

基礎科学研究

BASIC SCIENCE RESEARCH

当研究所で実施している一般研究の中から，特別に設定した研究費により一定の期間，複数分野の研究者が協力して推進する研究課題である。現在，次の9課題について研究を実施している。

- 1) コヒーレント科学研究
- 2) マルチバイオプローブ研究
- 3) エッセンシャル反応研究
- 4) 原子スケール・サイエンジニアリング研究(第II期)
- 5) MRサイエンス研究(第II期)
- 6) 低速量子ビーム研究
- 7) 環境分子科学研究
- 8) 計算科学技術研究
- 9) バイオアーキテクト研究

コヒーレント科学

Coherent Science Research

代表研究者 青柳克信

(コヒーレント科学研究推進グループ)

1. 自由電子のコヒーレント制御に関する研究

研究担当者：緑川克美，須田 亮，杉岡幸次，熊谷 寛，永田 豊，板谷治郎^{*1}，玉木裕介^{*2}(レーザー物理学研)

本研究では，フェムト秒領域の高強度レーザーの強力な光電場を利用することにより自由電子の挙動をコヒーレントに制御し，それによって新しいコヒーレント X 線光源やサブフェムト秒の極超短パルス光源を開発することを目的としている。今年度は，共振器内スペクトル制御を用いたフェムト秒タンサファイアレーザー増幅器を用いて，マルチスペクトル増幅による 10 フェムト秒パルスの増幅について実験的に検討した。その結果，本方式を用いることにより 10 フェムト秒パルスの増幅に必要なスペクトル帯域は確保できることは分かったが，位相補償に関してはまだ不十分であることが明らかになった。一方，高次高調波によるコヒーレント軟 X 線の発生に関しては，我々の開発してきた励起レーザーパルスの伝搬を制御して位相整合条件を満足させる方式が，高調波の発生効率ばかりではなく，その空間コヒーレンスの改善にも大きな役割を果たすことが明らかになった。空間コヒーレンスの度合いを示す干渉縞の明度は，従来法に比べて 0.31 から 0.71 に改善された。これによって，高次高調波は軟 X 線領域のコヒーレント光源として様々な応用分野を拓くことができるものと期待できる。

^{*1} 基礎科学特別研究員，^{*2} ジュニア・リサーチ・アソシエイト

2. コヒーレント量子プロセッシングに関する研究

研究担当者：青柳克信，石橋幸治，落合勇一，平山秀樹(半導体工学研)

(1) カーボンナノチューブを用いた二重結合量子ドット形成

これまで 1 本の単層カーボンナノチューブに金属電極を形成することにより，単一量子ドットを形成できることが分かった。このことは，ナノチューブ上に何らかの材料を蒸着することによりトンネル障壁が形成されることを示している。このことを利用して，電子ビームリソグラフィの位置合わせ技術により，単一量子ドット的な特性を示す試料の電極間に線幅約 0.1 μm の SiO_2 を蒸着して二重結合量子ドットの形成を試みた。 SiO_2 の蒸着により，クーロンダイヤモンドは蒸着前の周期的なパターンから，クーロンギャップの増大，不規則なダイヤモンド構造，負性コンダクタンスの出現などの二重結合量子ドットの形成を示唆する電気伝導特性が観測された。さらに，クーロン振動のバイアス電圧依存性や温度依存性も二重結合量子ドットの形成を示唆している。しかし，ゲート電圧により選択的に一方のドットのポテンシャルを変調することは現在のデバイス構造では困難である。今後，デバイス設計の最適化により各ドットのポテンシャルを独立に制御することを行い，量子ビットをはじめとするナノチューブベースの量子ドットデバイスの形成を目指す。

