RI·放射線利用研究経過 報告書

平成21年度

首都大学東京 RI 研究施設運営委員会

まえがき

平成 22 年度より片田元己先生の後任として着任いたしました、都市教養学部理工学系化学コース准 教授の久冨木志郎(くぶき しろう)と申します。南大沢キャンパスの放射線取扱主任者としてまだ力不足 な点が多々あろうかと存じますが RI 研究施設の管理・運営業務に全力をつくす所存でありますのでご 指導、ご鞭撻のほどどうかよろしくお願い申し上げます。

さて、放射線業務従事者として登録されている研究グループより平成 21 年度の研究経過報告書の提 出をいただき、ここにまとめました。特に、理系共通施設である RI 研究施設を利用されているグルー プには必ず提出して下さるようお願いしたしました。平成 21 年度分の経過報告書ご提出につきまして 切にお願いを致しましたところ、全 25 件のご報告をいただきました。報告書をご提出いただきました 各研究室の先生方には深く御礼申し上げます。これからもますます多くのグループが、RI 研究施設を利 用されることを期待しております。

平成22年3月から9月にかけて管理下にないRIの点検報告をお願いいたしました。その結果、管理 区域内において3件の未登録のRIが発見されました。今後このようなことがないよう、徹底したRIの 管理を行ってまいりたいと存じます。RIを使われる研究室の皆様方におかれましてはお手数をおかけし て大変恐縮ではございますが、RI使用申請書等関連書類のご提出をお忘れなきよう、くれぐれもよろし くお願い申し上げます。加えて今年度は3年毎に行われる「定期確認」の年度でもあります。ご協力を お願いすることがあろうかと存じますがどうかよろしくお願い申し上げます。

都市教養学部理工学系、都市環境学部からは、研究施設運営のための経費として厳しい予算の中で継 続的にご支援をいただき、何とか施設の運営を行うことができております。 心より御礼申し上げます。 今後とも関係各位のご理解、ご協力を賜り、これからも RI 研究施設が安全に維持、管理していけます よう、よろしくお願い申し上げます。

平成 22 年 11 月

首都大学東京 RI 研究施設運営委員会

久冨木 志郎

I 平成21年度 利用状況の概要	
1. 認定されている放射線業務従事者数	1
2. RI研究施設利用者	1
3.利用時間	1
4. 放射性物質の出入	2
5. 教育訓練の実施	2
6. 健康診断	3
7. 個人被ばく管理	3
8. 業務委託	3
9. 放射線安全管理室委員会	3
10. 放射線管理状況報告書の提出	4
11. 学外での利用	4
12. R I 研究施設設備更新工事	4
13. その他	4
Ⅱ 平成21年度研究課題一覧・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	• 6
Ⅲ RI 研究施設を利用して行われた研究	
1. 化 学 コ ー ス:宇宙化学研究室	
ー核・放射化学的手法を用いた宇宙物質の研究-	8
2. 化 学 コ ー ス: 生物化学研究室	
ータンパク質・核酸の構造と生物活性に関する研究:	
組換え修復タンパク質 Rad22 複合体の解析-	9
3. 化学コース:同位体化学研究室	
ーメスバウアー分光法による分子間・分子内結合状態の研究、	
金属錯体の放射線分解過程の研究ー	11
4.生 命 科 学 コ ー ス:神経分子機能研究室	
-Cdk5の活性と脳機能に関する研究-	12
5. 生 命 科 学 コ ー ス : 植物ホルモン機構研究室	
ー植物ホルモン生合成調節および胚発生機構ー	14
6. 生 命 科 学 コ ー ス : 植物環境応答研究室	
ー植物の形態形成に関する研究ー	15
7.生 命 科 学 コ ー ス : 細胞遺伝学研究室	
ーショウジョウバエを用いた遺伝子機能解析-	15
8. 生 命 科 学 コ ー ス : 環境微生物学研究室	
ー環境中の微生物による物質代謝の研究ー	17

9. 生 命 科 学 コース: 微生物分子機能研究室

IV	<u>ب</u>	学外共同利用研究機関あるいは学内のX線装置を利用して行われた研究	
	1.	物 理 学 コ ー ス:原子物理実験研究室	
		- 高エネルギー加速器を用いた原子物理実験-	20
	2.	物 理 学 コ ー ス:ESR物性解明研究室	
		ー磁気共鳴測定に用いる試料の X 線解析-	20
	3.	物 理 学 コ ー ス:高エネルギー実験研究室	
		電気電子工学コース:光マイクロ波工学研究室	
		ー誘電率の放射線照射効果に関する研究ー	22
	4.	物 理 学 コ ー ス:高エネルギー実験研究室・サブグループ	
		ーポジトロニウムの生成および消滅過程の研究	
		高エネルギー加速器を用いた素粒子実験-	23
	5.	物 理 学 コ ー ス:電子物性研究室	
		ー強相関電子系物質の電子状態の研究、微細構造を持つ物質の研究-	24
	6.	化学コース:物性物理化学研究室	
		ー分子性物質の物性と構造研究ー	27
	7.	化 学 コ ー ス:分子集合系物理化学研究室	
		- 中性子線・X線散乱を用いた分子集合体の構造研究-	30
	8.	化 学 コ ー ス:有機化学研究室	
		ー新規共役系有機化合物の構造と性質ー	30
	9.	化 学 コ ー ス:有機合成化学研究室	
		-X線を用いた有機化合物の構造決定—	32
	10.	機 械 工 学 コ ー ス : 材料加工研究室	
		ー単結晶ニッケル基超合金の高温強度特性評価ー	34
	11.	分子応用化学コース:金村研究室(材料設計化学)	
		ー高機能セラミックス材料の構造解析-	34
	12.	分子応用化学コース:吉田研究室(分子物性化学)	
		ー機能性有機材料の構造解析ー	36
	13.	分子応用化学コース:春田研究室(材料設計化学)	
		ー金ナノ粒子の触媒作用に関する研究ー	37
	14.	分子応用化学コース:久保研究室(分子計測化学)	
		- X線を用いた分子集合構造の解析-	38
	15.	地 理 環 境 コ ー ス:地形・地質学研究室	
		ー堆積物のルミネッセンス年代測定-	39

V 研究成果など・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 41

I 平成 21 年度 利用状況の概要

1. 認定されている放射線業務従事者数 404 人(X線のみ取り扱う者も含む)

(平成21年12月1日現在)

教職員: 94 人

都市教養71人、都市環境20人、OU3人

学生: 338 人

都市教養 260 人、都市環境 69 人、OU 9 人 (学生の所属については、指導教員の所属先とした。)



放射線業務従事者の推移

- 2. R I 研究施設利用者 ~20 人/日 出入の延べ人数では、~50 人。
- 3. 利用時間
 - 9 時~17 時(月~金曜日)、それ以外の時間に使用する場合には、時間外届が必要となる。通常の
 利用時間:9 時~22 時(月~日曜日)
 - 施設利用のできない日:平成 21 年 12 月 30 日~平成 22 年 1 月 3 日 (年末年始)及び電気設備法 定点検日(平成 22 年 2 月 21 日(日)、但し 18 時以降は利用可能)、その他清掃日(年 4 回)、排気設 備の定期点検、貯留槽の清掃などのため数回程度利用できない日がある。

4. 放射性物質の出入(平成 21 年度)() 平成 20 年度
RI購入件数 12 件(14 件) 主な核種 ³H、¹⁴C, ³²P、³⁵S など
RI譲受件数 20 件(39 件) 主な核種 ²⁴Na, ³²P、⁴⁶Sc、⁵⁴Mn、⁵⁹Fe, ⁵⁷Ni、¹⁹⁶Au、¹⁹⁸Au、¹⁴¹Ce、¹⁴²Pr、など

5. 教育訓練の実施

第1回:平成21年4月2日(木)(11号館204)対象:継続者のみ【再教育】[124人]

午前: 10時30分~12時

1) 放射線障害予防規程関係(30分) 放射線取扱主任者 片田元己

2) 放射線障害防止法関連(45分) 放射線取扱主任者 片田元己

(放射線事故の事例の紹介を含む)

3) RI研究施設の利用について(15分) 放射線管理室

第2回:平成21年4月9日(木)(11号館204)対象:新規及び継続者【新規・再教育】

午前: 10時30分~12時(新規及び継続者)〔午前のみ73人〕

午後: 13時~17時30分(新規者のみ)〔午前・午後167人〕

RI件施設責任者挨拶 都市教養学部理工学系長 岡部 豊

1) 放射線障害予防規程関係(30分) 放射線取扱主任者 片田元己

2) 放射線障害防止法関連(60分) 放射線取扱主任者 片田元己

(放射線事故の事例の紹介を含む)

3) 放射性同位元素等の取扱い

i)化学関係 都市教養学部理工学系 化学コース 大浦泰嗣

ii)生物学関係 都市教養学部理工学系 生命科学コース 川原裕之

(放射線の人体への影響を含む。)

iii)物理学関係 都市教養学部理工学系 物理学コース 千葉雅美iv)RI安全取扱(全般) 放射線取扱主任者 片田元己

第3回:平成21年4月14日(火)(11号館202室)対象:X線継続者のみ【再教育】

午前: 10時30分~12時 [9人]

1)X線の法令関係について 放射線取扱主任者 片田元己

2)X線の取扱いについて 都市環境学部材料化学コース 吉田博久

特別:平成21年4月17日(金)(11号館204)対象:生命科学コース関連継続者のみ)

午後: 16時20分~17時50分 【再教育】〔45人〕

1)法令関係 放射線取扱主任者 片田元己

2) RIの取扱等について 生命科学コース担当者

その他:追加 平成 21 年 5 月 26 日(土) (8 号館 304)対象:継続者 〔22 人〕 午 前: 10 時 30 分~12 時 00 分(継続者のみ)

- 6. 健康診断
 - 学生:放射線障害防止法に基づき年1回 〔23日:214人;24日:107人〕
 - 日時: 平成21年4月23日(水)、24日(金)9:30~16:30(昼休みあり)
 - 場所: 8号館2階大会議室(JA神奈川県厚生連保健福祉センターに委託))
- 7. 個人被ばく管理

放射線業務従事者として認定された人に対して、毎月ガラスバッジを配布して行っている。測定は業 者委託((株)千代田テクノル):教職員についても首都大学東京として委託(契約は荒川キャンパスも一緒)。

8. 業務委託

- 1) 測定・清掃関連((株) イング)
 - ・放射線作業の場の測定、空気中放射性物質濃度の測定など(作業環境測定を含む)

4/7、5/12、6/9、7/7、8/5、9/8、10/6、11/10、12/8、1/7、2/9、3/23 に実施

- ・清掃(床、ドラフト:4回/年):6/10、9/9、12/9、3/24に実施
- ・放射線管理業務の一部

形態:月~金(8:30~17:00)放射線管理業務補助業務など遂行のため1名常駐

2)設備保守点検委託(富士電機システムズ(株))

排気・給気設備、排水設備、実験冷却水設備、モニタリングシステムなど。

- 排気フィルタの交換は、8月に実施。
- ○春季の設備定期点検
- 期間:平成21年5月18日(月)~5月21日(木)
- 項目:チラーユニット、空調・換気・MD系統自動制御、温水ボイラー、実験冷却水、エアハンドリン グユニット、送・排風機など
- ○秋季は上記の他に排水設備、実験冷却水槽・貯留槽などの清掃、モニタリングシステムの点検・ 校正などの点検
 - 期間:平成 21 年 11 月 16 日(月)~11 月 20 日(木)
 - ☆本年度は排気設備、排水設備、ドラフトなどの更新が予定されているため、モニターなどの点検を前倒しで実施。
- 9. 放射線安全管理室委員会
 - 放射線管理の実務は、担当の教員(化学コース教授:片田、同助教:秋山)及び業務委託常駐者(岩 月)で行っているが、管理上の具体的問題点、方法等の検討、協力などのために管理室委員会が設 置されている。
 - 委員:汲田(物理)、大浦(化学)、春田(生命)、古屋(生命)、斉藤(生命)、山崎(都市基盤環境)、 秋山(管理室)

開催:年1、2回及び教育訓練時の受付など

1回目:12月2日(水)、2回目:3月11日(木)実施

10. 放射線管理状況報告書の提出

4月1日から翌年の3月31日までの期間における事業所の放射性同位元素の在庫及び放射線管理の状況について、事業所長を通じて文部科学大臣に提出した。(平成21年6月)

- 11. 学外での利用(本事業所では、学外での利用が比較的多い。)
 - 1) 原子力研究開発機構(原子力科学研究所) 2) 高エネルギー加速器研究機構
 - 3)理化学研究所 4)(財)高輝度光科学研究センター
 - 5) 東北大学大学院理学研究科附属原子核理学研究施設(東北大学電子光理学研究センター)
 - 6) 放射線医学総合研究所 7) 東京都医学研究機構
 - 8) 東京都臨床医学研究所東京都老人総合研究所 9) 東京大学工学部
 - 10) 東京工業大学理学研究科 11) 筑波大学研究基盤総合センター応用加速器部門
 - 12)京都大学放射線生物研究センター
- 12. RI研究施設設備更新工事

文部科学省放射線規制室に12月9日付で変更許可申請を行い、1月29日付けで許可がおりた。RI 研究施設の使用は2月5日までとし、それ以降3月31日まで使用不可とした。その間工事が行われ、3 月23日までには完了した。3/23作業環境測定、3/24清掃(午後完工検査)、325日施設検査。

13. その他

○大学等放射線協議会安全研修会、放射線安全講習会(主催:放射線障害防止中央協議会、(財)原子 安全安全技術センター)、放射線取扱主任者年次大会(主任者研修)などに参加。

参考

- 放射線施設:RI研究施設、ECD ガスクロ使用室(8号館 436 室、9号館 249 室及び RI 棟 108 室)
- RI研究施設の維持・運営

RI研究施設は、444TBq(⁶⁰Co)の密封線源と下限数量の18万倍となる非密封線源の貯蔵能力を 有しているため、特定許可使用者に認定されている。⁶⁰Co線源は、高レベル線源として届出済み。

- ・管理区域において実験を希望する場合には、予め申請しRI研究施設運営委員会の許可が必要。新たな核種を装置など使用する場合には、放射線安全管理部会の許可が必要。
- ・管理区域内には、主任者又は管理室の許可がなければ入室はできない。
- ・放射線施設は、使用施設などの位地、構造及び設備について技術上の基準が定められており、
 その基準に適合するよう維持しなければならない。

例えば、排気能力が下がったり、床や壁に亀裂が入ったりしたことを経年劣化によるものだか ら仕方がないとは言えず、常に許可が下りたときの状態(条件)を維持しなければならない。

- また、技術基準に関わっている箇所については勝手に変更したり、交換することはできない。 (変更許可申請が必要となる。)
- ・震度4以上の地震が起きたら直ちに放射線施設を点検し、その結果について文部科学省に通報 しなければならない。1昨年度は、8月に一度八王子地区で震度4の地震があり通報した。【通報 連絡者:放射線取扱主任者(片田)】

Ⅱ 平成 21 年度研究課題一覧

放射線業務従事者として登録されている教職員・学生による研究活動は、RI研究施設、共同利用X線装置やコース、研究室に設置されているX線装置の利用、学外の共同利用施設などでの利用な ど多岐にわたっている。以下の表にそれぞれの研究課題を示す。

平成 21 年度放射線関連研究課題一覧

都市教養学部 理工学系

コース/研究室	課題
数理科学 /計算システム	電子デバイスのγ線吸収蓄積障害の研究
物理学 /原子物理実験	結晶場によるコヒーレント共鳴励起を用いた原子物理
ナノ物性	ナノ構造物質の構造解析
ESR物性解明	磁気共鳴測定試料のX線構造解析
ちょうルジ 中酔	①ポジトロニウムの生成および消滅過程の研究
尚上イルキー夫映	②高エネルギー加速器を用いた素粒子実験
高エネルギー実験・千葉グループ	誘電率の放射線効果に関する研究
光物性	放射光を利用した物質の電子構造の研究
索 フ 版 M	①強相関電子系物質の電子状態の研究
電丁物性 	②微細構造を持つ物質の研究
宇宙物理実験	宇宙観測用X線検出器の開発
化学 /物性物理化学	分子性機能物質の構造と物性
	中性子線・X線錯乱および放射性同位体を用いた分子集合体
分丁果合糸物理化子 	の構造研究
無機化学	X線を用いた金属錯体の構造解析
宇宙化学	核・放射化学的手法を用いた宇宙物質の研究
有機化学	新規共役系有機化合物の構造と性質
一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一一	①電子顕微鏡によるカーボンナノチューブの研究
反応物理化子	②イオン衝突実験
有機合成化学	X線を用いた有機化合物の構造決定
生物化学	タンパク質・核酸の構造と生物活性に関する研究
日片开ル学	①メスバウアー分光法による分子間・分子内結合状態の研究
1月11年11日子 	②放射化学的手法を用いた金属フラーレンの研究

都市教養学部 理工学系

コース/研究室	課問題
生命科学 /神経分子機能	Cdk5の活性制御と脳機能に関する研究
発生プログラム	発生における遺伝子発現と機能の解析
ホルモン細胞機構	植物ホルモン生合成調節および胚発生機構
植物光応答機構	植物の携帯形成に関する研究
細胞遺伝学	ショウジョウバエを用いた遺伝子機能の解析
分子遺伝学	細菌の遺伝子発現機構に関する研究
環境微生物	環境中の微生物による物質代謝の研究
細胞エネルギー	光合成細菌のエネルギー代謝に関する研究
機械工学 /精密機械材料	材料強度に関する研究
材料加工 (筧)	単結晶ニッケル基超合金の高温強度特性評価
吉葉研	グリーンコンポジットのキャラクタリゼーション
電気電子工学 /電子物性工学第一	超伝導材料のX線による評価
電子通信工学	誘電率の放射線照射効果に関する研究

都市環境学部

都市基盤環境 /衛生工学	γ線照射による難分解性高濃度有機性廃水の処理	
材料化学/機能システム化学	芳香族ポリイミドの合成と物性に関する研究	「「「「「」」、「」」、「」、「」、「」、「」、「」、「」、「」、「」、「」、「
(川上研)		
材料設計化学(金村研)	高機能セラミックス材料の構造解析	
分子変換化学(山口研)	X線結晶解析による錯体触媒の研究	
分子物性化学(吉田研)	有機材料の構造解析	
分子変換化学(井上研)	高機能光反応場の構造解析	
材料設計化学(春田研)	金ナノ粒子触媒の構造解析	
地理理培 /地形,地质学	光ルミネッセンス(OSL)測定を利用した砂粒子の運搬	
心理味呪 / 地/// · 地貝子 	履歴の解明	

人間科学研究科

ヘルスプロモーションサイエンス /栄養生化学	消化管の物質輸送と輸送体発現に関する研究
運動生化学	骨格筋への糖輸送機序の解明

Ⅲ RI研究施設を利用して行われた研究

RI 研究施設を主として利用して行われた研究の経過報告書(研究課題・研究概要)などを示す。成果については、後段にまとめて掲載した。

1. 化学コース:宇宙化学研究室

○研究課題

核・放射化学的手法を用いた宇宙物質の研究

○研究概要

種々の宇宙化学的,地球化学的試料を用いて,その元素組成や宇宙線生成放射性核種濃度を調べ, 太陽系の形成や惑星の進化過程の研究を行っている.元素組成定量のために,日本原子力研究開発機 構(JAEA)の研究炉と東北大学原子核理学研究施設の電子線形加速器を利用した放射化分析法を主とし て利用している.放射化分析法は,安定核種を核反応により放射性核種に変換し,これから放出され る放射線を測定することにより,元素濃度を定量する分析法である.既存の方法を利用するだけでな く,新たな試料に適用するための開発も同時に行っている.これらの方法を環境試料,特に大気浮遊 粒子の元素組成定量にも応用している.宇宙線生成放射性核種は,筑波大学タンデム加速器を利用し た加速器質量分析法により調べている.

