聡,
“レーザー走査ラマン顕微鏡・開発物語,”

- 光学, Vol. 36, pp. 2-5 (2007).
20. 藤田克昌, 河田聡,
“回折限界を突破したレーザー顕微鏡 – 線形現象に現れる非線形応答の利用-,”
オプトロニクス, Vol.25, No.300, pp.78-83 (2006).

【著書】

1. Satoshi Kawata and Vladimir M. Shalaev (Eds.),
“Advances in Nano-Optics and Nano-Photonics: Tip Enhancement,” pp.1-323.
(Elsevier B. V., The Netherlands, January 2007).
- Yasushi Inouye, Prabhat Verma, Taro Ichimura and Satoshi Kawata
“Near-field effects in tip-enhanced Raman scattering,” pp.87-112.
2. Vladimir M. Shalaev and Satoshi Kawata (Eds.),
“Advances in Nano-Optics and Nano-Photonics: Nanophotonics with Surface Plasmons,”
(Elsevier B. V., The Netherlands, January 2007).
3. Hiroshi Masuhara, Satoshi Kawata and Fumio Tokunaga (Eds.),
“Nano Biophotonics: Science and Technology,” (Elsevier B. V., The Netherlands, March,
2007).
- Prabhat Verma, Katsumasa Fujita, Taro Ichimura, and Satoshi Kawata,
“Raman CARS and near-field Raman-CARS microscopy for cellular and molecular imaign,” pp.
57-71
- Nicholas Smith, Shigeki Iwanaga, Hirohiko Niioka, Katsumasa Fujita, and Satoshi Kawata,
“Subcellular effects of femtosecond laser irradiation,” pp. 255-272
4. Satoshi Kawata, Vladimir M. Shalaev and Din-Ping Tsai (Eds.),
“Plasmonics (Proceedings of SPIE)” (SPIE Society of Photo-Optical Instrumentation
Engineering, USA, 2006).
5. Bharat Bhushan, Harald Fuchs and Satoshi Kawata (Eds.),
“Applied Scanning Probe Methods V: Scanning Probe Microscopy Techniques,”
(Springer-Verlag, Germany, 2006).
6. Bharat Bhushan and Satoshi Kawata (Eds.),
“Applied Scanning Probe Methods VI: Characterization,” (Springer-Verlag, Germany, 2006),
- Norihiko Hayazawa and Yuika Saito,
“Tip-Enhanced Spectroscopy for Nano Investigation of Molecular Vibrations,” pp. 257-285.
7. Bharat Bhushan and Satoshi Kawata (Eds.),
“Applied Scanning Probe Methods VII: Biomimetics and Industrial Applications,”
(Springer-Verlag, Germany, 2006).
8. Katrin Kneipp, Martin Moskovits and Harald Kneipp (Eds.),
“Surface-enhanced Raman Scattering: Physics And Applications (Topics in Applied Physics),”
(Springer-Verlag Berlin Heidelberg 2006).
- Prabhat Verma, Yasushi Inouye and Satoshi Kawata,
“Tip-Enhanced Near-Field Raman Scattering: Fundamentals and New Aspects for Molecular
Nanoanalysis/Identification,” pp. 241-260.
9. 河田聡 監修 梅田倫弘, 川田善正, 羽根一博 編集,
“ナノオプティクス・ナノフォトニクスのすべて-ナノ光技術の基礎から応用まで-” (フロンティア
出版, 東京, 2006).
10. 藤田克昌, 河田聡,
“新しいレーザー顕微鏡,”
日本化学会編 “実験化学講座第 5 版 分析化学,” pp. 632-641 (丸善株式会社, 2007 年 1
月).

(3)国際学会発表及び主要な国内学会発表

① 招待講演 (国内会議 74 件、国際会議 95 件)

1. Satoshi Kawata, "Nanophotonics and Plasmonics ," Nanophotonics and Plasmonics
Metamaterials Workshop (Taipei, Taiwan, 11 Jan., 2012).

2. Satoshi Kawata, "Nanophotonics and Plasmonics ," NanoPhotonics 2012 (Beijing, China, 14 Feb., 2012).
3. Katsumasa Fujita, "High-resolution confocal microscopy using optical saturation and nonlinear excitation," 第20回バイオイメージング学会 国際シンポジウム (千歳, 2011年9月1-2日).
4. Yuika Saito, "Development of UV Plasmonics and Microscopic Techniques," the 6th Photonics Center Symposium "Nanophotonics in Asia 2011", (Wakayama, Sep. 20-21, 2011).
5. Prabhat Verma, "TERS in the sub-nanometric vicinity of a metallic tip," Tip Enhanced Raman Spectroscopy (TERS II), (Teddington, Jul. 5-6, 2011).
6. Satoshi Kawata, "Imaging and analysis of molecules in nano-resolution: plasmonics can make it!," Stanford Optical Society (California, USA, 18 July, 2011).
7. Katsumasa Fujita, "Raman microscopy for visualization of cellular functions," RIKEN CDB-QBiC Joint Symposium (Kobe, Jun. 30 - Jul. 1, 2011).
8. K. Furusawa, N. Hayazawa, and S. Kawata, "Broadband near-field nonlinear spectroscopy & microscopy," European Conference on Nonlinear Spectroscopy (ECONOS2011) and European CARS Workshop, (Twente, Netherland, May23-25, 2011).
9. Satoshi Kawata, "What TERS microscopy can do, SERS cannot," Focus on Microscopy 2011 (FOM2011), (Konstanz, Germany, 19 April, 2011).
10. Satoshi Kawata, "Plasmonics: Spectroscopy and Applications to Nanoscience," INTERNATIONAL NANO-PHOTONICS SYMPOSIUM (Taiwan, March 15, 2011).
11. Satoshi Kawata, "Tip-enhanced Raman microscopy for nano-resolution imaging: the latest progress," Pacifichem2010 (Hawaii December 15, 2010).
12. Satoshi Kawata, "Plasmonics: a new functional nanophotonics," PHOTONICS2010 (India December 11, 2010).
13. Satoshi Kawata, "Plastic Identification Sensor with Five Wavelength Laser Diodes used in Recycling Robot," OSA FiO2010/Laser ScienceXXVI (Rochester October 24, 2010).
14. Satoshi Kawata, "Near-field scanning Raman microscopy in Deep UV," NFO-11 (Beijing August 29, 2010).
15. Satoshi Kawata, "Tip-enhanced Raman microscopy: a new SPM for nano-imaging and analysis," ICN+T2010 (Beijing August 27, 2010).
16. Satoshi Kawata, "Tip-pressurized near-field Raman microscopy: a breakthrough towards molecular resolution," ICORSXXII (Boston, August 8, 2010).
17. Satoshi Kawata, "Plasmonics for Nano-imaging and Spectroscopy: Can We Resolve a Nanometer with Color?," SPIE Optics+Photonics "Nanoscience+Engineering" (San Diego August 2, 2010).
18. Norihiko Hayazawa, Kentaro Furusawa, and Satoshi Kawata, "Towards Tip-enhanced Nonlinear Raman Spectroscopy & Nanoscopy," The 41st Winter Colloquium on the Physics of Quantum Electronics (PQE-2011), (January 2-6, Snowbird Utah, USA, 2011).
19. Prabhat Verma, The European SPIE Conference on Nanophotonics, (Brussels, Belgium, April. 12-16, 2010).
20. Prabhat Verma, Taka-aki Yano, Yuika Saito, Taro Ichimura, and Satoshi Kawata, "High resolution optical imaging through plasmonics and beyond plasmonics," Gordon Research Conference (Waterville, ME, USA, June 13-18, 2010).
21. Katsumasa Fujita, "Raman microscopy for imaging molecular dynamics of living cells", Pacifichem2010 (Hawaii, December, 2010).
22. Katsumasa Fujita, "Super resolution imaging", JSPS Japan-American Frontiers of Science Symposium (Chiba, December, 2010).
23. Katsumasa Fujita, "Direct visualization of biological functions by Raman microscopy", The 16th Takeda Scienc Foundation Symposium on Bioscience (Tokyo, December, 2010).
24. Katsumasa Fujita, "Label-free molecular imaging of living cell by using Raman scattering," The 25th Conference of Korean Society for Cell Biology (Cheon-An, Korea, July 9, 2010).
25. X.-M. Duan, "Nanofabrication Based on Nonlinear Photonics towards Application in Functional Devices," The 5th Symposium of Photonics Advanced Research Center of Osaka University: Photonics in Asia, (Ise-Shima, Japan, September 7-8, 2010).
26. X.-M. Duan, "3D microstructures of functional materials fabricated by multiphoton

- processing," SPIE Optics + Photonics 2010, (San Diego, California, USA, August 1-5, 2010).
27. X.-M. Duan, "Multiphoton Nanolithography of Functional Materials towards Applications of MEMS/NEMS," The 7th International Workshop on Functional and Nanostructured Materials (FNMA'2010), (Malta, July 16-20, 2010).
 28. Satoshi Kawata, "Plasmonics: a new functional photonics," International Conference on Organic Photonics and Electronics (ICOPE2009) & The 11th International Conference on Organic Nonlinear Optics (ICONO11), (Beijing, China, September 22, 2009).
 29. Xuan-Ming Duan, "Multiphoton Nanofabrication of Functional Materials: From Polymers to Nobel Metals," International Conference on Organic Photonics and Electronics (ICOPE2009) & The 11th International Conference on Organic Nonlinear Optics (ICONO11), (Beijing, China, September 22, 2009).
 30. Xuan-Ming Duan, "Fabrication of 3D Silver Nanostructures with Multiphoton Laser Direct Writing," ChinaNano 2009 -International Conference on Nanoscience and Technology, China 2009, (Beijing, China, September 1, 2009).
 31. Prabhat Verma, Taro Ichimura, Taka-aki Yano and Satoshi Kawata "Tip-enhanced Raman spectroscopic measurements in the sub-nanometric vicinity of a metallic tip," The 8th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics (Shanghai, China, August 30, 2009).
 32. Satoshi Kawata, "Plasmonic nano lens for nanoimaging," The 8th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics (Shanghai, China, August 30, 2009).
 33. Xuan-Ming Duan, "Multiphoton Processing of Functional Materials toward Applications in Fabrication of Nanodevices," KJF International Conference on Organic Materials for Electronics and Photonics, (Jeju, Korea, August 23, 2009).
 34. Satoshi Kawata, "Magnified color imaging through plasmonic nanolens," SPIE Plasmonics: Nanostructures and optical properties (San Diego, USA, August 5, 2009).
 35. Satoshi Kawata, "Plasmonics in UV for nano-imaging and analysis," SPIE Plasmonics; Nanoimaging, Nanofabrication, and Their Applications V (San Diego, USA, August 2, 2009).
 36. Xuan-Ming Duan, "Multiphoton Nanofabrication of Functional Materials and Applications," The 7th Cross-Strait Workshop on Nanoscience and Nanotechnology, (Guiyang, China, July 27, 2009).
 37. Katsumasa Fujita, Joint International Conference of Biophysics and 14th Annual Conference of the Biophysical Society of ROC (Tainan, 26 June 2009).
 38. Xuan-Ming Duan, "Multiphoton Nanofabrication for 3D Nanostructures of Functional Materials toward Photonic Applications" Nanophotonics Down Under 2009: Devices and Applications, (Melbourne, Australia, June 24, 2009).
 39. Satoshi Kawata, "Nanophotonics: walking beyond the classical limits of light," Nanophotonics Down Under (Melbourne, Australia, June 23, 2009).
 40. Satoshi Kawata, "Plasmonic nano-imaging with nano-tip and nano-rods," ETOPIM8 (Rethymnon, Crete, Greece, June 7, 2009).
 41. Satoshi Kawata, "Two-photon reduction for fabrication of three-dimensional metamaterials," CLEO/IQEC 2009 (Baltimore, Maryland, June 4, 2009).
 42. Prabhat Verma, "Subwavelength Color imaging with plasmonic nanolens," 4th International Conference on Surface Plasmon Photonics, (Amsterdam, The Netherlands, June 21, 2009).
 43. Prabhat Verma, "Plasmonic Nanolens for Subwavelength Color Imaging," Annual International Conference - Days on Diffraction, (St. Petersburg, Russia, May 26, 2009).
 44. Norihiko Hayazawa, 8th European Conference on Nonlinear Spectroscopy and 28th European CARS Workshop, (Rome, Italy, May 25, 2009).
 45. Satoshi Kawata, "Nanoimaging through plasmonics and beyond plasmonics," Finnish-Japanese WS on Functional Materials (Helsinki, Finland, May 25, 2009).
 46. Satoshi Kawata, "Plasmonics for nano-imaging and nano-analysis," The 2nd A*STAR-RIKEN Joint Symposium (Biopolis, Singapore, May 18, 2009).
 47. Prabhat Verma, "Subwavelength Magnified Color Imaging with silver Nanolens," The International Conference on Nanophotonics 2009, (Harbin, China, May 11, 2009).
 48. Satoshi Kawata, "Subwavelength color imaging with metallic nanolens," MRS Spring Meeting (San Francisco, USA, April 14, 2009).