(2) 位置制御によるカーボンナノチューブデバイス技術の改良

従来のカーボンナノチューブ量子ドット形成技術には，ランダムなナノチューブ散布に伴う配線間のショートなどの問題があり，これがデバイス作製上の歩留まりの大きな問

題となっていた。これを解決するために、レジストをパターン化することによりナノチューブの散布に際する位置制御を試みた。これにより一定の位置制御が可能となり、デバイス作製の歩留まりを向上させることが分かった。この技術を利用して、電極間隔が $0.1\ \mu\text{m}$ 以下の超微細単一量子ドットを形成し、帯電エネルギーとして $2000\ \text{K}$ を得た。実際、 $40\ \text{K}$ でも十分なクーロンダイヤモンドを観測することができた。トンネル障壁に温度依存性があるために、室温でのクーロンブロッケードの観測はできなかったが、今後トンネル障壁形成技術の改良により室温で動作するナノチューブ量子ドットの実現は可能であると思われる。

(3) 開放型結合量子ドットの電子輸送現象

GaAs/AlGaAs 二次元電子ガスを有するヘテロ接合基板上に電子ビームリソグラフィを用いて、二重結合量子ドットを形成するためのゲートパターンを形成した。この二重結合量子ドットにおいて、低温で電子波干渉に伴うコンダクタンスの揺らぎを観測した。この揺らぎの平均的な周期(相関磁場)はドット間の結合に依存することが観測され、それは1個のドットに局在した原子の軌道から2個のドットにまたがる分子の軌道への移り変わりを反映したものであることが分かった。

開放型量子ドットの抵抗の温度依存性は対数的になることを見だし、揺らぎの谷と山の位置に依存して温度依存性が金属的であったり絶縁的に振る舞うことを見いだした。そして、その対数依存性はドット内で電子間相互作用が強められることによる可能性があることを示した。

(4) III 族窒化物半導体の紫外発光特性と発光ダイオードの開発

III 族窒化物半導体は、直接遷移発光が青から紫外域にわたって得られるため、将来、紫外発光ダイオードや、紫外半導体レーザーへの応用が大変期待されている。しかし、III-V 族窒化物半導体の紫外領域での発光は常温では弱く、また p 型ドーピングが大変難しいため、未だ紫外発光素子は実現していない。本研究では、ワイドバンドギャップ窒化アルミニウムガリウム (AlGaIn) に In を導入し、In 組成変調領域に閉じこめられた電子-ホールペアからの発光を利用することにより、 $300\ \text{nm}$ 付近の紫外発光領域において、室温での高輝度発光に初めて成功した。InAlGaIn 量子井戸からの発光は、市販されている青色発光素子の発光と常温において同様の高効率を得られることが明らかとなり、紫外発光素子に直接利用できることを示した。また、結晶成長において III-V 族材料の交互供給を、シーケンスを制御しながら行うことにより、Si と Mg の原子位置制御ドーピングを可能にし、窒化物半導体での良好なホール伝導特性を観測した。これらの技術を用いる、紫外短波長発光ダイオードを試作し、現在の LED における最短波長電流注入発光 ($330\ \text{nm}$) を得た。

3. コヒーレント構造制御に関する研究

研究担当者：尾上 順，田中秀樹，田島右副，関根理香*，武内一夫(レーザー反応工学研)

コヒーレント構造制御に関する研究では、クラスターの持つ構造特異性に着目し、その構造を構成要素とする新しい材料の創製を目指して研究を推進している。

(1) クラスタを核として用いたコヒーレント構造制御

フラーレン C_{60} を構成する炭素ネットワークに沿って 60 個の Si 原子によって被覆された $\text{C}_{60}\text{Si}_{60}$ は Si クラスターの特性を有する安定クラスターであると理論的に予言されており、新規なクラスターとして注目されている。本年度は、Si と C_{60} の混成薄膜中における反応のその場観測を行ったところ、 C_{60} と原子状 Si の混合により高効率に Si 付加 C_{60} クラスタが形成されること、またその反応には C_{60} 上の電子密度の高さが重要であることを見いだした。