また,JAEAの超重元素核化学研究グループと共同でJAEA タンデム加速器を利用して,超アクチノ イド元素の化学的性質の研究も行っている.

21 年度は JAEA の研究炉が計画外停止したため、中性子を利用した放射化分析を十分に行うことが できなかった.以下に 21 年度に得られた成果の一部を紹介する.

光量子放射化分析法による大気浮遊粒子中の炭素の定量

光量子放射化分析法(PAA)は、試料に制動放射線を照射して(γ, n)反応により生成した放射性核種 を測定することにより元素を定量する方法である.放射化分析法としては、中性子を利用した中性子 放射化分析法(NAA)が最もポピュラーであるが、PAA は NAA では定量困難な元素を定量することができ る. その元素の一つが炭素である.

最近,大気中に浮遊している微小粒子 PM2.5(粒径 2.5μm以下)の動態が人間への健康被害の観点から注目され,環境基準の制定にむけた議論が行われている.我々は,大気浮遊粒子の元素組成を NAA を利用して定量しているが,大気浮遊粒子を構成する主要な元素の一つである炭素濃度を得ることができない.そこで,炭素濃度を PAA により定量した.

8号館屋上にて、大気を流速16.7 L/min にて石英製フィルタを通して約5日間吸引し、粒径の異なる2種類の微小粒子、PM10とPM2.5をそれぞれ同時に捕集した.捕集した粒子質量を秤量後、フィルタから直径10mmの円盤を2枚切り出し、炭素定量用の試料とした.これを既知量の炭素板とともに、

8

東北大学原子核理学研究施設の電子線形加速器により最大エネルギー25MeVの制動放射線を20分間照 射した.照射後,生成した¹¹Cからの消滅γ線を測定し,炭素濃度を得た.

図に 2007 年から 2009 年に採集した PM10 と PM2.5 粒子の質量濃度と炭素濃度の箱ヒゲ図を採集年ご とに示した.3 年間で質量濃度と炭素濃度共に大きな変化は見られなかった.PM10 と PM2.5 の質量濃 度の年平均はそれぞれ約 31 と $18 \mu g/m^3$ に対し、炭素濃度はそれぞれ 6 と $4 \mu g/m^3$ であり、粒子に対 する炭素の割合は約 20% であった.PM10 と PM2.5 の濃度差は、PM10 粒子の中で PM2.5 よりも径の大き い粒子の濃度に相当する.この粗粒の質量濃度と炭素濃度の年平均は、約 13 と $2 \mu b/m^3$ で、粒子濃度 は PM2.5 粒子と同程度であるが、炭素濃度は約 1/2 であり、炭素は細粒に多く分布していることがわ かった.これは、炭素の起源が人為起源であることを示唆している.



図 2007 年から 2009 年に採集した粒子の (a) 粒子質量濃度と (b) 炭素濃度

○博士論文・修士論文、卒業研究

【博士論文】

(1) Wee Boon Siogn:「ホワルダイトとポリミクトユークライト:太陽系初期に起こった衝突現象 (英文)」

【修士論文】

- (1)田村 麻衣:「ICP-MS 法を用いた岩石試料中の Zn, Cd, In, T1, Pb, Bi の定量法の確立と Tafassasset 隕石への適用」
- (2) 日高 義浩:「微量元素組成に基づく月隕石 Dhofar 1428 起源地域の物質進化の考察」
- (3) 渡部 良 :「宇宙地球化学的試料への適用をめざした多重即発ガンマ線分析法の基礎検討」

【卒業研究】

- (1) 今村 典央:「鉄隕石中の極微量マンガン定量法の検討」
- (2) 佐々木雄飛:「加速器質量分析法による隕石中の⁴¹Ca 定量のための試料調製法の検討」

2. 化学コース: 生物化学研究室

○研究課題

○研究概要

電離放射線によるゲノム損傷は、初めの 応答を活性化し続け、遺伝的不安定性や変 異頻度の上昇を一定期間にわたって誘導す る。この現象は遅発性突然変異と呼ばれて おり、エピジェネティックな損傷の記憶系 と、その下流に位置する変異導入系の活性 化の結果起こると考えられている。

分裂酵母 Schizosaccharomyces pombeを モデル生物として用いたわれわれの研究か ら、これまでに、(1)X線照射は、それに よる細胞周期の停止から細胞が回復したの ち約10細胞世代にわたって、被照射細胞



図1:二段階精製と質量分析を組み合わせて同定された Rad22 複合体構成因子。

とその子孫細胞の組換え頻度を上昇させること、(2)遅発性におこる組換えは初めの損傷の位置や損 傷によって誘導される活性酸素の産生とあまり相関がなく、*trans*に起こりうること、(3)X線照射 は、分裂を行っている細胞内における組換え修復因子Rad22の遅発的な活性化も誘導すること、(4) Rad22の遅発的な活性化は遅発性組換えと同程度の期間継続することが明らかになっている。

これらの結果は、Rad22 が遅発性組換えにおいて重要な役割を担っていることを示唆しているが、 Rad22 の遅延的な活性化を制御するメカニズムは明らかになっていない。

われわれは、Rad22 をベイトとしたプルダウンアッセイと質量分析を組み合わせ、Rad22 の活性調節 因子の検索を試みている。昨年度は、Rad22 複合体の二段階精製に成功し、そこに含まれる一群の因 子を質量分析法によって同定した(図1)。それらの多くは損傷修復関連タンパク質やDNA 結合タンパ ク質であり、損傷修復の過程そのものに重要、あるいは損傷箇所に複合体を呼び込むための機能を持 っている因子が Rad22 複合体中に一群となって存在していることが明らかになった。

ついで、γ線照射(500 Gy)後の分裂酵母 細胞内でそれらの因子の量的変化が観察され るかどうかを、非照射細胞、照射後0世代な らびに7世代目の細胞からRad22複合体を精 製し比較した(図2)。照射直後の細胞やまだ 組換え頻度が高く保たれ続けている7世代目 の細胞集団からRad22複合体を精製し、非照 射細胞の構成因子と比較したところ、Rad22 結合タンパク質の種類や結合量に大きな変化 は見られなかった。この結果から、電離放射



図2: γ線照射直後ならびに7世代後の Rad22 複合体 構成因子。

線照射後にみられる Rad22 の活性化の継続には、複合体へのあらたなタンパク質因子の結合や、既存 因子の乖離による調節ではなく、一過性の相互作用因子や複合体因子に対する修飾による調節が重要 であると考えられた。

3. 化学コース:同位体化学研究室

○研究課題

1) メスバウアー分光法による分子間・分子内結合状態の研究

2) 金属錯体の放射線分解過程の研究

○研究概要

メスバウアー分光法は、原子核が放出するγ線が同種の原子核によって共鳴吸収される現象を利用 した分光法で、1958年に西ドイツの R. L. Mössbauer によって発見された。無反跳核γ線共鳴分光法 とも呼ばれる。メスバウアー分光法は鉄やスズなど限られた元素(およそ40元素)にしか適用できな いが、その元素の周りの化学状態や磁気性質、相転移など多くの情報が得られ、特に原子価状態につ いては直接に知見が得られる。放射性同位元素を利用することにより、金属フラーレンの化学的反応 性などに関する詳細な知見が得られる。21年度は、以下のテーマを中心に研究を進めた。

(a) アルキルアンモニウムシュウ酸鉄(Ⅲ) 錯体における磁気緩和の研究

アルキルアンモニウムを対イオンとする一連のシュウ酸鉄(Ⅲ) 錯体を合成し、メスバウアース ペクトルの測定を行った。長鎖のモノアルキルアンモニウムイオン(10≦n≦18)を対イオンとし たシュウ酸鉄(Ⅲ) 錯体は層状構造を有し、いずれも液体窒素温度において、スピン-スピン相互 作用による幅広い1本のスペクトルが観測された。その線幅はアルキル基の炭素数の増加(Fe-Fe 間 距離の増大)とともに大きくなり、スピン-スピン相互作用の存在が示唆されたが、室温から液体 窒素温度までの温度領域において、温度の低下とともに線幅が広がり、スピン-格子相互作用の存 在も無視できないことがわかった。この傾向は、マロン酸の場合と比較して顕著であった。

また、n=10においては、230K付近で線幅が不連続に変化し、相転移などの存在が示唆された。 この温度領域でDSCにも熱異常が観測され、1次の相転移が確認された。XRDから求められたFe-Fe 間距離は、3次元の場合には十分磁気分裂スペクトルが観測される距離であるが、線幅が広がるの みで、磁気分裂ピークを観測することはできなかった。このことは、2次元的にはスピンースピン 間の距離は隔てられているが、層内では、十分か距離ではないことを示唆している。

(b) シアノ架橋したランタノイド-Fe 錯体の研究

ランタノイド元素のイオン半径と⁵⁷Fe-メスバウアースペクトルの四極分裂の間に相関がみられ、 大きく3つのグループに分けることができた。得られた錯体は、軽希土では比較的安定であったが、 中、重希土では、空気中の水分を吸収して構造が変化した。中希土では、四極分裂が大きくなり、 重希土では逆に小さくなったが、その変化後の四極分裂の大きさは、ほぼ同じであった。このこと から水分を吸収後の錯体の構造が同形であることが推測されるが、XRDはそのことを支持しなか

11

った。それぞれの系での、合成直後や水を吸収して構造が変化した後の錯体のX線構造解析が必要 である。また、初めから結晶水を含んだ錯体の合成についても検討が必要である。

(c) ランタノイドを内包した金属フラーレンの研究

5PBBカラムを用いたクロマトグラフィーにより解析的に金属フラーレンの分極率を決定した。また、A1C1₃などのルイス酸による酸化還元反応を利用してフラーレン粗抽出物からの金属フラーレン分離法を検討した。

○博士論文・修士論文、卒業研究

【卒業研究】

- (1) 斎藤 陽博: 「クロマトグラフィーによるフラーレンの解析的研究」
- (2) 大泊 悟 :「メスバウアー分光法によるシアノ架橋したランタノイドー鉄錯体の研究」
- (3) 林田昌太郎:「長鎖アルキルアンモニウムを用いたシュウ酸鉄錯体のメスバウアー分光学的研 究」
- (4) 濱野 達行:「ルイス酸を用いた金属フラーレン分離法の検討」

4. 生命科学コース:神経分子機能研究室

○研究課題

Cdk5の活性と脳機能に関する研究

○研究概要

微小管結合タンパク質 Tau は微小管の安定性を制御するタンパク質である。アルツハイマー病に代 表される神経変性疾患の中には異常にリン酸化された Tau を主要な構成成分とする神経原線維変化と 呼ばれる病理変化が見られる。Tau のリン酸化状態は、タンパク質リン酸化酵素と脱リン酸化酵素の バランスによって制御されており、タンパク質リン酸化酵素としては Cdk5、GSK3b、PKA などが、脱リ ン酸化酵素としては PP2A が知られている。近年、前頭側頭葉型認知病 (FTDP-17) において Tau 遺伝子 に変異が見つかり、Tau 遺伝子に起きた変異が過剰リン酸化、および認知症を起こしうることが明ら かになった。しかし、なぜ FTDP-17 変異型 Tau が過剰にリン酸化されているのかは分かっていなかっ た。Pin1 はタンパク質のリン酸化された Ser/Thr-Pro 配列を認識し C 末の Pro の構造をシスからトラ ンスに変えるプロリン異性化酵素である。Pin1 は Tau のリン酸化された Thr212, Thr231 に結合し、 Tau のリン酸化状態を制御していることが報告されている。最近、当研究室では Cdk5 によりリン酸化 された Tau の脱リン酸化が Pin1 により促進され、FTDP-17 型変異 Tau (P301L、R406W)は Pin1 による脱 リン酸化促進効果を受けないことを報告している。この結果は Cdk5 によるリン酸化部位 (Ser202、 Thr205、Ser235、Ser404)にも Pin1 が結合し、この結合が Tau のリン酸化状態を制御し、FTDP-17 型 Tau はこの制御を受けない可能性を示唆している。本研究では Tau の Cdk5 によるリン酸化部位に Pin1 が結合するか、さらに FTDP-17 型変異 Tau と Pin1 の結合について *in vitro*で検討した。 まず、マウス脳から Pin1 の cDNA をクローニングし、GST タグを付加した Pin1 (GST-Pin1) を作成した。作成した GST-Pin1 はマウス脳抽出液中の Tau とリン酸化依存的に結合することが GST-pull down 法により確認された。Cdk5 でリン酸化した Tau が GST-Pin1 に結合することを GST-pull down 法、



図1 Cdk 5 リン酸化部位変異 Tau の Cdk 5 によるリン酸化。タウの野生型(WT)、Ser202 の Ala 変異体 (S202A)、Ser202 と Thr205 の Ala 変異体 (S202A/T205A)、Thr205 の Ala 変異体 (T205A) を Cdk5/p25 でリン酸化した 1 次元の SDS-PAGE (A) と 2 次元ホスホペプチドマップ(B)。いずれも[g-³²P]ATP を用 いたオートラジオグラフ。いずれの Tau もリン酸化されたが(A)、S202A/T205A ダブル変異体の 2 次元ホスホペプチドマップ(B-d) ではスポット1 (矢頭) が消失していた。(b) と (c) ではそのスポットが観察されるため、どちらか一方だけがリン酸化されると考えられた。

表面プラズモン共鳴法により明らかにした。Pin1 結合部位を調べる為に、Tau の Cdk5 リン酸化部位に 変異を導入し、大腸菌に発現させ精製した。Cdk5 は Tau の Ser202、Ser235、Ser404 をリン酸化する ことが知られている。Thr205 については、曖昧であったので、Ser202 と Thr205 の Ala 変異体を用い て検討した(図1)。Thr205 もリン酸化されるが、一つの Tau 分子内では、Ser202 と Thr205 のどち らか一方だけが、リン酸化されることが判明した。リン酸化部位全て (Ser202、Thr205、Ser235、Ser404) を Ala に置換した変異 Tau (4A) は Pin1 に結合しなかった(図2)。



図2 リン酸化 Tau と Pin1 の結合。野生型(WT)と4 つのリン酸化部位を変異させた Tau(4A)を Cdk5/p25 でリン酸化し、GST-Pin1 によるプルダウン法で結合を調べた。WT-Tau はリン酸化されると Pin1 と結合するようになったが(レーン2)、4A はリン酸化しても結合がみられなかった。

リン酸化部位を1カ所残した変異Tau(3A)を用いた解析により、リン酸化されたSer202, Thr205, Ser235 にも結合するが、リン酸化 Ser404 に強く結合することが分かった。また、Cdk5 によりリン酸化した FTDP-17 型 Tau は Pin1 との結合が若干低下していた。これらの結果は Cdk5 によってリン酸化された Tau の Ser404 に Pin1 が結合し、脱リン酸化を促進すること、また、FTDP-17 型変異 Tau ではこの結合 が低下する為に脱リン酸化が低下し、その結果として過剰にリン酸化される可能性を示唆している。 今後は細胞内でもリン酸化に依存した Tau と Pin1 との結合が起こっているかを確認し、Pin1 の結合 によって脱リン酸化が生じることを証明することが重要であり、それが FTDP-17 などの病理メカニズ ムを明らかにすることにつながると考えられる。

○博士論文・修士論文、卒業研究

【博士論文】

- (1) 遠藤 良 :「パーキンソン病モデル神経細胞死における Cdk 5 の役割」
- (2)細川 智永:「シナプス可塑性関連キナーゼ Cdk 5 と CaMKII の相互作用及び Cdk5 活性化サブユニット p35 の生体内リン酸化の解析」

【修士論文】

- (1) 木村 妙子:「Peptidyl-prolyl isomerase Pinl と微小管結合タンパク質の相互作用解析」
- (2) 高野 哲也:「AATYK1A のリサイクリングエンドソーム輸送活性は Cdk5-p35 によって制御される」
- (3) 富田 裕也: 「In utero electroporation 法による Dab1 の機能解析」

5. 生命科学コース:植物ホルモン機構研究室

○研究課題

植物ホルモン生合成調節および胚発生機構

○研究概要

植物ホルモン(主に、オーキシン(IAA))の生合成経路と関与する酵素の特定、また、それら植物 ホルモンの作用機構を植物の胚発生や形態形成との関連で明らかにするため、分子生物学・分子遺伝 学・生化学的研究手法を用いて研究を進めた。トウモロコシおよびイネ幼葉鞘における IAA の分布と 移動、微量組織からの抽出と定量に関しての成果を得た。また、イネ幼葉鞘先端部と基部を用いたマ イクロアレイ解析を行い、先端部特異的に発現する遺伝子群を網羅的に同定し、その中からオーキシ ン関連遺伝子の絞り込みを行っている。オーキシンに関しては、未だに生合成経路、関連遺伝子が特 定されていないことから、これに関連するテーマをさらに発展させる方向で取り組みを進めている。

植物の初期胚形成に関しては、胚形成機構の分子基盤を逆遺伝学的に解析するための研究手法を確 立し、現在、受精および胚発生関連遺伝子の網羅的同定を試みている。また、受精卵の細胞内極性形 成機構についても解析を行っている。

RI は、遺伝子/タンパク質関連の様々な分析(ノーザン・サザン解析、ゲルシフト分析など)、および低分子のトレーサー等で使用された。

6. 生命科学コース:植物環境応答研究室

○研究課題

植物の形態形成に関する研究

○研究概要

本研究室では光情報によって制御される植物の発生や生理現象(特に細胞内での葉緑体光定位運動) の光受容から信号伝達、現象発現までの素過程を、シロイヌナズナ、ホウライシダ、ヒメツリガネゴ ケ、ゼニゴケなど実験目的に適した材料を使用して、細胞生物学、生理学、分子生物学などの技術を 用いて解析している。今年度は以下の項目について研究を進めた。(1)シロイヌナズナの葉緑体光定 位運動における運動メカニズムの解析(2)ゼニゴケ葉緑体光定位運動の運動機構の解析(3)ヒメ ツリガネゴケの赤色光による葉緑体光定位運動にともなう細胞骨格の変化とその役割(4)ヒメツリ ガネゴケの葉緑体光定位運動における CHUP1 タンパク質の役割(5)ホウライシダ前葉体の赤色光に よる neo1 に依存しない葉緑体と核の光定位運動(6)ホウライシダ前葉体細胞における葉緑体逃避反 応の詳細な解析(7)ホウライシダにおける葉緑体集合反応の信号伝達速度の解析(8)ホウライシ ダにおける DNAi による新規遺伝子サイレンシング機構の解明(9)ホウライシダ原糸体の細胞分裂と テトラピロールシグナルとの関係(10)ホウライシダ EST データベース AcEST の整備

○博士論文・修士論文、卒業研究

【修士論文】

(1) 杉山 由香:「ホウライシダ前葉体のネオクロム1に依存せず光合成に依存した葉緑体と核の光 定位運動」

7. 生命科学コース:細胞遺伝学研究室

○研究課題

ショウジョウバエを用いた遺伝子機能解析

○研究概要

高等真核生物における遺伝子発現とその制御機構を解明することを目的として、主にショウジョウ バエの変異体を研究材料として用い、神経系の発生、細胞死、ストレス応答、発生、及び行動に関す る遺伝子を体系的に同定し、それらの発現制御機構を明らかにするいくつかの研究プロジェクトを進 めている。

1) カルシニューリン関連遺伝子の機能に関する研究

ショウジョウバエのゲノムに存在するカルシウム依存性脱リン酸化酵素カルシニューリンをコード する遺伝子5個中4個について,遺伝子ターゲティングにより機能破壊変異体を作製し,寿命,行動 に関する表現型の解析を行った.その結果,特定のアイソフォームの変異が表現型の異常を引き起す ことを見出した.