49. Satoshi Kawata, "Nanophotonics: Manipulating Light for beyond its classical limits," Optical Society of Korea Winter Meeting (Seoul, February 2, 2009).
50. Norihiko Hayazawa, Masashi Motohashi, Alvarado Tarun, and Satoshi Kawata, "Nanoscale characterization of crystalline samples by near-field Raman spectroscopy," 16th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM16) (December, Atagawa, Japan) (2008).
51. Satoshi Kawata, "Nanophotonics for nano-imaging and nano-fabrication" Photonics 2008 (New Delhi, December 14-17, 2008).
52. Satoshi Kawata, "Nano-plasmonics for Raman imaging," International Workshop on Meta-materials and Plasmonics (ShangHai, November 13-15, 2008).
53. Satoshi Kawata, "Metallic Nanolens for Color Imaging," Frontiers in Optics 2008/Laser Science (LS) XXIV (Rochester, October 19-23, 2008).
54. Katsumasa Fujita, "Raman microscopy for molecular imaging of cells," The 9th International Congress on Cell Biology, (ICCB2008) (Seoul, Korea, October 7-10, 2008).
55. Satoshi Kawata, "A dream: Seeing structures through light in nano-resolution," Joint Forum Osaka University and Tohoku University, (San Francisco, September 18, 2008).
56. Satoshi Kawata, "Nano-imaging with a metallic nanolens," SPRC 2008 annual Symposium, (San Francisco, September 17, 2008)
57. Prabhat Verma, Atsushi Ono, Satoshi Kawata, "Magnified color imaging through silver nanolens," 10th International Conference on Near-field Optics, Nanophotonics and Related Techniques (NFO10) (Buenos Aires, September 1-5, 2008).
58. Norihiko Hayazawa, Masashi Motohashi, Alvarado Tarun, and Satoshi Kawata, "Nano-scale Characterization and Spectroscopy of Strained Silicon" SPIE Optics + Photonics (San Diego, August 10-13, 2008).
59. Satoshi Kawata, Takuo Tanaka, Nobuyuki Takeyasu, "Two-photon reduction for fabrication of threedimensiona metamaterials," SPIE Optics + Photonics (San Diego, August 10-13, 2008).
60. Satoshi Kawata, "Nanophotonics: Walking beyond the classical limits of light," International Nano-Optoelectronic Workshop (Kanagawa, August 5, 2008).
61. Satoshi Kawata, "Tip-enhanced Raman microscopy: a step beyond the plasmonics," ICO-21 (Sydney, July 7-11, 2008).
62. Prabhat Verma, "Beyond the classical limits in optical imaging," International Summer School on Molecular Nano Biophotonics, (Porquerolles Island, France, June 19-27, 2008).
63. Satoshi Kawata, "Nonlinear nanophotonics," Summer Course on "Nanophotonics and molecular photonics" (Santander, June 16-20, 2008).
64. Satoshi Kawata, "Nanophotonics," Rice University Nano Japan Orientation Program (Tokyo, June 3, 2008).
65. Prabhat Verma, "Towards single molecule sensitivity in tip-enhanced Raman spectroscopy," The OSA Topical Conference on Nanophotonics 2008, (Nanjing, China, May 26-29, 2008).
66. Satoshi Kawata, "Two-photon Engineering of Three-dimensional Micro/nano Structures: Photopolymerization, Photoreduction and Photoisomerization," ICONO10/ICOPE2008 (New Mexico, May 18-23, 2008).
67. Satoshi Kawata, "Imaging beyond the plasmonics: New aspects in tip-enhanced Raman microscopy," Focus on Microscopy 2008 (Osaka-Awaji, April 13-16, 2008).
68. Prabhat Verma, "Towards single molecule detection through tip-enhanced near-field Raman Spectroscopy," Laser Spectroscopy and Nanophotonics, (New Delhi, India, March 14-15, 2008).
69. Taro Ichimura and Satoshi Kawata, "Tip enhanced Raman spectroscopy of DNA base molecules," JSPS-UNT Winter School on Nanophotonics (University of North Texas, Denton, TX, USA, February 14-15, 2008).
70. Prabhat Verma, Taro Ichimura, Taka-aki Yano, Yasushi Inouye, and Satoshi Kawata, "Towards single molecule detection through tip-enhanced near-field Raman spectroscopy," International Workshop and Conference on Photonics and Nanotechnology, (Pattaya. Thailand, December 16-18, 2007).
71. Prabhat Verma, Taka-aki Yano, Taro Ichimura, Yasushi Inouye, and Satoshi Kawata, "Imaging through tip-enhanced Raman microscopy: A walk beyond the classical limits of light," National Conference On Electron Microscopy, (Delhi, India, Nov. 26-28, 2007).

72. Satoshi Kawata, "Two-photon Engineering of Three-dimensional Micro/nano Structures: Photopolymerization, Photoreduction and Photoisomerization," MRS Fall Meeting 2007 (November 26-30, 2007).
73. Satoshi Kawata, "Tip-enhanced Raman microscopy: towards single molecule imaging," Hamano-Kobe International Symposium on "Laser and Nano/Bio Sciences" (October 19, 2007).
74. Yasushi Inouye, "Tip-enhanced near field Raman spectroscopy for molecular nano-analysis and nano-imaging," Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium 2007 -Spin, Photonics, and Molecular Devices in Quantum Limit-, pp. 47-48 (Toyonaka, September 26-28, 2007).
75. Prabhat Verma, T. Yano, T. Ichimura, Y. Inouye and Satoshi Kawata, "Tip-enhanced Raman scattering: Regulating the tip-sample distance," SPIE Optics and Photonics, (San Diego, USA, Aug. 26-30, 2007).
76. Norihiko Hayazawa, Masashi Motohashi, Yuika Saito, and Satoshi Kawata, "Characterization of localized strain of crystals in nano-scale by tip-enhanced Raman spectroscopy & microscope " Proceedings of SPIE. Optics East (Boston, USA, September, 2007).
77. Prabhat Verma, "Temporal fluctuation of tip-enhanced Raman spectra: Towards single molecule detection", JSAP 75th anniversary meeting, (Tokyo, August 2-3, 2007).
78. Satoshi Kawata, "Nonlinear and Near-field Raman Imaging of Molecules," The 3rd Asian and Pacific Rim Symposium on Biophotonics (APBP) (Cairns, Australia, July 9-11, 2007).
79. Prabhat Verma, Taka-aki Yano, Taro Ichimura, Yasushi Inouye and Satoshi Kawata, "Nano imaging of materials through tip-enhanced near-field Raman spectroscopy," Asia Pacific Near Field Optics - 6, (Yellow Mountains, China, June 13-17, 2007).
80. Prabhat Verma, "Imaging carbon nanostructures at sub-wavelength resolution through tip-enhanced Raman scattering," E-MRS 2007 Spring Meeting, (Strasbourg, France, May 28-June 1, 2007).
81. Satoshi Kawata, "Nanophotonics: Imaging, Fabrication and Manipulation of Nanostructures with Photons," The 14th Conference on Optoelectronics and Optical Communications (COOC 2007), (Cheju Island, Korea, 16-18 May, 2007).
82. Satoshi Kawata, Taka-aki Yano, and Prabhat Verma, "Tip-applied pressure: A step forward in near-field Raman microscopy," Focus on Microscopy 2007 (FOM2007), (Valencia, Spain, 10-13 April, 2007).
83. Prabhat Verma, "Nanoanalysis of materials : A glance through tip-enhanced Raman scattering ," First Moroccan Days on Nanoscience & Nanotechnology (MDNN1), (Ifrane, Morocco, 8-10 April, 2007).
84. Satoshi Kawata, "Nanophotonics : Walking beyond the classical limits of light," First Moroccan Days on Nanoscience & Nanotechnology (MDNN1), (Ifrane, Morocco, 8-10 April, 2007).
85. Yasushi Inouye, "Near field Raman spectroscopy for molecular nano-imaging and nano-analysis," The 1st Workshop on Biological Applications of Plasma/Photon Processing (BAPP-1) (Suita, Japan, March 19, 2007).
86. Satoshi Kawata, Prabhat Verma, and Takaaki Yano, "Tip-applied pressure : a step forward in near-field Raman microscopy," SPIE Photonics West 2007 (San Jose, USA, 20-25 January, 2007).
87. Satoshi Kawata, "Nano-photonics," 2nd Annual IEEE Int.Conf.on Nano/Micro Engineered and Molecular Systems (IEEE-NEMS), (Bangkok, Thailand, January 16-19, 2007).
88. Satoshi Kawata, Prabhat Verma, and Takaaki Yano, "Tip-applied pressure : a step forward in near-field Raman microscopy," SPIE Photonics West 2007 (San Jose, USA, 20-25 January, 2007).
89. Satoshi Kawata, "Nano-photonics," 2nd Annual IEEE Int.Conf.on Nano/Micro Engineered and Molecular Systems (IEEE-NEMS), (Bangkok, Thailand, January 16-19, 2007).
90. Satoshi Kawata, "Tip-pressurized near-field Raman spectroscopy," ICSPM14, 14th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (Shizuoka, Japan, December 8, 2006).
91. Satoshi Kawata, "Nanophotonics: Nano-imaging and Analysis Beyond the Classical Limits,"

- Japan-Germany Joint Workshop (Shiodome, Japan, November 1, 2006).
92. Satoshi Kawata, "Raman, CARS and Near-field Raman CARS Microscopy for Cellular and Molecular Imaging" (keynote lecture), International Symposium on Biophotonics, Nanophotonics & Metamaterials (Hangzhou, October 16-17, 2006).
 93. Satoshi Kawata, "Metallic Nano-lens for Nano-maging," (invited lecture) International Symposium on Biophotonics, Nanophotonics & Metamaterials (Hangzhou, October 16-17, 2006).
 94. Satoshi Kawata, "Near field and Raman microscopy for molecular and cellular biomedical sciences," 12th NSRRC Users' Meeting and Workshops (Hsinchu, October 4, 2006).
 95. Katsumasa Fujita, "High resolution confocal microscopy by using saturated excitation of fluorescence," Japan-Korea Biomedical Optics Symposium, Optics & Photonics Japan 2011 (OPJ2011) (Osaka Univ, Suita, Nov. 29, 2011).
 96. 河田聡, "光を止めるとプラズモニクスという分野が生まれた," 理化学研究所基幹研究所チュートリアル講演(理化学研究所, 2011年11月4日).
 97. 河田聡, "近接場ナノ光学とプラズモニクス研究の開拓," 江崎玲於奈賞授賞講演(つくば国際会議場, 2011年10月13日).
 98. 藤田克昌, "ラマン散乱顕微鏡:細胞内分子の無標識分子イメージング," 日本顕微鏡学会第55回シンポジウム(高松, 2011年10月1日).
 99. 河田聡, "先端増強ラマン散乱(TERS)顕微鏡でナノ分子を見る," 第72回秋期応用物理学会学術講演会(山形大学, 2011年8月29日-9月2日).
 100. 古澤健太郎, 早澤紀彦 "近接場非線形分光イメージング," 第72回応用物理学関係連合講演会(山形大学, 2011年8月29日-9月2日).
 101. 河田聡, "プラズモニクスの限界とその向こう," 応用物理学会北海道支部講演会(北海道大学, 2011年8月3日).
 102. 藤田克昌, "ラマン顕微鏡による細胞機能の観察," 第72回秋期応用物理学会学術講演会(山形大学, 2011年8月29日-9月2日).
 103. 藤田克昌, "イントロダクトリー:ラマン分光イメージング -革新と波及-, " 第72回秋期応用物理学会学術講演会(山形大学, 2011年8月29日-9月2日).
 104. 藤田克昌, "ラマン散乱顕微鏡による生体機能の振動分光イメージング," JST-CREST シンポジウム(東京, 2011年7月25日).
 105. 市村垂生, "チップ増強近接場ラマン分光による分子振動ナノイメージング," 日本物理学会2011年秋季大会, 「光と走査プローブ顕微鏡の融合によるナノサイエンス」シンポジウム(富山大学, 2011年9月21日-24日).
 106. 山中真仁, 藤田克昌, "光学応答の飽和を用いた超解像," レーザー顕微鏡研究会第37回講演会(理化学研究所, 2011年7月6-8日).
 107. 藤田克昌, "ラマン散乱による振動分光バイオイメージング," 第21回日本サイトメトリー学会(京都市国際交流会館, 2011年6月26日).
 108. 河田聡, "プラズモニクスの限界を超える," 中部地区ナノテク総合支援成果報告会(豊田工業大学, 2011年3月30日).
 109. 河田聡, "SERSに出来なくてTERSに出来ること," 第58回応用物理学関係連合講演会(神奈川工科大学, 2011年3月26日).
 110. 河田聡, "プラズモニクスの限界を超える," 中部地区ナノテク総合支援成果報告会(豊田工業大学, 2011年3月30日).
 111. 河田聡, "プラズモニクス:できることとできないこと(概論)," OPTRONICS 特別セミナー(中央大学駿河台記念館, 2010年11月25日).
 112. 河田聡, "1.超解像 2. プラズモニクス," 横河電機講演(横河電機株式会社, 2010年11月24日).
 113. 河田聡, "未来へつなぐ科学のひろば~サイエンス, 社会, そして人," サイエンスアゴラ(東京国際交流館, 2010年11月21日).
 114. 河田聡, "ラマン顕微鏡がバイオに使えるようになってきた!," Bio Opt Japan カンファレンス

