

アトミックデザイン
研究センター

Center for Atomic and Molecular Technologies

アニュアルレポート
Vol. 5
[平成 29(2017)年度]



大阪大学 大学院工学研究科
Graduate School of Engineering Osaka University



目次

巻頭言 「望遠レンズで撮るという人」	2
平成 29 年度 組織	3
平成 29 年度 研究成果	5
量子設計研究部門	
量子表面構造設計分野	6
量子機能材料設計分野	10
機能デバイス設計分野	14
表面反応制御設計研究部門	
表面反応設計分野	19
プラズマ物性設計分野	23
プラズマ応用設計分野	25
環境反応設計分野	30
材料・構造・機能設計研究部門	
コンポジット材料設計分野	32
機能分子材料設計分野	36
分子集積設計分野	40
センター関連研究集会・刊行物等	44
研究業績一覧	45
受賞一覧	79
職員名簿	80

「望遠レンズで撮るという人」

アトミックデザイン研究センター長
渋谷陽二（機械工学専攻）

縁があって、昨年4月から日本とベトナム両政府が合意し、独立行政法人国際協力機構(JICA)が主導して設立しています「日越大学 (Vietnam Japan University)」のために、月の半分はハノイに滞在するようになりました。このプロジェクトに携わる前には、ベトナムを一度も訪れたことがありませんでしたので、この1年間現地に居住する貴重な経験をしています。日本に滞在したままこのプロジェクトを担当する選択肢もありましたが、現場に立つことの重要性を感じていましたので、関係各位のご協力の下で現在のような状況が得られました。写真家の細江秀公という人が「望遠レンズで撮るっていう人は、もう写真辞めちゃったほうがいいと思うね」と表現されていることを、3月24日付けの朝日新聞朝刊の「折々のことば」で取り上げられていました。望遠レンズを使って、遠くから被写体をのぞくのではなく、“もの”や“こと”により近くに身を寄せて写真を撮る。この行為を「撮る」と言っています。川を渡る幼子を連れた母親を極めて近距離から撮影した沢田教一さんの写真がピューリツァー賞を受賞したことは多くの方がご存じと思います。ベトナム戦争の悲惨さを、写真という2次元像から臨場間のある3次元像に思い起こさせるこの写真は、その賞にふさわしいことは言うまでもありません。この写真を通じて、「撮る」という行為をよく理解できます。身を外したくても外せず、何が起こるか分からない予言不能な場所に身を置くこと、これが「現場に立つ」ということだと主張されています。日越大学は2016年9月に修士課程が開学したところですから、その1期生もまだ卒業していません。したがって、日々起こることはすべて1回目のことであり、短期的にも中長期的にも全く予見できない状況が続いています。この言葉を借りれば、まさに「現場」に立っていることとなります。

我々が行っている研究も、予見不能な状況が続きますので「現場」そのもので、その「現場に立つ」ことが新たな発見につながる成果を導くこととなります。国際協力という「現場」を通じて、あらためて研究という「現場に立つ」重要性を再認識するきっかけになりました。当センターは研究に軸を置く「現場」ですので、構成員がその場所により多く立ち、新たな発見につながる成果を期待したいと思います。

今後とも、当センターへのご指導、ご鞭撻の程よろしくお願い申し上げます。

平成30年3月末日



アトミックデザイン研究センター

センター長 渋谷陽二教授

センター運営委員会

渋谷 陽二 教授	荒木 秀樹 教授	浜口 智志 教授	栗津 邦男 教授
尾崎 雅則 教授	神戸 宣明 教授	芝原 正彦 教授	中谷 亮一 教授
林 高史 教授			



量子設計研究部門

量子表面構造設計分野

芝原 正彦 教授(兼任)	平原 佳織 准教授
Wilson Agerico Tan Diño 准教授(兼任)	

量子機能材料設計分野

荒木 秀樹 教授	水野 正隆 准教授	杉田 一樹 助教
----------	-----------	----------

機能デバイス設計分野

尾崎 雅則 教授(兼任)	今西 正幸 助教
--------------	----------



表面反応制御設計研究部門

表面反応設計分野

浜口 智志 教授	吉村 智 准教授
----------	----------

プラズマ物性設計分野

杉本 敏司 准教授

プラズマ応用設計分野

渋谷 陽二 教授(兼任)	北野 勝久 准教授
(センター長併任)	

環境反応設計分野

栗津 邦男 教授(兼任)



材料・構造・機能設計研究部門

コンポジット材料設計分野

中谷 亮一 教授(兼任)	井藤 幹夫 准教授
--------------	-----------

機能分子材料設計分野

神戸 宣明 教授(兼任)	小西 彬仁 助教
--------------	----------

分子集積設計分野

林 高史 教授(兼任)	阿野 勇介 助教
-------------	----------



平成 29 年度(2017 年度)

アトミックデザイン研究センター研究成果

カーボンナノ材料の機械科学

平原佳織

1. はじめに

カーボンナノチューブ(CNT)をはじめとするナノカーボン材料が構造由来の独特な優れた性質を有することは、20年来の基礎研究よりよく知られている。特性を活かした高機能部材やデバイスなどの開発も多岐にわたり行われているが、実用化を目指せる応用展開には、特性を良く理解した上で、個々のナノ物質をきちんと扱うための要素技術やそれを支える学術基盤の確立が必須である。本研究室では機械工学の視点から、CNT などナノカーボン材料一個体レベルの加工に関する基礎科学や機械特性を活かした応用、およびその凝集体の形状特性をそのまま活かせる機能材料開発に関する研究を進めてきた。最近では、ナノカーボン研究を通じて培ってきた電子顕微鏡内マニピュレーション技術などを活かし、ナノメートルレベルの濡れ現象などについて、顕微鏡による直接観察や力計測によってなにがどこまで解明できるのか、機械工学分野において連続体近似に基づいて確立されてきた諸法則と原子・分子レベルの現象の狭間にも挑戦している。本稿では2017年度に実施した研究内容について、いくつか紹介する。

2. 透過電子顕微鏡内温度勾配場の形成

熱泳動とは、温度勾配下で微小物質が高温側から低温側へ移動する現象である。一般には、高温側の雰囲気から受ける力により移動が生じるが、ナノメートル領域においては真空下でも熱泳動と同様な現象がみられる。そのメカニズムを解明するためのアプローチとして、本研究室ではTEM内の局所領域に温度勾配を形成し、温度計測・制御をしながら物質をリアルタイム観察できる試料ホルダの作製に取り組んだ。

温度勾配は、TEM内で2つの試料ステージ間に架橋された1本のカーボンナノチューブ上に形成することとした。カーボンナノチューブは優れた熱伝導性を有しており、高温下でのナノメートルサイズの物質の担持体としては最も適した材料の一つである。既存のナノマニピュレータ搭載TEM試料ホルダの試料ステージに、白金抵抗型マイクロヒータを搭載した。このヒータでは白金線を通電加熱しながら抵抗値をモニタすることで同時に温度を計測し、2端子でステージの加熱と温度計測を同時に行う。このステージ側にCNTを片持ち梁状に担持したシリコン基板を固定し、加熱した状態で、任意のCNT1本の先端を可動ステージ側にとりつけた室温の金属プローブと接触させた。すなわち、このCNTの両

端は、室温のプローブと加熱されたステージに支持されていることになる。この状態におけるCNT上の温度勾配を調べるために、あらかじめ低融点金属ナノ粒子をCNT上に蒸着しておき、粒子の形状を観察してCNT上の各地点の粒子の固液状態の判別を行った。実際に取り付けたヒータは300°C程度まで安定に稼働することが確認されたため、低融点金属として融点約230°Cのスズ(Sn)を用いることとした。結果として、直径20nm程度、長さ500nm程度のCNT1本の上に担持したSn粒子が、加熱ステージに近いところからある地点までは丸みを帯びた形状となり、それよりCNT先端に近い方ではファセットが残ったままという形態の違いが確認できた。このことはこのCNT上に温度勾配が形成されたことを示唆しており、Sn粒子のサイズ効果による融点降下などを考慮して、実際に形成できた温度勾配を概算することができた。ただし、今回の試作ステージでは加熱時のコンタミネーションの堆積が多くみられ、低倍率像観察のみ可能であったことと接触熱抵抗の影響により十分な精度が得られていない。今後改良を重ねていき、100nm以下の局所領域で厳密に温度勾配を制御・計測しながらTEM観察ができる環境を整えていく予定である。これによって、温度勾配下でのナノ物質の振る舞いだけでなく、濡れに関わる現象のより詳細な解明に貢献していけると考えている。また、今回改造した試料ホルダは、架橋した状態でプローブと加熱ステージ間に電圧を印加できる状況となっている。これを利用して、来年度以降はナノメートルレベルの局所領域における熱電現象の解明にも取り組んでいく予定である。

3. 表面ナノバブルの形態のサイズ依存性

固液界面に存在するナノバブル(表面ナノバブル)は、数日間安定に存在できたり、マクロスケールの気泡に比べて接触角が大きくなるなど独特の性質を示すが、未解明な点も多い。本研究室では昨年度までに、配向CNTをそのままの形態で複合化した樹脂電極を用いた電気分解により、樹脂表面の選択的位置に気泡をサイズ制御しながら繰り返し発生させられる機構を開発してきた。これによって、厳密にサイズ制御された表面ナノバブルの形態の実測が可能となり、実際に気泡1個の発生、成長を捉えられるようになっている(Fig. 1.)。2017年度は、表面ナノバブルの形態についてサイズ依存性を調べた。一般に、固体表面に存在する気泡の形状は、球体の一部を切り取った形として近似され、こ

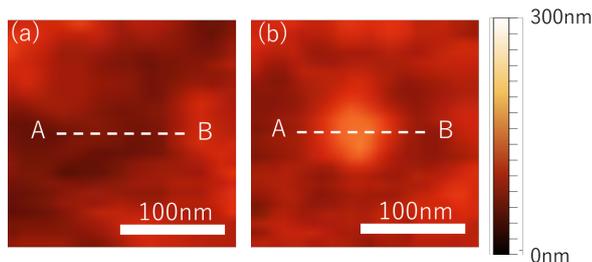


Fig. 1. CNT-PDMS 複合電極上に発生させた表面ナノバブルのAFM像.

れに基づいて見積もられる接触角 θ の値は、サイズに依存して変化すると報告されている[1]。しかしながら、実際に観察される表面ナノバブルの断面形状とは大きく異なる。そこで、様々なサイズの表面ナノバブルについて、原子間力顕微鏡(AFM)を用いて断面プロファイル計測し、接触角、曲率半径をより正確に計測することを試みた。具体的には、幅 200nm 以下の表面ナノバブルの断面形状について Fig. 2(a)のイラストに示すような3個の圆弧によるフィッティングを行うとともに接触角 θ' を見積もった。その結果、従来の近似に基づいて見積もられる接触角 θ はサイズに依存して変化するのに対し、 θ' の値は、少なくとも気泡の幅が 20nm 以上の場合にはサイズに関係なく一定の値となることが示された。そして、従来 θ の値がサイズに依存するとされてきた原因は、表面ナノバブル頂点付近の曲率半径 R_{top} の変化であった。

また、今回の観察で確認できたように表面ナノバブルの頂点近傍と三相接触線付近で曲率が異なるということは、ラプラスの式に基づけばラプラス圧が気泡内で局所的に異なることを示唆している。実際に、三相接触線がピンニングされた表面ナノバブル1個について、時間経過による収縮過程をリアルタイム観察して得られた断面プロファイルからは、接触線付近の形状は変化することなく頂点付近の曲率のみが顕著に変化することにより高さを減じている(Fig. 2(c))。このことはラプラス圧の不均一性を裏付けている可能性がある。すなわち、当初この表面ナノバブルは頂点部分の曲率半径が小さく、ラプラス圧が局所的に高い部分から徐々に気体分子の溶解が生じたと考えればこの形状変化を説明できる。

4. エアログラファイト球殻粒子複合材料

中空炭素繊維からなるナノロッドが放射状に配列して球殻構造をなす、エアログラファイト球殻粒子について、粒子1個レベルの力学特性について調べ、70%以上の歪みに対しても元通りに回復することなどを明らかにしてきた[2]。その特異な柔軟さに加えて超軽量であること(空気と同じオーダーの密度、シリカの1/6)、球殻に由来する大きな細孔容積などを活かした、新たな複合材フィラーとしての応用展開の可能性を探るための基礎検討を行った。まず、