2) エネルギー代謝,および坑酸化ストレス関連遺伝子の機能に関する研究

主要なエネルギー代謝経路である解糖系とトリカルボン酸(TCA)回路,および抗酸化機構に関連する 遺伝子に注目し、変異体の作製,およびその機能解析を行っている.HPLC によって TCA 回路の代謝産 物を一挙に定量する測定法を確立し、飢餓状態を含む栄養条件の違いによる代謝の変化を明らかにし た.また,TCA 回路の代謝酵素をコードする遺伝子の欠損変異体における代謝産物の定量的解析を中 心としたメタボローム解析システムの開発を進めた.具体的には、クエン酸をイソクエン酸に変換す る Aconitase の RNAi 法による機能低下個体,および遺伝子ターゲティング法による機能欠損変異体を もちいて,エネルギー代謝経路における本酵素の役割を明らかにした.ショウジョウバエのトランス ポゾンである P 因子挿入系統(約2,000)を用いて、過酸化水素・パラコートに誘導される酸化スト レス耐性変異体のスクリーニングを行った.複数の耐性系統についてゲノム上の P 因子挿入位置を LM-PCR 法により決定し、原因遺伝子候補を特定した.抗酸化機能が予想される漢方薬の抗ストレス作 用を評価する為に、Canton-S の 30℃ストレス下寿命への影響を解析した.また、Anoxia/Reoxygenation ストレスに対する耐性を評価する系を確立した.ビタミン C 合成に関わるグルコノラクトナーゼ /SMP30 の多面的機能を明らかにするために、大腸菌を用いて大量発現し、精製する方法を確立した. それを用いて、その酵素学的特性を解析した.また、ビタミン C のトランスポーターである SVCT1,2 発現の加齢変化に関する解析を行った.

3) ショウジョウバエを用いた心臓機能の解析

ショウジョウバエ心臓機能の遺伝学的解析を行うために,拍動解析のための標本作製法を検討した. 解剖時に心臓を部分的に切断することにより,筋原性の拍動と神経支配が加わった拍動を切り離し, 前者の安定した拍動を記録することが可能となった.

4) ショウジョウバエゲノムの改変による表現型情報の体系的解明

ショウジョウバエのゲノムの機能情報を体系的に取得することを目的として,遺伝子の強制発現, および RNAi による遺伝子機能抑制変異体を作製し,翅の表現型解析を行った.翅の大きさに影響を与 える遺伝子に注目し,遺伝子ターゲティングによる機能破壊変異体の作製と寿命を含めた表現型の解 析,および他の遺伝子との相互作用を解析した.

5) ショウジョウバエを用いた化合物の生物学的機能評価

化合物の生物学的機能評価系としてショウジョウバエの寿命に着目し、合成化合物、生物由来の抽 出産物や食品など十数種類のサンプルの寿命に対する効果を調べた.クマザサ由来化合物や乳発酵産 物に寿命延長効果があることを見いだし、現在、そのメカニズムを解析中である.また、乳発酵飲料 の機能と嗜好性の関連を明らかにする事を目的に嗜好性の評価系を構築した.

6)疾患関連遺伝子の変異体に関する研究

アルツハイマー病原因遺伝子の一つである APP から産生される Aβのうち oligomer だけを産生する 新規突然変異遺伝子をショウジョウバエに導入し,ショウジョウバエ新規突然変異モデルを作成した. ショウジョウバエモデルの複眼や全身の神経などで APP を強制発現し, Aβ oligomer の影響を調べた. その結果,新規突然変異遺伝子は他の変異型と比べてより強毒性である可能性が示唆された.また、 ウィスコット・アルドリッチ症候群関連遺伝子 WASP 及び WASP 結合蛋白質 WIP はアクチンの重合・再 編成に関与する. in vitro でのタンパク質ネットワーク解析でこれらの遺伝子産物との結合が示唆 された分子約 100 種について,ショウジョウバエを用いた遺伝学的相互作用を解析した.対応する遺 伝子の機能破壊変異体や RNAi 法を用いたノックダウン個体の表現型解析により,生体内で相互作用す る4種の遺伝子を特定した.

8. 生命科学コース:環境微生物学研究室

○研究課題

環境中の微生物による物質代謝の研究

○研究概要

長野県中房温泉では、野外を流れる硫化水素を含む熱水中に微生物マットが発達しており、本環境 では生物地球科学的な物質循環が観察されるため、その構成微生物種や代謝反応を明らかにすること は、地球環境の成立や保全を考える上でも意義深い。

同温泉の 65℃域に発達している微生物マットの主要構成種として、光合成細菌(*Chloroflexus aggregans*)の他に、硫酸還元菌(*Thermodesulfobacterium* sp.-like)、発酵性細菌がこれまでに知られており、これらの間の物質循環に興味が持たれる。本研究では特に微生物マットにおける水素発生と水素消費を解析し、酸素の届かない嫌気下に発達した微生物生態系における微生物間の関係や水素が物質やエネルギー循環にどのように寄与しているかを考察した。

採取した微生物マットを研究室に持ち帰り、窒素気相下、65℃で培養し経時的に水素発生量を測定 した。光に関係なく、水素の発生は検出できなかったが、硫酸還元菌の阻害剤を添加すると顕著な水 素発生がみられた。またその水素発生は、光照射によって約半分に抑制された。以上の結果から、水 素は光合成細菌ではなく、発酵性細菌によって発生しており、硫酸還元菌が消費していると考えられ た。同マットから発酵生育時に水素を発生する、Fervidobacterium 属細菌の分離に成功した。またマ ット中の微生物細胞を分散懸濁した場合は、硫酸還元菌の阻害剤を添加しなくても顕著な水素発生が 見られたため、水素の授受には細胞間の近接した分布が必要であると考えられた。

先行研究と本研究から、微生物マットでは、①光合成細菌による硫化水素を利用した有機物合成、 ②発酵性細菌による有機物からの水素生産、③硫酸還元菌による水素を利用した硫化水素生産、以上 3点が示唆された。この微生物群集では電子(還元力)が有機化合物・水素・硫化水素を電子伝達体 として循環しており、光エネルギーの供給によって電子が高電位にポンプアップされるため、群集内 での電子の再利用と保持が可能になっていると考えられる。これまでの物質循環は、炭素を中心に考 えられてきたが、本研究では物質と還元力の循環を同時に提示することで理解が進んだ。物質と還元 力の流れを同時に示すことは、微生物マットだけでなく、地球上の生態系や環境の変遷を理解するた めのモデルになると考えられる。

これらの微生物代謝を放射性基質を利用して、マイクロオートラジオグラフィー法で観察することを計画したが、本年度は微生物マットの構成種の特定およびマット全体での活性測定に留まった。

9. 生命科学コース:微生物分子機能研究室

○研究課題

光合成細菌のエネルギー代謝に関する研究

○研究概要

生細胞内では数多くの酵素反応が複雑に関連しあいながら進んでいる。その構成要素をひとつひとつ同 定し、さらには反応機作を明らかにしていくことは生命の本質を理解することに繋がり、究極的には反応を人 為的に改変し有益な代謝経路を創出する可能性へと繋がる。本研究ではそうした視点の下、細菌の光合成と それを取り巻くエネルギー代謝にスポットを当てている。光合成によるエネルギー獲得過程では多様な電子伝 達タンパクが複雑なネットワークを形成し、呼吸など他のエネルギー代謝経路とリンクしていることが知られて いる。しかし、個々の経路やそこに働く電子伝達タンパクの同定は未だ不十分である。本研究では光合成色 素タンパク質・電子伝達タンパク質の構造遺伝子およびその発現調節に働く遺伝子をクローニングし、光合成 エネルギー変換の全容を解明することを目指している。

ラジオアイソトープを用いたトレーサー実験によりこれまで我々が得た代表的な知見として、紅色 イオウ細菌 Allochromatium vinosum における光捕集タンパク LH1 をコードする遺伝子 pufA および pufBの重複の発見や、それぞれの RNA への転写量が DNA の局所構造の違いにより制御されていること を明らかにしたことが挙げられる。また、紅色光合成細菌 Rhodovulum sulfidophilumにおいては、光 合成遺伝子の発現制御に regA および regB遺伝子産物による二成分制御系が重要な働きをすることを 明らかにした。現在、別の紅色光合成細菌 Rubrivivax gelatinosus や光合成細菌の中で系統分類学上 最も古く分岐したと考えられている緑色糸状細菌 Roseiflexus castenholziiの光合成電子伝達タンパ クの同定を進めている。また、口腔連鎖球菌 Streptococcus mutans の歯牙付着タンパク gtfB、gtfC 遺伝子産物の対数増殖期の合成抑制も明らかにした。

○博士論文・修士論文、卒業研究

【博士論文】

(1) 増田 真二:「紅色細菌における光合成遺伝子の構造と酸素による発現調節」

【修士論文】

(1) 永島 咲子:「紅色光合成細菌 Allochrometium vinosum における光捕集タンパクの遺伝子重複

と発現機構」

(2)高見 明子:「紅色細菌様の緑色糸状細菌における光合成遺伝子群の同定および転写様式解析」

Ⅳ 学外共同利用研究機関あるいは学内のX線装置を利用して行われた研究

1. 物理学コース:原子物理実験研究室

○研究課題

高エネルギー加速器を用いた原子物理実験

○研究概要

[1] ダイナミクス研究@HIMAC: 3D-RCE の結晶振動電場の強度や方向は、選択する結晶

原子面列に依存して一意に決定される。このため、特定の結晶原子面列によって選択的に励起イオ ンをアラインメントさせることが可能である。それぞれ 3D-RCE によってアライメントした励起イ オンが結晶原子と衝突してイオン化する際に放出される2次電子の観測に取り組んだ。この2次電 子はほぼイオンと等速に前方へ放出されるため、これを磁場型アナライザイーと新たに導入したア バランシェ・フォトダイオードの組み合わせで実験的にとらえることに成功した。この電子の運動 量分布は、元来のイオンにおける電子の運動量分布を反映するため、励起イオンからの2次電子は より狭い運動量幅をもつことを確認した。これをアライメントした励起イオンに適応し、その結晶 原子との衝突における原子衝突過程の観測のため、様々な実験条件における RCE の挙動を観測した。 [2] スペクトロスコピー研究@GSI: 平成 20 年度に進めた国内でのX線検出器, さらに GSI 現地に おけるゴニオメーターの動作テストといった準備を受けて、実際に高エネルギービームを用いた第 1回目の実験を行った。SIS シンクロトロンより取り出した核子あたり 190MeV の Li-like ウラニ ウム(U⁸⁹⁺)イオンを用い,1s²2s(1/2)準位から1s²2p(3/2)へ励起を脱励起X線を通じて観測すること で,高原子数 Z=92 の多価重イオンに対するラムシフト測定分光実験を実施した。遷移エネルキー は、4.5keV であり、面チャネリング条件下で2次の原子ストリング配列成分を利用した2D-RCE を使 って共鳴励起した。4 台の大面積(100mm²)シリコンドリフト型 Si 検出器(SDD)を真空チャンバー内 に設置し、高検出効率で Doppler シフトした 4-10keV の脱励起 X 線の収量が RCE 条件下において増 大する様子を観測した。

2. 物理学コース: ESR 物性研究室

○研究課題

磁気共鳴測定に用いる試料のX線解析

○研究概要

TDAE-C60の有機強磁性に対する一軸性歪み効果

20

TDAE-C₆₀[TDAE は tetrakis (dimethylamino) ethylene を表す]は C₆₀ 分子 (アクセプター)と TDAE 分 子(ドナー)からなる電荷移動錯体で、純粋な有機化合物としては最も高い強磁性転移温度(T_c = 16K) を示す。結晶構造は X 線構造解析から a = 15.858Å、b = 12.998Å、c = 9.993Å、 β = 93.37°の底 心単斜晶であることが知られている (Fig. 1)。ラマン散乱実験により、強い有機ドナーである TDAE から C₆₀ へほぼ 1 個の電子が移動していると報告されている。また、TDAE は 2 量体化しその上のスピ ンはほとんど消えており、磁性に関与するスピンは C₆₀ 上にあると考えられている。現在、この系の 強磁性発現機構として C₆₀ ボールの Jahn-Teller 歪みによる軌道秩序モデル (川本氏)が理論的な立 場から提案されている。これによると電子系のエネルギーを下げるためにラグビーボール型に歪んだ C₆₀ が、隣接した C₆₀ と長軸を直交して配向する場合に分子間交換相互作用が強磁性的になる。これを 満たすには、Fig. 2 に示す 2 種類の結晶内の C₆₀ の配向が考えられる。これまでの研究から、配向 B である可能性が示唆されている。



Fig. 1

Fig. 2

今年度は、軌道秩序モデルの妥当性の検証および結晶内の C₆₀ の配向を決定することを目的として、 a 軸方向、b 軸方向への一軸加圧下での ESR 測定を行った。一軸性圧力は静水圧力のように等方的な歪 みではなく、特定の方向にのみ格子間隔を変化させることができるので、結晶内での分子間の相互作 用を知るうえで有効な方法である。

結晶の方位は、X-バンド ESR の線幅と g-値の異方性、物理教室共通実験室の X 線回折装置(MAC Science M18XHF)による回折実験から決定した。Fig. 3 は g-値の異方性の一例である。報告されている結果と比較して図に示したように方位を推定した。この結果をもとにさらに正確に方位を決定するために、X 線回折測定を行った。Fig. 4 は a 軸方向の格子定数に相当するスペクトルである。



21

Fig. 5 に a 軸および b 軸加圧における Tc の圧力依存性を示す。a 軸加圧は 1kbar ごとに 8kbar まで行ったところ、Tc は高圧側でわずかに減少した。一方、b 軸加圧は 7kbar まで行った。低圧側(4kbar 以下)では Tc の変化はほとんどなかった。また低圧側では室温の ESR 信号は線幅 18G 程度のブロード な常磁性信号のみであったが、4kbar 加圧時にブロードラインの中にシャープラインが現れた。その 後、Tc が急激に下降し、7kbar 加圧時に Tc=7K となった。



Fig. 5

以上の実験結果を元に、Jahn-Teller 歪みを起こした C_{60} 分子の a-b 面内の配向を考えた。Tc の a 軸および b 軸圧力依存性は、配向 B の場合に加圧によって起こると期待される、 C_{60} 分子間の軌道秩序の変化を考慮すると理解できることがわかった。したがって結晶内での C_{60} 分子の配向は、「配向 B」である結論された。

(産総研、防衛大、岡山大、Josef Stefan Inst. との共同研究)

3.物理学コース:高エネルギー実験研究室

電気電子工学コース:光マイクロ波工学研究室

○研究課題

誘電率の放射線照射効果に関する研究

○研究概要

1. 岩塩超高エネルギーニュートリノ検出器の研究開発(千葉)

超高エネルギーニュートリノ(>10¹⁶eV)は宇宙空間で超高エネルギー宇宙線と宇宙背景輻射との衝 突で生成されます。飛来数が1/(day・km²)と低いため50Gton(岩塩体積3×3×3km³)の検出媒質が必 要となる。巨大天然岩塩鉱中での超高エネルギーニュートリノ反応で惹起されたハドロンシャワー 及び電磁シャワーを捉える方法として、我々の発見した電波反射効果を利用する研究を行なった。 日本原子力研究開発機構高崎量子応用研究所の2MeV電子ビームによる435MHz岩塩充填導波管中の 岩塩照射場所からの電波電力反射率は電子電流の2乗に比例して増加し、10¹⁹eVのエネルギーに対 して10⁻⁶の反射率が得られた。岩塩電波減衰長を我々が開発した試料挿入孔封鎖型摂動空洞共振器 法で測定した。その結果、10MHzに於ける電波減衰長は7kmと十分長いことが推定された。入手可能 な高電力出力スイッチング電源波形と同様な波形信号をアンテナへ供給して電波電力発生率を測 定した結果、10MHzに於いて必要な尖頭電力1GWのパルス電波発生が期待され、ニュートリノエネル ギー10¹⁹eVにおいて探索距離は3kmが可能となり、約10事象/年の検出が期待される。

○博士論文・修士論文、卒業研究

【卒業研究】

(1)渡辺 大輔:「岩塩を利用した超高エネルギーニュートリノ検出器に関する基礎研究:単パルス 電源によるダイポールアンテナの励起効率」

4. 物理学コース:高エネルギー実験研究室・サブグループ

○研究課題

①ポジトロニウムの生成および消滅過程の研究

②高エネルギー加速器を用いた素粒子実験

○研究概要

(1)Belle 実験

高エネルギー加速器研究機構(KEK)の非対称エネルギー電子・陽電子衝突型加速器(Bファクトリー) を用いた素粒子実験グループ(Belle)に参加し、B中間子系における CP 対称性)の破れの研究を行っ ている。2009 年度は 23 編の欧文雑誌への投稿論文が出版された。

2010 年度から始まる KEK-B 加速器の性能向上に呼応して、Belle 検出器の粒子識別装置を改善するために、エアロゲルを輻射体としたリングイメージチェレンコフ検出器の開発を進めている。この検出器に使用する新型の高性能光センサーとして、HAPD(ハイブリッド・アヴァランシェ・フォト・ダイオード)と呼ばれる高性能の光検出器を

浜松ホトニクス社と共同開発しているが、量子効率の改善が見られるなど性能の向上が得られている。 この HAPD からの信号読み出しには、ASIC を用いた電子回路の開発が必要で、本研究室がその開発を 担当している。

今年度は SA01 を改良した SA02 を製作し、予定通りの性能が確認された。これらの電子回路を用いて プロトタイプ検出器のビームテストを行ったが、期待通りに 4GeV/c の運動量領域で 4σ以上で K 中間 子とπ中間子の識別が可能であることが確認された。

(2)Double Chooz 実験

ニュートリノ振動実験パラメータ θ₁₃を測定するために、フランスの Chooz 原子力発電所を用いたニ ュートリノ振動実験グループ Double Chooz に参加している。

当研究室は新潟大学・東北大学・神戸大学・東京工業大学などと協力して、Double Chooz 実験でニュ

ートリノ反応を検出するために最も重要となる、光電子増倍管(PMT)を担当している。

2009 年 7 月に無事に実験装置への組み込みを終え、設置後の試験で全てが支障なく稼動していること が確認された。これら設置された光電子増倍管に高電圧を供給するための高電圧電源装置 2 台もエレ クトロニクス小屋に設置された。それらを遠隔操作するためのソフトウェアーも本研究室が担当して るが、期待通りに制御できることが確認されている。2010 年 7 月からいよいよニュートリノ振動実験 が開始される。