- (パシフィコ横浜, 2010年9月30日).
115. 河田 聡, “Near-field scanning Raman microscopy in Deep UV,” 第5回フォトニクスシンポジウム (三重志摩観光ホテル, 2010年9月7日).
 116. 河田 聡, “Nanophotonics,” Nano Japan 特別講演 (東京さぬき倶楽部 2010年5月27日).
 117. 河田 聡, “プラズモニクス:機能と応用とその未来,” 日本学術会議「先端フォトニクスシンポジウム」(日本学術会議, 2010年4月9日).
 118. 河田 聡, “プラズモニクスとナノ分光イメージング,” シスメックス株式会社講演 (シスメックス株式会社, 2010年4月27日).
 119. 早澤紀彦, “近接場ラマンおよび非線形顕微分光の最新の成果,” 第58回応用物理学関係連合講演会 (神奈川工科大学, 2011年3月26日).
 120. 早澤紀彦, “近接場ラマン分光,” 第184回有機エレクトロニクス材料研究会「微量・微少領域の解析技術」(市ヶ谷, 東京, 2010年10月29日).
 121. Prabhat Verma, 矢野隆章, 市村垂生, 齊藤結花, 河田聡, “High-resolution optical imaging through tip-enhanced Raman spectroscopy,” 日本分光学会 高感度表面・界面部会 第3回シンポジウム (産業技術総合研究所, 2009年12月25日).
 122. 藤田克昌, “ラマン散乱を利用した細胞/生体組織の無標識イメージング,” 第31回レーザー医学会総会 (名古屋, 2010年11月13日).
 123. 藤田克昌, “ラマン散乱光を用いた生体分子の顕微観察,” 第35回組織細胞化学講習会 (甲府, 2010年8月4日).
 124. 藤田克昌, “ラマン顕微鏡による振動分光イメージング:生体試料の観察を中心として,” 第2回けいはんな物質科学フォーラム「新しい顕微鏡による物質探査最前線～最新の情報と新しい可能性について～」(奈良先端科学技術大学院大学, 2010年5月15日).
 125. 河田 聡, “ナノと光,” 日本分光学会 ナノ分光部会 第1回シンポジウム(理化学研究所, 2009年11月6日).
 126. 河田 聡, “回折限界を超える金属ナノレンズ,” 第34回光学シンポジウム(東京大学, 2009年7月2日).
 127. 藤田克昌, “非線形光学イメージング ~ その原理と生体観察への応用 ~,” 第30回レーザー医学会総会(グランドヒル市ヶ谷, 2009年12月3日).
 128. 藤田克昌, “「細胞を測る」光計測の立場から、超解像バイオイメージング,” 大阪大学ナノ理工学人材育成産学コンソーシアム 第3回ナノ理工学情報交流会 (大阪大学, 豊中市, 2009年11月27日).
 129. 藤田克昌, “ラマン散乱を用いた生体分子の無標識イメージング,” 第50回日本組織細胞化学会学術集会(ピアザ淡海, 滋賀, 2009年9月26日).
 130. 藤田克昌, “ラマン散乱を利用した細胞内分子イメージング,” BioOptoJapan カンファレンス (パシフィコ横浜, 2009年9月17日).
 131. 藤田克昌, “ラマン散乱を用いた細胞内分子イメージング,” 第32回日本神経科学大会 (名古屋国際会議場, 2009年9月16日).
 132. 藤田克昌, “超解像バイオイメージング マイクロスコープからナノスコープへ,” 第18回日本バイオイメージング学会学術講演会(就実大学, 2009年9月3日).
 133. 藤田克昌, “ラマン散乱による細胞の無標識分子イメージング,” 第8回次世代バイオマテリアル若手研究会 (大阪大学歯学部記念会館, 2009年8月21日).
 134. 河田 聡, “回折限界を超える金属ナノレンズ,” 第34回光学シンポジウム(東京大学, 2009年7月2日).
 135. 河田 聡, “社会を豊かにするための技術・人の革新,” 鳥取県産業振興機構セミナー(鳥取, 2009年5月29日).
 136. 藤田克昌, “ラマン散乱を用いた細胞内分子イメージング,” 電気学会 光・量子デバイス研究会, (理化学研究所, 2009年2月13日).
 137. 早澤紀彦, “プラズモニック近接場顕微鏡によるナノスケール分光,” 分子科学研究所研究会「プラズモニック物質と分子科学研究」, (岡崎, 2009年1月23日).

138. 早澤紀彦, 河田 聡 “近接場ラマン分光を用いた局所歪み計測,” 日本学術振興会「ナノプロ
ーブテクノロジー」第 167 委員会 第 53 回研究会, (京都, 2009 年 1 月).
139. 早澤紀彦, 河田 聡, “チップ増強近接場分光の最新の成果,” 日本分光学会 高感度表面
界面分解 第一回シンポジウム, (筑波, 2008 年 12 月).
140. 藤田克昌, “ラマン散乱による細胞の分子イメージング,” 日本分光学会 第3回赤外ラマン分
光部会シンポジウム「振動分光イメージング」(東京大学 2008 年 12 月 10 日).
141. 河田 聡, “プラズモニクスとナノ分光学,” 日本分光学会, (東北大学片平さくらホール, 2008
年 11 月 19 日).
142. 河田 聡, “Nano & Photons,” 第7回ナノフォトニクス&メタマテリアルシンポジウム,(理化学研
究所, 2008 年 11 月 7 日)
143. 河田 聡, “ナノフォトニクスの未来,” フォトニクスポリマー研究会, (慶應義塾大学, 2008 年 10
月 9 日).
144. 河田 聡, “センターの未来: ナノマテリアルとフォトニクス,” 第 6 回フォトニクスコロキウム (大
阪大学 银杏会館, 2008 年 7 月 2 日).
145. 河田 聡, “ナノで細胞を見る: 非線形と近接場のフォトニクス・テクノロジー,” ライフサーベイ
ヤシンポジウム 第 6 回特定領域研究シンポジウム (大阪大学 银杏会館, 2008 年 6 月 26
日).
146. 早澤紀彦, “近接場ラマン顕微鏡によるナノ領域での光物性評価” 日本学術振興会「未踏・ナ
ノデバイステクノロジー」第 151 委員会 第 85 回研究会「光・電磁波の「ナノ」構造: 基礎から
応用まで (帯広, 2008 年 6 月 20 日).
147. 市村垂生, 井上康志, “生体分子のナノラマン分光,” レーザー学会学術講演会第 28 回年次
大会 (名古屋国際会議場, 2008 年 1 月 30 日-2 月 1 日).
148. 河田 聡, “プラズモニクスの基礎と展望,” 第7回ナノ量子情報エレクトロニクスセミナー (東
京大学, 2007 年 12 月 27 日).
149. 井上康志, “ナノフォトニクスによる細胞・分子イメージング,” 日本分光学会生細胞分光部会
生細胞分光シンポジウム, pp. 5-6 (東京工業大学, 2007 年 12 月 14 日).
150. 藤田克昌, “第 2 高調波とラマン散乱を利用したバイオイメージング,” 奈良先端大学院大学
植物科学教育推進事業シンポジウム「視る生物学2」(奈良先端大学院大学 ミレニアムホー
ル, 2007 年 11 月 21 日).
151. 河田 聡, “プラズモニクスとナノ分光学 (会長特別講演),” 分光学会秋季講演会 (百年記念
館, 東京工業大学, 2007 年 11 月 12 日).
152. 河田 聡, “科学を創るということ: ナノテクを例にして,” 「高大連携」出張講義 (愛媛県立松山
西中等教育学校, 2007 年 10 月 31 日).
153. 河田 聡, “プラズモニクスが拓く光デバイスの新展開,” 応用電子物性分科会研究例会 「表
面プラズモン技術の進展、その基礎と応用」(機械振興会館, 東京都港区, 2007 年 10 月 25
日).
154. 藤田克昌, “顕微鏡の結像光学,” 第9回細胞生物学ワークショップ (独立行政法人通信総
合研究所 関西先端研究センター, 2007 年 10 月 24 日).
155. 河田 聡, “Nanophotonics: Walking beyond the classical limits of light,” マイクロメカトロニクス
国際研究センター「オータムスクール」(東京大学駒場2キャンパス, 2007 年 10 月 5 日).
156. 河田 聡, “ナノと光子が創る21世紀の科学と技術,” 日本学術会議公開講演会 (大阪大
学中之島センター, 2007 年 8 月 9 日).
157. 河田 聡, “メタマテリアル ~金属と光がつくるナノ機能の発現,” 「応用物理」創刊75周年記
念事業 暮らしを支える科学と技術展 一世界を変える応用物理一(科学技術館, 東京都千
代田区, 2007 年 8 月 3 日).
158. 河田 聡, “医療・バイオの進歩は機械産業が担う,” 石川県産業創出支援機構研究会 (石川
県金沢市, 2007 年 7 月 17 日).
159. 河田 聡, “ますます前進するレーザー顕微鏡の世界,” レーザー顕微鏡研究会 (理化学研究
所, 2007 年 6 月 27-29 日).

160. 井上康志, “近接場ナノラマン分光法: 非線形光学と力学的効果との融合による極限への挑戦,” 日本学術振興会 第 151 委員会研究会「極限光計測技術の最先端」, pp.23-29 (浜松研修センター, 2007 年 4 月 20 日).
161. 井上康志, 藤田克昌 “生体分子のナノラマン分光イメージング/アナリシス,” 第 54 回応用物理学関係連合講演会, p. 99 (29a-R-2) (青山学院大学, 2007 年 3 月 27-30 日).
162. 井上康志, “イントロダクトリートーク: 振動分光で探る生体機能のシグネチャー,” 第 54 回応用物理学関係連合講演会, p. 99 (29a-R-1) (青山学院大学, 2007 年 3 月 27-30 日).
163. 河田 聡, “プラズモニック・ナノ顕微鏡: 光と電子と力の新たな融合,” 日本顕微鏡学会関東支部講演会 (東京, 2007 年 3 月 17 日).
164. 藤田克昌, “非線形光学効果を利用した生体イメージング,” 日本光学会第 33 回冬期講習会「光診断と光治療の最前線」(東京大学 山上会館, 2007 年 1 月 11 日).
165. 河田 聡, “近接ラマン分光イメージング,” JSPS 第 174 委員会第 2 期第 1 回研究会 (埼玉, 2006 年 12 月 6 日).
166. 早澤紀彦, 渡辺裕幸, 齊藤結花, 河田 聡, “原子吸着サイト感度を有する近接場ラマン分光” 日本光学会年次学術講演会・日本分光学会秋季講演会 Optics & Photonics Japan 2006 (東京, 2006 年 11 月)
167. 河田 聡, “Nanophotonics, a breakthrough technology beyond the classical limits,” 神戸大学フロンティア・テクノロジー・フォーラム (神戸, 2006 年 11 月 8 日).
168. 河田 聡, 日本分光学会会長特別講演“ナノ光学からナノ分光学への展開 Optics & Photonics Japan 2006 (東京, 2006 年 11 月 8 日).
169. 河田 聡, “ナノテクノロジーとバイオテクノロジーをつなぐ光技術のブレークスルーとその未来,” JST: 第 2 回基礎研究報告会『光技術の最前線を探る～最新の研究成果と未来の暮らし～』(大阪, 2006 年 10 月 23 日).