(2) クラスタを単位とするネットワーク型コヒーレント構造制御

フラーレンを構成要素としたネットワーク構造により発現される特異的な物性を持つ新しい炭素物質相の創製を目的とした研究を行っている。本年度は、 C_{60} 薄膜の電界放射特性について電子線照射(加速エネルギー $3\ \text{keV}$)による融合反応の観点から検討を行った。その結果、水素ガス雰囲気下で作成した薄膜においては、より効率のよい電界放射特性を示すことが判明した。これは、融合反応により Fermi 準位付近の状態密度が大きくなったことと、電子放出が起きやすい sp^3 炭素が C-H 結合によって薄膜表面に提供されたためと考えられる。

(3) クラスタの位置選択的反応性を利用したコヒーレント構造制御

フラーレン C_{60} を m-クロロ過安息香酸等の過酸化物で処理すると、 C_{60} 表面の二重結合が酸素化され、エポキシ構造を有するフラーレン酸化物を形成する。この反応は、 C_{60} 上に存在する 30 個の二重結合に対して逐次的に進行し、1~30 までの様々な酸素付加数を持つフラーレン酸化物が生成すると考えられている。当研究室では、この酸素付加位置が、二重結合上の電子密度に支配されることに着目し、各酸素付加数における C_{60} 酸化物 (C_{60}O_n ; $n = 1-30$) の存在しうる異性体数とその構造を理論的に予想している。本年度は、これまで 2 種類しか知られていなかった C_{60}O_4 の異性体数が、我々の予想通り 5 種類以上存在することを実験的に見出すことに成功した。また、これまで実際に存在が確認されていた C_{60} 酸化物の酸素付加数は 1~5 であったが、LC-ESI-MS を用いた高感度質量分析によって、少なくとも $\text{C}_{60}\text{O}_{12}$ まで存在することを確認した。我々の理論に従えば、この $\text{C}_{60}\text{O}_{12}$ は球状クラスターの片方に酸素原子が集中した構造であることが予想されており、コヒーレント構造を有するヘテロクラスターの高効率合成を示唆するものである。

* 共同研究員

4. コヒーレント分子相関研究

自然界の秩序ある分子系における分子の相互作用を解明するとともに、分子運動を集団でコヒーレント制御する技術を開発し、併せてコヒーレント機能を持った物質相を創出することを目標に、研究を推進した。

(1) 固体表面系の分子相関

研究担当者：川合真紀，南任真史，小笠原寛人，堀本訓子*¹(表面化学研)

自然現象の多くは水や有機化合物などの反応に支配されている。これらの分子は、個々の分子間が比較的強い結合で結びつきながらも、その結合は無機固体に比べソフトで

多くの自由度を持っている。氷の結晶が多彩な形状を示すことから明らかのように、このような分子の凝集体は固有の結合形態を持ちながらも、様々な外的因子により凝集体形態が変わるなどの多様性を内蔵している。本年度は水分子の凝集体（氷）を金属表面に形成し、氷表面への分子の吸着状態を考察した。水分子凝集体表面へのアンモニア分子の吸着は、アンモニア分子の水への溶解過程の微視的な理解と相まって興味あるところである。ここでは、表面に形成される孤立の水酸基へアンモニア分子が配位吸着することが表面振動分光から示され、この吸着状態が、アンモニア分子が水に溶解する際の表面束縛状態となっていることを明らかにした。また、疎水性分子であるメタンや4フッ化メタンの吸着状態に関して、水分子の結晶状態によりその吸着エネルギーが著しく変化することが判明し、ソフトな分子凝集体と吸着分子との相互作用の詳細を今後明らかにすべく研究を進めている。