(3) DCBA 実験

ニュートリノ振動実験によりニュートリノに質量があることが判明した現在、ニュートリノが Majorana 粒子である可能性が益々大きくなっている。もし、ニュートリノ Majorana 粒子であるなら、 ニュートリノを放出しない二重β崩壊事象(0νββ)が観測されるはずである。

当研究室は、この 0 ν β β 事象を、ドリフトチェンバー (DC) を利用して観測することを目指している DCBA 実験グループ (KEK、静岡大などとの共同実験)に参加している。

DCBA-T2と呼ばれる常伝導電磁石とDCを組み合わせたスペクトロメーターで、二重ベータ崩壊を起こす¹⁰⁰Moを9.6% 含んだMo板から複数の2電子崩壊事象を検出した。

これらは2νββ事象でありその崩壊確率はこれまでの NEMO 実験結果と矛盾しないものであった。

現在、より高いエネルギー分解能を目指して超伝導電磁石を用いた大型のDCBA-T3検出器の製作が始まっており、超伝導電磁石の試運転が間もなく開始される。

○博士論文・修士論文、卒業研究

【修士論文】

- (1) 黒田 英諒: 「Belle II 実験の為の Aerogel RICH 検出器用読み出し電子回路の開発」
- (2) 香山 翔 :「原子炉ニュートリノ振動実験 Double Chooz の為のデータ解析手法の開発」
- (3) 石川 高史:「3次元飛跡検出器 DCBA による二重ベータ崩壊過程の研究とそのデータ収集シス テムの高効率化」

(4) 佐藤 文孝: 「Double Chooz 実験用光電子増倍管のための高電圧電源システムの構築」

5.物理学コース:電子物性研究室

○研究課題

「強相関電子系物質の電子状態の研究」、「微細構造を持つ物質の研究」

○研究概要

我々は、希土類などの f-電子を含む強相関電子系物質及びナノ構造を持つ磁性体/非磁性体複合系 の二つを対象として研究を行った。フラックス法、高圧結晶育成法などを用いて育成した試料の評価 および物性研究において、X 線および中性子線を用いた構造解析や磁性研究、単結晶の結晶方位決定 は、非常に重要である。基本物性測定の結果も含めて、本年度の研究成果を以下にまとめる。

1) f-電子系強相関伝導物質

本サブグループは、f-電子と伝導電子の強い相関効果に起因する新奇現象を探索し、見出された興 味深い現象の機構を解明することを目的としており、興味深い物性が報告されている希土類系典型的 化合物や新奇特性が期待される新たな化合物の純良単結晶を育成し、研究を進めている。本年度は、 常圧下での合成が困難なAs系や重希土類系充填スクッテルダイトを中心に研究を進めた。

1-1) 高圧下での As 系、Sb 系充填スクッテルダイト化合物の純良結晶合成と物性評価

FeAs 系充填スクッテルダイトでは、高圧下フラックス法により単結晶育成を試み、R = La, Ce, Pr, Nd, Sm について単結晶育成に成功した。その中で、既に、多結晶試料で、転移温度 5.2 K を持つ弱い 遍歴電子強磁性転移を見出した LaFe₄As₁₂について、量子臨界点での特性評価を目指して、電気抵抗の 温度依存性への圧力効果の測定を行った。その結果、転移温度は圧力増加とともに減少し、約 2 GPa で転移を反映する抵抗の曲がりは 0.5 K 以下となり、電気抵抗の温度依存性は SCR 理論から 3 次元強 磁性揺らぎから予想される T^{5/3}となった。つまり、量子臨界点が 2 GPa 近傍にある証拠を得たといえ る。また、中間温度領域(~20 K) において異常な磁気抵抗の増強を見出し、この振舞いの起源として、 主要な散乱機構であるスピン揺らぎ散乱の大きな波数依存性の存在を提案した。

CeFe₄As₁₂について、最近ポーランドグループが、低圧下フラックス法による単結晶試料のモルフォ ロジー及び格子定数の顕著な試料依存性を見出し、電気抵抗の温度依存性との相関、更にそれに関連 した金属-絶縁体転移の可能性を提案した。我々は詳細に高圧下育成単結晶の系統的な測定を行い、金 属-絶縁体転移の兆候は全く見られないことなどから、彼らの解釈に問題があることを指摘した。一方、 我々の結果として、(1) 種々物性が試料の結晶性に依存すること、(2) c-f 混成が大きく、純良単結 晶ではキャリヤーが少ないことなどを明らかにした。更に、最近 GdFe₄As₁₂の純良単結晶育成にも成功 して物性評価を進めた。

1-2) YbFe₄P₁₂、SmRu₄As₁₂の純良単結晶育成と物性評価

YbFe₄P₁₂は、多結晶試料を用いた測定で、近藤効果を示唆する電気抵抗が[~]50 K に極小を示し、帯磁率の温度依存性から見積もった有効ボーア磁子数が 3.58 μ_B と中間原子価的であることなど興味深い特性を示唆する報告がなされたものの、電気抵抗の絶対値、残留抵抗ともに大きいなどの問題から、研究が進んでいない。我々は、最近ようやく単結晶育成に成功し、物性測定を開始した。また、新奇特性が期待できる Sm 系充填スクッテルダイトのうち、SmRu₄As₁₂、SmOs₄As₁₂ については、誰も結晶合成に成功しておらず、物性がまだ知られていない。我々は、高圧下フラックス法により単結晶育成の試みを続け、最近、SmRu₄As₁₂の単結晶育成に成功し、物性測定を開始した。

1-3) 超伝導体 Pr(Os_{1-x}Ru_x)₄Sb₁₂おけるラトリングと 4f 電子結晶場励起

非従来型の重い電子超伝導体 PrOs₄Sb₁₂と従来型超伝導体 PrRu₄Sb₁₂との合金系 Pr(Os_{1-x}Ru_x)₄Sb₁₂にお いて、極低温における比熱測定や基礎物性測定を行い、局所原子振動ラトリングや 4f 電子結晶場励起 が、本系の超伝導にどのように関与しているのか調べた。その結果、以下の 2 点が明らかとなった。 (1) ラトリングの励起エネルギーがほとんど Ru 濃度 x に依存しない一方で、結晶場励起エネルギーが x とともに大きく増大し、中間濃度で両者の励起エネルギーが交差することを見出した。そこで両者 が束縛状態を形成している可能性と、これが超伝導転移温度 T_cの極小に関与している可能性を指摘した。(2)電子有効質量と超伝導ギャップが、わずかな Ru 置換により急激に減衰することを定量的に明 らかにした。この成果から、結晶場励起が PrOs₄Sb₁₂の重い電子超伝導状態の形成に重要な役割をして いることが明らかとなった。

1-4) (Sm_xL_{1-x})0s₄Sb₁₂における重い電子状態の Sm イオン濃度依存

SmOs₄Sb₁₂における磁場の影響を受けない重い電子状態(S. Sanada *et. al*: J. Phys. Soc. Jpn. **74**, 246 (2005)にて発見を報告。第 15 回日本物理学会論文賞受賞)において、Sm イオンのラトリングの 自由度が重要な役割を果たしている可能性が指摘されている。この重い電子状態の形成メカニズム解 明を目指し、4f 電子を含まない LaOs₄Sb₁₂ との合金系(Sm_xLa_{1-x})Os₄Sb₁₂の基礎物性測定を開始した(X 線回折で元素置換を評価)。その結果、この重い電子状態の形成において、Sm イオン格子のコヒーレ ンスがさほど重要ではなく、~40%のLa 置換でも依然として重い電子状態を保っていることが明らか となった。

(本年度の充填スクッテルダイトに関する研究は、東京医科大学:並木孝洋講師、茨城大学:桑原慶 太郎准教授ほか、国内外の多くの方々との共同研究として進められた。)

1-5) 新規カゴ状物質 RT₂Al₂₀(R:希土類、T:遷移金属)の純良単結晶育成と物性評価

新規カゴ状物質 RT₂A1₂₀は16 個の A1 サイトによって構成されるカゴの中に R サイトが位置するカゴ 状構造をしており、一方、T サイトは三角形を基本とした幾何学的フラストレーションを内在したパ イロクロア構造をしており、二つの特徴的な構造が共存している。そのため、両方の構造に起因する 物理が絡み合った興味深い現象の実現が期待されている。

今まで、この物質系で興味深い現象が多々報告されているが、カゴ原子がZnの系が中心であった。 今回我々は、カゴ原子間の金属結合に電子密度が等方的なs電子だけではなく異方的なp電子も寄与 しうるAl系に注目した。そこで、Al自己フラックス法により純良単結晶育成を試み、R=La, Pr, Yb について1mm弱の単結晶育成に成功した。磁化率測定、抵抗測定により、Yb系では混成が強くほぼYb²⁺ で存在していることが明らかになり、Pr系では40K付近に結晶場に関連した肩状構造を、0.8K付近 に転移を示唆する異常を観測した。

2)ナノ磁性体の電気伝導

絶縁層を二つの強磁性層でサンドイッチした構造を持ち、スピン依存する電子の伝導現象を利用し てハードディスクの磁気的情報読み取りヘッドとして実用化されている磁気センサー: TMR (Tunnel magnetoresistance)素子の磁気抵抗および低周波電圧ノイズスペクトルの磁場-温度依存測定を、新 たに作成したクライオスタットを使って4Kの極低温まで行った。1/f型ノイズに重ね合わされる形で 発現するローレンツ型成分(時間ドメインで観測される2準位型ノイズに対応)において、その特徴 的な周波数 f_cが激しく温度依存する振る舞いを詳細に調べた。この結果を「2つの準安定状態間の熱 活性型揺らぎ」のモデルで解析し、ノイズ源が持つ特徴を抽出することができた。

3)幾何学的フラストレート磁性体における異常基底状態の探索

パイロクロア酸化物 Tb₂Ti₂O₇は、 θ_{CW} ~ -14 K のキュリーワイス温度を持つにも関わらず 20 mK まで長距離秩序を示さず、スピン液体状態を実現していると考えられているが、詳細な基底状態はまだ

理解されていない。最近、この物質の基底状態は、結晶場第一励起状態の混成によって古典的なスピ ンアイス配置状態が量子力学的に重ね合わさった状態で表現される、量子スピンアイス状態であると いう理論的な提案がなされた。もしこのような新奇量子状態が実現しているのであれば、スピンアイ ス同様異方的な磁化が観測されるはずであるが、これまでの実験では 5 K で磁気異方性がないことが 確認されているのみである。しかし、これまでの実験で明らかにされている第一励起状態のエネルギ ーギャップ(18 K)、最近接相互作用($J_{m}^{~}$ -0.88 K, $D_{m}^{~}$ 0.8 K)の大きさを考慮するとより低温での 測定が必要である。

本年度は、量子スピンアイス状態の真偽を解明するため、この結晶構造に特徴的な[100],[110], [111]方向の 100 mK, 5 T までの極低温磁化をファラデー法を用いた磁化測定装置により測定した。 その結果、4.2 K において磁気異方性の存在を確認し、この系においてイジング異方性が存在してい ることを明らかにした。さらに、0.1 K の [111] 方向の磁化曲線においてスピンアイス物質と同様な カゴメプラトーを示唆する異常が存在することを発見し、最近接のスピン相関が、フラストレーショ ン系ではあまり考慮されてこなかった量子効果により、キュリーワイス則から予想される反強磁性的 なものから強磁性的に変化していることを見いだした。これらの結果より、基底状態においてほぼ間 違いなく量子スピンアイス状態が実現していることを確認した。

○博士論文・修士論文、卒業研究

【修士論文】

- (1) 武田 賢樹:「充填スクッテルダイト RFe₄As₁₂(R=La, Nd, Gd)の高圧下における純良単結晶育成と 物性評価」
- (2)緑川 孝 :「トンネル磁気抵抗素子における低周波電圧ノイズ特性」
- (3) 宮崎 亮一:「重い電子系超伝導体 PrOs₄Sb₁₂における Ru 置換効果」
- (4) 渡辺 慎 :「重希土類系充填スクッテルダイト化合物 GdRu₄P₁₂の単結晶育成と物性評価」

【卒業研究】

- (1) 安藤 誠 :「常圧フラックス法による の単結晶育成と物性評価」
- (2) 石井 正宏:「TMR 素子における低温測定環境の構築と解析」
- (3) 竹内 祐太:「TMR 素子における低温測定環境の構築と解析」
- (4) 中間 章浩: 「の育成と磁化率、電気抵抗測定」

6. 化学コース:物性物理化学研究室

○研究課題

分子性物質の物性と構造研究

○研究概要

気相や溶液中での化学反応は極めて短い時間で完結するため、反応過



BBDTA⁺の分子構造

程における分子の構造変化を追うことは極めて難しい。分子構 造の情報を得る手段として X 線結晶構造解析が筆頭に挙げられ るが、反応系が結晶のような長周期構造を保つことができない ことや分子の構造変化が速すぎることから、この手法は使えな い。一方、1次元的な分子配列を有する有機ラジカル分子結晶の中に spin-Peierls (SP) 転移と呼ばれる、構成分子の二量化を伴う常磁性-反磁性転移を示す物質群が知られている。SP 転移を示す物質は転移温 度以上では構成分子は等間隔に並んでいるが、転移温度以下では良質な 結晶状態を保ったまま温度の減少とともに構成分子の二量化が進行す ることが理論的に予測されている。つまり SP 転移における構造変化と 磁性変化の特徴はラジカルカップリング反応と極めてよく似ているこ



図 1 BBDTA・InBr4 における常磁性 磁化率の温度依存性。

とから、転移温度以下の様々な温度で SP 物質の結晶構造解析を行えば、構造変化の途中における分子構造の情報 を得ることができることを意味している。本研究では高い磁気転移温度を有する spin-Peierls 物質 BBDTA(= Benzo[1, 2-d:4, 5-d']bis[1, 3, 2] dithiazole) · InBr₄について X 線構造解析の温度依存性を検討することで、 二量化過程における構造情報を明らかにした。

図1にBBDTA・InBr₄の常磁性磁化率の温度依存性を示す。この物質は室温では常磁性的挙動を示した が、250 K付近で常磁性磁化率の急激な減少を示し、100 K以下では反磁性的となる SP 転移に特徴的 な磁気挙動を示した。従来報告されている SP 物質の転移温度はせいぜいで 80 K 前後であったが、こ の物質はこれまでと比べても格段に高い転移温度を有する点で極めて興味深い。250 K 以下での常磁 性磁化率の減少は温度の減少とともに二量化の度合いが強くなっている様子を表していると考えられ る。転移温度以下の適当な温度で結晶構造解析を行えば、二量化の過程、つまり化学結合生成過程に おける分子構造に関する情報を得ることができる可能性がある。

BBDTA・InBr₄について 270 K ならびに 115 K で結晶構造解析を行った結果を図 2 に模式的に示す。 BBDTA⁺は InBr₄-に窒素原子を介して配位し、c 軸方向に配位高分子鎖を形成していた(図 2 a)。両温度 においても配位高分子構造は保たれていたが、配位結合部位の In-N 間距離において両温度の間に大き な相違が認められた。270 K では In-N 間距離は 1 種類のみで配位高分子鎖の A, B 両サイトで等価であ った。つまり相転移前では BBDTA⁺は架橋する 2 つの In 原子間の丁度中央に位置し、等間隔に並んで いた(図 2 b)。一方 115 K では In-N 間距離は 2 種類存在し、A サイト側は短く、B サイト側は長くな っていたことから、A サイト側に BBDTA⁺が移動したことがわかった(図 2 c)。この時、A サイト側の N···N 原子間距離は、窒素原子のファンデルワールス半径の和よりも接近していたことから、この部 分に非常に強い相互作用が働いていることが示唆される。 2 つのカチオンラジカルはこの部位を介し て二量体を形成していると考えられる。

図3に270 K並びに115 Kにおける BBDTA⁺分子の構造を模式的に示した。SNS 環を有するいくつか の誘導体では分子上の電荷とS-N 結合距離との間に一次の相関があり、1つのSNS 環当たりの電荷が +1 (カチオン)では1.60 Å、+0.5 で約1.62 Å、0 で約1.65 Å 程度(中性ラジカル)となる。X 線構 造解析の結果、270 KではS-N 結合がすべて等価となり、+0.5 に相当する結合長であった。この温度 では正電荷が2つの環に均一に分布したモノカチオン状態であることを示唆している。一方115 K で は左右の環の形は非非等価となり、一方は中性ラジカルに類似の構造、もう一方はカチオンに類似の 構造となった。つまり相転移に伴い、BBDTA⁺上の電荷とスピンは分離しはじめ、左右の環上に別々に 分布する傾向が認められた。

このような不均一な電子状態は Distonic cation として知られており、気相反応で生じる反応中間体 等で分光学的手法によりすでに見出されているが、 今回 X 線構造解析によって初めてその構造を精密に 捉えた可能性が高い。

図4に鎖状高分子内における隣り合うBBDTA⁺部位 の N···N 原子間距離(図4a)並びに BBDTA⁺部位に おける S-N 結合長(図4b)の温度依存性を示す。室 温では N···N 原子間距離並びに S-N 結合長は転移温 度以上では1種類しか認められないが、転移温度以 下では2種類となり、温度の減少とともに徐々に変 化が大きくなる傾向が認められた。通常の相転移の 場合、相転移温度近傍で一気に構造変化が完結する が、今回の転移挙動は SP 転移の特徴を表していると 言える。各構造パラメータの温度依存性は今のとこ ろ二量化の途中における分子構造を表していると解 釈している。

本研究ではBBDTA・InBr₄の spin-Peierls 転移に伴 う格子変形やBBDTA⁺分子内構造変化の様相を X 線構 造解析により明らかにすることに成功した。SP 転移 を通常の化学反応と対比させるなら、構造変化の進 行が時間の関数ではなく、温度の関数となり、ある 温度で構造解析を行うことはある反応段階のスナッ プショットを撮影することに相当することになる。 今後 SP 物質の構造研究は化学反応過程の解明に有 益な情報をもたらすかもしれない。



図2 (a) BBDTA・InBr₄における配位高分子ネットワ









図4 各結晶パラメータの温度依存性

7. 化学コース:分子集合系物理化学研究室

○研究課題

中性子線・X線散乱を用いた分子集合体の構造研究

○研究概要

(1) 非イオン界面活性剤系におけるずり流動場誘起ラメラ/オニオン転移

界面活性剤ラメラ相がずり流動場によりオニオン相(多 重膜ベシクルのみで充填された相)に転移する現象は 15 年ほど前に見出され、その後種々の系で報告されている。 転移機構やベシクルサイズに関する理論はいくつか提案さ れているが、未だに不明の点が多く残されている。われわ れのグループでは非イオン界面活性剤 $C_nH_{2n+1}(OC_2H_4)_nOH$ (C_nE_m)の1つ $C_{16}E_7$ と水の2成分系ラメラ相に対する小角 光散乱/ずり応力同時測定により、一定ずり速度下において 温度を上昇させるとオニオン相に転移することを見出し、 SAXS 測定の結果、膜のµm スケールにおける" coherent buckling"がオニオン形成を引き起こす要因の一つである 可能性を示してきた。



図1 coherent buckling の模式図およ び2 次元 SAXS プロファイルとそれに 対応する粘度変化。温度上昇に伴い粘 度が上昇し、SAXS プロファイルがオニ オン形成を示す等方的なパターンとな っている。