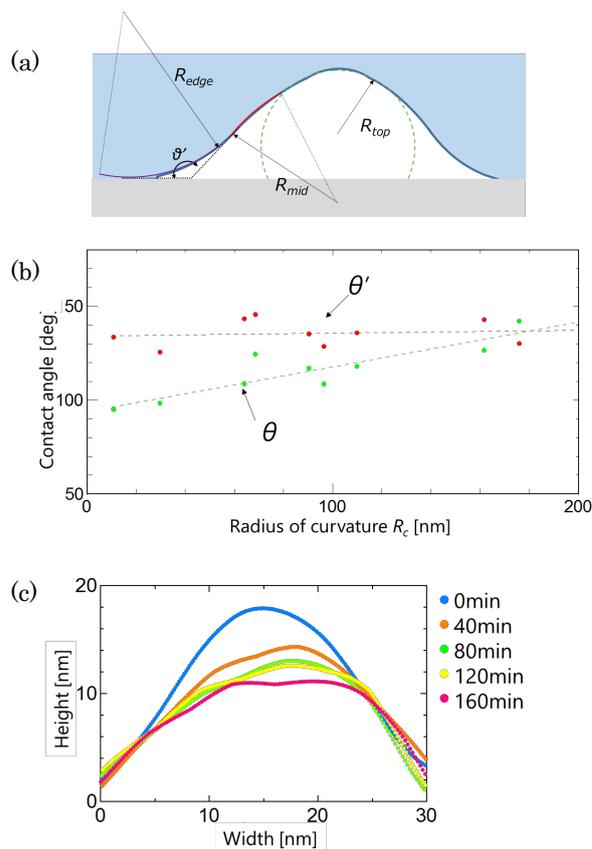


Fig. 2. (a)表面ナノバブル断面の模式図。(b) 個々の気泡の断面プロファイルから、 $\theta/2$ 法より求めた接触角 θ と、(a)に示した3種類の圆弧により形状を近似して求めた接触角 θ' 。(c)表面ナノバブル1個の断面形状の経時変化。

複合材の作製には大量の試料を必要とするが、従来の合成プロセスの見直しを行うことでテンプレートに用いる酸化亜鉛マイクロ粒子の収率・合成量などが合成系のスケールアップに伴って影響を受ける要因を抽出するとともに、およびテンプレート除去効率を向上させるための手法改善に取り組んだ。結果として、将来大量合成プロセス実現の指針となる知見を得るに至った。

さらに、実際にエアログラファイト球殻粒子をジメチルポリシロキサン (PDMS) 樹脂へ10~60%の体積充填率で複合化した試験片を作製した。試験片断面の走査電子顕微鏡観察から、エアログラファイト球殻粒子表面の個々の炭素ナノロッドがPDMSに対して隙間を作ることなく埋め込まれており、界面における濡れが優れていることが示された。また、60%充填率の試験片に対して最大歪みを50%として繰り返し圧縮試験を行った結果、10000回繰り返してもヒステリシスが增大することなく、疲労が生じていないという優れた結果を示すことが明らかとなった。

参考文献

- [1] B. Song et al. Langmuir, **27**, pp. 8223–8232, 2011.
- [2] Hirahara, K. et al. Carbon **118**, pp. 607–614 (2017).

Surface as a Foundation for Realizing Designer Materials

- Some *Spice* Related Application -

Wilson Agerico Diño

1. Introduction

“... *He who controls the spice controls the Universe ...*” declares Baron Vladimir Harkonnen in the film adaptation of Frank Herbert’s 1965 novel *Dune*. But, what is “*the spice*”? It can *prolong life... increase vitality... heighten awareness... catalyze interstellar travel... use to make paper... plastics... cloths... fibers...* Considering the symbolism, it can be anything. We could have replaced “*the spice*” with “*energy... catalyst... platinum...*” and no one will be the wiser. In the following we introduce some “*spice*” related studies in our quest to Realize Designer Materials utilizing Surface as a Foundation.

2. Alloying, surface segregation, oxidation, corrosion, and the effect of adsorbate on the structure (cf., e.g. [1,2,3,4] and references therein)

How does alloying prevent corrosion? The answer to this question lies in some fundamental thermodynamic and elemental composition issues at the surface of metallic alloys. Let us consider a binary (AB) alloy, a two-component thermodynamic system for which the surface composition need not be identical to the bulk composition. By definition, the system is at equilibrium when the corresponding free energy is a minimum with respect to small variations in concentrations of bulk and surface A and B atoms, subject to the constraint that the total number of A and B atoms is fixed. Following some simple thermodynamic derivations found in textbooks (cf., e.g., [5,6] and references therein), we arrive at a relation that specifies the surface composition of the alloy in terms of the bulk composition. Thus, we may find enrichment of one alloy component relative to its bulk concentration, i.e., surface segregation. What does this have to do with alloying as a means to protect a material from corrosion? If we alloy two

elements with different *surface tension* (surface energy), the species with the lower elemental surface tension will enrich the alloy surface! Following the above argument Au, having a lower elemental surface tension than Cu (cf., e.g., Fig. 1.4 in [5]), will segregate to the surface of a CuAu alloy. And thus Au, being less reactive (less susceptible) to oxidation, forms a protective layer that prevents further oxidation into the CuAu bulk [1]! It gets more interesting when you have two elements with comparable surface tension (surface energy), e.g., Cu and Pd in CuPd alloys used as catalysts in hydrocarbon formation [2,3]. The surface and sub-surface structures are further determined by the interaction between co-adsorbates, and this may result in compositions far from what we may have anticipated, as we have also observed for the air/water interface [4].

3. Hydrogen as an alternative fuel source (cf., e.g., [7,8] and references therein).

Two often cited major challenges to the success of fuel cell vehicles (FCVs) as a competitive alternative for consumers are: (1) expense associated with the platinum (Pt) catalysts used, and (2) restrictions associated with hydrogen filling and storage. Direct hydrazine (N_2H_4) fuel cell (DHFC) may solve all these problems as it does not need Pt and uses liquid N_2H_4 , instead of hydrogen, as fuel source. N_2H_4 oxidation at the anode (producing N_2 , H_2O and $4e^-$) requires coadsorption with OH species. Electronic structure, charge distribution, and work function analyses reveal that electrostatic attractive dipole interaction of the initially adsorbed OH stabilizes adsorption of the N_2H_4 cis-conformation [7]. Alternatively, the N_2H_4 adsorbed in the cis-conformation promotes OH adsorption in its immediate vicinity. This coadsorption mechanism suggest N_2H_4 dehydrogenation as a mechanistic pathway for N_2H_4

oxidation. Being able to control the dynamics also plays a crucial role [8].

4. Summary

As a final note, I should mention that the segregation phenomenon introduced in Sec. 2 [1,2,3,4,5] can be controlled by the surrounding environment. For example, subjected to the right amount of gas pressure, one could vary the ratio of the binary alloy components at each layer. Similarly, as introduced in Sec. 3, one could design surfaces with the desired reactivity by knowing the orientation preference of certain reactions. Simple ways by which we can *tweak* reactivity to yield the desired product by controlling the morphology (also, cf., eg., [7,8] and references therein). And the Quest for *Spice* Continues!

5. References

- [1] 岡田美智雄、津田泰孝、吉越章隆、Wilson Agerico Diño, 銅と銅合金、第 5 6 卷 1 号 (2017) 232-236. M. Okada, Y. Tsuda, A. Yoshigoe, W.A. Diño (in Japanese) *Journal of Japan Institute of Copper* **56**(:1) (2017) 232-236.
- [2] A.A.B. Padama, R.A.B. Villaos, J.R. Albia, W.A. Diño, Hiroshi Nakanishi, Hideaki Kasai, *Journal of Physics:Condensed Matter* **29** (2017) 025005-1-8.
- [3] A.A.B. Padama, A.P.S. Cristobal, J.D. Ocon, W.A. Diño, H. Kasai, *Journal of Physical Chemistry C* **121** (2017) 17818-17826.
- [4] T. Kondo, M. Tsumaki, W.A. Diño, T. Ito, *Journal of Physics D:Applied Physics* **50** (2017) 244002-1-5.
- [5] A. Zangwill, *Physics at Surfaces* (Cambridge University Press, Cambridge, 1988).
- [6] M.-C. Desjonquères, D. Spanjaard, *Concepts in Surface Physics* 2nd ed. (Springer-Verlag, Berlin, 1996).
- [7] M.K. Agusta, Prasetyo H. Purwoko, A.G. Saputro, F. Fathurrahman, H.K. Dipojono, W.A. Diño, *Surface Science* **664** (2017) 185-193.
- [8] K. Shimizu, W.A. Diño, H. Nakanishi, H. Kasai, K. Fukutani, A. Yajima, *Journal of the Physical Society of Japan* **86** (2017) 073601-1-4.

レーザー積層造形粉末床熔融結合法による Al-Si 二元合金の造形性

荒木秀樹、水野正隆、杉田一樹、木村貴広、中本貴之

1. はじめに

レーザー積層造形粉末床熔融結合法は、3D-CAD データから積層ピッチと同じ間隔で輪切りにしたスライスデータに基づいて、金属粉末を一層ずつ積層し、レーザー照射により選択的に熔融することによって、三次元の構造体を造形する加工法である。この方法は、①切削加工をはじめとする従来の成形・加工技術では容易には作り出せない複雑な形状の製品の作製が可能であること、②急速熔融急速凝固プロセスであるため、積層造形特有の金属組織が形成され、従来の成形・加工技術では得られない特性を持った製品の作製が可能であること、③半自動化されたプロセスであり、装置を操作するために特別な知識、熟練が不要であること、④製品機能の統合化・個性化が容易であること、⑤多品種少量生産への適性が高く、ニーズに応じたカスタマイズ製品へのクイックな対応が可能であること、⑥トポロジー最適化などにより設計された製品製造への適応力に優れること、などの特長を有しており、特に、航空・宇宙分野、医療分野、自動車・産業機器分野において、重要な加工技術となってきた⁽¹⁾⁻⁽⁴⁾。

数ある金属材料の中で、アルミニウムは、比重が小さく、熱伝導性に優れているため、レーザー積層造形法を用いて、トポロジー最適化などにより設計された形状の軽量化部材や熱交換器のような熱制御部品を、アルミニウム合金で作製することが期待されている⁽⁵⁾⁻⁽⁶⁾。ところが、アルミニウムは熱伝導率が高い上に、レーザー反射率が高く⁽⁶⁾、アルミニウム合金粉末の溶解に必要な入熱量をレーザー照射によって与えるのは難しく、高密度造形体を得ることがこれまでは困難であった⁽⁷⁾⁻⁽⁸⁾。近年になっ

て、10.6 μm と長波長のCO₂ ガスレーザーに代わり、波長約1.07 μm のYbファイバレーザーを

積層造形に用いることによって、レーザー反射率を低減させ、アルミニウム粉末の直接熔融による積層造形体の高密度化が可能になった⁽⁷⁾⁻⁽¹⁰⁾。例えば、Kempenら⁽⁹⁾は、Al-10%Si-0.4%Mg (ISO-ALSi10Mg、JISADC3 相当) 合金において、Yb ファイバレーザーを用いて、鑄造材に劣らない、相対密度 98~99%、引張強さ 390MPa、破断伸び 3~5%を有する積層造形体を作製し報告している。木村ら⁽¹⁰⁾は、Al-7%Si-0.3%Mg (ISO-ALSi7Mg0.3、JIS-AC4CH) 合金の Yb ファイバレーザー積層造形体において、サブミクロンサイズの極めて微細なセル状組織を形成させ、鑄造材よりも、はるかに高い強度と大きな延性を両立させることに成功し、レーザー積層造形体のポテンシャルの高さを明らかにしている。

Si は、鑄造系アルミニウム合金の主要な溶質元素のひとつであり、Al-Si 二元系鑄造材の鑄造割れ性、湯流れ性、引け性などの鑄造性は、シリコン濃度に強く依存する⁽¹¹⁾⁻⁽¹³⁾。従って、Al-Si 合金のレーザー積層造形粉末床熔融結合法による造形性においても、鑄造の場合と同様に、Si 濃度に大きく依存することが予想されるが、系統的な研究は少なく、不明な点が多い。そこで、本研究では、Si 濃度を 0 から 20mass%まで変化させた Al-Si 二元合金をレーザー積層造形粉末床熔融結合法により作製し、密度測定とマイクロ組織観察によって造形性を評価する。この結果より、造形性に及ぼす Si 濃度の影響を明らかにすることが本研究の目的である。

2. 実験方法

本研究では、東洋アルミニウム株式会社製の Al-0、1、4、7、10、12、20mass%Si 合金粉末を用いた。Al-0、

表1 本研究で用いた Al-Si 二元合金粉末の平均粒径と合金組成

粉末試料	平均粒径(μm)	化学組成(mass%)								
		Cu	Fe	Si	Mn	Mg	Zn	Ti	Al	
Al-0mass%Si (工業用純アルミニウム)	22.5	<0.01	0.12	0.05	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	<0.01	Bal.
Al-1mass%Si	22.5	<0.01	0.14	1.02	<0.01	0.01	0.01	<0.01	<0.01	Bal.
Al-4mass%Si	22.1	<0.01	0.12	4.07	<0.01	<0.01	0.01	<0.01	<0.01	Bal.
Al-7mass%Si	21.5	<0.01	0.12	7.13	<0.01	<0.01	0.01	0.01	<0.01	Bal.
Al-10mass%Si	21.4	<0.01	0.11	10.38	<0.01	<0.01	0.01	0.01	<0.01	Bal.
Al-12mass%Si	22.8	<0.01	0.11	12.47	<0.01	0.01	<0.01	0.01	<0.01	Bal.
Al-20mass%Si	22.2	<0.01	0.10	20.07	<0.01	0.01	<0.01	0.01	<0.01	Bal.

