



北森 武彦

東京大学大学院 工学系研究科

プロフィール：昭和30年6月1日生 研究領域「状態と変革」研究者 平成10年10月より3年間 課題名「液相微小空間における単一クラスター計測と反応ダイナミクス」 昭和55年3月東京大学教養学部卒業、工学博士 現職：東京大学大学院工学系研究科応用化学専攻教授 昭和55年4月～平成元年3月日立製作所エネルギー研究所研究員、平成10年4月神奈川科学技術アカデミー・プロジェクトリーダー（兼任）  
趣味：ピアノ、スポーツドライビング

## 液相微小空間における単一クラスター計測と反応ダイナミクス

### 要旨

液体の構造や反応性等の基礎物理化学は、これまでの連続流体の理論から分子論へ移行しようと近年積極的に研究が進められている。しかし、この分野では理論的研究が先行し、実験的研究は気体や固体のそれに比較して大幅に遅れている。問題を困難にしているのは、対象とする分子数が非常に多いこと、分子間相互作用が非常に高速で起こること、クラスターとして集団的挙動を示すこと、などの点があげられる。分子数に関しては、気相中のクラスターを取り扱うことで、また、高速現象であることはフェムト秒レーザー分光で解決すべく研究が進められてきている。しかし、気相中のクラスターをいくら集合させても、凝縮相中の反応や物性を再現できないことが近年理論的に示され、クラスターとバルク相とのエネルギー交換を最も大きな特徴とする液体の分子論的描像への外挿には限界がある。そこで、バルク相中のクラスターを直接対象とする実験手法が望まれている。計測の対象が多数個のクラスターの場合、得られる情報が統計平均となりバルク液相との区別が困難になる。このため、可能な限り少数のクラスター、究極的には単一クラスターを計測可能な方法論が必要である。

私の研究では、極限ガラス加工技術により数 $\mu\text{m}$ ～サブ $\mu\text{m}$ 空間を作製し、その微小空間における液相クラスターのダイナミクスを分光学的に測定することを目標とした。分光手法としては、超高感度システムとしての熱レンズ顕微鏡と超高速システムとしての過渡レンズ顕微鏡および蛍光顕微鏡を平行して開発することとした。

微小な空間を分光学的に測定するには、まず高い透明性をもった石英ガラス基板を加工できる手法が必要である。従来の湿式ガラスエッチングでは、サブ $\mu\text{m}$ の空間を作製できない。また、シリコンの加工に用いられる収束イオンビーム法で絶縁物であるガラスを加工すると、基板の帯電やビーム内での電荷の反発により十分な空間精度が得られない。そこで、私は石英ガラス基板の加工に高速原子線を用いることとし、最小150nmの液体の流路を作製することに成功した（図1）。この流路は、機械的加工を用いた方法としては世界最小の流路であり、世界的に注目を集めている。

この空間を測定するために、過渡レンズ測定および時間分解蛍光測定を同時に行える顕微鏡を新たに開発した。過渡レンズ測定により、水和電子の形成する反応を追跡したところ、空間サイズが500nmの時に反応時間が遅くなる現象が観測できた。また、蛍光性分子であるローダミン6Gの蛍光寿命を測定したところ、5 $\mu\text{m}$ 以下の空間で150nmまで空間サイズに依存して、蛍光寿命が短くなる蛍光が観測された（図2）。サブ $\mu\text{m}$ という分子にとっては比較的大きな空間において反応の空間サイズ依存が観測されたのは初めてのことである。これらの現象は、分子そのものの変化ではなく、溶媒を小さな空間に閉じこめたことによる溶媒和・クラスター形成の変化であると考えられる。