一方最近、同属系である C₁₄E₄/C₁₄E₆ の混合系において、粘度測定からリエントラントなラメラ/オ ニオン転移を初めて見出し、この転移機構を解明するべく SAXS 測定による膜の配向変化を調べた。そ の結果、温度上昇時の転移とは逆の順序でオニオン→ラメラ転移が生じていることが分かり、温度変 化に対して可逆的な変化の可能性であることが示唆された。

○博士論文・修士論文、卒業研究

【修士論文】

- (1) 岡 真佐人:「界面活性剤ミセル/ラメラ相分離におけるラメラドメインの成長過程」
- (2) 篠田 知明:「界面活性剤水溶液におけるクラフト転移に伴うベシクル構造の形成過程」

【卒業研究】

- (1) 市口 邦弘:「非イオン界面活性剤系におけるクラフト転移に伴うラメラドメインのネット ワーク構造」
- (2) 高橋 健一:「ずり流動場中の温度変化によるリエントラント ラメラーオニオン転移」

8. 化学コース: 有機化学研究室

○研究課題

新規共役系有機化合物の構造と性質

○研究概要

有機化合物とは炭素を含む化合物の総称であり、その他の原子との組み合わせ、結合の種類や立 体環境を変えることで多様な構造を持つ化合物が構築できる。その構造などを制御することで、光物 性、電気伝導性、生理活性などを持つ新しい化合物の合成や、複数の分子を組み合わせた超分子構造 の形成なども可能であり、その成果をナノマテリアル、電子・光学材料、医薬品など様々な分野へ応 用することが期待されている。本研究室ではこのような新しい物性と機能を持つ有機化合物を設計・ 合成し、その性質を調べている。また、これまでにない化合物を合成するためには、今まで用いてい た方法では合成できないこともあり、それらを解消するため効率的で選択性の高い新しい合成反応(例

えば有機金属化合物を触媒とする反応や電子移動反応 で発生させたラジカル反応試剤の利用)の開発を行っ ている。

ここで作り出された膨大で多種多様な化合物群の分 子構造を決定するために X 線結晶回折装置が使用され る。現在、X 線結晶構造解析は、分子構造や結晶構造 を議論する上で必要不可欠なものとなっており、他の 分光学的方法だけでは得られない構造情報を高い精度 で得ることが出来る。

例えば、右に示す中央に平面性シクロオクタテトラ エン(COT)構造を有する環状オリゴチオフェン 4 量体の 構造を決定し、チオフェンの β 位をジメチルシリル基、 およぶ硫黄で架橋することで中央の COT 骨格が平面性が 異なることを明らかにすることができた。この化合物の 物性は COT 骨格の平面性に強く影響を受けるため、X 線 結晶構造解析により精密な構造を知ることは、類似の化 合物群との比較の上で必要不可欠である。

また当研究室では、以下に示すようなジベンゾシクロ





オクタテトラエン(DBCOT)骨格を二分子縮環させた化合物の合成とその性質について調べている。この 化合物は、溶液状態で anti 体と syn 体の二つの配座異性体が平衡状態にあり、そこにアクセプター性 の分子を添加することで平衡が syn 体へと偏り、その空孔内にそのアクセプター性の分子をゲストと して取り込むピンセット型のホスト分子として機能することを見出している。



その中で、アクセプター性の分子に1,2,4,5-テトラシアノベンゼン(TCNB)を用いた時に、その包接錯体の結晶が析出し、X線結晶構造解析を行うことができた。



一方、環状オリゴチオフェンは共役ポリマーの無限共役長モデルとして非常に興味が持たれ、その

結晶構造には興味がもたれる。最近では、このよ うな環状オリゴチオフェンの構造解析に成功した。 その結果末端のチオフェンユニットは分子平面よ り歪んだ構造をとっており、これはパッキングに おいて上下より別の分子のアルキル鎖が内部空孔 を埋めるように近づくためであること明らかにし た。



○博士論文・修士論文、卒業研究

【博士論文】

 (1) 磯村 英吾:「Synthesis and Properties of Bis(pyridylethynyl)tetrathiafulvalene Derivatives and Their Metal Complexes」2010 年

(2) 西内 智彦:「Studies on the Non-Planar π-Conjugated Systems Composed of Two Dibenzocyclooctatetraene Units」2010 年

【修士論文】

- (1) 石本 祥平:「長鎖アルキルチオ基を有する TTF ジアミド誘導体の合成と物性」2010年
- (2) 舘野 将輝:「導電性高分子の p-ドープ状態モデルの電子構造に関する研究」2010年
- (3) 成田 智幸:「星形オリゴチオフェンの合成と性質に関する研究」2010年
- (4) 宮田 敏彦:「チオフェン・ピロール交互オリゴマーの合成と性質に関する研究」2010年

9. 化学コース:有機合成化学研究室

○研究課題

X線を用いた有機化合物の構造決定

○研究概要

1) 置換飽和不飽和混合系カルコゲノクラウンエーテルの合成と錯形成

当研究室では、チアクラウンエーテルの炭素鎖を全て二重結合に置き換えた不飽和チアクラウンエ ーテル、また、単結合と二重結合を組み合わせた飽和不飽和混合系チアクラウンエーテルの合成に成 功し、炭素鎖を二重結合に置き換えることで、環の柔軟性が抑制され、錯形成時に取り込む金属イオ ンの数や種類に選択性が発現することを明らかにしている。本研究では、飽和不飽和混合系チアクラ ウンエーテルに分子修飾の足掛かりとして水酸基の導入を試みた。

下記のスキームに示した合成経路により、水酸基を有する飽和不飽和混合系チアクラウンエーテル を合成した。



cis-1, *trans*-1 については X 線結晶構造解析に成功し、結合角、結合距離は一般的な値で、二重結 合まわりの二面角もほぼ 0°であり、歪みのない構造であることを明らかにした。*cis*-1 の二つの二重 結合部位は同一方向に突き出しているのに対し、*trans*-1 の二つの二重結合部位は反転していた。ま た、2 については *alternate*-2 のみ結晶化に成功し、この結晶構造も同様に、歪みのない構造である ことがわかった。



図1. 化合物1,2のX線結晶構造

2) ジチエニルブタジインとチタノセンペンタスルフィドとの反応

当研究室では、三重結合を有する化合物とチタノセンペンタスルフィドとの反応を検討している。 今回、三重結合を有する化合物としてジチエニルブタジインを用い、チタノセンペンタスルフィドと の反応を検討した。

キシレン中、還流下、ジチエニルブタジインとチタノセンペンタスルフィドとの反応おこなった。 その結果、錯体3が収率30%で得られることがわかった。



錯体3のX線結晶構造解析から、単位格子中には4つの独立した分子が存在しており、このうちの 1つのCp環がディスオーダーしていることがわかった。また、それぞれの分子の末端チオフェンのうち1つまたは2つがディスオーダーしていた。硫黄と炭素の結合長および、硫黄周りの結合角は一般 的な値をとっていた。また、三つのチオフェン環のなす角度は5度~20度であり、平面に近い構造を とっていることがわかった。



10. 機械工学コース:材料加工研究室

○研究課題

単結晶ニッケル基超合金の高温強度特性評価

○研究概要

航空機エンジンや発電ガスタービンのタービン動翼は,1500℃を超える燃焼ガスを受けて高速で回転 する.こうした過酷な環境下で使われるタービン動翼にはNi基超合金が使用されている.航空機エン ジンでは、クリープ特性に優れたNi基超合金単結晶翼が実用化されている.X線ラウエカメラを用い て結晶方位解析を行い、単結晶試験片を作製して、この単結晶耐熱合金の高温強度特性評価に関する 研究を行った.

11. 分子応用化学コース:金村研究室(材料設計化学)

○研究課題

高機能セラミックス材料の構造解析

○研究概要

平成 21 年度は、前年度からの継続テーマとして、電気化学的エネルギー変換デバイスであるリチ ウム二次電池や電気化学キャパシタ、固体酸化物燃料電池に関連する材料の研究開発を行った。

リチウム二次電池の安全性を向上させることを目的とし、全固体型リチウム二次電池の研究が活発 に行われているが、リチウムイオン電池の固体電解質として有望な(LiLa)TiO₃、Li₇La₃Zr₂O₁₂ など の合成研究を行った。電解質に固体を用いる場合、電解質/電極活物質界面の形成は、特に重要な課 題である。空孔が三次元的に規則配列(3DOM)した固体電解質を作製し、その空孔に電極活物質を充 填することで電解質/活物質界面の抵抗を低減できるとの予想のもとに、3DOM 多孔層 / 緻密層 / 3DOM 多孔層の 3 層構造を有する固体電解質を作製し、各 3DOM 多孔層に正極および負極を導入 して全固体型電池を作製した。作製した(LiLa)TiO3(LLT)3 層構造体の写真を図 1 に示す。各多 孔層は、直径約 2 μ m の空孔を有しており、それらが三次元的に規則配列していることが確認され た。また、中心部分の層は十分に焼結され、緻密な構造であることを確認した。各層の厚みは、緻密 層が約 30 μ m、その両面に焼結された多孔層が 25~30 μ m であった。また、XRD 測定により、3 層 構造 LLT の各層が LLT の単相であることを確認した。3 層構造 LLT の空孔へ LiMn₂O₄ を充填し、 全固体型電池として動作することを確認した。

また、電池性能の向上や、マイクロ電池への応用が期待できる、リチウム二次電池の正極材料である LiCoO₂, LiMn₂O₄, LiFePO₄などの微細な粒子の合成研究およびこれらの構造解析を行った。水 熱合成法で作製した LiCoO₂ 粒子は単相であり、添加剤の有無にかかわらず 100 nm 程度の粒径を有 しており、ゾルゲル法で得られる粒子(~400 nm)に比べて微細であることがわかった。得られた LiCoO₂ 粒子の電気化学特性を評価したところ、図 2 に示すように添加剤の影響が大きく現れた。Li 源が LiOH のみの場合(添加剤を用いない場合)には、放電容量は 96 mA h g⁻¹ であった。それに対し て、CH₃COOLi や NH₄OH を添加したものでは、それぞれ放電容量として 106mA h g⁻¹、125 mAh g⁻¹ が得られた。本結果によって、LiCoO₂ の水熱合成において添加剤が重要な役割を果たすことが示唆 された。



Fig. 1 Cross sectional SEM image of the LLT structure prepared by vacuum filtration method.



Fig.2 Charge/discharge curves of LiCoO₂ prepared by hydrothermal method from (a) CoOOH and LiOH, (b) CoOOH, LiOH, and NH₄OH, (c) CoOOH, LiOH, and CH₃COOLi, measured at 0.1C rate.

12. 分子応用化学コース:吉田研究室(分子物性化学)

○研究課題

機能性有機材料の構造解析

○研究概要

有機・高分子多成分系の構造解析ならびに秩序化過程を、主に放射光(高エネルギー加速器研究機構放射光施設、高輝度光科学研究センターSPring8)を利用した小角 X 線散乱(SAXS)、斜入射 X 線

散乱(GISAXS, GIWASX)を用い て行っている。平成 21 年度は次 の研究を行った。

1 ブロック共重合体のミクロ 相分離で形成されたナノシリンダ 一内部の構造解析

2 高分子系のナノ粒子の分散状 態解析

1 液晶型両親媒性ブロック共重合体は、液晶の配向を制御することでミクロ相分離によって形成されるヘキサゴナルシリンダー構造の配列を制御することが可能であることが、これまでの我々の研究で明らかになった。ポリエチレンオキシド(PEO)と側鎖に液晶を持つポリメタクリル酸誘導体(PMAR)



Fig. GIWAXS profile of amphiphilic di-block copolymer on silicon wafer with 122 nm thickness, experiment (A), calculated (B) results.

で構成されるブロック共重合体, PEOm-*b* PMA(Az)n, は PEO シリンダーを疎水性マトリックス中に 形成し、シリコン基板上で全てのシリンダーを基板面に垂直に配列することが可能である。この時疎 水性マトリックにはスメクチック液晶層が基板面に平行に配列している。シリコン基板上のブロック 共重合体薄膜の膜厚は 122 nm、PEO シリンダー径は 10 nm で、PEO シリンダー内部での PEO 結 晶構造を GIWAXS で解析した。PEO272 -*b* PMA(Az)47 薄膜の PEO シリンダー中で形成した PEO 結 晶の GIWAXS の測定結果を Fig A に示す。PEO 結晶が C 軸をシリコン基板表面に水平になるように 配列した場合の計算によって求めた回折プロファイルを Fig B に示す。測定結果と計算結果が一致し たことから、PEO 結晶は膜膜中でシリコン基板に特定の配向をしていることが明らかになった。

○博士論文・修士論文、卒業研究

【修士論文】

- (1) 岸本 絵里:「長鎖アルキルアミン超薄膜の構造と相転移」
- (2) 工藤 由貴:「ポリ乳酸の磁場配向」
- (3) 山田 航 :「高分子系ミクロ相分離構造の界面評価」

13. 分子応用化学コース:春田研究室(材料設計化学)

○研究課題

金ナノ粒子の触媒作用に関する研究

○研究概要

金ナノ粒子は低温における CO 完全酸化などこれまでの貴金属触媒には見られない特異な触媒作用 を示すことが知られている。金ナノ粒子の触媒作用は、金粒子のサイズと担体の種類に大きく依存す ることが報告され、担体の種類や構造を評価することは、触媒特性を整理する上で重要な項目となる。 我々は粉末X線回折測定により、担体となる金属酸化物の結晶系、結晶子サイズを評価し、触媒特性 との関連を検討している。

酸化チタンの多形としてアナターゼ型とルチル型が存在する。金ナノ粒子触媒の担体として効果的 な P-25 と呼ばれる酸化チタンは、アナターゼ型とルチル型の混合であることが知られているが、両者 の担体としての特性の研究例は少ない。両者の触媒特性について検討するために純度(アナターゼ型 が混ざっていない)の高い、高比表面積のルチル型の酸化チタンの調製を試みた。チタン原料として 四塩化チタンを用いて、水熱合成により調製した結果、比表面積 52m²/g のルチル型の酸化チタンを 得ることができた。また、金の担持や水素処理を行ってもルチル型の結晶系を保持していることが確 認された。(図1)



14. 分子応用化学コース:久保研究室(分子計測化学)

○研究課題

X線を用いた分子集合構造の解析

○研究概要

要素間相互作用の設計にもとづく分子組織化が,超分 子化学で盛んに検討されているが,材料としての機能発 現を意識した場合,その組織化が目に見える形で発現す ることがわかりやすい。ゲルは,しばしば高分子化合物 が繊維状会合体を形成する場合に見られる現象である。 しかし低分子でも設計の段階で分子間相互作用に次元 性を与えるとゲルになり,超分子材料として注目され ている。本年度では,新しい蛍光性ナノ集合体の提案 を目的に,ジアザボロール誘導型有機ゲル化剤(1) を合成した。

目的物 (1) は種々の溶媒 (m-キシレン,トルエ ン)をゲル化し (Figure 1 (a)),特に m-キシレン中 で低い臨界ゲル化濃度 (2.5 wt%)を示した。そのゲル は λ = 365 nm の紫外光照射で青色の蛍光を発した。



Figure 1. Image of *m*-xylene gel of **1** (a) and FE-SEM image of *m*-xylene xerogel of **1** (b).

また m-キシレンキセロゲルの形態観察を FE-SEM を用いておこなったところ, 50-150 nm 幅のファイバー 、 一状構造が観測された (Figure 1 (b))。FE-SEM 測定により観察されたファイバーにおいて, 化合物 (1) がどのような分子の配向でパッキングしているのか調査するために XRD 測定をおこなった。測定 には FE-SEM 観察と同様に m-xylene キセロゲルを用いた。装置の条件として,集中法,測定範囲は 2 θ = 1.5° - 30° スキャン速度は、1.5° / min、対陰極には CuK α (λ = 1.54050 Å) を採用した。 測定結果を Figure 2 に示す。まず、小角領域においていくつかのピークが観測された。得られた 2 θ

の 値 か ら ブ ラ ッ ク の 式 (2dsin θ = n λ) より面間隔 d の値を求めた。鋭いピーク が二つ観測されたことに基づ いてそれぞれ d(1,1), d(2,0) と仮定し回折パターンの帰属 をおこなったところ, レクタ ンギュラーカラムナー会合構 造であることが推測された。

得られた有機ゲル化剤(1) の機能探求をおこなっている。

博士論文・修士論文、卒業研究 【卒業研究】 **Figure 2.** XRD patterns of xerogel of **1** and blank at room temperature. The xerogel of **1** was prepared using *m*-xylene.

(1)田中 恭平:「ジアザボロール

から誘導される蛍光性有機ゲル化剤の合成」

15. 地理環境コース:地形・地質学研究室

○研究課題

堆積物のルミネッセンス年代測定

○研究概要

光ルミネッセンス(Optically stimulated luminescence: OSL)という現象は、鉱物粒子が土中に 堆積する間に周辺環境より発する自然放射線の被爆により蓄えたエネルギーが、光励起によって発光 する現象であり、鉱物の OSL 強度よりその埋積期間を見積もる OSL 年代測定法が実用化されている. ただし OSL 年代を得るためには、鉱物粒子の OSL 信号が堆積直前に十分な露光によりリセットされて いる必要がある.しかしながら、実際にはすべての粒子の OSL 信号が堆積直前にリセットされるわけ ではない.

この事実を利用し、現世の沿岸堆積物を対象に、OSL 強度測定に基づき粒子の露光/未露光を判断 し、試料中に露光粒子が含まれる割合「露光率」の分布を求め、砂質粒子の運搬過程について情報を 抽出した.OSL 強度測定には東京大学工学部に設置されているデンマーク Risoe 研究所製 TL/OSL Reader を用いた.本装置は密封型線源を有しており、試料に人為的に放射線を照射することにより、 個々の試料の OSL 強度の規格化や OSL 年代の見積もりが可能である.現世の静岡県遠州灘の海浜堆積



物の露光率を求めた結果(図1),

1) 遠州灘海岸においても海浜砂は基本的に良く露光し, OSL 年代の測定材料として優れている.

2) 侵食の激しい箇所では露光率が低下する.

3) 露光率は天竜川河口から遠ざかるに従い増加する傾向がある. すなわち遠州灘の砂は天竜川河口 から東西に供給されている.

4) 渥美半島では露光率が上昇せず,海食崖の大規模な侵食により露光していない砂質粒子が大量に 混入している可能性がある.

以上が明らかとなった.



Ⅴ 研究成果など

原子物理実験研究室

- Y. Nakano, T. Inoue, T. Azuma, A. Hatakeyama, Y. Nakai, K. Komaki, Y. Yamazaki, E. Takada, T. Murakami, "Resonant Coherent Excitation of Li-like Ar¹⁵⁺ Ions in a Thin Si Crystal",
 - J. Phys. Conf., <u>163</u>, 012094 (2009)
- Y. Nakano, C. Kondo, A. Hatakeyama, Y. Nakai, T. Azuma, K. Komaki, Y. Yamazaki, E. Takada, T. Murakami,

"Polarization Control in Three-dimensional Resonant Coherent Excitation",

Phys. Rev. Lett. <u>102</u>, 085502 (2009).