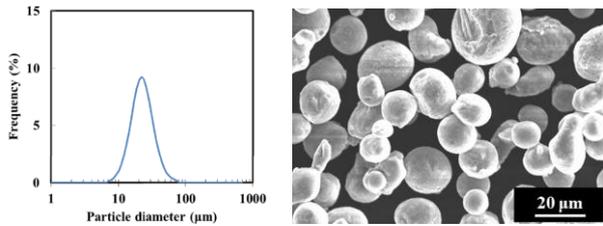


図1 本研究で用いた Al-10mass%Si 合金粉末の
粒度分布と SEM 写真

表2 本研究で用いたレーザー積層条件

積層厚さ(mm)	0.03
レーザー出力(W)	200 ~ 370
レーザー走査速度(mm/s)	400 ~ 3400
レーザー走査間隔(mm)	0.08 ~ 0.16

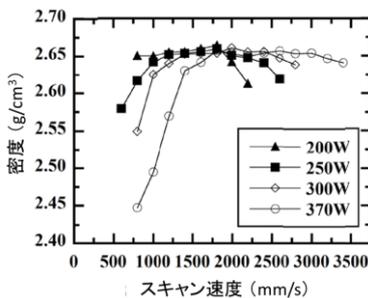


図2 Al-10mass%Si 合金造形体の密度と
レーザー出力および走査速度の関係

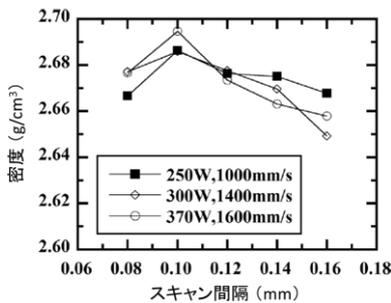


図3 Al-10mass%Si 合金造形体の密度とレーザー走査間隔の関係

1mass%Si 合金は最大固溶限以下の濃度であり、Al-4、7、10mass%Si 合金は亜共晶組成、Al-12mass%Si 合金は共晶組成に近く、Al-20mass%Si 合金は過共晶組成である。表1は Al-Si 合金粉末の平均粒径と組成を示している。すべての粉末の平均粒径は、いずれも 22 μ m 前後である。一例として、Al-10mass%Si 合金粉末の粒度分布と SEM 写真を図1に示す。粉末の形状は、一部に異形粉も認められるものの、

ほぼ球形である。他の組成の粉末についても、粒度分布、粉末の形状はほぼ同じで、組成の影響のみが現れるよう調整している。

積層造形は、ドイツ EOS 社製の EOSINT M280 を用いて行った。最大出力 400 W、ビームスポット径約 0.1mm の Yb ファイバーレーザーを搭載している。ベースプレートは A5083 製で、造形開始前に 35 $^{\circ}$ C に予熱し、残留酸素濃度約 0.1% のアルゴン雰囲気中で直径 8mm \times 高さ 15mm の円柱試験片を造形した。レーザー走査パターンは、1 層ごとに約 67 $^{\circ}$ ずつ回転させた。積層厚さは 30 μ m 一定とし、それぞれの合金において、表2に示す範囲で、レーザー出力、レーザー走査速度、レーザー走査間隔を変化させ、最高密度が得られる条件を最適として決定した。造形体の相対密度はアルキメデス法によって測定し、最適条件で造形された造形体の相対密度は、水平断面の光学顕微鏡像から二値化による画像解析を用いることによっても算出した。積層造形体の金属組織は、水平断面を鏡面研磨し、ケラー試薬によりエッチングして光学顕微鏡により観察した。

3. 実験結果および考察

Al-10mass%Si 合金に関して、走査ピッチを 0.1mm に固定し、レーザー出力と走査速度を変化させて積層造形した造形体の密度変化を、図2に示す。レーザー出力が大きくなるほど、密度最大となるレーザー走査速度は大きくなっている。さらに高い密度を得るために、次に、図2で高密度を示したレーザー出力と走査速度の条件に固定し、レーザー走査間隔を変化させて、造形体の密度を測定した。その結果を、図3に示す。これらの結果から、最も高い密度が得られる条件を、Al-10mass%Si 合金の最適なレーザー積層造形条件とした。他の Si 濃度の合金についても、同様の方法で、最適なレーザー積層造形条件を決定し、その結果を表3に示す。

図4に、最適条件にて作製した (a)Al-0mass%Si、(b)Al-1mass%Si、(c)Al-4mass%Si、(d)Al-7mass%Si、(e)Al-10mass%Si、(f)Al-12mass%Si、(g)Al-20mass%Si 合金造形体の光学顕微鏡写真を示す。Al-4、7、10、12mass%Si 合金の造形体では、欠陥はほとんど観察さ

表3 Al-Si 二元合金粉末に対する最適なレーザー積層造形条件

	レーザー出力 (W)	レーザー走査速度 (mm/s)	レーザー走査間隔 (mm)
Al-0mass%Si	370	1600	0.1
Al-1mass%Si	200	600	0.1
Al-4mass%Si	250	1200	0.08
Al-7mass%Si	250	1600	0.1
Al-10mass%Si	300	2000	0.08
Al-12mass%Si	250	1800	0.1
Al-20mass%Si	250	2000	0.08

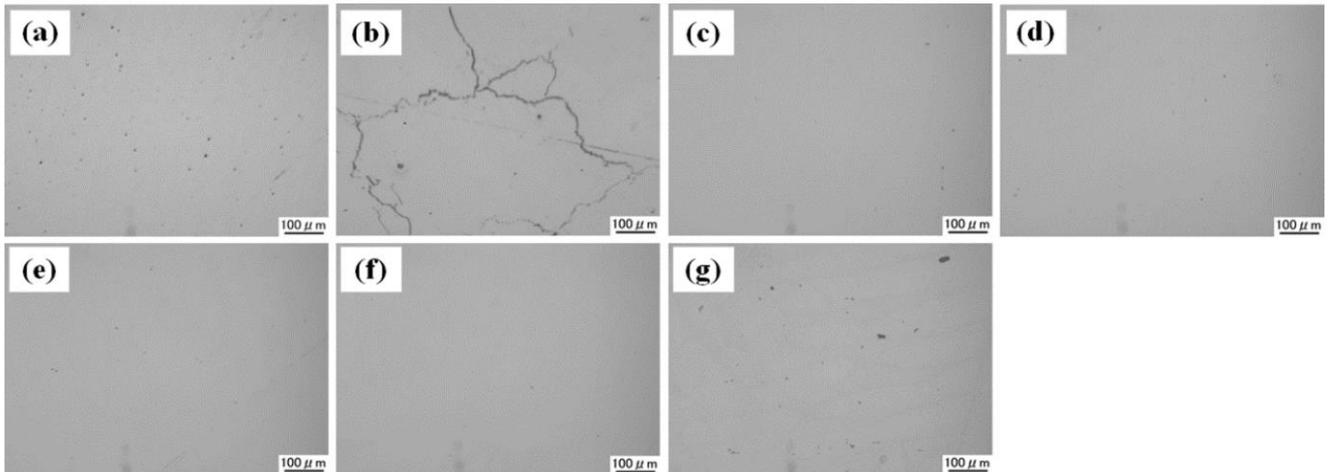


図4 最適条件にて作製されたレーザ積層造形体の光学顕微鏡写真; (a)Al-0mass%Si, (b)Al-1mass%Si, (c)Al-4mass%Si, (d)Al-7mass%Si, (e)Al-10mass%Si, (f)Al-12mass%Si, (g)Al-20mass%Si

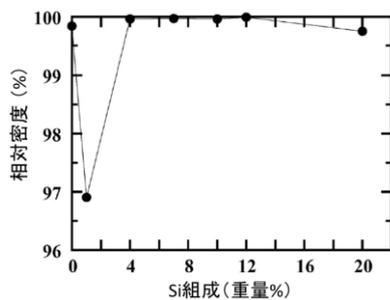


図5 最適条件で作製した Al-Si 二元合金レーザ積層造形体の相対密度と Si 濃度の関係

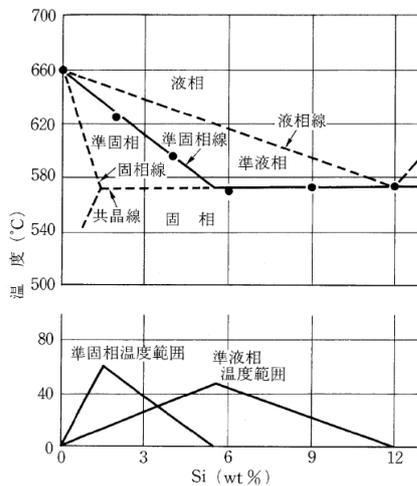


図6 Al-Si 二元系の準固相線、準液相および準固相温度範囲¹²⁾

れず、緻密体が得られている。一方、Al-0、20mass%Si 合金の造形体では、10 μ m 以下の微小な球形の空隙が観察された。これらは、その形状からガスポアであると考えられる。また、Al-1mass%合金造形体では、多数のマイクロクラックが導入されており、他の組成の合金と様相が全く異なっている。

図5に、各組成の最適条件で作製した造形体の相対密度を示す。相対密度は、造形体の水平断面の光学顕微鏡写真を画像処理して求めた。Al-4、7、10、12mass%Si 合金の相対密度は、ほぼ100%で緻密な造形体を得られているのに対して、Al-0、20mass%Si 合金造形体では、上述のガスポアのため、相対密度は若干低く、99.7%に留まっている。一方、Al-1mass%Si 合金造形体では、上述のマイクロクラックの発生により、相対密度は97%以下に大きく低下している。

表3に示す Al-1mass%Si 合金の最適なレーザ積層造形条件から計算される投入エネルギー密度は、他の組成と比べて、相対的に高い。このことは、Al-1mass%Si 造形体で発生したマイクロクラックが、投入エネルギー密度に無関係であり、その組成に起因していることを示唆しており、Al-1mass%Si 造形体で観察されるマイクロクラックは凝固割れであると推定できる。

Al-1mass%Si という組成のみで、凝固割れによるマイクロクラックが発生した理由は、以下のように考えられる。Al-Si 二元系亜共晶組成の固相共存領域は、図6¹²⁾に示すように準固相および準液相の2つの領域に分けられることが知られている⁽¹¹⁾⁻⁽¹³⁾。準液相温度域では、液相に若干の固相が懸濁浮遊しており、高い延性を持ち、かつ溶湯の粘性は低く、溶湯は自由に移動できる状態にある。このため、準液相温度範囲が広い組成の合金の凝固では、凝固収縮によって発生する応力がかかったとしても、高い延性のため凝固割れは生じ難い上、仮に割れが発生したとしてもそこに溶湯が流入して割れを補完する、いわゆる溶湯補給性が良好であると考えられる。それゆえ、準液相温度範囲では、凝固割れは発生し難い。これに対して、準固相温度範囲では、デンドライト同士の結合が強固になり固相状態に近いが、粒界の残留液相により脆弱な状態である上、

溶湯の粘性が高く、流動性は低い。このため、準固相温度範囲において、割れが発生しやすく、溶湯補給性も悪い。それゆえ、準固相温度範囲が広い組成ほど、凝固割れ感受性が高くなる⁽¹¹⁾⁻⁽¹³⁾。ただし、ここで、レーザー積層造形時の冷却速度は $\sim 10^6$ K/s^{(14),(15)}と極めて速いことを考慮に入れなければならない。冷却速度が速いと、固相内での拡散が進み難く、通常の鑄造に比べて、準固相線および固相線は低 Si 濃度側にずれる傾向がある⁽¹⁶⁾。このため、通常の鑄造においては、凝固割れ感受性は濃度 1.65mass%Si 付近で最も高くなるが、レーザー積層造形では、その大きな冷却速度のために、低 Si 濃度側にシフトし、Al-1mass%Si 合金造形体において多数の凝固割れが観察されたと考えられる。