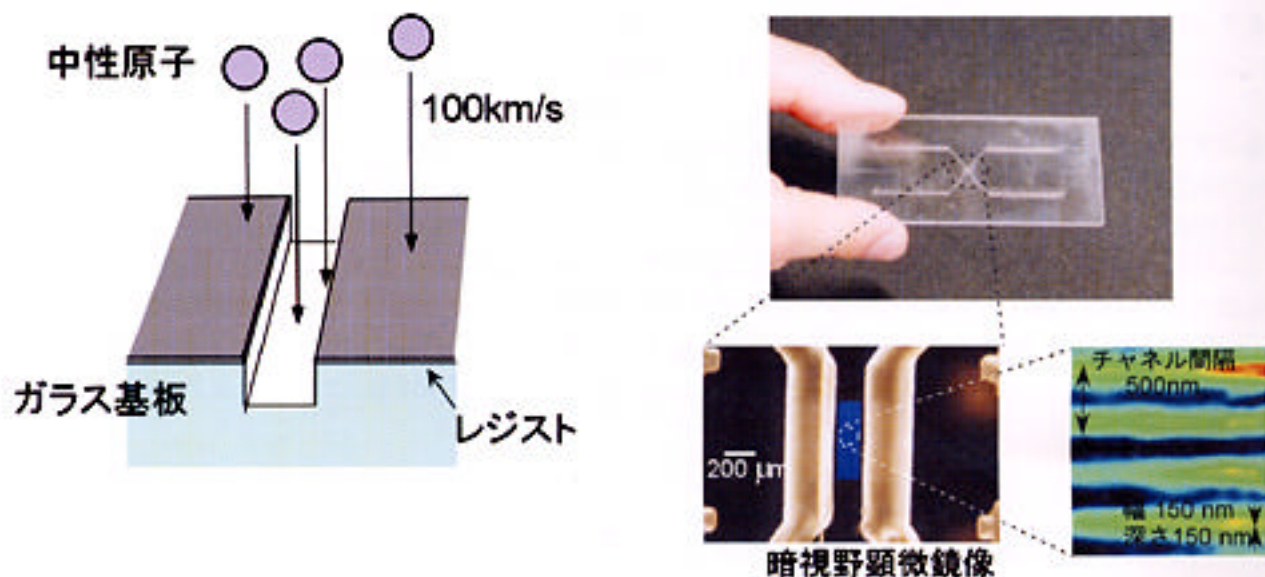


図1 高速原子線法で作製したサブ $\mu\text{m}$ の空間

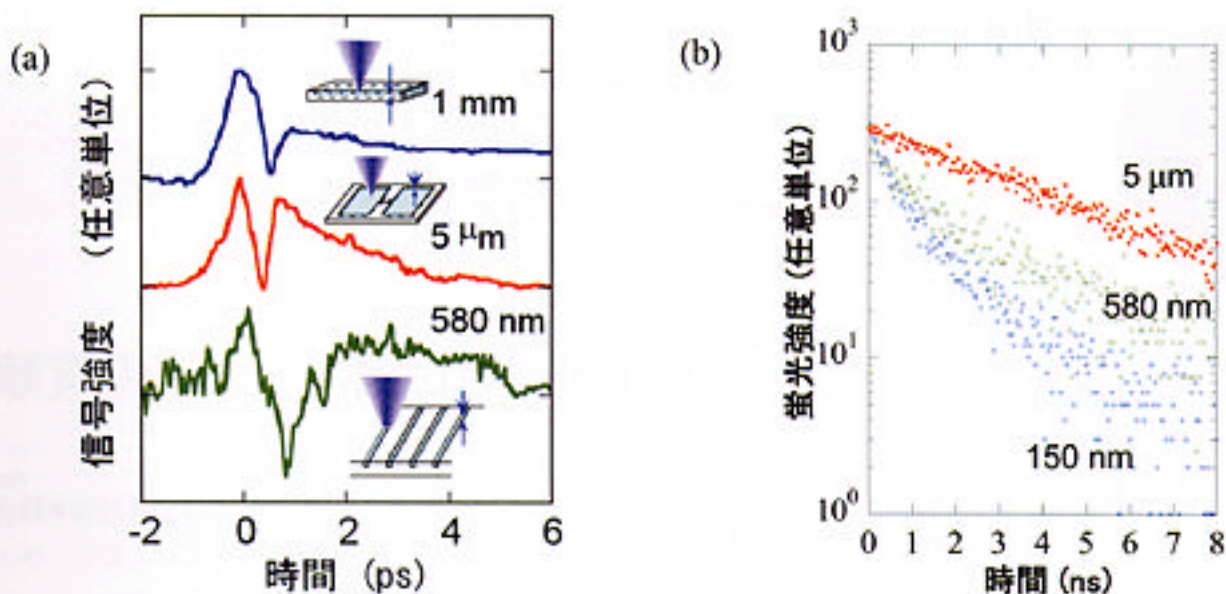


図2 (a) 過渡レンズ法による水和電子形成過程の空間サイズ依存測定結果  
 (b) ローダミン6G水溶液の蛍光寿命の空間サイズ依存測定結果

## 研究成果

### 学術論文

1. Y. Wakabayashi, M. Tokeshi, A. Hibara, D.-L. Jiang, T. Aida, T. Kitamori, "Morphological Dependence of Radiative and Non-Radiative Relaxation Energy Balance in Photoexcited Arylether Dendrimers as Observed by Fluorescent and Thermal Lens Spectroscopies", *J. Phys. Chem. B*, 105, 4441-4445 (2001).
2. M. Tokeshi, M. Uchida, A. Hibara, T. Sawada, T. Kitamori, "Determination of Sub-Yoctomole Amounts of Non-Fluorescent Molecules Using a Thermal Lens Microscope: Sub-Single Molecule Determination", *Anal. Chem.* 73, 2112-2116 (2001).
3. A. Hibara, M. Tokeshi, K. Uchiyama, H. Hisamoto, T. Kitamori, "Integrated Multilayer Flow System on a Microchip", *Anal. Sci.* 17, 89-93 (2001).
4. Y. Wakabayashi, M. Tokeshi, A. Hibara, D.-L. Jiang, T. Aida, T. Kitamori, "Infrared Absorption Characteristics of Large-Sized Spherical Aryl-Ether Dendrimers", *Anal. Sci.* 16, 1323-1326 (2000).
5. K. Uchiyama, A. Hibara, H. Kimura, T. Sawada, T. Kitamori, "Thermal Lens Microscope" *Jpn. J. Appl. Phys.*, 39, 5316-5322 (2000).
6. Y. Wakabayashi, M. Tokeshi, D.-L. Jiang, T. Aida, T. Sawada, T. Kitamori, "Long-Term Energy Storage of Dendrimers", *J. Luminescence*, 83-84, 313-315 (1999).
7. M. Tokeshi, M. Uchida, K. Uchiyama, T. Sawada, T. Kitamori, "Single and Countable Molecule Detection of Non-Fluorescent Molecules in Liquid Phase", *J. Luminescence*, 83-84, 261-264 (1999)
8. K. Sato, H. Kawanishi, M. Tokeshi, T. Kitamori, T. Sawada, "Sub-zeptmole Molecule Detection in a Microfabricated Glass Channel by Thermal Lens Microscope", *Anal. Sci.*, 5, 525 (1999)