② 口頭発表 (国内会議 37 件、国際会議 62 件)

1. Satoshi Kawata, "Plasmonic Color Nano-Imaging of Strain Distribution in Nanomaterials," Frontiers In Optics 2011 (FIO 2011) (San Jose, USA, October 16-20, 2011).
2. N. Hayazawa, T. Yano, K. Ikeda, and S. Kawata, "Tip enhanced Raman spectroscopy of carbon nanomaterials," Proceedings of the 29th National Physics Congress of the Samahang Pisika ng Pilipinas, (Quezon, Philippines, October 24-26, 2011).
3. M. V. Balois, A. Tarun, N. Hayazawa, O. Moutanabbir, and S. Kawata, "Dimension dependence of strain-relaxation in strained silicon nanostructure," Proceedings of the 29th National Physics Congress of the Samahang Pisika ng Pilipinas, (Quezon, Philippines, October 24-26, 2011).
4. A. Tarun, N. Hayazawa, O. Moutanabbir, and S. Kawata, "Strain Mapping inside the 90nm Intel chip by micro-Raman," Proceedings of the 29th National Physics Congress of the Samahang Pisika ng Pilipinas, (Quezon, Philippines, October 24-26, 2011).
5. A. Tarun, N. Hayazawa, O. Moutanabbir, and S. Kawata, "Probing Transverse-Optical Phonons in Strained Si Nanowire: Strain Profiles and Nanomechanical Properties," International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM2011), (Aichi, Japan, September 28-30, 2011).
6. Almar Palonpon, Masaya Okada, Jun Ando, Hiroyuki Yamakoshi, Kosuke Dodo, Mikiko Sodeoka, Satoshi Kawata, and Katsumasa Fujita, "Slit-scanning Confocal Raman Microscopy: Practical Applications in Live Cell Imaging," IQEC/CLEO Pacific Rim 2011 (Sydney, Aug. 29 - Sep. 1, 2011).
7. N. Hayazawa, K. Furusawa, and S. Kawata, "Broadband Near-field Nonlinear Raman Spectroscopy and Nanoscopy," The International Quantum Electronics Conference (IQEC) and The Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO) Pacific Rim, (Sydney, Australia, August 28-September 1, 2011).
8. Mitsuhiro Honda, Yuika Saito, Nicholas I Smith, Katsumasa Fujita, Satoshi Kawata, "Local temperature measurement of a laser-irradiated gold nanoparticle in liquid," The 8th Asia-Pacific Workshop on Nanophotonics and Near-field Optics (Adelaide, Aug. 25-26, 2011).

9. O. Moutanabbir, M. Reiche, A. Hähnel, W. Erfurth, A. Tarun, N. Hayazawa, S. Kawata, F. Naumann, M. Patzold, "Strain Nano-Engineering: SSOI as a Playground," The 219th Meeting of the Electrochemical Society, 1101, 1415 (Montreal, Canada, May 1-6, 2011).
10. Masaya Okada, Katsumasa Fujita, Nicholas Smith, Satoshi Kawata, "Dynamic Raman imaging of cytochromes in apoptotic cells," SPIE Photonics West (BIOS) (San Francisco, January 27, 2011).
11. Jun Ando, Katsumasa Fujita, Nicolas. Smith, Satoshi Kawata, "Tracking of gold nanoparticles exhibiting enhanced Raman scattering in a living cell," SPIE Photonics West (BIOS) (San Francisco, January 27, 2011).
12. Masahito Yamanaka, Shogo Kawano, Nicholas Smith, Satoshi Kawata, Katsumasa Fujita, "High depth-discrimination property of saturated excitation (SAX) microscopy," SPIE Photonics West (BIOS) (San Francisco, January 27, 2011).
13. Atsushi Taguchi, Norihiko Hayazawa, and Satoshi Kawata, "Metallic Tip Enhancement of DUV Resonance Raman Scattering using Aluminum Probe" 18th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM18), (Atagawa, Japan, December 9-11, 2010).
14. Francesca Celine Catalan, Kentaro Furusawa, Norihiko Hayazawa, Satoshi Kawata, "Broadband coherent anti-Stokes Raman scattering (BB-CARS) spectroscopy and microscopy for 3D characterization of molecular orientations in nematic liquid crystals," Proceedings of the 28th National Physics Congress of the Samahang Pisika ng Pilipinas, (Antipolo, Philippines, October 25-27, 2010).
15. Alvarado Tarun, Norihiko Hayazawa, Takaaki Yano, and Satoshi Kawata, "Tip-heating assisted manipulation and nano-Raman spectroscopy," 11th International Conference on Near-field Optics, Nanophotonics & Related Techniques (NFO-11), (Beijin, China, August 29-September 2, 2010).
16. Taro Ichimura, Takaaki Yano, Prabhat Verma, and Satoshi Kawata, "Tapping AFM based TERS microscopy for high resolution Raman analysis," The 11th International Conference of Near-Field Optics, Nanophotonics and Related Techniques (NFO-11) (Beiging, China, August 29-September 2, 2010).
17. Norihiko Hayazawa, "Development of tip-enhanced vibrational spectroscopy," Gordon Research Conference (GRC): Vibrational Spectroscopy (Biddeford, USA, Aug. 1-6, 2010).
18. Satoru Shoji, Sana Nakanishi, Tomoki Hamano, and Satoshi Kawata, "Size-dependent Mechanical Properties of Polymer-nanowires Fabricated by Two-photon Lithography," MRS fall meeting, (Boston, USA, November 30-December 4, 2009).
19. Taka-aki Yano, Taro Ichimura, Yuika Saito, Prabhat Verma, and Satoshi Kawata, "Pressure-assisted tip-enhanced Raman imaging at a spatial resolution of a few nanometres," The 7th Asia-Pacific conference on Near-Field Optics (APNFO-7), (Jeju, Korea, November 25-27, 2009).
20. Kazumasa Uetsuki, Taro Ichimura, Prabhat Verma, and Satoshi Kawata, "Plasmon hybridization at the gap between a metallic nano-tip and a nano-film system," The 7th Asia-Pacific conference on Near-Field Optics (APNFO-7), (Jeju, Korea, November 25-27, 2009).
21. Norihiko Hayazawa, Kentaro Furusawa, Atsushi Taguchi, and Satoshi Kawata "One-photon and two-photon excited fluorescence microscopy based on polarization-control: applications to tip-enhanced microscopy," The 7th Asia-Pacific conference on Near-Field Optics (APNFO-7), (Jeju, Korea, November 25-27, 2009).
22. Satoru Shoji, Sana Nakanishi, Tomoki Hamano, Zouheir Sekkat, and Satoshi Kawata, "Mechanical properties of polymer nano-wires fabricated by two-photon lithography," International Conference on Organic Photonics and Electronics (ICOPE2009) & The 11th International Conference on Organic Nonlinear Optics (ICONO11), (Beijing, China, September 22, 2009).
23. Katsumasa Fujita, Shogo Kawano, Masahito Yamanaka, Nicholas I Smith, and Satoshi Kawata "Sub-Diffraction-Limit Fluorescence Imaging by Saturated Excitation," International Conference on Organic Photonics and Electronics (ICOPE2009) & The 11th International Conference on Organic Nonlinear Optics (ICONO11), (Beijing, China, September 22, 2009).
24. Wei Jin, Xian-Zi Dong, Yao-Yu Cao, Zhen-Sheng Zhao, Xuan-Ming Duan,

- “Surfactant-Assisted Multiphoton Nanofabrication of Silver Nanostructures,” ChinaNano 2009 ----- International Conference on Nanoscience and Technology, China 2009, (Beijing, China, September 1-3, 2009).
25. Wei-Kang Wang, Wei-Qiang Chen, Xuan-Ming Duan, “Preparation and Characterization of Lotus Leaf-Like Gold Nanostructures on Polymer Surface,” ChinaNano 2009 ----- International Conference on Nanoscience and Technology, China 2009, (Beijing, China, September 1-3, 2009).
 26. Kazumasa Uetsuki, Prabhat Verma, Taro Ichimura and Satoshi Kawata, "Near-field Raman scattering at the gap between a metallic nano-tip and a nano-film system," SPIE Optics+Photonics 2009, NanoScience+Engineering (San Diego, USA, August 2-6, 2009).
 27. Taro Ichimura, Takaaki Yano, Prabhat Verma, Yasushi Inouye, and Satoshi Kawata, "Tip-sample distance dependent near-field Raman investigation with a sub-nanometric distance regulation," SPIE Optics+Photonics Conference (San Diego, CA, USA, August 2-6, 2009).
 28. Thomas Rodgers, Satoru Shoji, and S. Kawata, “Optical Forces on Single-Walled Carbon Nanotubes,” Nanophotonics down under 2009 (Melbourne, Australia, June 21-24, 2009).
 29. Katsumasa Fujita, Masahito Yamanaka, Shogo Kawano, Nicholas I. Smith, and Satoshi Kawata, “Saturated-excitation fluorescence microscopy for biological imaging beyond the diffraction limit,” Focus on Microscopy 2009 (Krakow, April 5-8, 2009).
 30. Katsumasa Fujita, Jun Ando, Sawako Ishitobi, Keisaku Hamada, Nicholas I. Smith, Yasushi Inouye, Satoshi Kawata, “Observation of living cells with gold nanoparticles by using surface-enhanced Raman scattering,” SPIE Photonics West BiOS (San Jose, January 24-29, 2009).
 31. Masatoshi Yamanaka, Shogo Kawano, Katsumasa Fujita, Nicholas I. Smith, and Satoshi Kawata, "Beyond the diffraction-limit biological imaging by saturated excitation microscopy," SPIE Photonics West BiOS (San Jose, January 24-29, 2009).
 32. Taka-aki Yano, Prabhat Verma, Yasushi Inouye and Satoshi Kawata, "Optical nano-imaging in scanning probe microscopy through localized mechanical perturbation," 16th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM16) (Atagawa, December 11-13, 2008).
 33. Taka-aki Yano, Prabhat Verma, Yasushi Inouye, Satoshi Kawata, “Tip-pressurized raman imaging beyond the plasmonics,” 10th International Conference on Near-field Optics, Nanophotonics and Related Techniques (NFO10) (Buenos Aires, September 1-5, 2008).
 34. Masashi Motohashi, Norihiko Hayazawa, Alvarado Tarun, Satoshi Kawata, “Polarization controlled tip-enhanced raman spectroscopy and microscopy,” 10th International Conference on Near-field Optics, Nanophotonics and Related Techniques (NFO10) (Buenos Aires, September 1-5, 2008).
 35. Almar Palonpon, Taro Ichimura, Yuika Saito, Takaaki Yano, Prabhat Verma, Yasushi Inouye, and Satoshi Kawata, “Chemical effect in surface-enhanced hyper-Raman scattering (SEHRS) of crystal violet on silver colloid aggregate,” XXI International Conference on Raman Spectroscopy (ICORS2008) (West London, August 17-22, 2008).
 36. Satoru Shoji, Thomas Rodgers, Zouheir Sekkat, Satoshi Kawata, “Light-induced accumulation of single-wall carbon nanotubes dispersed in aqueous solution,” SPIE Optics + Photonics (San Diego, August 10-13, 2008).
 37. Katsumasa Fujita, Sawako Ishitobi, Taro Ichimura, Keisaku Hamada, Yasushi Inouye, Satoshi Kawata, “Surface-enhanced Raman imaging of living cells with gold nanoparticles,” SPIE Optics + Photonics (San Diego, August 10-13, 2008).
 38. Alvarado Tarun, Masashi Motohashi, Norihiko Hayazawa, Satoshi Kawata, “Highly efficient tip-enhanced Raman spectroscopy in depolarized configuration,” SPIE Optics + Photonics (San Diego, August 10-13, 2008).
 39. Thomas C. Rodgers, Satoru Shoji, Zouheir Sekkat and Satoshi Kawata, “A Selective Optical Gradient Force on Single-Walled Carbon Nanotubes,” Ninth International Conference on the Science and Application of Nanotubes(NT08) (Montpellier, June 29 - July 4, 2008).
 40. Nicholas Smith, Yasuaki Kumamoto, Jun Ando, Katsumasa Fujita and Satoshi Kawata, “Cell contraction, signalling and action potentials evoked by femtosecond laser irradiation” 17th International Laser Physics Workshop (LPHYS’08) (Trondheim, June 30 – July 4, 2008).