4. まとめ

本研究では、Al-Si 二元合金の Si 濃度がレーザー積層造形性に及ぼす影響について、調査を行った。その結果、レーザー積層造形条件の最適化により工業用純アルミニウムおよび Al-4~20mass%Si 合金においては、相対密度 99.5%以上の高密度造形体が得られることを明らかにした。しかし、Al-1mass%Si 合金のレーザー積層造形体では、造形体全面にマイクロクラックが発生し、相対密度は 97%以下となった。これらのクラックは凝固および熱収縮による引張応力に起因して発生した凝固割れである。レーザー積層造形時の大きな冷却速度を考慮に入れると、準固相温度範囲が最も広くなるのは Al-1mass%Si 濃度付近と考えられ、そのため、この組成の造形体で、最も多くの凝固割れが観察されたと考えられる。このように合金組成によって決定される準固相温度範囲の大小が、溶湯の流動性や凝固割れ感受性などに影響を与え、結果として、Al-Si 二元合金粉末のレーザー積層造形性に対して、重要な意味を持つことを明らかにした。

Al 合金粉末に、レーザー積層造形法を適用して、トポロジー最適化などにより設計された複雑な形状の軽量化部材や熱交換器のような熱制御部品などの製品を製造する際、その合金選択は、比強度や延性、熱伝導性などの材料特性を優先して決定されることが殆どであるが、各合金が持つ準固相温度範囲や湯流れ性(流動性)、凝固割れ感受性などについても十分に考慮すべきであることを、今回の研究結果は示している。今後、更に、レーザー積層による造形性の理解が進み、定量的なデータが豊富になれば、レーザー積層造形に適した合金の開発が進むものと期待される。

謝辞

本研究は、大阪産業技術研究所 木村貴広氏、中本貴之氏との共同研究である。また、本研究の一部は、SIP(戦略的イノベーション創造プログラム)「革新的設計生産技術」(管理人:NEDO)の「三次元異方性カスタマイズ化設計・付加製造拠点の構築と地域実証」ならびに軽金属奨学会の助成によって実施されたものである。

参考文献

- (1) W.M.Steen and J.Mazumder, Laser Material Processing 4th Edition, Springer, (2010) 349-369.
- (2) 京極秀樹, スマートプロセス学会誌, **3** (2014) 148-151.
- (3) 千葉晶彦, 計測と制御, **54** (2015) 399-404.
- (4) 中野貴由, 石本卓也, 萩原幸司, 井手拓哉, 中本将嗣, 蘇亜拉図, 孫世海, 荒木秀樹, 玉岡秀房, まてりあ, **54** (2015) 502-504.
- (5) W. Matthew, S. Tsopanos, J. Chris and O. Leuan, Rapid Prototyping Journal, **13** (2007) 291-297.
- (6) T. Vilaro, S. Abed and W. Knapp, Proc. of 12th European Forum on Rapid Prototyping, Paris, AFPR (2008).
- (7) W. M. Steen and J. Mazumder, Laser Material Processing 4th Edition, Springer, (2010), 89-93.
- (8) 木村貴広, 中本貴之, 粉体および粉末冶金, **61** (2014) 531-537.
- (9) K. Kempen, L.Thijs, J.Van Humbeeck and J.P.Kruth, Physics Proceedia, **39** (2012) 439-446.
- (10) T. Kimura and T. Nakamoto, Mater. Des. **89** (2016) 1294-1301.
- (11) 磯部俊夫, 久保田昌男, 北岡山治, 鑄物, **47** (1975) 345-355.
- (12) 北岡山治, 藤倉潮三, 神尾彰彦, 軽金属, **38** (1988) 426-446.
- (13) 北岡山治, 軽金属, **41** (1991) 365- 372.
- (14) M. Tang, P. C. Pistorius, S. Narra and J. L. Beuth, J. Met. **68** (2016) 960-966.
- (15) Y. Li and D. Gu, Mater. Des. **63** (2014) 856-867.
- (16) P. Bastien, J. C. Armbruster and P. Azou, Modern Castings, **6** (1962) 400-409.

液晶性の可能性の探求と高性能・高機能デバイスの開発

尾崎雅則

我々のグループでは、液晶の優れたポテンシャルを最大限に引き出し、これまでにない機能応用の可能性を探索している。具体的には、(1) 液晶の自己組織性を生かした高移動度の有機半導体の開発とそれを用いた塗布型有機薄膜太陽電池の開発、(2) 高次秩序相を有するコレステリックブルー相液晶を利用した電気光学効果の基礎解明と機能応用、(3) 液晶の配向秩序の乱れであるトポリジカル欠陥の制御と機能応用の探索、(4) 螺旋周期構造を有するキラル液晶のフォトニクスデバイス応用に関する研究等を重点的に推進している。以下では、(1) のなかでも液晶の特性を生かした薄膜単結晶有機半導体の作製について述べる。

1. 液晶性を利用した単結晶薄膜

我々は、有機半導体の中でも高いキャリア移動度を示しプリンタブル薄膜太陽電池として高い変換効率を示す $C6PcH_2$ を開発してきた¹⁻³⁾。この材料は結晶多形を示し、単結晶の成長条件により図1に示すような異なる結晶構造(α 相もしくは β 相)を形成する⁴⁻⁶⁾。このうち α 相は静置溶液中での結晶成長で現れ、その成長に長時間を要するのに対し、 β 相は比較的短時間で結晶化させることによって現れる。例えば、スピンコート法などの溶液プロセスの場合、 β 相の結晶構造(単斜晶系)をとる。これまで報告されてきた $C6PcH_2$ の高移動度は、 β 相に基づくものであるが、理論予測では α 相においてさらに高移動度を示すと考えられている^{7,8)}。しかしながら、電子デバイス等で検討される薄膜中においては、 α 相、 β 相いずれについても本来期待される移動度は計測されておらず、高品質な単結晶薄膜の作製が重要となっている。以下で、液晶性を活用した薄膜単結晶作製方法について紹介する。

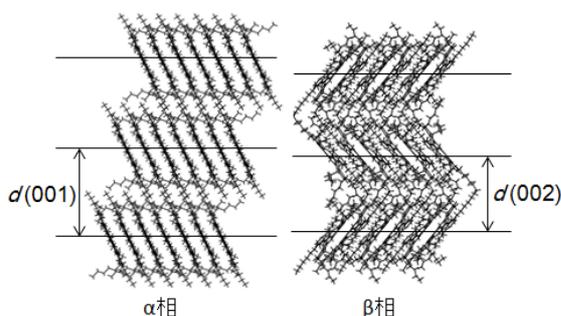
図1. $C6PcH_2$ の結晶構造2. パーコート成膜における一軸配向成長⁹⁾

図2に示すように太さ数十ミクロン程度の細線を巻き付けたワイヤーバーを用いて溶液を塗布するパーコーティング法を用いて、一様に配向した薄膜単結晶が作製可能である。試料を溶かす溶媒の揮発性、基板温度、掃引速度を調整することにより、カラム軸(b 軸)がバーの掃引方向に沿って配列した数十nm~数百nmの β 相の薄膜単結晶を得ることができる。この場合、溶媒の揮発速度に合わせてバーを低速掃引することによって溶液のメニスカス領域からリオトロピック液晶状態を経てエピタキシャル成長しているものと考えられる。なお、側鎖長 $n=5$ の $C5PcH_2$ を用いることにより α 相単結晶を得ることもできる。

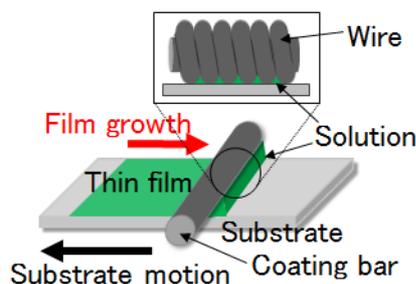


図2. ワイヤーパーコート法

3. 過冷却液晶状態における接種凍結¹⁰⁾

$C6PcH_2$ は、温度変化に伴って低温から結晶相、液晶相、等方相の順に相転移するが、昇温時と降温時で結晶-液晶転移温度が異なる。すなわち、図3に示すように、降温時には昇温時と比べて $20^{\circ}C$ 以上広い温度範囲で液晶相が発現する。つ

まり、融点以下の温度においても液晶相が準安定に存在する過冷却状態を示す。この過冷却液晶状態を利用して単結晶を成長させることができる。

基板の上に溶液をスピコートして作製した薄膜を、いったん液晶相まで加熱した後に過冷却液晶温度領域まで降温する。その状態で、膜表面に温度刺激を与える（たとえば、室温に保った金属ブレードを接触させる）と、その接触部分から結晶への相転移がおこり単結晶が成長する。いわゆる接種凍結が誘発される。過冷却状態からの接種凍結では、バーコート法と同様に、結晶成長方向に b 軸（カラム軸）が揃った β 相結晶が成長する。

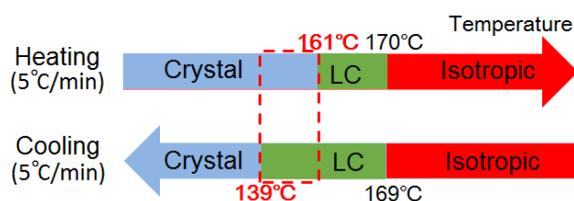


図 3. C6PcH₂ の昇温・降温時の相系列。降温時に過冷却液晶相が発現する。

4. 溶媒蒸気雰囲気における溶液媒介転移¹¹⁾

溶液を基板の上にスピコートすると β 相の多結晶薄膜が形成される。この β 相多結晶から α 相単結晶を作製することもできる。図 4 は、スピコート法で作製した β 相多結晶薄膜を溶媒蒸気に暴露したときの偏光顕微鏡写真である。多結晶薄膜は直交ニコル下では消光位（暗状態）となるが、溶媒に曝すことにより単結晶が成長しており、この単結晶が α 相結晶構造をとることが確認された。前述のように、 α 相結晶が β 相に比べてすぐれた電気伝導特性を示すことが期待されており、事実、この溶媒媒介転移を利用して成膜した薄膜をチャネル層として作製した電界効果トランジスタで、1.1 cm²/Vs の正孔移動度が観測された。

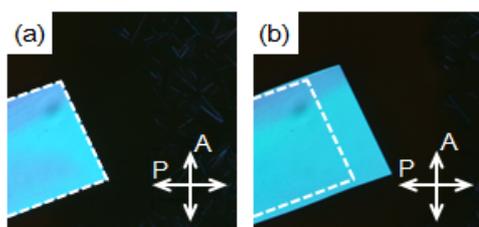


図 4. 蒸気処理により β 相多結晶薄膜中に α 相単結晶薄膜が成長する様子（偏光顕微鏡像。(b) は (a) の 10 分後）

5. まとめ

プリンタブルエレクトロニクスで用いられる可溶な有機半導体の分子設計は、液晶性発現の考え方と同じである。すなわち、強い分子間相互作用で密にパッキングして優れた電気的特性を示すような分子を溶媒に可溶にするためには、柔軟な側鎖を導入するなどして分子間相互作用を弱めてやる必要がある。このようにして結晶と液体との中間的な分子間相互作用を実現したものが液晶状態である。この液晶状態は、加熱によって発現するだけでなく、溶媒に溶かすことによっても実現できる。この溶液濃度が適度になったときに、分子配列に長距離秩序が発現し分子配列制御に利用できる。さらに、エレクトロニクス応用にとってより重要なことは、液晶状態と結晶状態の中間のソフトクリスタルとも呼ぶ状態を活用することである。

参考文献

- 1) Y. Miyake, Y. Shiraiwa, K. Okada, H. Monobe, T. Hori, N. Yamasaki, H. Yoshida, M. J. Cook, A. Fujii, M. Ozaki, Y. Shimizu, *Appl. Phys. Express*, **4** (2011) 021604.
- 2) T. Hori, Y. Miyake, N. Yamasaki, H. Yoshida, A. Fujii, Y. Shimizu and M. Ozaki, *Appl. Phys. Express*, **3** (2010) 101602.
- 3) Q. -D. Dao, L. Sosa-Vargas, T. Higashi, M. Ohmori, H. Itani, A. Fujii, Y. Shimizu and M. Ozaki, *Organic Electron.*, **23** (2015) 44.
- 4) M. Ohmori, T. Higashi, A. Fujii and M. Ozaki, *J. Nanosci. Nanotechnol.*, **16** (2016) 3318.
- 5) M. Ohmori, C. Nakano, T. Higashi, T. Miyano, N. Tohno, A. Fujii and M. Ozaki, *J. Cryst. Growth*, **445** (2016) 9.
- 6) M. Ohmori, C. Nakano, A. Fujii, Y. Shimizu and M. Ozaki, *J. Cryst. Growth*, **468** (2017) 804.
- 7) M. Yoneya, A. Miyamoto, Y. Shimizu, A. Fujii and M. Ozaki, *J. Phys. Chem. C*, **119** (2015) 23852.
- 8) M. Yoneya, A. Miyamoto, Y. Shimizu, M. Ohmori, A. Fujii and M. Ozaki, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **56** (2017) 081601.
- 9) M. Ohmori, T. Uno, M. Nakatani, C. Nakano, A. Fujii and M. Ozaki, *Appl. Phys. Lett.*, **109** (2016) 153302.
- 10) M. F. Ramanarivo, T. Higashi, M. Ohmori, K. Sudoh, A. Fujii and M. Ozaki, *Appl. Phys. Express*, **9** (2016) 061601.
- 12) T. Higashi, M. Ohmori, M. F. Ramanarivo, H. Yoshida, A. Fujii and M. Ozaki, *APL Materials*, **3** (2015) 126107.