ESR 物性研究室

- 3) "Infrared spectroscopic studies on incorporating the effect of metallic ions into a M-DNA double helix",
 H. Matsui, N. Toyota, M. Nagatori, H. Sakamoto, and K. Mizoguchi Phys. Rev. B 79, 235201(1-8) (2009).
- 4) "有機材料として見た天然および金属イオンを導入したDNAの電子状態"溝口憲治 新材料・ 新素材シリーズ:次世代共役ポリマーの超階層制御と革新機能(シーエムシー出版, 東京,2009,p352-357.
- "Physical properties of natural DNA and metal ion inserted M-DNA", K. Mizoguchi Proc. SPIE 7040, 70400Q (1-9) (2008).
- "Synthesis and Properties of DNA Complexes Containing 2,2,6,6-Tetramethyl-1-piperidinoxy (TEMPO) Moieties as Organic Radical Battery Materials", J. Qu, R. Morita, M. Satoh, J. Wada, F. Terakura, K. Mizoguchi, N. Ogata, and T. Masuda Chem. Eur. J. 14, 3250-9 (2008).
- "Synthesis and charge/discharge properties of cellulose derivatives carrying free radicals", J. Qu, F. Z. Khan, M. Satoh, J. Wada, H. Hayashi, K. Mizoguchi, and T. Masuda Polymer 49, 1490-6 (2008).
- "Synthesis, Characterization, and Charge/Discharge Properties of Polynorbornenes Carrying 2,2,6,6-Tetramethylpiperidine-1-oxy Radicals at High Density", T. Katsumata, J. Qu, M. Shiotsuki, M. Satoh, J. Wada, J. Igarashi, K. Mizoguchi, and T. Masuda Macromolecules 41, 1175-83 (2008).
- "Synthesis and charge/discharge properties of polyacetylenes carrying 2,2,6,6-tetramethyl-1-piperidinoxy radicals", J. Qu, T. Katsumata, M. Satoh, J. Wada, J. Igarashi, K. Mizoguchi, and T. Masuda, Chemistry – A European Journal 13, 7965-73 (2007).
- 10) "Spin Density Distribution and Electronic States in (DMe-DCNQI)2 M (M=Li, Ag, Cu) from High-Resolution Solid-State NMR", Y. Shinohara, S. Kazama, K. Mizoguchi, M. Hiraoka, H. Sakamoto, S. Masubuchi, R. Kato, K. Hiraki, and T. Takahashi, Phys. Rev. B 76, 035128 (1-9) (2007).
- "AF-like Ground State of Mn-DNA and Charge Transfer from Fe to Base-π-Band in Fe-DNA",
 K. Mizoguchi, S. Tanaka, M. Ojima, S. Sano, M. Nagatori, H. Sakamoto, Y. Yonezawa, Y. Aoki, H. Sato,

K. Furukawa, and T. Nakamura, J. Phys. Soc. Jpn. 76, 043801-1-4 (2007).

- 12) "EPR study of the electronic states in natural and doped DNA", K. Mizoguchi, in ELECTROACTIVE POLYMERS: MATERIALS & DEVICES, edited by S. A. Hashmi (Allied Publishers, Dalhausie, India, 2007), Vol. 1, p. 1-10.
- "Electronic States of natural and metal-ion doped DNAs", K. Mizoguchi, S. Tanaka, and H. Sakamoto, J. Low Temp. Phys., 142, 379-82 (2007).
- 14) "Electron spin dynamics in (DMe- DCNQI)2 M (M = Li1-xCux(x < 0.14), Ag)", M. Hiraoka,
 H. Sakamoto, K. Mizoguchi, R. Kato, T. Kato, T. Nakamura, K. Furukawa, K. Hiraki, T. Takahashi,
 T. Yamamoto, and H. Tajima, J. Low Temp. Phys. 142, 617-20 (2007).
- 15) "Neutral-Ionic transition of (BEDT-TTF)(ClMeTCNQ) studied by ESR under pressure", H. Sakamoto, K. Mizoguchi, and T. Hasegawa, J. Low Temp. Phys. 142, 637-40 (2007).
- "EPR study on the electronic states of b'-(BEDT-TTF)(TCNQ)", S. Konno, S. Kazama, M. Hiraoka,
 H. Sakamoto, K. Mizoguchi, H. Taniguchi, T. Nakamura, and K. Furukawa, J. Low Temp. Phys. 142, 621-4 (2007)

高エネルギー実験研究室・光マイクロ波工学研究室

17) Masami Chiba, Yoko Arakawa, Toshio Kamijo, Fumiaki Yabuki, Osamu Yasuda, Yuichi Chikashige, Keisuke Ibe, Tadashi Kon, Yutaka Shimizu, Yasuyuki Taniuchi, Michiaki Utsumi, and Masatoshi Fujii: Radar for salt ultra-high-energy neutrino detector and contribution of W-gluon fusion process to collision of neutrinos against protons, *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research*, A604(2009)S233-S235.

高エネルギー実験研究室・サブグループ

18) Study of an HAPD with 144 channels for the Aerogel RICH of the Belle upgrade. Shohei Nishida et al., Nucl. Instr. Meth. A610: 65-67, 2009.

電子物性研究室

- 19) K. Tanaka, T. Saito, T. Namiki, K. Kuwahara, Y. Aoki, H. Sato*, Physica B: Condensed Matter, 404 (2009) 2912-2915.
- 20) Anomalous properties in the low-carrier ordered phase of PrRu₄P₁₂: Consequence of hybridization between conduction and Pr 4f electrons: S. R. Saha, H. Sugawara, T. Namiki, Y. Aoki, and H. Sato, Phys. Rev. B 80 (2009) 014433-6. (July)
- Transport properties of Pr_xOs₄Sb₁₂ single crystals with high Pr-site filling fraction grown under high pressure: K. Tanaka, T. Namiki, T. Saito, S. Tatsuoka, A. Imamura, K. Kuwahara, Y. Aoki, H. Sato*, Physica B: Condensed Matter, **404** (2009) 2999-3001.
- Magnetic Field Evolution of a Novel Phase Transition in CeOs₄Sb₁₂: ¹²¹Sb NMR Study: M. Yogi, H. Niki,
 M. Yashima, H. Mukuda, Y. Kitaoka., H. Sugawara, and H. Sato, J. Phys. Soc. Jpn. 78 (2009) 053703.

- Crystal Field Effect on Superconducting Transition in Pr_xOs₄Sb₁₂: K. Tanaka, T. Namiki, A. Imamura, M. Ueda, T. Saito, S. Tatsuoka, R. Miyazaki, K. Kuwahara, Y. Aoki, and H. Sato, J. Phys. Soc. Jpn. 78 (2009) 063701.
- 24) de Haas-van Alphen Effect and Fermi Surface Properties in High-Quality Single Crystals YbCu₂Si₂ and YbCu₂Ge₂: N. D. Dung, T. D. Matsuda, Y. Haga, S. Ikeda, E. Yamamoto, T. Ishikura, T. Endo, S. Tatsuoka, Y. Aoki, H. Sato, T. Takeuchi, R. Settai, H. Harima, and Y. Onuki, J. Phys. Soc. Jpn. **78** (2009) 084711(14 pages).
- 25) Observation of Magnetic Monopoles in Spin Ice: H. Kadowaki, N. Doi, Y. Aoki, Y. Tabata, T. J. Sato, J. W. Lynn, K. Matsuhira, and Z. Hiroi, J. Phys. Soc. Jpn. 78 (2009) 103706 (4 pages).
- 26) Systematic Study of Lattice Specific Heat of Filled Skutterudites: K. Matsuhira, C. Sekine, M. Wakeshima, Y. Hinatsu, T. Namiki, K. Takeda, I. Shirotani, H. Sugawara, D. Kikuchi, and H. Sato, J. Phys. Soc. Jpn. 78 (2009) 124601-6.
- 27) Novel behaviors in rare-earth-filled skutterudites studied by bulk-sensitive photoemission spectroscopy: A. Yamasaki, S. Imada, A. Sekiyama, H. Fujiwara, M. Yano, J. Yamaguchi, T. Miyamachi, H. Sugawara, D. Kikuchi, and H. Sato, International Journal of Materials Research (formerly Zeitschrift fuer Metallkunde) 100 (2009) 1249-1251.
- 28) X-ray magnetic circular dichroism at Os L-edge under multiple extreme conditions in SmOs₄Sb₁₂: N Kawamura, S. Tsutsui, M. Mizumaki, N. Ishimatsu, H. Maruyama, H. Sugawara, and H. Sato, Journal of Physics Conference Series **190** (2009) 012020.
- A New Proposal to Unravel the Magnetically Robust Heavy Fermion State in SmOs₄Sb₁₂: H. Sato, JPSJ Online—News and Comments [July 10, 2009]
- 30) Kondo scaling of the pseudogap in CeOs₄Sb₁₂ and CeFe₄P₁₂: P A Rayjada, A Chainani, M Matsunami, M Taguchi, S Tsuda, T Yokoya, S Shin, H Sugawara and H Sato, J. Phys.: Condens. Matter 22 (2010) 095502 (8pp).
- Crystal field excitations in PrFe₄Sb₁₂ synthesized under high pressure: K. Kuwahara, K. Tanaka, T. Saito,
 S. Tatsuoka, K. Iwasa, M. Watanabe, Y. Aoki, H. Sato, M. Kohgi, K. Iwasa, H. Sugawara, C. Stock, D. T. Adroja, J. Physics: Conference Series **200** (2010) 012101 (4 p).
- 32) Crossing of the crystalline-electric-field and rattling-phonon excitation energies in the filled skutterudite superconductor Pr(Os_{1-x}Ru_x)₄Sb₁₂: R. Miyazaki, Y. Aoki, D. Kikuchi, H. Sugawara, and H. Sato, Journal of Physics: Conference Series **200** (2010) 012125 (5 p).
- 33) Rare-earth Atom Motions in ROs₄Sb₁₂ (R = La, Pr, Nd, Sm): S. Tsutsui, H. Uchiyama, J. P. Sutter, A. Q. R. Baron, H. Sugawara, J. Yamaura, Z. Hiroi , A. Ochiai , and H. Sato, Journal of Physics: Conference Series 200 (2010) 012213 (5 p).
- 34) Transport Properties in Filled Skutterudite GdRu₄P₁₂: M. Watanabe, K. Tanaka, S. Tatsuoka, T. Saito, R. Miyazaki, K. Takeda, T. Namiki, K. Kuwahara, R. Higashinaka, Y. Aoki and H. Sato, Journal of Physics:

Conference Series 200 (2010) 012222 (4 p).

35) Pressure-Induced Antiferromagnetic Order in Filled Skutterudite PrFe₄P₁₂ Studied by Single-Crystal High-Pressure Neutron Diffraction: T. Osakabe, K. Kuwahara, D. Kawana, K. Iwasa, D. Kikuchi, Y. Aoki, M. Kohgi, and H. Sato, J. Phys. Soc. Jpn. **79** (2010) 034711 (7 p).

物性物理化学研究室

- 36) M. Mito, S. Kawagoe, H. Deguchi, S. Takagi, W. Fujita, K. Awaga, R. Kondo, S. Kagoshima, "Effects of hydrostatic pressure and uniaxial strain on the spin-Peierls transition in an organic radical magnet, BBDTA•InCl₄" *J. Phys. Soc. Jpn.* 78, 124705/1-7 (2009).
- W. Fujita, K. Kikuchi, "Magneto-Structural Correlations in a 1,3,2-Dithiazolyl Radical Crystal, BBDTA•GaBr₄: Structure and Magnetic Properties of its Three Polymorphs." *Chem. Asian J.* 4, 400-5 (2009).
- W. Fujita, K. Kikuchi, K. Awaga, "Structural Study on a Dimerization Process in an Organic Magnet, BBDTA•InBr₄." *Angew. Chem. Int. Ed.* 47, 9480-3 (2008).

分子集合系物理化学研究室

39) Y. Kosaka, M. Ito, Y. Kawabata, and T. Kato"Lamellar-to Onion Transition with Increasing Temperature under Shear Flow in a Nonionic Surfactant/Water System"

Langmuir 26, 3835-3842 (2009).

- 40) Y. Kawabata, A. Matsuno, T. Shinoda, and T. Kato
 "Formation Process of Bilayer Gel Structure in a Nonionic Surfactant Solution" *J. Phys. Chem. B* 113, 5686-5689 (2009).
- 41) S. Bulut, J. Hamit, U. Olsson, and T. Kato
 "On the Concentration-Induced Growth of Nonionic Wormlike Micelles" *Eur. Phys. J. E*, 27, 261-273 (2008).
- 42) M. Hato, H. Minamikawa, and T. Kato

"Sugar-Based Surfactants with Isoprenoid-type Hydrophobic Chains – Physicochemical and Biophysical Aspects"

in "Sugar-Based Surfactants", C. C. Ruiz, Ed., 361-412, CRC Press (2008).

- K. Miyazaki, Y. Kosaka, Y. Kawabata, S. Komura, and T. Kato
 "Shear-Induced Structural Transition in the Lamellar Phase of C₁₆E₇/D₂O System. Time Evolution of Small-Angle Neutron Scattering at a Constant Shear Rate." *J. Appl. Cryst.* 40, s332–s334 (2007).
- 44) T. Kato, Y. Kawabata, M. Fujii, T. Kato, M. Hato and H. Minamikawa"Micelle Structures in Aqueous Solutions of Glucose-Based Surfactants Having an Isoprenoid-Type

Hydrophobic Chain"

J. Colloid Interface Sci. 312, 122-129 (2007).

宇宙化学研究室

- 45) "Chemical characteristics of lherzolitic shergottites Yamato 000097 and the magmatism on Mars inferred from chemical compositions of shergottites" : N. Shirai and M. Ebihara, *Polar Science* 3, 117-133 (2009).
- 46) "Determination of Toxic Trace Elements in Foodstuffs, Soils and Sediments of Bangladesh Using Instrumental Neutron Activation Analysis Technique ": Shaikh Abdul Latif, D. Afro j, S. M. Hossain, M. S. Uddin, M. A. Islam, K. Begum, Y.Oura, M. Ebihara, M. Katada, *Bull. Environ.l Contam. Toxicol.* 82, 384-388 (2009).
- 47) "Adsorption of Db and its Homologues Nb and Ta, and the Pseudo-homologue Pa on Anion-exchange Resin in HF Solution": K. Tsukada, H. Haba, M. Asai, A. Toyoshima, K. Akiyama, Y. Kasamatsu, I. Nishinaka, S. Ichikawa, K. Yasuda, Y. Miyamoto, K. Hashimoto, Y. Nagame, S. Goto, H. Kudo, W. Sato, A. Shinohara, Y.Oura, K. Sueki, H. Kikunaga, N. Kinoshita, A. Yokoyama, M. M. Schädel, W. Brüchle and J. V. Kratz, *Radiochim. Acta* 97, 83-89 (2009).
- 48) "Anionic Fluoro Complex of Element 105, Db", Y. Kasamatsu, A. Toyoshima, M. Asai,
 K. Tsukada, Z. Li, Y. Ishii, H. Toume, T. K. Sato, T. Kikuchi, I. Nishinaka, Y. Nagame,
 H. Haba, H. Kikunaga, Y. Kudou, Y.Oura, K. Akiyama, W. Sato, K. Ooe, H. Fujisawa,
 A. Shinohara, S. Goto, T. Hasegawa, H. Kudo, T. Nanri, M. Araki, N. Kinoshita, A. Yokoyama,
 F. Fan, Z. Qin, C. E. Düllmann, M. Schädel, J. V. Kratz, *Chem. Lett.* 38, 1084-1085 (2009).
- 49) "Irradiation Histories of Iron Meteorites" : M. Honda, H. Nagai, K. Nagao, K. Ba jo,
 N. Takaoka, Y.Oura, and K. Nishiizum, *J. Phys. Soc. Jpn.* 78, Suppl.A, 12-17 (2009).

有機化学研究室

- 50) M. Hasegawa, H. Enozawa, Y. Kawabata, and M. Iyoda Hexagonally Ordered Nanostructures Comprised of a Flexible Disk-like Molecule with High Self-Assembling Properties at Neutral and Cationic States *J. Am. Chem. Soc.*, 129, 3072-3073 (2007).
- 51) S. Sirinintasak, Y. Kuwatani, S. Hoshi, E. Isomura, T. Nishinaga and M. Iyoda Short-step syntheses and complexation properties of Z,Z-tribenzodidehydro- and all-Z-tribenzo[12]annulenes *Tetrahedron Lett.*, 48, 3433-3436 (2007).
- 52) Y. Kobayashi, M. Hasegawa, H. Enozawa, and M. Iyoda Electroactive Nanowires Based on Simple 4,5-Bis(dodecylthio)- and

 $4,5\mbox{-}Bis(octade cylthio)\mbox{-}4',5'\mbox{-}bis(methoxy carbonyl)\mbox{tetrathia fulvalenes}$

Chem. Lett., 36, 720-721 (2007).

53) E. Isomura, K. Tokuyama, T. Nishinaga, M. Iyoda Synthesis and Properties of 4',5'-Bis(methylthio)-4,5-bis(2-pyridylethynyl)tetrathiafulvalene and its Copper Complexes

Tetrahedron Lett., 48, 5895-5898 (2007).

54) M. Iyoda

Syntheses, Structures, and Supramolecular Properties of Giant □-Expanded Macrocyclic Oligothiophenes *Heteroatom Chem.* **18**, 460-466 (2007).

55) M. Iyoda, M. Hasegawa, H. Enozawa

Self-assembly and Nanostructure Formation of Multi-functional Organic □-Donors.

Chem. Lett. 36, 1402-1407 (2007).

56) H. Enozawa, Y. Honna, M. Iyoda

Self-assembly and Solvatochromic Fiber Formation of 4,5-Bis(dodecylthio)tetrathiafulvalene-4'-carboxylic Acid and its Derivatives.

Chem. Lett. 36, 1434-1435 (2007).

57) Y. Miyata, M. Terayama, T. Minari, T. Nishinaga, T. Nemoto, S. Isoda, K. Komatsu Synthesis of Oligo(thienylfuran)s with Thiophene Rings at Both Ends and their Structural, Electronic, and Field-Effect Properties.

Chem. Asian J. 2, 1492-1504 (2007).

58) M. Takase, V. Enkelmann, D. Sebastiani, M. Baumgarten, K. Müllen Annularly fused hexapyrrolohexaazacoronenes: an extended □ system with multiple interior nitrogen atoms displays stable oxidation states.

Angew. Chem. Int. Ed. 46, 5524-5527 (2007).

 59) A. Miyazaki, H. Yamazaki, M. Aimatsu, T. Enoki, R. Watanabe, E. Ogura, Y. Kuwatani, and M. Iyoda Crystal structure and physical properties of conducting molecular magnets with a halogen-substituted donor: (EDO-TTFBr₂)₂FeX₄ (X = Cl, Br),

Inorg. Chem., 46, 3353-3366 (2007).

60) T. Nishinaga, T. Uto, R. Inoue, A. Matsuura, N. Treitel, M. Rabinovitz, K. Komatsu Antiaromaticity and Reactivity of the Planar Cyclooctatetraene Fully Annelated with Bicyclo[2.1.1]hexane Units

Chem. Eur. J., 14, 2067-2074 (2008).