41. Norihiko Hayazawa and Satoshi Kawata, "Tip-enhanced coherent anti-Stokes Raman spectroscopy and microscopy," 1st European Conference on CARS microscopy (microCARS 2008) and 7th European Conference on Nonlinear Optical Spectroscopy (ECONOS 2008) (Austria, May 1, 2008).
42. Katsumasa Fujita, Keisaku Hamada, Nicholas I. Smith, Yasushi Inouye and Satoshi Kawata, "Raman microscopy for observation of cellular dynamics," Focus on Microscopy 2008 (Osaka-Awaji, April 13-16, 2008).
43. Nicholas I. Smith, Yasuaki Kumamoto, Jun Ando, Katsumasa Fujita and Satoshi Kawata, "Cell contraction, signalling and action potentials evoked by femtosecond laser irradiation," Focus on Microscopy 2008 (Osaka-Awaji, April 13-16, 2008).
44. Shogo Kawano, Masahito Yamanaka, Katsumasa Fujita, Minoru Kobayashi, Nicholas I. Smith and Kawata, "Imaging properties of saturated-excitation fluorescence microscopy," Focus on Microscopy 2008 (Osaka-Awaji, April 13-16, 2008).
45. Masahito Yamanaka, Shogo Kawano, Katsumasa Fujita, Minoru Kobayashi and Satoshi Kawata, "Spatial resolution improvement in confocal fluorescence microscopy by using saturated excitation," Focus on Microscopy 2008 (Osaka-Awaji, April 13-16, 2008).
46. Jun Ando, Godofredo Bautista, Katsumasa Fujita, Nicholas Smith and Vincent R. Daria, "Optical trapping and surgery of living yeast cells using a single laser," Focus on Microscopy 2008 (Osaka-Awaji, April 13-16, 2008).
47. Taka-aki Yano, Prabhat Verma, Yasushi Inouye and Satoshi Kawata, "Tip-pressurized Raman microscopy for molecular nano-imaging," Focus on Microscopy 2008 (Osaka-Awaji, April 13-16, 2008).
48. Masashi Motohashi, Norihiko Hayazawa, Alvarado Tarun, and Satoshi Kawata, "High Contrast nano imaging of crystalline silicon by TERS based on depolarization detection" Technical Digest of 6th Nanophotonics Symposium "Novel Functional Materials and Nanophotonics" p. 34 (Saitama, Japan, November, 2007).
49. Atsushi Taguchi, Norihiko Hayazawa, Yuika Saito, Hidekazu Ishitobi, and Satoshi Kawata, "Optimization of plasmon resonance wavelength in TERS probe by multi-layered base structure" Technical Digest of 6th Nanophotonics Symposium "Novel Functional Materials and Nanophotonics" p. 35 (Saitama, Japan, November, 2007).
50. Hidekazu Ishitobi, Norihiko Hayazawa, and Satoshi Kawata, "Focused Excitation of Surface Plasmon Polaritons Based on Gap-Mode in Tip-Enhanced Spectroscopy" Technical Digest of 6th Nanophotonics Symposium "Novel Functional Materials and Nanophotonics" p. 33 (Saitama, Japan, November, 2007).
51. Yuka Ikemoto, Taro Moriwaki, Hidekazu Okamura, Takahiko Sasaki, Naoki Yoneyama, Atsushi Taguchi, Yasushi Inouye, Satoshi Kawata and Toyohiko Kinoshita, "Broad Band Infrared Near-Field Spectroscopy at Finger Print Region Using SPring-8," 4th International Workshop on Infrared Microscopy and Spectroscopy with Accelerator Based Sources, WIRMS 2007 (Awaji-Island, Japan, September 25-29, 2007).
52. Yuika Saito, Kazuhiro Yanagi, Hiromichi Kataura, Norihiko Hayazawa, and Satoshi Kawata, "Tip-enhanced near-field Raman spectroscopy applied to nano-composite materials" Proceedings of SPIE. Optics & Photonics 2007 (August, San Diego, USA) (2007).
53. Norihiko Hayazawa, Hiroyuki Watanabe, Yuika Saito, and Satoshi Kawata, "Tip-enhanced Raman spectroscopy with atomic site-selective sensitivity" Proceedings of The 7th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO/PR2007), (Seoul, Korea, August, 2007).
54. Takaaki Yano, Prabhat Verma, Yasushi Inouye, and Satoshi Kawata, "Tip-pressurized near-field Raman spectroscopy of carbon nanotubes," SPIE Optics+Photonics Conference (San Diego, USA, August 26-30, 2007).
55. Sana Nakanishi, Hong-Bo Sun and Satoshi Kawata, "Elasticity of two-photon fabricated nano-wires," SPIE Optics+Photonics, pp. 6645-40 (San Diego, USA, August 26-30, 2007)
56. Masahi Motohashi, Norihiko Hayazawa, Yuika Saito, and Satoshi Kawata, "Characterization of nanoscale crystalline strained Si by tip-enhanced Raman spectroscopy in reflection mode" International Conference on Advanced Spectroscopy (ICAVS4), p. 65 (Greece, June 2007).
57. Norihiko Hayazawa, Hiroyuki Watanabe, Yuika Saito, and Satoshi Kawata, "Towards atomic

- site-selective sensitivity in tip-enhanced Raman spectroscopy", International Conference on Advanced Spectroscopy (ICAVS4), p. 64 (Greece, June 2007).
58. Prabhat Verma "Nanophotonics : Going beyond the diffraction limits of light," Photonics 2006, (Hyderabad, India, December 13-16, 2006).
 59. Keisaku Hamada, Katsumasa Fujita, Minoru Kobayashi, and Satoshi Kawata, "Observation of cell dynamics by laser scanning Raman microscope," SPIE Photonics West 2007 (San Jose, USA, January 20-25, 2007).
 60. Katsumasa Fujita, Shogo Kawano, Minoru Kobayashi, and Satoshi Kawata, "High-resolution laser scanning microscopy with saturated excitation of fluorescence," SPIE Photonics West 2007 (San Jose, USA, January 20-25, 2007).
 61. Taro Ichimura, Satoshi Kawata, and Yasushi Inouye, "Highly sensitive detection of DNA molecules by metallic-tip enhanced Raman spectroscopy," SPIE Photonics West 2007 (San Jose, USA, January 20-25, 2007).
 62. Remo Proietti Zaccaria, Jun-Feng Song, Satoru Shoji, Hong-Bo Sun, and Satoshi Kawata, "Photonic bands of two dimensional metal-polymer photonic lattices," NANOMETA2007 First European Topical Meeting on Nanophotonics and Metamaterials, (Tirol, Austria, January 8-11, 2007).
 63. 山中真仁, 米丸泰央, Nicholas I. Smith, 河田聡, 藤田克昌, "Saturated excitation (SAX) microscopy: High-resolution beyond the diffraction limit," 第3回ナノ分光部会シンポジウム (理化学研究所, 2011年12月16日).
 64. 早澤紀彦, "役に立つ近接場顕微鏡を目指して," 第12回理研・分子研合同シンポジウム: エクストリーム・フォトニクス研究 (埼玉, 2011年6月30日).
 65. 藤田克昌 "ラマン分光イメージングによる細胞機能の可視化," 第58回応用物理学関係連合講演会 (神奈川工科大学, 2011年3月26日).
 66. 増井恭子, 庄司暁, 牛場翔太, 段宣明, 河田聡, "二光子加工による金ナノロッド/ポリマーコンポジットの3次元マイクロ構造作製," 秋季第72回応用物理学学会学術講演会 (山形大学, 2011年8月29日~9月2日).
 67. アルバラード・タルン, 早澤紀彦, 河田聡, オウッサマ・マウタナビル, "Distribution of stress from Forbidden Phonon in Strained Silicon" 第72回応用物理学学会学術講演会 (山形大学, 2011年8月29日-9月2日).
 68. 森口祥聖, 齊藤結花, Verma Prabhat, 河田聡 "フラーレン内包カーボンナノチューブのラマン分光," 第58回応用物理学関係連合講演会 (神奈川工科大学, 2011年3月25日).
 69. 安藤潤, 藤田克昌, 葛西洋志, ニコラス スミス, 河田聡 "金ナノ粒子の挙動を利用した細胞内分子の表面増強ラマン分光分析," (神奈川工科大学, 2011年3月26日).
 70. 安藤潤, 藤田克昌, 葛西洋志, スミスニコラス, 河田聡 "金ナノ粒子を用いた生細胞の増強ラマン分光イメージング," レーザー学会学術講演会第31回年次大会 (電気通信大学, 2011年1月9-10日).
 71. 安藤潤, 葛西洋志, 藤田克昌, スミスニコラス, 河田聡 "金ナノ粒子の細胞内挙動を利用した生体分子の増強ラマン分光分析," 平成22年度日本分光学会年次講演会 (京都大学, 2010年11月18-20日).
 72. 安藤潤, 葛西洋志, 藤田克昌, Nicholas Smith, 河田聡 "金ナノ粒子の挙動を利用した細胞内分子のラマン分光分析," 日本光学会年次学術講演会 Optics & Photonics Japan 2010 (中央大学, 2010年11月8-10日).
 73. 山中 真仁, 河野 省悟, Nicholas Smith, 河田 聡, 藤田 克昌 "飽和励起顕微鏡の結像特性," 日本光学会年次学術講演会 Optics & Photonics Japan 2010 (中央大学, 2010年11月8-10日).
 74. 安藤潤, 藤田克昌, スミスニコラス, 河田聡 "金ナノ粒子の細胞内挙動を利用した生体分子のラマン分光・イメージング," 第71回応用物理学学会学術講演会 (長崎大学,

2010年9月14-17日).

75. 奥野義人, 桑原彰太, 矢野隆章, プラバット バルマ, 河田 聡, “単層カーボンナノチューブの構造変化時における分光特性変化の観察,” 第71回秋季応用物理学会学術講演会 (長崎大学, 2010年9月14-17日).
76. 藤田克昌, “ラマン散乱/表面増強ラマン散乱で捉えた生体分子ダイナミクス,” 第2回日本分光学会ナノ分光部会シンポジウム (東京大学, 2010年12月10日).
77. 安藤潤, 葛西洋志, 岡田昌也, スミスニコラス, 藤田克昌, 河田聡 “金属ナノ粒子を用いた生細胞の増強ラマンナノイメージング,” 第36回レーザー顕微鏡研究会 (理化学研究所, 2010年7月6日).
78. 井上康志, 田中慎一, ダーモンドラ ティワリ, 神 隆 “蛍光性金属ナノクラスターの合成と蛍光イメージングへの展開,” 第70回秋季応用物理学会学術講演会 (富山大学, 2009年9月8-11日).
79. 庄司暁, 牛場翔太, T. Rodgers, 河田 聡, “単層カーボンナノチューブ偏光子の作製とラマン分光による分散性・配向度評価” 第70回秋季応用物理学会学術講演会 (富山大学, 2009年9月8-11日).
80. 岡田昌也, 浜田啓作, 安藤 潤, Nicholas I. Smith, 藤田克昌, 河田 聡, “共鳴ラマン散乱による細胞内cytochromeの無標識イメージング,” 第70回秋季応用物理学会学術講演会 (富山大学, 2009年9月8-11日).
81. 山中真仁, 河野省悟, 藤田克昌, N. I. Smith, 河田 聡 “飽和励起(SAX)顕微鏡による細胞内小器官の超解像イメージング,” 第70回秋季応用物理学会学術講演会 (富山大学, 2009年9月8-11日).
82. 矢野隆章, 齊藤結花, プラバット バルマ, 河田 聡 “探針加圧効果を用いたsub-5nm近接場ラマンイメージング,” 第70回秋季応用物理学会学術講演会 (富山大学, 2009年9月8-11日).
83. 本橋正史, 早澤紀彦, Tarun Alvarado, Oussama Mountainabbir, 河田聡, “UV ラマンによるSSOI ナノ構造体の歪みマップとUV-SERS, UV-TERS への展開,” 第56回春期応用物理学会 (筑波大, 2009年3月30日-4月2日).
84. 植月一雅, Prabhat Verma, 市村垂生, 井上康志, 河田聡, “金属チップ-金属薄膜システムを用いたギャップモードTERS顕微鏡;膜厚による電場強度の制御,” 第56回春期応用物理学会 (筑波大, 2009年3月30日-4月2日).
85. 市村垂生, 藤井信太郎, 矢野隆章, プラバット バルマ, 井上康志, 河田聡, “チップ増強ラマンスペクトルのチップ試料間距離依存性のサブナノメートル分解計測,” 第56回春期応用物理学会 (筑波大, 2009年3月30日-4月2日).
86. 藤田克昌, 安藤潤, 石飛佐和子, 浜田啓作, ニコラス スミス, 井上康志, 河田 聡, “金ナノ粒子を用いた細胞内分子の表面増強ラマン散乱分光,” 第56回春期応用物理学会 (筑波大, 2009年3月30日-4月2日).
87. アルーマル パロンボン, 市村垂生, プラバット バルマ, 井上康志, 河田 聡, “表面増強ハイパーラマン散乱におけるハロゲン化物イオンを用いた化学的増強効果,” 第69回秋季応用物理学会 (愛知県, 2008年9月2-5日).
88. 田口敦清, 早澤紀彦, 齊藤結花, 石飛秀和, 河田 聡, “シリコン酸化膜厚制御による近接場プラズモニックプローブの共鳴波長制御,” 第7回理研・分子研合同シンポジウム (埼玉, 2008年5月15日, 16日).
89. 石飛秀和, 早澤紀彦, 田口敦清, A. Tarun, 池田勝佳, 河田 聡, “ギャップモードチップ増強ラマン顕微鏡,” 第7回理研・分子研合同シンポジウム (埼玉, 2008年5月15日, 16日).
90. 早澤紀彦, 本橋正史, Alvarado Tarun, 河田 聡, “結晶表面歪み分布の近接場分析技術の進展,” 第7回理研・分子研合同シンポジウム (埼玉, 2008年5月15日, 16日).
91. 藤田克昌, “生体分子のナノラマン分光イメージング,” 第47回生体医工学会, (神戸, 2008年5月).
92. 石飛佐和子, 藤田克昌, 浜田啓作, 河田 聡, 井上 康志 “金属微粒子の生細胞内導入における表面増強ラマンスペクトル測定,” p. S213 (3P304). 第45回日本生物物理学会 (パシフ