Na フラックスポイントシード法による高品質 GaN 結晶成長

今西正幸

1. はじめに

GaN 系窒化物半導体は、半導体材料の中では最も優れた光・電子特性を有しているものの、結晶育成技術が未成熟なため、青色発光デバイスとして実用化されるにとどまっております。GaN 系窒化物半導体材料の優れた潜在能力をほとんど引き出せずにいる⁽¹⁻³⁾。大口径・高品質 GaN バルク結晶・ウエハ作製技術が確立すると、電力損失が Si の 1/6 以下のパワーデバイスをはじめ、携帯電話の 1,000 倍の速度・通信容量を実現する超高速動作トランジスタが実現する。次世代パワーデバイス材料として開発されている SiC と比較しても、理論的に GaN の方がキャリア移動度、電子飽和速度の値が大きく、絶縁破壊電圧も高いため、高品質 GaN ウエハにより、SiC よりも効率が優れたパワーデバイスの実現が可能となる。光デバイスにおいては、緑色をはじめ、赤～紫外領域の高出力発光ダイオードやレーザーダイオード等の新技術が創出される。太陽電池に活用すれば、現状の最高値が 40%程度と言われている発電効率を一気に 60%以上に引き上げることができる。

本研究者は、液相成長法である Na フラックス法を用い、高品質かつ大口径 GaN ウエハの実現を目指している⁽⁴⁻¹²⁾。近年では低コスト化を目指し、気相成長法である HVPE 法と組み合わせた高速厚膜成長に取り組んでいるので報告する。

2. HVPE 成長時の問題点

Na フラックス法では高品質 GaN 結晶が得られる一方、成長速度が 30 $\mu\text{m}/\text{h}$ と遅く、工業的な観点から厚膜成長は困難であった。そこで、近年では Na フラックス法で作製した高品質 GaN 結晶を種結晶とし、2 mm/h 以上の高速成長を実現している気相成長法 (HVPE 法) による厚膜成長を試みている⁽³⁾。しかしながら、本研究室で開発したポイントシード技術により得られた GaN 結晶上に HVPE 成長を実施したところ、図 1 に示すように、クラックの発生、転位の増加など結晶欠陥の増加が顕著に見られた。ポイントシード上に成長する GaN 結晶は図 2 に示すように、c 面セクター及び{10-11}面セクターで構成されており、その{10-11}面セクターでの格子定数が

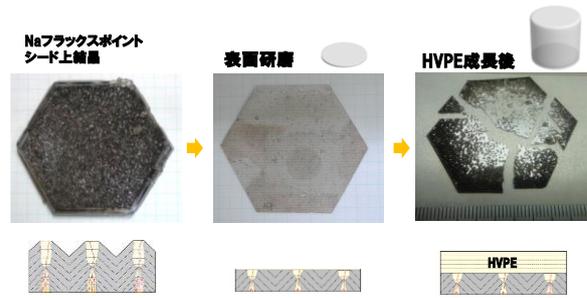


図 1 従来のポイントシード法で作製した GaN 結晶上への HVPE 成長結果

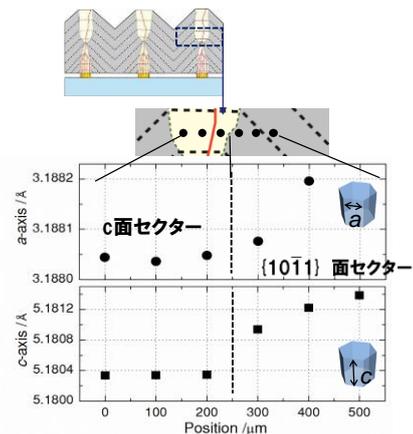


図 2 GaN 結晶の成長セクターと格子定数の関係

酸素不純物により拡張していることが近年の研究で明らかになった⁽¹⁴⁾。c 面セクターの格子定数は HVPE 結晶と同等であることから、{10-11}面セクターでの格子定数は HVPE 結晶に比べて大きく、格子不整合を生じる結果、クラックや転位の増加といった品質悪化を招いていることが分かった。以上のことから、HVPE 法でのホモエピタキシャル成長を実現するためには、ポイントシード上において全面 c 面セクターで構成させる結晶を作製する必要があった。

3. ディッピング法を応用した成長面制御技術

ポイントシード上成長において、全面において c 面成長を実現し、平坦化させる試みは以前より行われてきた。圧力や温度により過飽和度を調整し成長面制御を試みたが、顕著な変化は見られなかった。そこで、筆者らは近年開発したディッピング技術に注目した。当該手法では、Ga-Na 融

液に窒素が十分溶解するまでの間、種結晶を窒素雰囲気中に保持し、窒素が溶解しフラックスが過飽和状態となった後に結晶を浸漬する技術である¹⁵⁾。結晶成長終了後にはフラックスから結晶を引き上げるが、その際に結晶間にフラックスが選択的に残留していることに着目した(図3)。本状態での成長が実現できれば、結晶はc軸方向には成長せず、結晶間、すなわち横方向への成長が促進され、結果全面平坦になるのではないかと考えた。しかしながら、結晶間に保持されるGa-Naフラックスの量は少なく、成長中に原料が枯渇してしまうことから持続的な成長ができない可能性があった。そこで筆者らは定期的に原料を補給するため、結晶を複数回上下させる新規薄液フラックス成長機構を開発した。従来法及び新規成長法を用いて成長させたGa₂N結晶を図5に示す。従来法では{10-11}面が顕著に表れていた一方、新手法では全面c面化することに成功した。

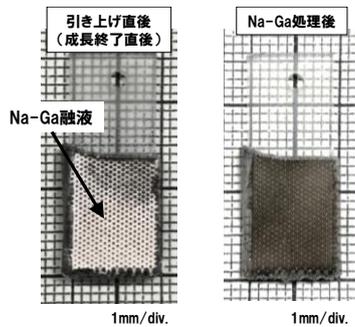


図3 Ga-Na融液から引き上げ直後及び融液処理後におけるGa₂N結晶像

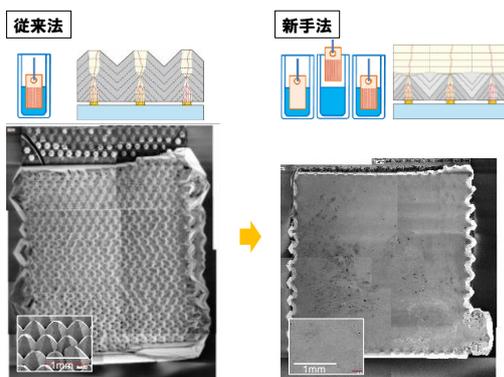


図4 従来法及び新手法で得られたGa₂N結晶表面SEM像

大口径ウエハ(2インチ以上)成長炉についても新手法を導入した。大型装置用に種結晶のセットアップを改良した結果、図5に示すように2インチ全面がc面で構成されるウエハの作製に成功した。結晶成長初期段階における{10-11}面(ファセット)成長領域を研磨により除去し、c面成長セクターのみで自立化させた結果、ウエハ全面において高い透明性を有する結晶を得ることに成功した(図6)。曲率半径についても研磨前

の段階で15m程度であったのに対し、初期ファセット成長領域除去後は30m程度と大幅に改善していることが分かった。当該ウエハ上にHVPE成長を実施した結果、品質の悪化などの問題は生じず、ホモエピタキシャル成長に成功した¹⁴⁾。

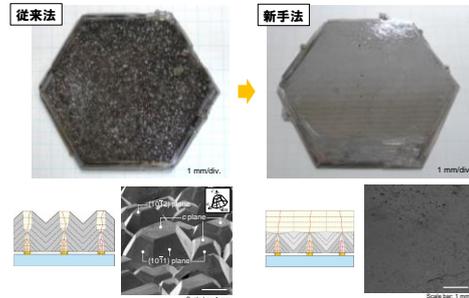


図5 従来法及び新手法で得られた2インチGa₂N結晶像とその表面SEM像

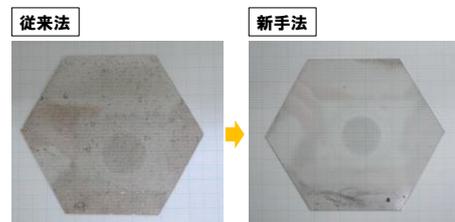


図6 従来法及び新手法で得られたGa₂N結晶像(裏面研削、研磨後)

4. クラックの抑制

一方、新手法で作製した結晶中には、クラックがしばしば発生することが問題となっていた。クラックは、結晶成長後の冷却過程において、サファイアとGa₂Nの熱膨張係数差に起因する熱応力が原因で発生していると考えられる。筆者らは、ポイントシード法によりGa₂N/サファイア接触面積が減少したとはいえ、熱応力の影響がまだ大きいと考えた。そこでポイントシード径を更に微小化し、Ga₂N/サファイア接触面積を減少させる試みを行った。検討の結果、2インチ口径のクラックフリーウエハを安定的に作製することに成功した(図7)。

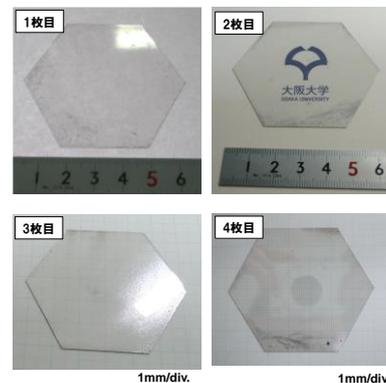


図7 新手法で得られた2インチGa₂N結晶像。再現性も高く2インチ結晶が安定的に得られている。

5. まとめ

本稿では、Na フラックスポイントシード法を用いた GaN 結晶における新規成長面制御技術について報告した。従来法で作製した GaN 結晶上に HVPE 法による厚膜成長を実施した結果、クラックの発生、転位密度の増加といった品質の悪化が見られた。品質悪化の原因が{10-11}面セクターにおける酸素不純物であることを明らかにし、全面を c 面で成長させるモードの開発に取り組んだ。ディッピング法を応用し、フラックスの濡れ性を利用した薄液成長技術（新手法）を用いた結果、全面 c 面で構成される結晶の作製に成功した。大口径化時には、クラックの発生という問題が生じたが、ポイントシード径を微小化することで解決し、安定的に 2 インチ GaN ウエハを作製することにも成功した。