M. Williams-Harry, A. Bhaskar, G. Ramakrishna, T. Goodson, III,
 M. Imamura, A. Mawatari, K. Nakao, H. Enozawa, T. Nishinaga, M. Iyoda
 Giant Thienylene-Acetylene-Ethylene Macrocycles with Large Two-Photon
 Absorption Cross Section and Semishape-Persistence

J. Am. Chem. Soc., 130, 3252-3253 (2008).

J. Yamakawa, M. Ohkoshi, F. Takahashi, T. Nishiuchi, Y. Kuwatani, T. Nishinaga, M. Yoshida, M. Iyoda Synthesis and Properties of Cyclic [5]meta-Phenyleneacetylene and Its Corresponding Cyclophane Polyone, [25](1,3)Cyclophanedecaone

Chem. Lett., 37, 784-785 (2008).

- 63) M. J. Rahman, J. Yamakawa, A. Matsumoto, H. Enozawa, T. Nishinaga, K. Kamada, M. Iyoda Synthesis of Nonaphenylenes and Dodecaphenylenes Using Electron-Transfer Oxidation of Lipshutz Cuprates and Formation of Nanostructural Materials from Hexadodecyloxynonaphenylene *J. Org. Chem.*, 73, 5542-5548(2008).
- 64) M. Hirama, Y. Kato, C. Seki, H. Matsuyama, N. Oshikiri, M. Iyoda Asymmetric cycloaddition of 1,2-dihydropyridine derivatives in the presence of Lewis acids *Chem. Lett.*, **37**, 924-925 (2008).
- K. Nakao, T. Nishiuchi, and M. Iyoda
 Syntheses, Structures, and Properties of Bithiophenophanes Bridged at 1,8-Positions of Naphthalenes *Heterocycles*, 76, 727-745 (2008).
- 66) Y. Miyake, S. Watanabe, S. Aono, T. Nishinaga, A. Miyazaki, T. Enoki, H. Miyasaka, H. Otani, M. Iyoda Long-distance ferromagnetic coupling through spin polarization in a linear heterotrinuclear iron(III)-copper(II)-iron(III) complex derived from 5-ferrocenyl-2-aminotropone *Chem. Commun.*, 6167-6169(2008).
- D. Wu, X. Feng, M. Takase, M. C. Haberecht, K. Müllen Synthesis and Self-assembly of Dibenzo[*jk,mn*]naphtho[2,1,8-*fgh*]-thebenidinium Derivates *Tetrahedron* 64, 11379-11386 (2008).
- 68) X. Feng, M. Liu, W. Pisula, M. Takase, J. Li, K. Müllen Supramolecular Organization and Photovoltaics of Triangle-shaped Discotic Graphenes with Swallow-tailed Alkyl Substituents *Adv. Mater.* 20, 2684-2689 (2008).
- K. Feng, W. Pisula, L. Zhi, M. Takase, K. Müllen
 Controlling Columnar Orientation of C₃-symmetric "Superbenzenes" by Alternating Polar/Apolar
 Substitutions

Angew. Chem. Int. Ed. 43, 1703-1706 (2008).

70) X. Feng, W. Pisula, M. Takase, V. Enkelmann, M. Wagner, N. Ding, K. Müllen Synthesis, Helical Organization, and Fibrous Formation of C₃ Symmetric Methoxy Substituted Discotic Hexa-*peri*-hexabenzocoronene

Chem. Mater. 20, 2872-2874 (2008).

71) M. Fujii, T. Nishinaga, M. Iyoda

"Synthesis of Thiophene-Pyrrole Mixed Oligomers End-Capped with Hexyl Group for Field-Effect

Transistors"

Tetrahedron Lett., 50, 555-558 (2009).

- M. Hasegawa, Y. Kobayashi, K. Hara, H. Enozawa, M. Iyoda,
 "Synthesis and Electrochromic Properties of Bis(2- tetrathiafulvalenylethynylphenyl)ethynes" *Heterocycles*, 77, 837-842 (2009).
- 73) M. Iyoda

"Giant macrocycles Composed of Thiophene, Acetylene, and Ethylene Units" Compt. Rend. Chim.,

12, 395-402 (2009).

74) M. Iyoda

"Copper-mediated Aryl-Aryl Couplings for the Construction of Oligophenylenes and Related Heteroaromatics"

Adv. Synth. Catal., 351, 984-998 (2009).

- 75) M. Hasegawa, K. Takeda, Y. Kuwatani, M. Yoshida, H. Matsuyama, M. Iyoda "Synthesis, Properties, and CT complex Formation of Highly Polarized Thiocyanotetrathiafulvalenes" *J. Sulfur Chem.*, **30**, 301-308 (2009).
- T. Nishiuchi, Y. Kuwatani, T. Nishinaga, M. Iyoda,
 "Dynamic Molecular Tweezers Composed of Dibenzocyclooctatetraene Units; Synthesis, Properties, and Thermochromism in Host-Guest Complexes"
 Chem. Eur. J., 15, 6838-6847 (2009).
- 77) H. Enozawa, M. Hasegawa, E. Isomura, T. Nishinaga, T. Kato, M. Yamato, T. Kimura, M. Iyoda
 "Small Difference in Side Chain of Tetrathiafulvaleno[18]annulenes Causing Magnetic Alignment in Solid
 State and Temperature Hysteresis in Aqueous Tetrahydrofuran Solution" *Chem. Phys. Chem.*, 10, 2607-2611 (2009).

有機合成化学研究室

- 78) Synthesis and stability of optically active benzylmethylphenyltelluronium salts. Shimizu, T.; Azami, Y.; Sakurai, R.; Hirabayashi, K.; Kamigata, N. *Chem. Lett.* **2009**, *38*, 1070-1071.
- 79) Palladium-catalyzed Mizoroki-Heck-type reactions of chalcogenonium trifluoromethanesulfonates. Hirabayashi, K.; Nara, Y.; Yamashita, Y.; Kiyota, K.; Kamigata, N.; Shimizu, T. J. Sulfur. Chem. 2009, 30, 346-350.
- Molecular Transformations of Unsaturated Thiacrown Ethers. Tsuchiya, T.; Okada, Y.; Shimizu, T.;
 Hirabayashi, K.; Kamigata, N. J. Org. Chem. 2008, 73, 76-80.
- Optical Resolution of Selenonium Imides Stabilized by an 8-Dimethylamino-1-naphthyl Group. Soma, T.; Kamigata, N.; Hirabayashi, K.; Shimizu, T. *Bull. Chem. Soc. Jpn.* 2007, *80*, 2389-2394.
- 82) Lewis Acid Mediated Reactions of Allyl Chalcogenides with Ethyl Glyoxylate. Hirabayashi, K.; Sato, H.; Kuriyama, Y.; Matsuo, J.-i.; Sato, S.; Shimizu, T.; Kamigata, N. *Chem. Lett.* 2007, *36*, 826-827.

- Stabilizing Effect of Interamolecular Lewis Base Toward Racemization of Optically Active Selenoxides.
 Soma, T.; Shimizu, T.; Hirabayashi, K.; Kamigata, N. *Heteroatom Chem.* 2007, *18*, 301-311.
- 84) Multi-step regulation of anion recognition by redox-active pseudocryptand. Nabeshima, T.; Masubuchi, S.; Taguchi, N.; Akine, S.; Saiki, T.; Sato, S. *Tetrahedron Lett.* 2007, *48*, 1595-1598.

生物化学研究室

- 85) Nakayama, H., Akiyama, M., Taoka, M., Yamauchi, Y., Nobe, Y., Ishikawa, H., Takahashi, N. and Isobe, T. "Ariadne: a database search engine for identification and chemical analysis of RNA using tandem mass spectrometry data." Nucleic Acids Res. 37, e47 (2009)
- 86) Matsunaga, K., Saitoh, T., Tabata, K., Omori, H., Satoh, T., Kurotori, N., Maejima, I., Shirahama-Noda, K., Ichimura, T., Isobe, T., Akira, S., Noda, T., Yoshimori, T. "Two beclin 1-binding proteins, Atg14L and Rubicon, reciprocally regulate autophagy at different stages." Nature Cell Biol., 11, 385-396. (2009) DOI: 10.1038/ncb1846.
- 87) Fujiyama-Nakamura, S., Yoshikawa, H., Homma, K., Hayano, T., Tsujimura-Takahashi, T., Izumikawa, K., Ishikawa, H., Miyazawa, N., Yanagida, M., Miura, Y., Shinkawa, T., Yamauchi, Y., Isobe, T., and Takahashi N. "Parvulin (Par14), a peptidyl prolyl cis-trans isomerase, is a novel rRNA-processing factor evolved in the metazoan lineage." Mol. Cell. Proteomics 8; 1552-1565 (2009)
- 88) Aoki T, Ichimura S, Itoh A, Kuramoto M, Shinkawa T, Isobe T, and Tagaya M. "Identification of the neuroblastome-amplified gene product as a component of the syntaxin 18 complex implicated in Golgi-to-endoplasmic reticulum retrograde transport" Mol. Biol. Cell. 20, 2639-49 (2009)
- 89) Taoka, M., Yamauchi, Y., Nobe, Y., Masaki, S., Nakayama, H., Ishikawa, H., Takahashi, N. and Isobe, T.
 "An analytical platform for mass spectrometry–based identification and chemical analysis of RNA in ribonucleoprotein complexes." Nucleic Acids Res. 37, e140 (2009)
- 90) Okada M, Okawa K, Isobe T, and Fukagawa T. "CENP-H-containing complex facilitates centromere deposition of CENP-a in cooperation with FACT and CHD1" Mol. Biol. Cell 20, 3986-95 (2009)
- 91) Niiya D, Egawa N, Sakamoto T, Kikkawa Y, Shinkawa T, Isobe T, Koshikawa N, and Seiki M.
 "Identification and characterization of Lutheran blood group glycoprotein as a new substrate of MT1-MMP: a systematic whole-cell analysis of MT1-MMP-associationg proteins in A431 cells" J Biol Chem 284, 27360-9 (2009)
- 92) Nozumi M, Togano T, Takahashi-Niki K, Lu J, Honda A, Taoka M, Shinkawa T, Koga H, Takeuchi K, Isobe T, Igarashi M. "Identification of functional marker proteins in the mammalian growth cone." Proc Natl Acad Sci U S A. 106, 17211-6. (2009)

同位体化学研究室

- 93) "A metallofullerene that encapsulates ²²⁵Ac"
 - K. Akiyama, H. Haba, K. Tsukada, M. Asai, A. Toyoshima, K. Sueki, Y. Nagame, M. Katada,

J. Radioanal. Nucl. Chem., 280, 329 (2009).

- 94) "Determination of Toxic Trace Elements in Foodstuffs, Soils and Sediments of Bangladesh Using Instrumental Neutron Activation Analysis Technique"
 S. A. Latif, D. Afroj, S. M. Hossanin, S. M. Uddin, M. A. Isram, K.Begum, Y. Oura, M. Ebihara, and M. Katada, *Bull. Environ. Contam Toxicol.*, 82, 384 (2009).
- 95) "Functional model for catecholase-like activity: Symthesis, structure, spectra, and catalytic activity of iron (III) complexes with substituted- salicylaldimine ligands"
 S. I. Lo, J. W. Lu, S. R. Wang, H. H. Wei, and M. Katada, *Inorg. Chem. Acta*, 362, 4699 (2009).
- 96) "²²⁵Ac Metallofullerene: Toward ²²⁵Ac Nanogererator in Fullerene"
 K. Akiyama, H. Haba, K. Sueki, K. Tsukada, M. Asai, A. Toyoshima, Y. Nagame, and
 M. Katada, *Chem. Letters*, **38**, 978 (2009).
- 97) "Synthesis, Structures, and Electronic Propertes of [8Fe-7S] Cluster Complexes Modeling the Nitrogenase P-Cluster"

Yasuhiro Ohki, Motosuke Imada, Ayuro Murata, Yusuke Sunada, Shun Ohta, Masaru Honda, Takahiro Sasamori, Norihiro Tokitoh, Motomi Katada, and Kazuyuki Tatsumi, *J. Am. Chem. Soc.*, **131**, 13168 (2009).

- 98) "Hexafluoro complex of rutherfordium in mixed HF/HNO₃ solutions" Toyoshima, H. Haba, K. Tsukada, M. Asai, K. Akiyama, S. Goto, Y. Ishii, I. Nishinaka, T. K. Sato, Y. Nagame, W. Sato, Y. Tani, H. Hasegawa, K. Matsuo, D. Saika, Y. Kitamoto, A. Shinohara, M. Ito, J. Saito, H. Kudo, A. Yokoyama, M. Sakama, K. Sueki, Y. Oura, H. Nakahara, M. Schaedel, W. Bruechle, and J. V. Kratz, *Radiochim. Acta*, **96**, 125 (2008).
- 99) "Fluoride Complexation of Element 104, Rutherfordium (Rf), Investigated by Cation- exchange Chromatography"

Y. Ishii, A. Toyoshima, K. Tsukada, M. Asai, H. Toume, I. Nishinaka, Y. Nagame, S. Miyashita, T. Mori, H.
Suganuma, H. Haba, M. Sakamaki, S. Goto, H. Kudo, K. Akiyama, Y. Oura, H. Nakahara, Y. Tashiro, A.
Shinohara, M. Schädel, W. Brüchle, V. Pershina, and J. V. Kratz, *Chem. Lett.* 37, 288 (2008).

100) "Extraction behavior of rutherfordium into tributylphosphate from hydrochloric acid"
H. Haba, K. Tsukada, M.Asai, A. Toyoshima, Y. Ishii, H. Toume, T. Sato, I. Nishinaka, T. Ichikawa, S. Ichikawa, Y. Nagame, W. Sato, K.Matsuo, Y. Kitamoto, Y. Tashiro, A. Shinohara, J. Saito, M. Ito, T. Ikezawa, M. Sakamaki, S.Goto, H. Kudo, H. Kikunaga, M.Arai, S. Kamataki, A. Yokoyama, K. Akiyama, K. Sueki, Y. Oura, M. Schädel, W. Brüchle and J.V. Kratz, *Radiochim. Acta*, **95**, 1-6 (2007).

神経分子機能研究室

101) Masuda, M., Hasegawa, M., Nonaka, T., Oikawa, T., Yonetani, M., Yamaguchi, Y., Kato, K., Hisanaga, S., and Goedert, M. Inhibition of alpha-synuclein fibril assembly by small molecules: analysis using epitope-specific antibodies. FEBS lett. 583, 787-791, 2009.

- 102) Akimoto, M., Mishra, K., Lim, K-T., Tani, N., Hisanaga, S., Katagiri, T., Elson, a., Mizuno, K. and Yakura, H. Tyrosine phosphatase PTPe is a negative regulator of FceRI-mediated mast cell responses. Scandinavian Journal of Immunology 69, 401-411, 2009.
- 103) Yonetani, M., Nonaka, T., Masuda, M., Inukai, Y., Oikawa, T., Hisanaga, S., and Hasegawa,
 M. Conversion of Wild-type a-Synuclein into Mutant-type Fibrils and its Propagation in the
 Presence of A30P Mutant. J. Biol. Chem. 284, 7940-7950, 2009..
- 104) Yotsumoto, K., Saito, T., Asada, A., Oikawa, T., Kimura, T., Uchida, C., Ishiguro, K., Uchida, T., Hasegawa, M. and Hisanaga, S. Effect of pin1 or microtubule binding on dephosphorylation of FTDP-17 mutant tau. J. Biol. Chem. 284, 16840-16847, 2009.
- 105) Sasaki, T., Ishiguro, K., and Hisanaga, S. Novel axonal distribution of neurofilament-H phosphorylated at the GSK3β-phosphorylation site in its E-segment. J. Neurosci. Res. 87:3088-3097, 2009.
- 106) Endo, R., Saito, T., Asada, A., Kawahara, H., Ohshima, T. and Hisanaga, S. Commitment of MPP+-induced neuronal cell death by proteasome-mediated degradation of p35 Cdk5 activator. J. Biol. Chem., 284, 26029-26039, 2009.
- 107) Asada, A, Takahashi, J., Taniguchi, M., Yamamoto, H., Kimura, T., Saito, T., and Hisanaga, S. Neuronal expression of two isoforms of mouse Septin 5. J. Neurosci. Res. 88,1309-1316, 2010.
- 108) Miura, Y., Sakurai, Y., Hayakawa, M., Shimada, Y., Zempel, H., Sato, Y., Hisanaga, S., and Endo, T. Translocation of lysosomal cathepsin D caused by oxidative stress or proteasome inhibition in primary cultured neurons and astrocytes. Biological & Pharmaceutical Bulletin, 33, 22-28, 2010.
- 109) Yamaguchi, Y., Masuda, M., Sasakawa, H., Nonaka, T., Hanashima, S., Hisanaga, S., Kato, K., and Hasegawa, M. Characterization of inhibitor-bound a-synuclein dimer: Role of a-synuclein N-terminal region in dimerization and inhibitor binding. J. Mol. Biol. 395, 445-456, 2010.
- 110) Kimura-Kuroda J, Teng X, Komuta Y, Sango K, Yoshioka N, Kawamura K, Raisman G, and Kawano H: An in vitro Model of the Inhibition of Axon Growth in the Lesion Scar Formed after Central Nervous System Injury. Mol. Cell. Neurosci. 43 : 177-187, 2010.
- 111) lie de Thonel, A., Ferraris, S. E., Pallari, H-M., Imanishi, S. Y., Kochin, V., Hosokawa, T., Hisanga, S., Sahlgren, C., and Eriksson, J. E. Protein Kinase C_ Regulates CDK5/P25 Signaling during Myogenesis. Mol. Biol. Cell 21, 2010. in press.
- 112) Yoshioka, N., Hisanaga, S., and Kawano, H. Suppression of the Fibrotic Scar Formation Promotes Axonal Regeneration without Disturbing the Blood-Brain Barrier Repair and the Withdrawal of Leukocytes after Traumatic Brain Injury. J. Comparative Neurol. in press.
- 113) Tsutsumi, K., Takano, T., Endo, R., Fukuda, M., Ohshima, T., Tomomura, M., and Hisanaga, S. Phosphorylation of AATYK1 by Cdk5 suppresses its tyrosine phosphorylation. PLoS ONE, 5, e10260, 2010.

植物ホルモン機構研究室

114) Nakajima, K., Uchiumi, T., *Okamoto, T. (2010) Positional relationship between the gamete fusion site

and the first division plane in the rice zygote. J. Exp. Bot. in press.