- イコ横浜, 2007 年 12 月 21-23 日).
93. 市村垂生, 井上康志, 河田 聡“チップ増強ラマン分光による生体分子ナノ分析,” p. S213 (3P303). 第 45 回日本生物物理学会 (パシフィコ横浜, 2007 年 12 月 21-23 日).
 94. 熊本康昭, スミス ニコラス, 河田 聡, “フェムト秒レーザーを用いた心筋細胞ダイナミクス制御のモデリング,” p. 439. The Japan Society of Applied Physics, The 68th Spring Meeting (Hokkaido, September 04-08, 2007).
 95. 山中真仁, 河野省悟, 藤田克昌, 河田 聡 “飽和励起を利用した高空間分解蛍光イメージング,” pp. 4-6. 第 33 回レーザー顕微鏡学会 (埼玉県, 2007 年 6 月 27-29 日).
 96. 市村 垂生, 矢野 隆章, 金澤 あかり, 田口 敦清, 早澤 紀彦, バルマ・プラブハット, 河田 聡, 井上 康志, “チップ増強近接場ラマンスペクトルのチップ-試料間距離依存性の測定法,” p. 1092, 第 54 回応用物理学関係連合講演会 (青山学院大学, 2007 年 3 月 27-30 日).
 97. 本橋正史, 早澤紀彦, 齊藤結花, 河田 聡, “偏光制御反射型近接場ラマン分光による結晶歪みの高感度イメージング,” 第 54 回応用物理学関係連合講演会 (東京, 2007 年 3 月 28 日).
 98. 早澤紀彦, “Towards Atomic site selective sensitivity in tip-enhanced Raman spectroscopy,” 第 4 回エクストリームフォトニクス研究会 (蒲郡, 2006 年 11 月).
 99. 早澤紀彦, 齊藤結花 “Near-field vibrational spectroscopy based on plasmonics,” RIKEN symposium: The 5th Nanophotonics Symposium (埼玉, 2006 年 10 月)
- ③ ポスター発表 (国内会議 28 件、国際会議 38 件)
1. A. Tarun, N. Hayazawa, S. Kawata, and O. Moutanabbir, "LO and TO phonon profiles in strained Si-nanowire directly on Oxide," 2011 Silicon Nanoelectronics Workshop (Kyoto, Japan, June 12-13, 2011).
 2. Kyoko MASUI, Satoru SHOJI, Kenji ASABA, Xuanming DUAN, Satoshi KAWATA "Microstructure formation of Au nanorods /methyl methacrylate composite assisted by two-photon polymerization," 6th Photonics Center Symposium : Nanophotonics in Asia 2011, (Shima, Sep. 20-21, 2011).
 3. Yoshito Okuno, Shota Kuwahara, Kazumasa Uetsuki, Takaaki Yano, Prabhat Verma, and Satoshi Kawata, "Tip-enhanced Raman imaging and analysis of crossed nanotube junctions," the 6th Photonics Center Symposium Nanophotonics in Asia (Shima, Sep. 20-21, 2011).
 4. Yasuo YONEMARU, Masahito YAMANAKA, Satoshi KAWATA and Katsumasa FUJITA, "Saturated excitation (SAX) microscopy for biological imaging beyond the diffraction limit," the 6th Photonics Center Symposium "Nanophotonics in Asia 2011" (Shima, Sep. 20-21, 2011).
 5. Yoshito Okuno, Shota Kuwahara, Kazumasa Uetsuki, Takaaki Yano, Prabhat Verma, and Satoshi Kawata, "Tip-enhanced Raman imaging and analysis of crossed nanotube junctions," The 8th Asia-Pacific Workshop on Nanophotonics and Near-Field Optics (Adelaide, Aug. 25-26, 2011).
 6. Atsushi Taguchi, Norihiko Hayazawa, and Satoshi Kawata, "Metallic tip enhancement of DUV resonance Raman scattering using aluminum probe," The 18th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (ICSPM18) (Atagawa, Japan, December 9-11, 2010).
 7. H. Ishitobi, I. Nakamura, N. Hayazawa, and S. Kawata, "Nanomovement of azo-polymers induced by a focused laser spot," The 6th International Symposium on Organic Photochromism (ISOP 2010), (Yokohama, Japan, Oct. 17-21, 2010).
 8. Takaaki Yano, Taro Ichimura, Yuika Saito, Prabhat Verma, and Satoshi Kawata, "Tip-pressurized near-field Raman microscopy with a spatial resolution of a few nanometres," The 11th International Conference of Near-Field Optics, Nanophotonics and Related Techniques (NFO-11) (Beijing, China, August 29-September 2, 2010).
 9. Alvarado Tarun, Norihiko Hayazawa, Takaaki Yano, and Satoshi Kawata, "Tip-heating assisted TERS at elevated temperatures" XXII International Conference on Raman Spectroscopy (ICORS), (Boston, USA, August 8 - August 13, 2010).
 10. Katsumasa Fujita, Masaya Okada, Jun Ando, Hiroshi Kasai, Nicholas Smith, and Satoshi Kawata, "Dynamic Raman /SERS Imaging of Living Cells by Slit-Scanning Microscopy," International conference on Raman spectroscopy XXII (ICORS 2010), (Boston, USA, August

- 8 - August 13, 2010).
11. Kazumasa Uetsuki, Prabhat Verma, Taka-aki Yano, Yuika Saito, Taro Ichimura, and Satoshi Kawata, "Experimental identification of chemical effects in surface enhanced Raman scattering of 4-aminothiophenol," International conference on Raman spectroscopy XXII (ICORS 2010), (Boston, USA, August 8 - August 13, 2010).
 12. Prabhat Verma, Taro Ichimura, Taka-aki Yano, Yuika Saito, and Satoshi Kawata, "TERS in the sub-nanometric vicinity of a metallic tip," International conference on Raman spectroscopy XXII (ICORS 2010), (Boston, USA, August 8 - August 13, 2010).
 13. Atsushi Taguchi, Norihiko Hayazawa, and Satoshi Kawata, "DUV Tip-Enhancement in Resonance Raman Scattering using Aluminum Probes," XXII International Conference on Raman Spectroscopy (ICORS), (Boston, USA, August 8 - August 13, 2010).
 14. Kentaro Furusawa, Norihiko Hayazawa, and Satoshi Kawata, "Comparative study of Broadband CARS Techniques for Tip-enhanced Microscopy and Spectroscopy," XXII International Conference on Raman Spectroscopy (ICORS), (Boston, USA, August 8 - August 13, 2010).
 15. Atsushi Taguchi, Norihiko Hayazawa, and Satoshi Kawata, "DUV Tip-Enhancement in Resonance Raman Scattering using Aluminum Probes," XXII International Conference on Raman Spectroscopy (ICORS) (Boston, USA, August 8 - August 13, 2010).
 16. Norihiko Hayazawa, "Development of tip-enhanced vibrational spectroscopy," Gordon Research Conference (GRC): Vibrational Spectroscopy (Biddeford, USA, Aug. 1-6, 2010).
 17. Satoru Shoji, T. Rodgers, and S. Kawata, "Chirality analysis of optically accumulated single-wall carbon nanotubes into a focused laser spot," 10th International Conference on the Science & Application of Nanotubes (NT '09) (Beijing, China, June 21-26, 2009).
 18. Satoru Shoji, T. Rodgers, and S. Kawata, "Optical properties of a single-wall carbon nanotube polarizer," 10th International Conference on the Science & Application of Nanotubes(NT '09) (Beijing, China, June 21-26, 2009).
 19. Thomas Rodgers, Satoru Shoji, and S. Kawata, "Single-wall carbon nanotube optical polarizer made of mechanical stretching method," Nanophotonics down under 2009 (Melbourne, Australia, June 21-24, 2009).
 20. Thomas Rodgers, Satoru Shoji, and Satoshi Kawata, "Resonant Optical Forces for Nanotube Aggregation in Solution," WONTON '09(Matsushima, Japan, June 7-10, 2009).
 21. Takaaki Yano, Prabhat Verma, Yuika Saito, Taro Ichimura, and Satoshi Kawata, "Pressure-assisted tip-enhanced Raman imaging of carbon nanotubes at the spatial resolution of a few nanometers," WONTON '09(Matsushima, Japan, June 7-10, 2009).
 22. Jun Ando, Nicholas I. Smith, Katsumasa Fujita, and Satoshi Kawata, "Cellular membrane dynamics evoked by femtosecond laser," Focus on Microscopy 2009 (Krakow, April 5-8, 2009).
 23. Alvarado Tarun, Masashi Motohashi, Norihiko Hayazawa, Satoshi Kawata, "Heating assisted tip-enhanced raman spectroscopy," 10th International Conference on Near-field Optics, Nanophotonics and Related Techniques (NFO10) (Buenos Aires, September 1-5, 2008).
 24. Taro Ichimura, Takaaki Yano, Shintaro Fujii, Prabhat Verma, Yasushi Inouye, and Satoshi Kawata, "Tapping mode TERS for regulation of tip-sample distance," 10th International Conference on Near Field Optics, Nanophotonics and Related Techniques (NFO10) (Buenos Aires, Argentina, September 1-5, 2008).
 25. Almar Palonpon, Taro Ichimura, Prabhat Verma, Yasushi Inouye, Satoshi Kawata, "Anion-induced chemical enhancement effect in surface-enhanced hyper-raman spectroscopy of organic dye molecules," 10th International Conference on Near-field Optics, Nanophotonics and Related Techniques (NFO10) (Buenos Aires, September 1-5, 2008).
 26. Taro Ichimura, Takaaki Yano, Shintaro Fujii, Prabhat Verma, Yasushi Inouye, Satoshi Kawata, "Tapping mode TERS for regulation of tip-sample distance," 10th International Conference on Near-field Optics, Nanophotonics and Related Techniques (NFO10) (Buenos Aires, September 1-5, 2008).
 27. Norihiko Hayazawa, Hidekazu Ishitobi, Alvarado Tarun, Atsushi Taguchi, Satoshi Kawata, "Excitation of gap-mode based on focused surface Plasmon polariton for tip-enhanced spectroscopy," 10th International Conference on Near-field Optics, Nanophotonics and Related