参考文献

- (1) S. Nakamura, T. Mukai, and M. Senoh, *Jpn. J. Appl. Phys.* 30, L1998 (1991).
- (2) W. Saito, Y. Takada, M. Kuraguchi, K. Tsuda, I. Omura, T. Ogura, and H. Ohashi, *IEEE Trans. Electron Devices* 50, 2528 (2003).
- (3) S. Tomiya, H. Nakajima, K. Funato, T. Miyajima, K. Kobayashi, T. Hino, S. Kijima, T. Asano, and M. Ikeda, *Phys. Status Solidi A* 188, 69 (2001).
- (4) T. Yamada, H. Yamane, Y. Yao, M. Yokoyama, and T. Sekiguchi, *Mater. Res. Bull.* 44, 594 (2009).
- (5) F. Kawamura, M. Morishita, M. Tanpo, M. Imade, M. Yoshimura, Y. Kitaoka, Y. Mori, and T. Sasaki, *J. Cryst. Growth* 310, 3946 (2008).
- (6) F. Kawamura, M. Tanpo, N. Miyoshi, M. Imade, M. Yoshimura, Y. Mori, Y. Kitaoka, and T. Sasaki, *J. Cryst. Growth* 311, 3019 (2009).
- (7) M. Imade, K. Murakami, D. Matsuo, H. Imabayashi, H. Takazawa, Y. Todoroki, A. Kitamoto, M. Maruyama, M. Yoshimura, and Y. Mori, *Cryst. Growth Des.* 12, 3799 (2012).
- (8) M. Imanishi, K. Murakami, H. Imabayashi, H. Takazawa, Y. Todoroki, D. Matsuo, M. Maruyama, M. Imade, M. Yoshimura, and Y. Mori, *Appl. Phys. Express* 5, 095501 (2012).
- (9) M. Imanishi, K. Murakami, H. Imabayashi, H. Takazawa, Y. Todoroki, D. Matsuo, M. Maruyama, M. Imade, M. Yoshimura, and Y. Mori, *Phys. Status Solidi C* 10, 400 (2013).
- (10) M. Imanishi, Y. Todoroki, K. Murakami, D. Matsuo, H. Imabayashi, H. Takazawa, M. Maruyama, M. Imade, M. Yoshimura, and Y. Mori, *J. Cryst. Growth* 427, 87 (2015).
- (11) M. Honjo, M. Imanishi, H. Imabayashi, K. Nakamura, K. Murakami, D. Matsuo, M. Maruyama, M. Imade, M. Yoshimura, and Y. Mori, *Jpn. J. Appl. Phys.* 56, 01AD01-1 (2016).
- (12) M. Honjo, M. Imanishi, H. Imabayashi, K. Nakamura, K. Murakami, D. Matsuo, M. Maruyama, M. Imade, M. Yoshimura, and Y. Mori, *Opt. Mater.* 65, 38 (2017).
- (13) T. Yoshida, Y. Oshima, K. Watanabe, T. Tsuchiya, and T. Mishima, *Phys. Stat. Sol. C* 8 (2011) 2110.
- (14) M. Imanishi, T. Yoshida, T. Kitamura, K. Murakami, M. Imade, M. Yoshimura, M. Shibata, Y. Tsusaka, J. Matsui, and Y. Mori, *Cryst. Growth & Des.* 17, 3806 (2017).
- (15) T. Sato, K. Nakamura, M. Imanishi, K. Murakami, H. Imabayashi, H. Takazawa, Y. Todoroki, D. Matsuo, M. Imade, M. Maruyama, M. Yoshimura, Y. Mori, *Jpn. J. Appl. Phys.* 54, 105501 (2015).

プラズマおよびプラズマ表面相互作用解析

浜口 智志、唐橋 一浩、木内 正人、David Graves、

吉村 智、幾世 和将、磯部 倫郎、伊藤 智子、李 虎

1. はじめに

イオン、電子および中性粒子の混合気体であるプラズマは、それらの持つ高い運動エネルギーや、高い化学反応性のために、様々な産業分野で幅広く活用されている。本研究室では、このようなプラズマの挙動を基礎から解明するために、理論・シミュレーションおよび実験解析を連携させ、幅広いプラズマ科学の研究を行っている。以下に、本年度の研究活動概要を述べる。

2. 透明電極材料のエッチングにおける He⁺イオン照射効果

ITO (tin doped indium oxide) や ZnO (Zinc oxide)等金属酸化物の微細加工は光電子デバイスのみならず、太陽電池等様々な分野において重要な課題となる。その要求に応じる微細加工技術を確立するためには、エッチング反応機構の解明が必要となる。ITO や ZnO のエッチングにおいて、CH_x 有機系反応性プラズマを用いるで、高速かつ高選択比が期待される [1,2]。昨年度までに、我々は、H⁺イオンおよび He⁺イオン照射による ITO および ZnO 変質層の形成がエッチングの進行に大きく寄与することを明らかにした [3,4]。また、プラズマ中の水素とアルゴンガスを切り替えることで、H⁺イオンによる変質層を利用した精密なエッチングプロセスの開発も提案されている [5,6]。

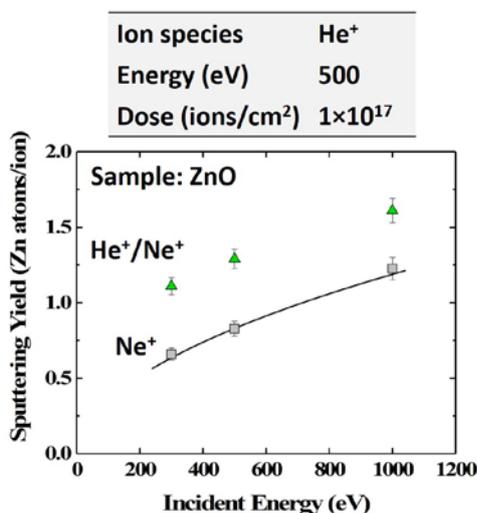


図1: He⁺イオンを照射による物理スパッタイールドの変化

本年度は、He⁺イオン照射による変質層を原子間力顕微鏡 (AFM) による表面粗さ測定、透過電子顕微鏡 (TEM) および in-plane X線回折 (XRD) による結晶構造解析等を行うことで、エッチング増幅効果のメカニズムについて評価した。本実験では、質量分離イオンビーム装置を用いて、He⁺イオンのみを取り出し、入射イオンエネルギーを制御し、ZnO 薄膜に照射した。予め He⁺イオンを照射しダメージ層が形成された表面に対する Ne⁺イオン照射によるスパッタリングイールドの変化を図1に示す。

ZnO の He⁺イオン未照射表面に対し、エッチングのイールドは増加している。図2に in-plane XRD による ZnO からの回折ピークを示す。in-plane XRD では X 線の入射角を全反射臨界角 (付近 (0.2-0.5°付近) に固定し測定することで、試料への X 線の侵入深さは数 10nm であり、表面変質層を測定することができる。(100)および(110)ピークは表れており配向していることがわかる。He⁺イオン照射により回折ピーク幅がわずかに広がっており、結晶粒径は変化したこと示す。ピーク幅より評価した結晶粒径は 21nm から 15nm に変化したこと示す。結晶粒径の減少により結晶粒界は増加していると考えられる。したがって、He⁺イオン照射による結晶粒径の減少および結晶粒界の増加が、物理的なスパッタリングイールドの増加を引き起こしていると考えられる。

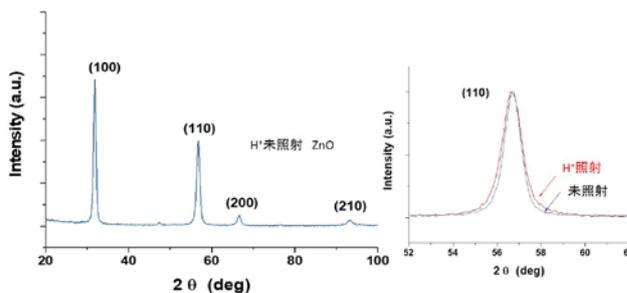


図2: in-plane XRD による回折ピーク

このように、本研究によって、結晶粒界形成によるエッチング増幅効果が確認された。したがって、変質層の形成によるエッチング促進効果は、結晶粒の微細化形成によるものであることと考えられる

3. ALE プロセス開発のための、Ni 表面に対するヘキサフルオロアセチルアセトンによる表面反応の解明

現在、有機ガスを用いた金属の原子層毎にエッチングを行う ALE 技術(Atomic Layer Etching)が、高精度かつ低ダメージエッチングプロセスとして注目をされており、さらに、プラズマエッチング技術と組み合わせることで、原子層の加工精度をもつ異方性エッチングプロセスの構築が期待されている。ALE 反応を起こす可能性がある有機ガスとして、様々なガスが提案されているが、特にヘキサフルオロアセチルアセトン(Hexafluoroacetylacetone: hfac)に関しては、酸素を吸着させた Ni 表面に hfac を吸着させて Ni 試料を加熱した場合、hfac 由来の有機金属化合物の脱離反応が報告されており、ALE 反応を起こす可能性がある[7]。しかしながら、hfac と Ni 表面との反応に関しては理解が進んでいない。そのため、本研究では、ALE 技術の開発を目的とし、Ni 表面に対し酸素および hfac の吸着を行った際の Ni 表面における化学結合状態を、XPS(X 線光電子分光法)を用いることで明らかにした。

本研究では、X 線光電子分光装置および超高真空環境下で反応性ガスを曝露可能な反応室を有する ALP (Atomic Layer Process) 表面反応解析装置を用い、反応性ガスと試料表面との反応を明らかにする。実験では、酸素を 100 L (Langmuir : 10^{-6} Torr · sec)曝露した Ni 表面に対して、hfac を 10,000 L 曝露し、その後、XPS により hfac 吸着による Ni 表面の化学結合状態の変化を評価した。

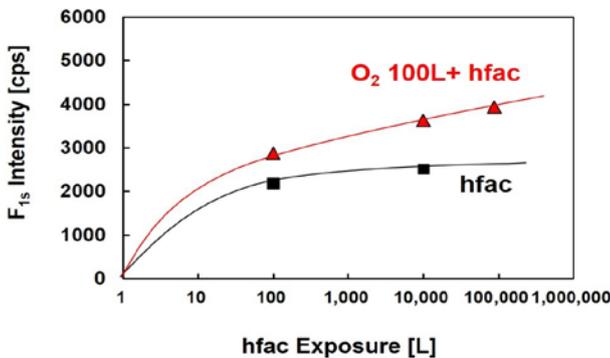


図 3: ヘキサフルオロアセチルアセトンを Ni 表面に曝露した場合の F1s の強度変化

図 3 に示すのは、Ni 表面に対し、hfac のみを曝露させた場合と酸素(100L)を曝露させた後 hfac を曝露させた場合とでの hfac 吸着量に対する F1s の強度の変化を

表したものである。酸素を吸着表面の hfac 由来のフッ素の吸着量が上昇していることが明らかとなり、Ni 表面上の酸素の有無が hfac 吸着に影響を及ぼすことが明らかになった。

4. プラズマ照射によるハイドロキシアパタイト(HA) 連結内部孔への官能基修飾

本研究は、プラズマ処理により、骨腫瘍や外傷による骨欠損の補填材として用いられるハイドロキシアパタイト(HA)人工骨内部の緻密な連結孔表面にアミノ基等の官能基の化学修飾を行うことで、骨移植に用いられる人工骨の再生能力を向上させる基盤技術開発を目的とする。

本年度は、プラズマ処理による HA 人工骨のアミノ基修飾を目的として、高電圧低周波パルス電圧を平行平板電極に印可するインバータープラズマを用いて、 CH_4 , N_2 および He の混合ガスプラズマを生成し、HA 試料にプラズマ照射を行った。プラズマ処理後の試料表面は、X 線光電子分光法(XPS)を用いて表面分析を行い、HA 試料表面の化学結合状態の評価を行った。また、プラズマ照射後の HA 試料に対して、誘導体化試薬 TFBA(4- (トリフルオロメチル) -ベンズアルデヒド)を用いて試料表面の誘導体化を行い、その後 XPS により表面分析を行うことで、プラズマ照射により HA 表面に生成されたアミノ基の同定を行った。

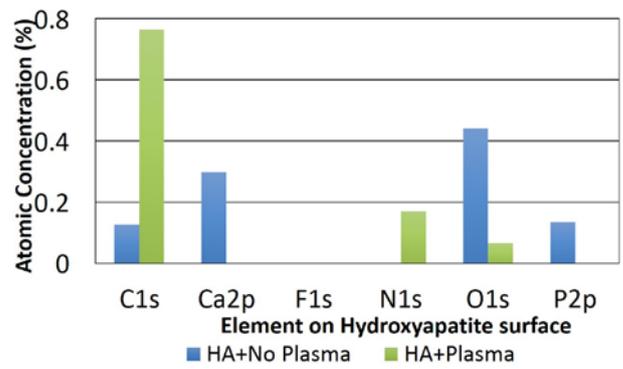


図 4: プラズマ照射後の HA 表面における元素組成

図 4 に、インバータープラズマ照射後の HA 試料表面の元素組成を示す。未照射の表面と比較して、プラズマ照射後の表面は、C および N の組成が増加しており、窒素を含んだカーボン膜が形成されていることを示している。

5. 大気圧プラズマによって気液界面に生成される次亜塩素酸の数値シミュレーション解析

大気圧の気相中に生成低温大気圧プラズマのバイオ・

医療応用において、プラズマと液体との相互作用が注目されている。プラズマに晒される液体が塩化ナトリウムなど塩素イオンを含むものであった場合、供給された酸素原子などによる化学反応によって、液中には殺菌力の高い次亜塩素酸が生成される。そこで我々のグループが開発した 1 次元液中反応拡散移流シミュレーションに塩素系の反応を導入し、特に供給された化学種によって誘起される次亜塩素酸などの塩素系物質の分布を調べた。