- *Nishimura, T., Koshiba T. (2010) Auxin biosynthesis site and polar transport in maize coleoptiles.Plant Signal. Behav. in press.
- 116) Sato, A., Toyooka, K., *Okamoto, T. (2010) Asymmetric cell division of rice zygotes located in embryo sac and produced by in vitro fertilization. Sex Plant Reprod. in press
- 117) *Okamoto T. (2010) In vitro fertilization with isolated rice gametes: production of zygote and zygote and embryo culture. Methods Mol. Biol. in press.
- 118) *Motohashi, K., Kobayashi, T., Furukawa, T., Ono, Y. (2010) Notes on some plant-inhabiting fungi collected from the Nansei Islands (2) Mycoscience in Press.
- 119) *Kobayashi, T., Watanabe, K., Ono, Y., Furukawa, T. (2010) Notes on some plant-inhabiting fungi collected from the Nansei Islands (3) Mycoscience in press.
- 120) *Nishimura, T., Nakano, H., Hayashi, K., Niwa, C., Koshiba, T. (2009) Differential downward stream of auxin synthesized at the tip has a key role in gravitropic curvature via TIR1/AFBs-mediated auxin signaling pathways. Plant Cell Physiol. 50:1874-1885.
- 121) *Sazuka, T., Kamiya, N., Nishimura, T., Ohmae, K., Sato, Y., Imamura, K., Nagato, Y., Koshiba, T., Nagamura, Y., Ashikari, M., Kitano, H., Matsuoka, M. (2009) A rice *tryptophan deficient dwarf* mutant, *tdd1*, contains a reduced level of indole acetic acid and develops abnormal flowers and organless embryos. Plant J. 60:227-41.
- 122) Wang S., *Okamoto T. (2009) Involvement of polypyrimidine tract-binding protein (PTB) related proteins in pollen germination in Arabidopsis. Plant Cell Physiol. 50:179-190.
- 123) Sugawara, S., Hishiyama, S., Jikumaru, Y., Hanada, A., Nishimura, T., Koshiba, T., Zhao, Y., Kamiya, Y.,
 *Kasahara, H. (2009) Biochemical analyses of indole-3-acetaldoxime-dependent auxin biosynthesis in *Arabidopsis.* Proc. Natl. Acad. Sci., USA. 106:5430-5435.
- Raab, S., Drechsel, G., Zarepour, M., Hartung, W., Koshiba, T., Bittner, F., *Hoth, S. (2009)
 Identification of a novel E3 ubiquitin ligase that is required for suppression of premature senescence in *Arabidopsis*. Plant J. 59:39-51.
- 125) Ikegami K., Okamoto M., *Seo M., *Koshiba T. (2009) Activation of abscisic acid biosynthesis in the leaves of *Arabidopsis thaliana* in response to water deficit. J. Plant Res.122:235-243.
- 126) *Umemura, K., Satoh, J., Iwata, M., Uozumi, N., Koga, J., Kawano, T., Koshiba, T., Anzai, H., Mitomi, M. (2009) Contribution of salicylic acid glucosyltransferase, OsSGT1, to chemically-induced disease resistance in rice plants. Plant J. 57: 463-472.

植物環境応答研究室

Oda, Y., A. Hirata, T. Sano, T. Fujita, Y. Hiwatashi, Y. Sato, A. Kadota, M. Hasebe and S. Hasezawa
 (2009) Microtubules regulate dynamic organization of vacuoles in *Physcomitrella patens*. Plant Cell
 Physiol. 50: 855-868

- 128) Kadota, A., N. Yamada, N. Suetsugu, M. Hirose, C. Saito, K. Shoda, S. Ichikawa, T. Kagawa, A. Nakano and M. Wada (2009) Short actin-based mechanism for light-directed chloroplast movement in *Arabidopsis*. Proc. Natl. Acad. Sci. USA 106: 13106-13111
- 129) Tsuboi, H. and M. Wada (2010) Speed of signal transfer in the chloroplast accumulation response.J. Plant Res. in press
- 130) Tsuboi, H. and M. Wada (2010) The speed of intracellular signal transfer for chloroplast movement.Plant signaling & Behavior. in press

細胞遺伝学研究室

- 131) Amano A, Aigaki T, Maruyama N, Ishigami A. (2010) Ascorbic acid depletion enhances expression of the sodium-dependent vitamin C transporters, SVCT1 and SVCT2, and uptake of ascorbic acid in livers of SMP30/GNL knockout mice. Arch Biochem Biophys. 496, 38–44.
- 132) Ahsan, B., Saito, TL., Hashimoto, S., Muramatsu, K., Tsuda, M., Sasaki, A., Matsushima, K., Aigaki, T. and Morishita, S. (2009) MachiBase: a *Drosophila* melanogaster 5'-end mRNA transcription database. *Nucleic Acids Res.* 37, D49-53.
- Tsubouchi, A., Tsuyama, T., Fujioka, M., Kohda, H., Okamoto-Furuta, K., Aigaki, T. and Uemura, T.
 (2009) Mitochondrial Protein Preli-like Is Required for Development of Dendritic Arbors and Prevents Their Regression in the Drosophila Sensory Nervous System. *Development*, 136, 3757-3766.
- 134) Sakai T, Kasuya J, Kitamoto T, Aigaki T. (2009) The Drosophila TRPA channel, Painless, regulates sexual receptivity in virgin females. *Genes Brain Behav.* 8, 546-557
- 135) Ishimoto, H. Sakai, T. and Kitamoto. T. (2009) Ecdysone signaling regulates courtship long-term memory formation in adult *Drosophila melanogaster*. Proc. Natl. Acad. Sci. USA 106: 6376-6381.
- 136) Suzuki, E., Zhao Y., Ito, S., Sawatsubashi, S., Murata, T., Furutani, T., Shirode, Y., Yamagata, K., Tanabe, M., Kimura, S., Ueda, T., Fujiyama, S., Lim, J., Matsukawa, H., Kouzmenko, AP., Aigaki, T., Tabata, T., Takeyama, KI, and Kato, S. (2009) Aberrant E2F activation by polyglutamine expansion of androgen receptor in SBMA neurotoxicity. *Proc Natl Acad Sci USA*. 106, 3818-3822.
- 137) Olivier L, Togawa T, Tsuda M, Matsuo T, Loic E and Aigaki T., Overexpression of grappa encoding a histone methyltransferase enhances stress resistance in *Drosophila*, Hereditas 146, 19-28. (2009)
- 138) Jun Yatsu, Tsunaki Asano (2009) Cuticle laccase of the silkworm, Bombyx mori: Purification, gene identification and presence of its inactive precursor in the cuticle. *Insect Biochem and Mol Biol* 39(4), 254-262
- 139) 松尾隆嗣 ショウジョウバエの食性進化と化学感覚受容 生物科学 61:24-31
- 140) Sakai, J., Kasuya, T. Kitamoto and T. Aigaki (2009) The Drosophila TRPA channel, Painless, regulates sexual receptivity in virgin females. JDRC. 7 月. 静岡
- 141) Asano, T., J. Yatsu, K. Kusumoto, T. Aigaki (2009) Role of laccase in cuticle sclerotization. JDRC. 7 月. 静岡

- 142) Funakoshi, M., K, Muramatsu. M, Tsuda. K, Hatsuta. S, Morishita. And T, Aigaki (2009) *Swag1*, a novel gene tahat regulates body size in *Drosophila*. JDRC. 7 月. 静岡
- 143) Harada, E., T, Aigaki. T, Matsuo (2009) *In vitro* binding assay of two odorant-binding proteins, OBP57d and OBP57e. JDRC. 7 月. 静岡
- 144) Horiuchi, J., D, Yamazaki. T, Aigaki. M, Saitoe (2009) Inhibiting PKA activity in the mushroom bodies increases memory and may increase synaptic plasticity in *Drosophila*. JDRC. 7 月. 静岡
- 145) Nakagawa, J., T, Aigaki. T, Matsuo (2009) Identification of functionally important amino acids in two odorant-binding proteins, OBP57d and OBP57e. JDRC. 7 月. 静岡
- 146) Nakai, Y., M, Tsuda. T, Aigaki. (2009) Conditional Knock-In Mutagenesis of Calcineurin Genes. JDRC.7 月. 静岡
- 147) Sato, Y., T., Kaneuchi. O, Masuda. K, Muramatsu. M, Tsuda. T, Aigaki (2009) Chemical genetics in Drosophila: development of a versatile culture system and an automated phenotype analysis for a high-throughput sample. JDRC. 7 月. 静岡
- 148) Tomioka, S., J, Yasukawa. T, Aigaki. T, Matsuo (2009) Evolution of spatial expression patterns of two odorant-binding protein genes, OBP57d and Obp57e. JDRC. 7 月. 静岡
- 149) Tsuda, M., Y, Kishita. T, Kaneuchi and T, Aigaki (2009) Mutations in Lipoyltrasferase(lipB) exhibits shorten life span and metabolic disorder in *Drosophila*. JDRC. 7 月. 静岡
- 150) Kishita, Y., Tsuda, M. and Aigaki, T. (2009) Loss of lipoyltransferase (lipB) disrupts key metabolic pathways for energy production and leads to shortened lifespan in *Drosophila*. EDRC2009, November, Nice,France
- 151) 坂井貴臣, 宇井勇太, 相垣敏郎(2009)ショウジョウバエのLIMホメオボックス遺伝子 apterous は長期記憶に必要である (The Drosophila LIM homeobox gene, apterous, is required for long-term courtship memory) 第32回日本神経科学大会.9月.名古屋
- 152) 朝野維起, 楠本一洋, 相垣敏郎 (2009) 昆虫が発達させてきたラッカーゼ活性化系に関する研究. 日本動物学会 80 回大会.9月. 静岡
- 153) 朝野維起,楠本一洋,相垣敏郎(2009)昆虫外骨格形成におけるラッカーゼ活性化系.昆虫ワ ークショップ 09.11月.福岡
- 154) 坂井貴臣(2009)高次脳機能におけるショウジョウバエ Pain TRP チャネルの役割. 第2回分子 高次機能研究会.1月. いわき
- 155) 津田学 相垣敏郎 (2009) Drosophila sex-peptide: functional dissection and evolution. 第 32 回日本 分子生物学会. 12 月. 横浜
- T. Sakai (2009) Functional analysis of *Drosophila* homologs of schizophrenia-associated genes. 第 32
 回日本分子生物学会. 12 月. 横浜

微生物分子機能研究室

157) Ohmine M, Matsuura K, Shimada K, Alric J, Vermeglio A, Nagashima KVP (2009) Cytochrome c₄ can

be involved in the photosynthetic electron transfer system in the purple bacterium, *Rubrivivax gelatinosus*. *Biochemistry* **48**, 9132-9139

Tsukatani Y, Nakayama N, Shimada K, Mino H, Itoh S, Matsuura K, Hanada S, Nagashima KVP. (2009)
 Characterization of a blue copper protein, auracyanin, of the filamentous anoxygenic phototrophic
 bacterium, *Roseiflexus castenholzii*. Arch. Biochem. Biophys. 490, 57-62

材料加工研究室

- 159) Inconel 718 の機械的特性に及ぼす熱処理の影響,林啓介, 筧幸次, 日本学術振興会第 123 委員会研究報告, 50 (2009), pp. 297-303, 2009 年 11 月
- 160) Inconel 718の機械的特性に及ぼす熱処理の影響,林啓介, 筧幸次, 日本金属学会誌, in press.
- 161) Effect of ruthenium on compressive creep of Ni-based single crystal superalloy, Shunsuke Shimabayashi and Koji Kakehi, Scripta Materialia, 2010 年 2 月投稿
- 162) アルミ拡散コーティングを施した単結晶 Ni 基超合金のクリープ強度に及ぼす有害拡散層および熱処理の影響,島林俊介, 筧 幸次,村上秀之,上原慎矢,日本金属学会誌, in press.
- 163) {111}<112>すべり系に対する分解せん断応力一定で行った単結晶 Ni 基超合金のクリープ,浅
 利 康基,筧 幸次,日本金属学会誌,2010年3月投稿
- 164) The effect of Ruthenium on creep strength of Ni-base single crystal superalloys at 750 °C and 750 MPa, N. Tsuno, <u>K. Kakehi</u>, C.M.F. Rae and R. Hashizume, *Metallurgical and Materials Transactions A*, 40A, FEBRUARY (2009), pp. 269-272
- 165) 簡便なデータベース作成法を用いた構造用鋼の熱処理シミュレーション,渡邉哲史,<u>筧幸次</u>, 竹野裕之,吉田功,深尾勇人,原口裕,鉄と鋼, Vol. 95 (2009) 2 月, pp.22-28
- Tension/compression Asymmetry of Creep Strength of Ni-Based Single Crystal Superalloys,
 N. Tsuno, S. Shimabayashi, <u>K. Kakehi</u>, C.M.F. Rae and R.C. Reed, Superalloys 2008, (2008),
 pp.433-441,
- 167) 耐熱チタン合金 DAT54 の強度特性に及ぼす高温酸化の影響, <u>筧幸次</u>, 橋本隆史, 日本金属学 会誌, 第72 巻, 第10 号(2008) pp.819-824,
- 168) 耐摩耗鋼板の機械的特性とミクロ組織に及ぼす軟化熱処理の影響,原田智也,<u>筧幸次</u>,竹野裕之,吉田功,鉄と鋼, Vol.94 (2008), p. 130,
- 169) 耐酸化コーティングを施した単結晶 Ni 基超合金のクリープ特性に及ぼす結晶二次方位の影響, 上原慎矢, 筧幸次, 村上秀之, 日本学術振興会第 123 委員会研究報告, 49 (2008), pp. 45-50,
- 170) 単結晶 Ni 基超合金のクリープ強度に及ぼす Ru の影響, 津野展康, 島林俊介, <u>筧幸次</u>, Catherine Rae, 橋詰良吉, 日本学術振興会第 123 委員会研究報告, 49 (2008), pp. 51-55

材料設計化学研究室(金村研究室)

171) Masashi Kotobuki, Yuji Suzuki, Hirokazu Munakata, Kiyoshi Kanamura, Yosuke Sato, Kazuhiro Yamamoto, Toshihiro Yoshida, Fabrication of Three-Dimensional Battery Using Ceramic Electrolyte with Honeycomb Structure by Sol-Gel Process, J. Electrochem. Soc., 2010, Vol. 157, pp. A493-A498

- 172) Hirokazu Munakata, Masashi Otani, Yuki Katsuki, Kiyoshi Kanamura, 3-dimensionally Ordered Macroporous Ni-YSZ for Low Temperature SOFC, ECS Transactions, 2009, Vol. 25, pp. 1855–1860.
- 173) Atsushi Kaeriyama, Hirokazu Munakata, Koichi Kajihara, Kiyoshi Kanamura, Yosuke Sato, Toshihiro Yoshida, Evaluation of Electrochemical Characteristics of Li7La3Zr2O12 Solid Electrolyte, ECS Transactions, 2009, Vol. 16, pp. 175-180.
- 174) Yushi Suzuki, Hirokazu Munakata, Koichi Kajihara, Kiyoshi Kanamura, Yosuke Sato, Kazuhiro Yamamoto, Toshihiro Yoshida, Fabrication of Three-Dimensional Battery Using Ceramic Electrolyte with Honeycomb Structure by Sol-gel Process, ECS Transactions, 2009, Vol. 16, pp. 37-43.
- 175) Yuta Mizuno, Masashi Kotobuki, Hirokazu Munakata, Kiyoshi Kanamura, Effect of carbon source on electrochemical performance of carbon coated LiMnPO4 cathode, Journal of the Ceramic Society of Japan, 2009, Vol. 11, pp. 1225-1228.
- 176) Masanori Hara, Hiroyuki Nakano, Kaoru Dokko, Sayaka Okuda, Atsushi Kaeriyama, Kiyoshi Kanamura, Fabrication of all solid-state lithium-ion batteries with three-dimensionally ordered composite electrode consisting of Li0.35La0.55TiO3 and LiMn2O4, Journal of Power Sources, 2009, Vol. 189, pp. 485-489.
- 177) Hiroshi Kanno, Go Maruyama, Kaoru Dokko, Kiyoshi Kanamura, Electrochemical characteristics of porous electrode consisting of spherical LiMn2O4 particles, Electrochemistry, 2009, Vol. 77, pp. 309-314.

分子物性化学研究室(吉田研究室)

178) Laboratory-GISAXS Measurements of Block Copolymer Films with Hi ghly Ordered and Normally Oriented Nanocylinders

M. Komura, K. Watanabe, T. Iyoda, T. Yamada, H. Yoshida, Y. Iwasaki

Chemistry Letters, Vol. 38 p.408 (2009)

- 179) Size effect of silica nanoparticles on thermal decomposition of PMMA
 - D. Q. Zou , H. Yoshida
 - J Therm Anal Calorim, 99:21-26(2010)
- 180) 液晶を利用した両親媒性ブロック共重合体のナノ構造制御 山田 武、吉田 博久、彌田 智一 液晶、13(4), 250 - 257 (2009)

材料設計化学研究室(春田研究室)

181) J.Huang, T.Takei, T.Akita, H.Ohashi, M.Haruta, "Gold Clusters Supported on Alkaline-Treated TS-1 for Highly Efficient Propylene Epoxidation with O₂ and H₂", *Appl. Catal. B: Environ.*, 95, 430-438 (2010).

分子計測化学研究室(久保研究室)

- 182) Y. Kubo, K. Tsuruzoe, S. Okuyama, R. Nishiyabu and T. Fujihara, Resorcin[4]arene cavitand with 1,3,2-benzodiazaborolyl walls as a fluorescence receptor for ammonium cations, *Chem. Commun.* 2010, 46, 3604–3606.
- 183) Y. Kubo, Y. Minowa, T. Shoda, and K. Takeshita, Synthesis of a new type of dibenzopyrromethene-boron complex with near-infrared absorption property, *Tetrahedron Lett.* **2010**, *51*, 1600–1602.
- 184) Fluorescence Sensing of Phytate in Water Using an Isothiouronium-attached Polythiophene, *Chem. Asian J.* 2010, *5*, 605–611.
- 185) S. Horie, Y. Kubo, Fluorescence-based Indicator Displacement Assay for Phosphosugar Detection Using

Zinc(II) Dipicolylamine-appended Phenylboronic Acid, Chem. Lett. 2009, 38, 616–617.

186) K. Kataoka, S. Okuyama, T. Minami, T. D. James, Y. Kubo, Amine-triggered molecular capsules using

dynamic boronate esterification, Chem. Commun. 2009, 1682-1684.

- 187) Y. Kubo, W. Yoshizumi, T. Minami, Development of Chemical Stimuli-responsive Organogel Using Boronate Ester-substituted Cyclotricatechylene, *Chem. Lett.* 2008, *37*, 1238–1239.
- 188) A. Nonaka, S. Horie, T. D. James, Y. Kubo, A pyrophosphate-induced reorganization of reporter-receptor assembly via boronate esterification; new strategy of a turn-on fluorescent detection of multi-phosphates in aqueous solution, *Org. Biomol. Chem.* 2008, *6*, 3621–3625.
- 189) T. Minami, K. Kaneko, T. Nagasaki, Y. Kubo, Isothiouronium-based amphiphilic gold nanoparticles with a colorimetric response to hydrophobic anions in water: a new strategy for fluoride ion detection in the presence of a phenylboronic acid, *Tetrahedron Lett.* 2008, 49, 432–436.

地形・地質学研究室

- 190) OSL 強度より推定する現世河川堆積物中の長石粒子の露光状況と運搬-堆積過程. 白井正明・ 塚本すみ子・近藤玲介. 第四紀研究 47 (2008): 377-389.
- 191) OSL 測定により得られた天竜川河口周辺における砂質粒子の露光率分布:運搬過程の指標としての可能性. 白井正明・劉海江・高川智博・岸本瞬・佐藤愼司. 日本堆積学会 2008 年大会要旨集: 13-14, 4月, 弘前.
- 192) 遠州灘表層砂の露光率分布から推定される波浪限界水深. 白井正明・劉 海江・佐藤愼司. 日本堆積学会2009年京都・枚方大会講演要旨集: 5-6.
- 193) 遠州灘米津の浜での海浜侵食と露光率変化. 白井正明・林崎 涼・劉 海江・佐藤愼司. 日本堆積学会2010年茨城大会講演要旨集:10-11.