(2) 励起状態分子系の分子相関

研究担当者：宗像利明（表面ダイナミクス研究ユニット）

Si(001),(111)の2光子光電子分光から、占有準位と非占有準位間の光学遷移の線幅について考察した。特に、波長を細かく変えて測定することから幅の狭い非占有準位を捉えることができた。非占有準位経由の2光子光電子が、0.3 eV程度の共鳴幅近辺でのみ観測されることから、従来の2光子光電子分光でSiの非占有準位が捉えられなかったことの原因を明らかにした。また、共鳴幅が狭いことは光励起表面反応との関連で興味深い。また、高温超電導体Bi₂212の2光子光電子分光からは、フェルミ準位の2.6 eV上に未知の電子励起状態が観測された。この電子状態のバンド幅は0.3 eV程度と固体のバンドとしては非常に狭く、また、p偏光でのみ観測され、s偏光では、完全に消失する。エネルギー的には、Bi-Oの非占有準位に近いが逆光電子分光では観測されていない。2光子光電子分光でのみ観測されるこ

との原因として励起の動的過程や電子相関の影響が考えられ、検討を進めている。

(3) 分子集合体の分子相関

研究担当者：松尾由賀利（RIビーム科学研）；小林 徹（分子物性化学研）

フェムト秒およびナノ秒レーザーを用いて、金属、半導体、生体試料等のアブレーションを行い、発生した粒子を生体試料の分析に利用する研究、およびアブレーションプラズマそのものの解析を行った。より具体的には(i)遺伝子発現プロファイル解析における次世代技術開発に向けて、同位元素標識された生体分子の定量分析法の開発を行った。その結果、フェムト秒レーザーアブレーションによる生体分子の同時原子イオン化を見だし、従来法（蛍光法）に比べて格段の高速解析法実現が可能であることを明らかにした。(ii)金属（アルミニウム）表面にナノ秒レーザー光を集光・照射した際に発生するプラズマ中原子の空間分布を、縮退4光波混合法により測定した。その結果、中性原子はプラズマ外縁部に局在していることが判明した。プラズマ中心部にはイオンが局在していると推察され、今後の測定により検証する。(iii)狭帯域（0.0001 nm）パルス増幅光源を用いて、ナノ秒レーザーアブレーション法により生成されたSiO⁺分子イオンのドップラーシフトを測定した。放出された分子イオンはアブレーション後、数十μsまでは基板から垂直に直進性よく飛び出し、その後は熱拡散していくことが明らかになった。(iv)レーザーアブレーション法でアルカリ土類イオンCa⁺、Sr⁺、Ba⁺をHe、H₂、D₂ガス中において発生させ、LIF法で内部状態の変化を時間的に追跡した。アルカリ土類イオンのP励起状態における微細構造間のエネルギー間隔が、2つの準位間の遷移確率に大きく関係することを解明した。

*1 基礎科学特別研究員

マルチバイオプローブ（多機能性生理活性物質）研究 Research on Multibioprobes (multi-functional bioactive compounds)

代表研究者 長 田 裕 之
(抗生物質研究室)

細胞増殖・分化・プログラム死のメカニズムを解明するためには遺伝子情報を解読し、そこに書き込まれたタンパク質の構造と機能を解析する方法と細胞機能の阻害剤を用いて機能発現に必要なタンパク質を同定解析する方法がある。本研究では、細胞機能の調節物質（バイオプローブ）を用いた分子薬理学的手法によって、受容体とリガントの相互作用および細胞内シグナル伝達系を明らかにすることを目的とする。具体的には、細胞機能の新しい調節物質（マルチバイオプローブ）を創製すること、さらに分子生物学的手法によりその細胞内分子標的（ターゲット）を明らか

にすることで、究極的にはマルチバイオプローブとタンパク質の相互作用メカニズムに基づく細胞機能の調節を目的とする。

1. バイオプローブの創製研究

研究担当者：中田 忠、清水 猛、長澤和夫、高橋俊哉、西井良典*（有機合成化学研）；伊藤幸成、眞鍋史乃（細胞制御化学研）

上皮増殖因子阻害物質リベロマイシン類の合成を目指し、本年度は6,6-スピロケタール部の立体選択的な合成、三級