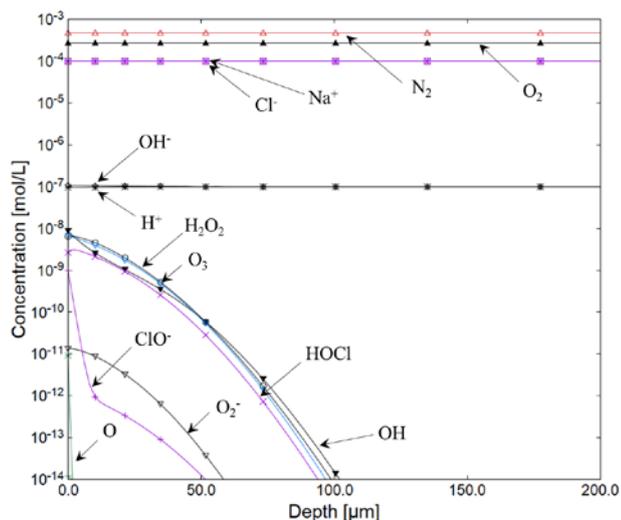


図 5: 液中濃度分布

計算結果の例として、塩化ナトリウム 0.1mM を含む溶液へプラズマから酸素原子のみが供給されたとき、供給開始から 0.1 秒後の液中濃度分布を図 5 に示す。計算は多くの化学種について行われているが、図中には代表的な化学種のみが示されている。電解質である塩化ナトリウムの塩素イオンと供給された酸素原子との反応によって液中には ClO^- が生成され、酸素原子の侵入長は非常に短くなっている。生成された ClO^- は液中の pH の影響で次亜塩素酸 (HOCl) に変化し、溶液中へ拡散していく。また、供給された酸素原子と溶媒との反応から OH ラジカルが生成され、生成された OH ラジカル同士の反応から H_2O_2 が生成されている。溶液の含有塩化物イオン濃度がより高い場合には、塩化物イオンと OH ラジカルとの反応が優勢となり HOCl が生成されるため、液中の OH ラジカルと H_2O_2 の濃度は、塩化物イオンが低濃度の場合と比較して低くなった。

6. 低エネルギーケイ素分子イオンビームの生成と酸化ケイ素成膜への応用

シリコンを含有する材料の成膜においては、通常はシランを主原料として用いることが多い。シランは自己発火性をもつ危険性の高いガスであるため、可燃性はあるが比較的安全に扱うことのできる、ヘキサメチ

ルジシランを原料として用いた SiC の成膜実験[8]や、ヘキサメチルジシロキサン (HMDS) を用いた酸化ケイ素膜の成膜実験が行われている。本研究では、 HMDS を原料として用いて、低エネルギーイオンビームを生成し、これをシリコン基板に照射することにより、酸化ケイ素の成膜を試みた[9]。

実験は、低エネルギー質量分離イオンビーム装置 (ULVAC 製) を用いて行った。このイオンビーム装置は、フリーマン型イオン源、イオン引き出し電極、高精度質量分離器、減速電極、成膜室から構成されている。本実験では、原料の HMDS をネオンガスによりバブリングし、ネオンと原料の混合ガスを 3ccm の流量でフリーマン型イオン源に導入した。この混合ガスのプラズマを立てることにより原料を解離し、フラグメントイオンを生成する。生成されたフラグメントは、電極に印加した高電圧によってイオン源より引き出される。次に、質量分離器により、多数のフラグメントの中から所望のフラグメント種のみを選別する。この質量分離されたイオンビームは減速されて低エネルギーイオンビームとなって成膜室に導かれる。イオンの質量とエネルギーは、Balzers 社のプラズマプロセスモニター PPM-421 により分析される。

はじめに、原料の解離で生成されたフラグメントイオン種の分析を行った。その結果、 HMDS のフラグメントイオンは、 H^+ , H_2^+ , H_3^+ , C^+ , CH_3^+ , O^+ , Si^+ , C_3H_3^+ , SiO^+ , SiC_2^+ , SiOCH_2^+ , SiC_3H_9^+ , $\text{Si}_2\text{OCH}_3^+$, $\text{Si}_2\text{OC}_2\text{H}_7^+$, $\text{Si}_2\text{OC}_3\text{H}_9^+$, $\text{Si}_2\text{OC}_4\text{H}_{11}^+$, $\text{Si}_2\text{OC}_5\text{H}_{15}^+$ であった。次に、 SiO^+ イオンを抽出し、このイオンビームをシリコン基板に照射し、成膜実験を行った。イオンビームのエネルギーは、50eV とした。基板温度は、室温とした。分析の結果、組成比 $\text{SiO}_{1.45}$ の酸化ケイ素膜が生成されていることを確認した。なお、原料としてオルトケイ酸テトラエチル (TEOS) を用いた実験も行っており、この場合には、組成比 SiO_2 の酸化ケイ素膜の成膜に成功している[10]。

8. 新規反応触媒開発を目指したゼオライトへのインジウム担持の試み

近年、インジウムは多くの産業分野で利用されている。化学分野では、インジウムとケイ素を組み合わせた新しい触媒が最近発見された。インジウムまたはケイ素化合物に単独では触媒活性がなくても、両者の相互作用によって高い活性が発現する可能性があることが分かっている。我々は、プラズマ技術を用いることにより、ケイ素を含有するターゲット試料に対してインジウムを注入して触媒の合成を試みる研究に取り組んでいる。

ケイ素を含有するゼオライトは、分子レベルで蜂の巣状に 3 次元に連結する細孔構造を持っており、その内部比表面積は大きい。そのため、ゼオライトにインジウムを担持し、上記のようなケイ素とインジウムの

相互作用を発現させることができれば、高効率などの特長を持った新しいタイプの触媒が実現する可能性がある。さらに、反応終了後の触媒回収が容易、再利用可能、などといった利点も期待できる。

本研究では、新規反応触媒の開発を目指す前段階として、ゼオライトへのインジウム担持を試みた。実験には、アークプラズマ法ナノ粒子形成装置 (ADVANCE RIKO, APD-P) を用いた。この装置は、コンデンサに蓄えた電荷をパルスの瞬時に放電させることによりアークを発生させ、ターゲット材料 (今回はインジウム) のナノ粒子形成ビームを生成するものである。生成されるナノ粒子のサイズは、用いるコンデンサの容量に依存し、1~10nm 程度になる。

本装置により生成したインジウムナノ粒子は、装置下部に配置したターゲットに向けて照射される。今回は、ターゲットとして、粉末状のゼオライトを、そのままの状態円筒形の容器に収めて配置した。容器内のゼオライトを 50rpm で攪拌することにより、個々のゼオライト粉末にほぼ均一にインジウムが照射されるようになっていく。照射されるインジウムのエネルギーは 35eV である。サンプルに担持されるインジウムの重量は、放電回数によって制御できる。今回は、221, 735, 2204, 4408, 7346, 11754, 22040 の 7 通りの放電回数でサンプルを作成した。サンプルに担持されたインジウムの重量は、照射後のサンプル重量の 0.009, 0.03, 0.09, 0.2, 0.3, 0.5, 0.9wt% である。触媒特性の測定を行った結果、0.2, 0.3, 0.5, 0.9wt% のサンプルにおいて、Friedel-Crafts 反応に対する触媒活性がはっきりと確認できた[11]。また、触媒効率はインジウム量の増加とともに増大するが、0.5wt% の場合に最大になり、0.9wt% の場合には触媒効率が低下してしまうことも明らかになった。サンプル表面の分析により、0.5wt% までの場合には、インジウムは数 nm 以下のサイズで分散してサンプル上に存在しているが、0.9wt% の場合にはインジウムが凝集して大きな粒で存在していることがわかった。これが、0.9wt% のサンプルで触媒効果が低減した理由ではないかと考えている。そこで、現在、インジウムナノ粒子の粒径と触媒効率の関係を調べる実験を行っている[12]。

謝辞

本研究の遂行において、Zoltan Donko 教授 (Hungarian Academy of Sciences : ハンガリー)、Lenka Zajickova 准教授 (Masaryk University: チェコ) および当研究室の学生諸君から大きな貢献を頂いた。また、本研究は、科学研究費補助金、大阪大学国際共同研究促進プログラム (短期人件費支援・タイプ A・タイプ B)、JST 研究成果展開事業地域産学バリュープログラム、経済産業省中小企業経営支援等対策費補助金 (戦略的基盤技術高度化支援事業: サポイン) のほか、ソニー(株)、東京

エレクトロン(株)、(株) 日立製作所、(株) 富士通研究所、東芝メモリ (株) 等の助成を受けて行われた。また各種の共同研究において多大なご貢献を頂いた吉川秀樹教授 (大阪大学医学系研究科・副学長)、名井陽准教授 (大阪大学附属病院)、岡本美奈助教 (大阪大学附属病院)、杉本敏司准教授 (大阪大学工学研究科)、海渡貴司助教 (大阪大学医学系研究科)、笠井秀明教授 (明石工業高等専門学校・校長)、Wilson Diño 准教授 (大阪大学工学研究科)、Uwe Czarnetzki 教授 (Ruhr University Bochum: ドイツ)、Sadruddin Benkadda (Aix-Marseille University: フランス)、Wofgang Wenzel 教授 (Karlsruhe Institute of Technology: ドイツ)、Kinga Kutasi 博士 (Hungarian Academy of Sciences : ハンガリー)、Longwei Chen 准教授 (中国科学院: 中国)、Magdaleno Vasquez Jr. 助教 (University of Philippines, Diliman: Philippines)、および、それぞれの研究チームメンバーの方々に、心より謝意を表す。

参考文献

- [1] H. Li, K. Karahashi, M. Fukusawa, K. Nagahata, T. Tatsumi, and S. Hamaguchi, *Jpn. J. Appl. Phys.* 55 (2) (2016) 021202 (6pp).
- [2] H. Li, K. Karahashi, M. Fukusawa, K. Nagahata, T. Tatsumi, and S. Hamaguchi, *J. Vac. Sci. Tech. A* 33(6) (2015) 33, 060606 (5pp).
- [3] H. Li, K. Karahashi, P. Friederich, K. Fink, Masanaga Fukasawa, A. Hirata, K. Nagahata, T. Tatsumi, W. Wenzel, and S. Hamaguchi, *in press*.
- [4] H. Li, K. Karahashi, P. Friederich, K. Fink, M. Fukasawa, A. Hirata, K. Nagahata, T. Tatsumi, W. Wenzel, and S. Hamaguchi, *J. Vac. Sci. Tech. A* 35 (2017) 05C303
- [5] Hirata, M. Fukasawa, T. Shigetoshi, M. Okamoto, K. Nagahata, H. Li, K. Karahashi, S. Hamaguchi, and T. Tatsumi, *Jpn J. Appl. Phys.* 56(2017) 06HD02 (pp 4).
- [6] Hirata, M. Fukasawa, K. Nagahata, H. Li, K. Karahashi, S. Hamaguchi, and T. Tatsumi, *in press*.
- [7] H. L. Nigg and R. I. Masel, Department of Chemical Engine *J. Vac. Sci. Technol. A* 17(6) (1999).
- [8] S. Yoshimura, S. Sugimoto, T. Takeuchi, K. Murai, M. Kiuchi *S. Nucl. Instr. Method Phys Res. B* 420, 6, (2018)
- [9] S. Yoshimura, S. Sugimoto, K. Murai, M. Kiuchi, *Surf. Coat. Technol.* 313, 402 (2017).
- [10] S. Yoshimura, S. Sugimoto, T. Takeuchi, K. Murai, M. Kiuchi, submitted to *Thin Solid Films*.
- [11] S. Yoshimura, Y. Nishimoto, M. Kiuchi, Y. Agawa, H. Tanaka, M. Yasuda, *AIP Adv.* 7, 065117 (2017).
- [12] S. Yoshimura, Y. Nishimoto, S. Sugimoto, M. Kiuchi, M. Yasuda, *e-J. Surf. Sci. Nanotechnol. in press*.