- Techniques (NFO10) (Buenos Aires, September 1-5, 2008).
28. Yuika Saito, Minoru Kobayashi, Daigo Hiraga, Katsumasa Fujita and Satoshi Kawata, "Z-polarization Sensitive Detection in Micro-Raman Spectroscopy," International Conferences on Raman Spectroscopy (London, August 17-22, 2008).
 29. Keisaku Hamada, Katsumasa Fujita, Nicholas I. Smith, Yasushi Inouye and Satoshi Kawata, "Resonant Raman imaging of cytochrome C in living cells," Focus on Microscopy 2008 (Osaka-Awaji, April 13-16, 2008).
 30. Yuika Saito, Minoru Kobayashi, Daigo Hiraga, Katsumasa Fujita and Satoshi Kawata, "Z-polarization sensitive detection for flexible Raman polarizability measurements," Focus on Microscopy 2008 (Osaka-Awaji, April 13-16, 2008).
 31. Thomas Rodgers, Satoru Shoji and Satoshi Kawata, "Selective aggregation of metallic single-walled carbon nanotubes by laser trapping," Focus on Microscopy 2008 (Osaka-Awaji, April 13-16, 2008).
 32. Satoru Shoji, Sana Nakanishi, Hong-Bo Sun, Zouheir Sekkat and Satoshi Kawata "Evaluation of two-photon polymerization reaction with confocal Raman microscopy," Focus on Microscopy 2008 (Osaka-Awaji, April 13-16, 2008).
 33. Hirofumi Yoshikawa, Sana Nakanishi, Satoru Shoji and Satoshi Kawata, "Size dependent transition temperature of polymer nano-wires fabricated by two-photon polymerization," Focus on Microscopy 2008 (Osaka-Awaji, April 13-16, 2008).
 34. Yasuaki Kumamoto, Nicholas I. Smith and Satoshi Kawata, "Driving and damping heart muscle cells by pulsed laser and electrical stimulation," Focus on Microscopy 2008 (Osaka-Awaji, April 13-16, 2008).
 35. Almar Palonpon, Taro Ichimura, Yuika Saito, Taka-aki Yano, Prabhat Verma, Yasushi Inouye and Satoshi Kawata, "Chemical contribution to surface-enhanced hyper-Raman scattering by halide ions," Focus on Microscopy 2008 (Osaka-Awaji, April 13-16, 2008).
 36. Kyoko Masui, Atsushi Ono, Yuika Saito, Taro Ichimura, Norihiko Hayazawa, Prabhat Verma, Yasushi Inouye and Satoshi Kawata, "Active control of oxidation of a silicon cantilever for the characterization of silicon-based semiconductors," Focus on Microscopy 2008 (Osaka-Awaji, April 13-16, 2008).
 37. Taka-aki Yano, Prabhat Verma, Yasushi Inouye and Satoshi Kawata, "Tip-pressurized near-field Raman spectroscopy for molecular nano-imaging," 4th International Conference on Advanced Vibrational Spectroscopy (ICAVS4) (Corfu Island, Greece June 10-15, 2007).
 38. Prabhat Verma, Taka-aki Yano, Yasushi Inouye, and Satoshi Kawata, "Analysis of Carbon Nanomaterials Using Tip-Enhanced Near-Field Raman Spectroscopy," 2006 MRS Fall Meeting, (Boston, USA, November 27 - December 1, 2006).
 39. 米丸泰央, 河野省悟, 河田聡, 藤田克昌, "コヒーレントアンチストークスラマン散乱 (CARS)の飽和を用いた,超解像分光顕微鏡," 平成 23 年度 日本分光学会年次講演会, (理化学研究所 横浜研究所 交流棟, 2011 年 11 月 30-12 月 2 日).
 40. Imad Maouli, Taro Ichimura, Prabhat Verma, and Satoshi Kawata, "FDTD simulation to optimize near field probe for strong plasmon resonance," 第 7 2 回秋期応用物理学会学術講演会 (山形大学、2011 年 8 月 29 日-9 月 2 日).
 41. 馬越貴之, 矢野隆章, 市村垂生, Prabhat Verma, 河田聡, "光還元法を用いた先端増強型近接場プローブの作製と評価," 第 7 2 回秋期応用物理学会学術講演会 (山形大学、2011 年 8 月 29 日-9 月 2 日).
 42. 三野聡大、齋藤結花、吉田弘幸、河田聡, "Z 偏光ラマン顕微鏡法によるペンタセン分子配向の画像化," 第 72 回秋期応用物理学会学術講演会 (山形大学, 2011 年 8 月 29 日-9 月 2 日) .
 43. Alvarado Tarun, Norihiko Hayazawa, Oussama Moutanabbir, and Satoshi Kawata, "Nanoscale mechanical characterization of Ultra-thin Strained Silicon Nanowire," 第 12 回理研・分子研合同シンポジウム：エクストリーム・フォトニクス研究 (埼玉、2011 年 6 月 30 日).
 44. 熊本康昭、田口敦清、早澤紀彦、河田聡 "核酸とタンパク質の細胞内非染色イメージングに向けた深紫外ラマン分光顕微鏡の開発," 第 12 回理研・分子研合同シンポジウ

- ム：エクストリーム・フォトニクス研究 (埼玉、2011年6月30日).
45. 古澤健太郎、早澤紀彦、河田聡 “金属プローブにおける広帯域軸方向電界の発生と非線形近接場顕微鏡への応用,” 第12回理研・分子研合同シンポジウム：エクストリーム・フォトニクス研究 (埼玉、2011年6月30日).
 46. 桑原彰太、矢野隆章、トーマス ロジャース、河田 聡, ”ラマンイメージング手法による孤立単層カーボンナノチューブのラマン観察,” 第39回フラーレン・ナノチューブ総合シンポジウム (京都大学, 2010年9月5-7日).
 47. 奥野義人、桑原彰太、矢野隆章、プラバット バルマ、河田 聡, ”Raman Scattering Study of Deformed Single-Walled Carbon Nanotubes,” 第39回フラーレン・ナノチューブ総合シンポジウム (京都大学, 2010年9月5-7日).
 48. 早澤紀彦、タルン・アルバラード、矢野隆章、河田聡 “先端増強電場による温度コントロールを用いた顕微分光法の開発,” 平成22年度日本分光学会年次講演会 (京都大学, 2010年11月18-20日).
 49. 本田光裕、齊藤結花、プラバット バルマ、河田 聡 “単層カーボンナノチューブ(SWNT)に内包されたC60の光重合,” 第70回秋季応用物理学会学術講演会 (富山大学, 2009年9月8-11日).
 50. 森田寛之、Nicholas I. Smith, 新岡宏彦、安藤潤、藤田克昌、河田 聡, “生細胞内での金イオン還元による金ナノ粒子の形成” 第46回日本生物物理学会 (福岡国際会議場, 2008年12月3-5日).
 51. Nicholas I. Smith, 熊本康昭、藤田克昌、河田 聡, “An Optical pacemaker for heart muscle cells,” 第46回日本生物物理学会 (福岡国際会議場, 2008年12月3-5日).
 52. Satoru Shoji, T. Rodgers, Satoshi Kawata, "Chirality-Selective Manipulation of Single-Wall Carbon Nanotubes by Optical Gradient Force," 平成20年度日本分光学会年次講演会 (仙台, 2008年11月19日-21日).
 53. Yuika Saito, Syunsuke Yasugi, Kyoko Masui, Satoshi Kawata, "Near-Field Raman Analysis of Graphene Layers," 平成20年度日本分光学会年次講演会 (仙台, 2008年11月19日-21日).
 54. Masashi Motohashi, Norihiko Hayazawa, A. Tarun, Satoshi Kawata, "Cross-Sectional Strain Visualization in CPU by Tip-Enhanced Raman Spectroscopy Based on Depolarization Detection," 平成20年度日本分光学会年次講演会 (仙台, 2008年11月19日-21日).
 55. Atsushi Taguchi, Shintaro Fujii Taro Ichimura Prabhat Verma Yasushi Inouye, Satoshi Kawata, "Oxygen-Assisted Shape Control in Polyol Synthesis of Silver Nanocrystals," 平成20年度日本分光学会年次講演会 (仙台, 2008年11月19日-21日).
 56. Taguchi, Norihiko Hayazawa, Yuika Saito, H. Ishitobi, Satoshi Kawata, "Optimization of Plasmon Resonance Wavelength in Metal Coated TERS Probe by Refractive Index Modification," 平成20年度日本分光学会年次講演会 (仙台, 2008年11月19日-21日).
 57. Hidekazu Ishitobi, Norihiko Hayazawa, A. Taguchi, Satoshi Kawata, "Gap-Mode Tip-Enhanced Spectroscopy," 平成20年度日本分光学会年次講演会 (仙台, 2008年11月19日-21日).
 58. Almar Palonpon, Taro Ichimura Prabhat Verma, Yasushi Inouye, and Satoshi Kawata, "Contributions of Charge Transfer Resonances in Surface-Enhanced Hyper-Raman Scattering," 平成20年度日本分光学会年次講演会 (仙台, 2008年11月19日-21日).
 59. Taro Ichimura, Shintaro Fujii, Taka-aki Yano, Prabhat Verma, Yasushi Inouye, Satoshi Kawata, "Tapping mode tip enhanced Raman spectroscopy for regulation of tip-sample distance," 平成20年度日本分光学会年次講演会 (仙台, 2008年11月19日-21日).
 60. 藤田克昌、浜田啓作、井上康志、河田 聡 “レーザー走査ラマン顕微鏡による細胞動態の観察,” p. S212 (3P302). 第45回日本生物物理学会 (パシフィコ横浜, 2007年12月21-23日).
 61. 平賀大吾、齊藤結花、小実、藤田 克昌、河田 聡 “ラジアル偏光ビームを用いた偏光分解顕微ラマン分光” 日本光学会年次学術講演会 (大阪大学 2007年11月26日-28日)
 62. Daigo Hiraga, Yuika Saito, Minoru Kobayashi, Katsumasa Fujita, Yasushi Inouye and Satoshi

- Kawata “Polarization-resolved micro Raman spectroscopy using a radially polarized incidence,” 平成 19 年度 社団法人日本分光学会年次総会 (東京, 2007 年 11 月 12 日-14 日).
63. 矢野隆章, 市村垂生, 田口敦清, 早澤紀彦, Prabhat Verma, 井上康志, 河田 聡 “Investigation of electromagnetic interactions between a metal nanostructure and molecules through metal-molecule distance dependent near-field Raman scattering,” 平成 19 年度 社団法人日本分光学会年次総会 (東京, 2007 年 11 月 12 日-14 日).
 64. 山中真仁, 河野省悟, 藤田克昌, 河田 聡 “Use of saturated excitation for high-resolution fluorescence imaging,” p. 90. 平成 19 年度 社団法人日本分光学会年次総会 (東京, 2007 年 11 月 12 日-14 日).
 65. 早澤紀彦, 渡邊裕幸, 齊藤結花, 河田聡 “Towards atomic site selective sensitivity in near-field spectroscopy,” RIKEN symposium: The 5th Nanophotonics symposium, (埼玉, 2006 年 10 月).
 66. 齊藤結花, 早澤紀彦, 柳和宏, 河田 聡 “Near-field investigation of single walled carbon nanotubes,” RIKEN symposium: The 5th Nanophotonics symposium, (埼玉, 2006 年 10 月)

(4)知財出願

①国内出願 (12件)

1. 名称: 「金属ナノ粒子の製造方法」
発明者: 田口敦清, 河田聡, 市村垂生, 井上康志
出願人: JST
出願日: 2008.9.25
出願番号: 2008-245361
2. 名称: 「近接場光学顕微鏡の信号光測定システム」
発明者: 市村垂生, 矢野隆章, 井上康志, 河田聡
出願人: JST
出願日: 2008.9.19
出願番号: 2008-241151
3. 名称: 「ナノ粒子プローブを用いた画像化方法」
発明者: 藤田克昌, 河田聡, 市村垂生, 井上康志
出願人: JST
出願日: 2008.8.8
出願番号: 2008-205387
4. 名称: 「パルスレーザー発生装置およびパルスレーザー発生方法」
発明者: 田中拓男, 武安伸幸, 河田聡
出願人: 理化学研究所
出願日: 2008.4.22
出願番号: 2008-111610
5. 名称: 「3次元ナノ金属構造体の光還元加工法」
発明者: 田中拓男, 武安伸幸, 河田聡
出願人: 理化学研究所
出願日: 2008.3.25
出願番号: 2008-077913
6. 名称: 「近接場プローブ, 近接場ラマン分光システムのカンチレバー, 近接場ラマン分光システム, ならびに近接場ラマン分光システムの制御方法」
発明者: 河田聡, 齊藤結花, 田口敦清, 井上康志
出願人: 理化学研究所
出願日: 2008.3.3
出願番号: 2008-052511

7. 名称：「非線形光学材料、光記録材料、光記録方法、感光性材料、フォトリソグラフィ
ー方法、光重合開始剤、及び光増感剤」
発明者：藤田克昌，小林実，菊地和也，水上進，河田聡，河野省悟
出願人：大阪大学・ナノフォトン(株)
出願日：2008.1.30
出願番号：2008-018665
8. 名称：「散乱型近接場顕微鏡用プローブの製造方法」
発明者：小野篤史，早澤紀彦，田口敦清，齊藤結花，河田聡
出願人：理化学研究所
出願日：2007.12.25
出願番号：2007-332023
9. 名称：「チップ増強ラマンプローブ及びその製造方法」
発明者：田口敦清，早澤紀彦，齊藤結花，河田聡
出願人：理化学研究所
出願日：2007.12.25
出願番号：2007-332046
10. 名称：「金属コーティング方法および金属リングの製造方法」
発明者：武安伸幸，田中拓男，河田聡
出願人：理化学研究所
出願日：2007.7.3
出願番号：2007-174980
11. 名称：「微粒子表面への金属コーティング方法および該方法によって金属コーティン
グされた微粒子」
発明者：田中拓男，武安伸幸，河田聡
出願人：理化学研究所
出願日：2007.7.3
出願番号：2007-174981
12. 名称：「蛍光顕微鏡及び観察方法」
発明者：藤田克昌，河田聡，中村收，小林実
出願人：大阪大学
出願日：2007.6.4
出願番号：2006-547672

②海外出願 (3 件)

1. 名称：「近接場光学顕微鏡の信号光測定システム」
発明者：市村垂生，矢野隆章，井上康志，河田聡
出願人：JST
出願日：2009.9.15
出願番号：PCT/JP2009/004588
出願国：米国，欧州 (PCT)
2. 名称：「粒子プローブ近傍に存在する物質の分布を検出する方法、粒子プローブを用い
た画像化方法およびその利用」
発明者：河田聡，藤田克昌，井上康志，市村垂生，安藤潤
出願人：JST
出願日：2009.8.7
出願番号：PCT/JP2009/003792
出願国：米国，欧州 (PCT)

3. 名称：「近接場光分布伝送素子」
発明者：河田聡，加藤純一，小野篤史
出願人：理化学研究所
出願日：2006.12.19
出願番号：PCT/JP2006/325242
出願国：米国（PCT）

(5)受賞・報道等

①受賞

1. 河田聡，「第8回江崎玲於奈賞」（2011年10月13日）。
2. 河田聡，「紫綬褒章」（2007年11月3日）。
3. 河田聡，日本分光学会 学術賞（2008年11月19日）。
4. 藤田克昌，第51回光学論文賞（2010年3月18日）。
5. 藤田克昌，日本分光学会・奨励賞（2011年12月1日）。
6. 早澤紀彦，Elsevier社「Chemical Physics Letters: Most cited paper Award」（2008年2月1日）。
7. 齋藤結花，日本分光学会賞・奨励賞（2010年11月19日）。
8. 安藤潤，第29回（2010年秋季）応用物理学会講演奨励賞（2010年11月）。
9. 安藤潤，日本分光学会年次講演会 優秀ポスター賞（2010年11月）。
10. 安藤潤，日本光学会年次学術講演会 2010 ベストプレゼンテーション賞（2010年11月）。

②マスコミ（新聞・TV等）報道

新聞・雑誌記事

1. “江崎玲於奈賞に河田氏，” 日経産業新聞（2011年7月29日）。
2. “江崎賞に阪大・河田氏，” 朝日新聞（2011年7月29日）。
3. “『第8回江崎賞』阪大河田教授に，” 讀賣新聞（2011年7月29日）。
4. “立体写真 色もリアル，” 讀賣新聞（2011年4月8日）。
5. “理研・阪大 3次元ホログラム開発，” 日刊工業新聞（2011年4月8日）。
6. “分析展ハイライト：フォースによって分解能 4nm を達成した近接場光学顕微鏡，” O plus E（2009年10月号）。
7. “阪大、「近接場光」を活用，” 日本経済新聞（2009年8月24日）。
8. “ナノメートルのフィールドで見えない世界探求，” 産経新聞（2008年12月18日）。
9. “生体観察、染色不要に，” 日経産業新聞（2008年10月30日）。
10. “ナビ付きラマン顕微鏡 阪大発ベンチャーが開発・物性解析と形状計測両立，” 科学新聞（2008年9月12日）。
11. “金属ナノレンズを提案 理研の河田主任研究員ら世界初，” 科学新聞（2008年7月18日）。
12. “ナノの世界に「輝く」光 近接場光，” NHK 教育 サイエンス ZERO（2008年7月12日）。
13. “Nanolens makes color imaging of nano objects possible，” Nanowerk, (June, 2008).
14. “View from FOM 2008: Beyond the limit，” Nature Photonics, Vol. 2, pp. 338-339 (June, 2008).
15. “2008年度運行学会「学術賞」受賞，” 分光研究（2008年6月）。
16. “Scientists in Japan design first optical pacemaker for laboratory research，” OSA Public Release (May 28, 2008).
17. “おもしろマップできた 光の物語を旅しよう，” 中日新聞（2008年5月4日）。
18. “よみうり寸評/文科省が発行「光マップ」，” 読売新聞（2008年4月19日）。
19. “文科省が発表「一家に1枚」光マップ、全国150施設で無料配布，” 科学新聞（2008年4月18日）。
20. “光の種類 図解マップ，” 朝日新聞（2008年4月15日）。

- 21.“光と波長と現象 一目で (文科省が「光マップ」),”日経産業新聞 (2008年4月4日).
- 22.“ガラス基板に微細バネ構造” 日経産業新聞 (2006年11月16日).

テレビ報道

- 23.“ひとかけらの大宇宙～ようこそナノテクの世界へ,”スカイパーフェク TV! 765ch, (2008年7月16日 17:30-18:00) .
- 24.“ナノの世界に輝く光 近接場光”NHK教育・サイエンス ZERO, (2008年7月12日) .
- 25.“大学の未来・都市の未来・メディアの未来,”中之島ソーシャルリバーフォーラム 2008 スカイ A Sports+ (CATV), (2008年6月5日 14:30～15:30)

(6)成果展開事例

社会還元的な展開活動

- 以下の5つの国際会議を実行委員長として主催し、本 CREST の研究分野の普及・啓発に貢献した。
 1. Satoshi Kawata, Organizing committee chair, Focus on Microscopy 2008 (Awaji, Japan, April 13-16, 2008).
本会議においてJSTのスポンサーセッションを企画。オープニングで基調講演いただいた下村脩先生が2008年度ノーベル化学賞を受賞。Nature Photonics誌(2008年6月号)で会議の様子が紹介(図28を参照)。光学顕微鏡の会議としては世界最大規模(参加者約500名、展示企業38社)。
 2. Satoshi Kawata, Conference chair,“Functional Plasmonics and Nanophotonics”MRS Spring Meeting Symposia (San Francisco, USA, March 24-28, 2008).
 3. Satoshi Kawata, Conference chair,“Plasmonics: Nanoimaging, Nanofabrication, and Their Applications III,” SPIE Optics & Photonics, (San Jose, USA, August 26-30, 2007).
 4. Satoshi Kawata, Conference chair,“Plasmonics: Nanoimaging, Nanofabrication, and Their Applications IV,” SPIE Optics & Photonics (San Diego, USA, August 10-14, 2008).
 5. Satoshi Kawata, Conference chair,“Plasmonics: Nanoimaging, Nanofabrication, and Their Applications V,” SPIE Optics & Photonics (San Diego, USA, August 2-6, 2009).
- 「一家に一枚 光マップ」(文部科学省 製作・著作)を作製。全国の小・中・高等学校に約4万部、全国の科学館・博物館に約15万部配布(2008年4月3日)。

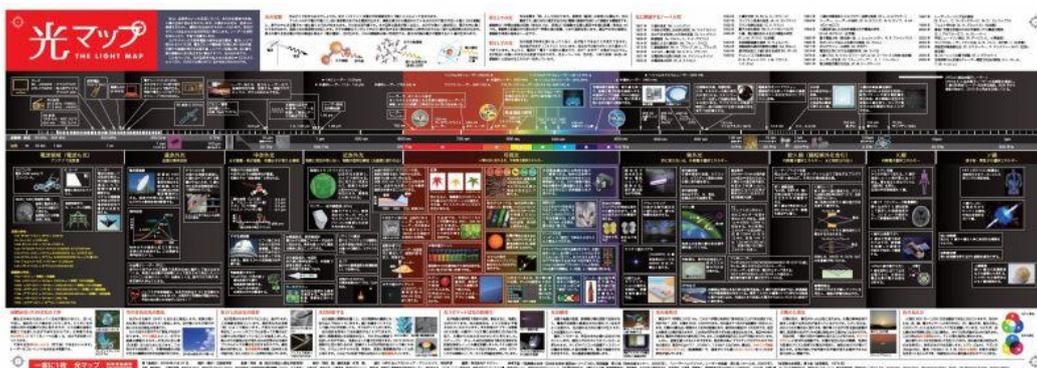


図25 光マップ

(詳細 : http://www.mext.go.jp/b_menu/houdou/20/04/08040301/001.htm)

- CREST の研究成果を 2009 分析展において出展した。展示会で最も注目された技術として、光関連の専門雑誌である「0 Plus E」の10月号に紹介された。
- JST の戦略的創造研究推進事業 CREST の発足 12 周年を記念したシンポジウム「CREST12 - 科学技術イノベーションを目指す CREST の挑戦-」において研究成果を出展した(東京国際

フォーラム, 2008年5月27日)。

§ 6 研究期間中の主なワークショップ、シンポジウム、アウトリーチ等の活動

年月日	名称	場所	参加人数	概要
2011年8月29日	ラマン分光技術の急展開:革新と波及	山形大学、日本	100名以上	第72回応用物理学会学術講演会においてラマン分光のシンポジウムを企画
2009年11月14日	特別授業(観音寺第一高校)	観音寺第一高校	N/A	河田聡(研究代表者)が高等学校での特別授業を行った
2009年8月2日-6日	Plasmonics: Nanoimaging, Nanofabrication, and Their Applications V	Convention Center, San Diego, USA	参加者300名以上。約90講演。	河田聡がSPIE年次大会においてプラズモニクスの国際会議を主催。
2008年8月10日-14日	Plasmonics: Nanoimaging, Nanofabrication, and Their Applications IV	Convention Center, San Diego, USA	参加者300名以上。約80講演。	河田聡がSPIE年次大会においてプラズモニクスの国際会議を主催。
2008年4月13日-16日	Focus on Microscopy 2008	淡路夢舞台国際会議場, 兵庫, 日本	参加者約500名。	河田聡が世界最大規模の先端顕微鏡国際学会を主催。JST スポンサーセッションも企画。
2008年3月24日-28日	Functional Plasmonics and Nanophotonics	San Francisco, USA	参加者300名以上。	河田聡がMRS年次大会においてプラズモニクスの国際会議を主催。
2007年8月26日-30日	Plasmonics: Nanoimaging, Nanofabrication, and Their Applications III	Convention Center, San Diego, USA	参加者200名以上。約50講演。	河田聡がプラズモニクスのSPIE年次大会においてプラズモニクスの国際会議を主催。
2009年11月14日	特別授業(長岡高等学校)	長岡高等学校	N/A	河田聡(研究代表者)が高等学校での特別授業を行った

§ 7 結び

SPP を利用した新しいナノスケール光学イメージング技術とその周辺技術の開拓を目的として本プロジェクトを開始したが、「§ 2. 研究構想(および構想計画に対する達成状況)」に記述したとおり、当初の研究目標をほぼ達成することができた。1nmに迫る空間分解能を達成したことは、これまでの光学顕微鏡に大きなブレークスルーを与えることとなった。このことは Nature Photonics への掲載などで評価されている。プロジェクトの後半期では、高い電場増強を有する SPP プローブの歩留まりの改善にチーム一丸となって注力した結果、二次元イメージングを再現性良くおこなうことが

可能となった。『誰でも使える』実用性の高い顕微鏡を開発したことによって、今後様々な分野での普及促進が期待される。生細胞内の SPP イメージング技術の開発は当初の計画にはなかったプロジェクトであったが、追加予算を有効に活用することによって順調に進捗し、三次元かつナノスケールで細胞内の生体機能を分光分析する手法を確立した。また、カーボンナノチューブの歪み分布をカラー画像表示することにも成功し、分析顕微鏡としての当初の目的を達成することができた(論文は現在投稿中)。

参画したメンバーが、本プロジェクトの研究活動・成果を通じて、大型予算や大学・国研でのポストを獲得できたことも大きな成果である。主たる共同研究者である段宣明教授は中国で CREST 級の予算を獲得するに至った。藤田克昌准教授は最先端・次世代研究開発支援プログラムに採択された。本プロジェクトに参画したポスドクはすべて、最終年度内に常勤職を得ることができた。

今後は、さらに空間分解能の向上を追求し続け、我々の夢である、1分子を分解して観察することができる SPP 顕微鏡の開発を目指したい。また自ら商品化を目指し、自然科学者や産業界の一般のユーザーが使える実用的な装置にまで完成させる予定である。



写真:2007年度 阪大-理研 合同シンポジウム開催時の集合写真 (於 淡路夢舞台国際会議場)



2008年度 阪大-理研 合同シンポジウム開催時の集合写真 (於 KKR ホテル大阪)



2009年度 阪大-理研 合同シンポジウム開催時の集合写真（於 大阪国際交流センター）



2010年度 阪大-理研 合同シンポジウム開催時の集合写真（於 ホテルニュー近江）



2011年度 阪大-理研 合同シンポジウム開催時の集合写真（於 ホテルサンルート彦根）