放電プラズマの材料プロセスへの応用

杵本敏司 原田純弥 大野一平 山本尚輝

1. はじめに

プラズマ中には、電流が流れ、つまり自由電子が飛び交い非常に活性な状態にある。そのため、常温では起こりにくいプロセスの化学反応が進むことからこれをプロセスプラズマと呼び、最新の表面処理・加工技術には無くてはならないものとなっている。

本研究では、プラズマ発生用の電源として、一般的な高周波(RF)電源、およびインバーター(両極性パルス)電源の2種類の電源を使用している。特に後者は、プラズマプロセスの制御性を高める独自のプラズマ装置の電源に発展し、高密着性膜付け¹⁾、炭素ナノチューブの形成²⁾などの分野で成果がある。

以下に本年度に行った研究について報告する。

2. 銅粒子焼結用水素プラズマの特性

近年、銅粒子インクの低温焼結プロセスに関する研究が電子産業分野を中心に行われており、プリントド・エレクトロニクスへの応用が期待されている。典型的な銅粒子インクの焼結条件は、水素を添加した還元雰囲気中で350℃程度とされる。これに対して、将来需要が見込まれる耐熱性の低いフレキシブル基板への応用にはより低温の180℃以下の加熱に抑える必要がある。

そこで、低温でも還元活性な水素プラズマを用いた銅粒子低温焼結法の開発を目的として、焼結に有効な水素プラズマの条件を詳細に調べるため、ラングミュアプローブ測定³⁾および発光分光測定⁴⁾を行った。次に銅ナノ粒子試料に対して基板温度120℃までの加熱条件でプラズマ焼結処理実験を行った。

a) ラングミュアプローブ測定

RFプラズマ反応装置(図1)を用いて実験を行った。真空チャンバー内にH₂ガスとArガスを所定の流量で導入し、ガス圧力を70Paに維持した。RF発信器から電力70Wを平行平板電極に印加してプラズマを発生させた。ラングミュアプローブをプラズマのほぼ中央の位置に挿入した。

ラングミュアプローブ測定の結果得られた生データの例を図2に示す。これらのデータを解析して自由電

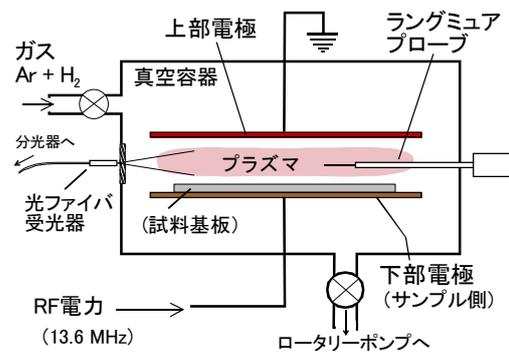


図1 混合ガス(H₂+Ar)プラズマの発生装置と測定系の配置(ラングミュアプローブ, 可視分光器)

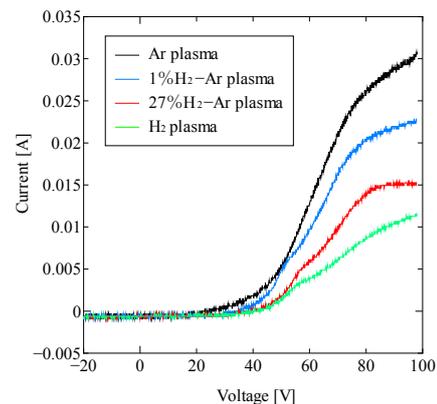


図2 ラングミュアプローブによる測定データの例
横軸はバイアス電圧, 縦軸はプローブ電流

子密度 N_e (≡プラズマ密度)を算出し、H₂+Ar混合ガスのH₂比率を横軸としてプロットした(図3)。図3から、ArガスのみまたはH₂比率が低い場合は $N_e = 5 \times 10^{16} \text{ m}^{-3}$ 程度でありプロセスプラズマとして一般的な強度を有していること、ただしH₂比率が高くなるにつれ N_e は低下することが分かった。以上より N_e が低下しない、20%以下のH₂比率が望ましいと予想される。

b) 可視分光測定

プラズマ中では、Ar原子・イオン、水素分子・分子イオン・原子などの励起種が存在するが、この中で水

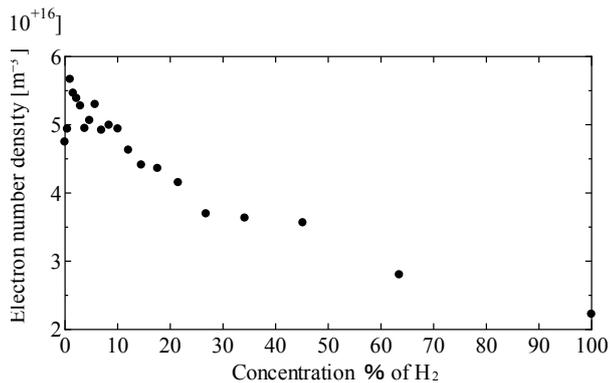


図3 H₂+Ar ガス混合プラズマの H₂ 比率と電子密度の関係

素原子の密度 N_H が最重要と考えられ、簡便な発光スペクトル測定により N_H の測定を試みた。ここでは、発光スペクトルの中から水素原子の H α 線 656.27 nm に注目し、その発光強度のピーク値を I_H とした。すると、 $I_H \propto N_H$ がある程度仮定できるので、 I_H を測定して N_H が推定できる。

ただし、発光はその検出環境によって強度が大きく左右されるため実用的には、一定強度で発光するスペクトルとの強度比で評価するのが便利である。そこで、Ar 原子からの 750.39 nm のピーク値 I_{Ar} も測定し I_H / I_{Ar} の値を得た。(Ar 原子は高密度に存在し、その発光量 I_{Ar} は飽和(一定)に近いと考える。)

以上の結果を図4に示し、この結果から H₂ 比率が 10 ~ 30% で水素原子濃度が高く、効率的であることが分かった。なお、図4では、H₂ 比率を x とし、 I_H / I_{Ar} をさらに水素濃度で補正した値 $(1-x) I_H / I_{Ar}$ で評価した。

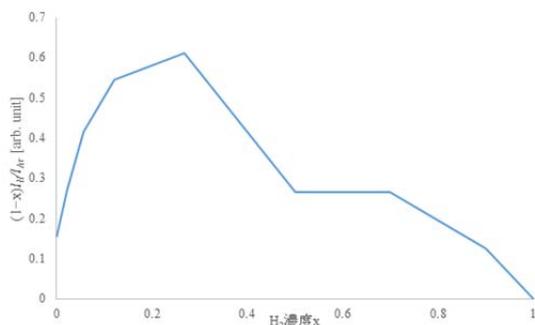


図4 $(1-x) I_H / I_{Ar}$ (縦軸) と H₂ 比率 x (横軸) の関係

c) プラズマ焼結処理実験

水素プラズマ焼結では、銅粒子の還元反応がまず重要なプロセスと考えられる。実際に、粒径 100nm の銅粒子塗布サンプルを用いて H₂ 比率 15% のプラズマ照射を 5 分間行った。ここでは、X 線回折分析の結果を図5示す。未処理試料に含まれていた酸化銅(Cu₂O)のピークが

プラズマ処理後は消失していることから、銅粒子の還元が起こり、次の焼結プロセス(ネッキング)に進むことが明確になった。

今後、プラズマと焼結プロセスの関係についてより詳しく調べていく予定である。

3 共同研究について

a) 質量分離低エネルギーイオンビームの応用

低エネルギーイオンビーム装置を用いた SiC, SiO_x 薄膜の形成⁵⁾、を行い成果があった。

b) ハイドロキシアパタイト材料表面の官能基の制御

本研究室では、プラズマ化学蒸着 (PCVD) 法により有機薄膜を形成する表面処理法の研究を行っている。この PCVD 法では、炭化水素ガスを主原料として各種材料表面にポリマー薄膜を形成し、その際に窒素を添加すれば、生体に対する親和性を持たせることが可能である。実際にハイドロキシアパタイト(人工骨)材料表面に本処理を行い効果が確認された⁶⁾。今後、特許申請を検討している。

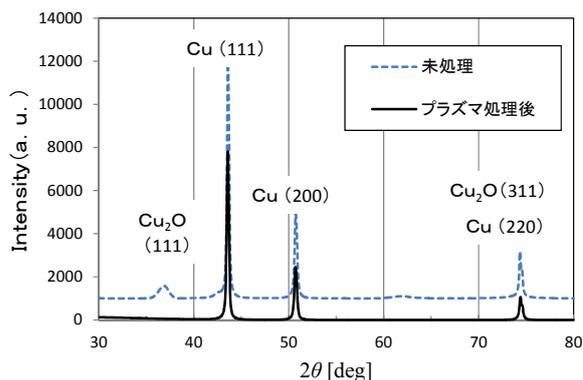


図5 銅粒子塗布試料の X 線回折分析の結果 (2θ = 36° のピークに変化が生じた)

謝辞： 各研究は、本センター浜口研究室、(独)産総研 関西センターとの共同研究の成果を含む。

4. 文献等

- 1) N. Murakami *et al.*, Surf. Coat. Technol. **136**(2001)265.
- 2) S. Sugimoto *et al.* J. Plasma Fusion Res. SERIES 8 (2009) 522-525.
- 3) 原田純弥 修士論文 (大阪大学 2018.2).
- 4) 山本尚輝 卒業論文(大阪大学 2018.2).
- 5) S. Yoshimura *et al.*, Surf. Coat. Technol. 313 (2017) 402-406. 他
- 6) 大野一平 卒業論文 (大阪大学 2018.2).

プラズマならびプラズマ処理水のバイオ応用 ウルトラピュアプラズマによる大気圧プラズマの深化

北野勝久

1. プラズマ処理水中における過硝酸生成過程

水に大気圧プラズマを照射したプラズマ処理水 (PTW: plasma-treated water) を用いた人体や医療機器の殺菌消毒に関する研究を進めている。菌液に対するプラズマの直接・間接照射において、pH を 4.8 以下に調整する事で D 値 (菌数を 1/10 にするのに必要な時間) が 1/100 と劇的に効果が高まる「低 pH 法」を開発し [1]、その作用機序として $O_2^- \cdot$ と $HO_0 \cdot$ の酸解離平衡定数 pK_a 4.8 が関与しており、酸性下で電氣的に中性な $HO_0 \cdot$ が多量に供給されて殺菌が進んでいると考えている。この酸性環境下における殺菌力の向上が PTW でも見られ、イオンクロマトグラフによる分析により有効成分が過硝酸 ($HOONO_2$, PNA: peroxyntitric acid) であることを明らかにした (図 1) [2]。PNA の酸性環境下での殺菌利用は過去の報告が皆無な新規な手法であり、従来の殺菌剤と比較して低侵襲かつ高殺菌力という優れた特性を持ち、今後の新しい応用展開が期待される [3]。

PNA の安定性は温度に強く依存しており、室温では数分程度の半減時間が、氷冷では数時間と伸張する。さらに体温では数秒程度と短縮される。そのため、生体表層の消毒薬として利用を行うと、酸化ストレスは表層のみに限定され、生体内へは浸透しない。一般的な消毒剤は体温程度では安定であるため、生体へのダメージが無い濃度でしか利用ができない一方で、PNA は相対的に高い殺菌力をもたらす濃度での利用が考えられる。実際に動物実験による安全性試験を進めているが、かなり高濃度でも急性毒性がでないことなどが確認で

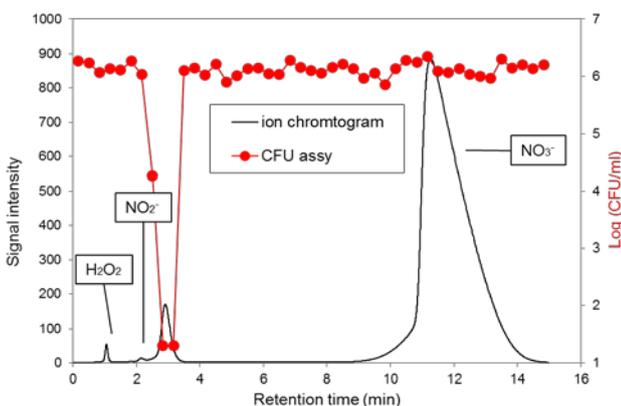


図 1 イオンクロマトグラフ法によるプラズマ処理水中からの過硝酸の分離精製

きている。

このような低温で半減時間が伸張するという特徴から、低温下で PTW を生成することで、類似する PTW の研究と比較して格段に高い殺菌力 (数桁程度) を実現しているが、PTW 中の PNA 生成過程を明らかにする必要がある。PNA は亜硝酸 (HNO_2) と過酸化水素 (H_2O_2) を混合する事で化学的に合成されるが、まず式 (1) により生成されたペルオキシナイトライト ($HOONO$) が、式 (2) に示す様にさらに過酸化水素と反応することで PNA が合成されるとされている [4]。



PTW 中には亜硝酸と過酸化水素が成分として残存しており、それらから式 (1) により $HOONO$ が生成されて殺菌に寄与するというモデルがチェコの P. Lukes らによって提唱されており、Peroxyntitrite chemistry として広く知られている [5]。この反応はプラズマ処理後の時間領域 (post discharge) で起こる比較的ゆっくりとした化学反応であり、生成された $HOONO$ の一部は分解時に殺菌に寄与するが多くは失活する。一方、我々が行っている低温の実験条件では、PTW 処理時に式 (1) から式 (2) まで化学反応が進行して生成された PNA が溶液中で保存されると考えている。Lukes らの実験条件でも PNA は同様に生成されていると推察されるが、室温でプラズマ照射を行っているために、生成された PNA は数分オーダーで失活してしまい、殺菌実験の前に消失してしまっている。式 (2) は pH2 以下の強酸性条件でのみ反応が進行するため、プラズマ照射時の気液界面におけるごく薄いレイヤーのみで合成が進むと考えている (during discharge)。

液中で濃度勾配を持つ複数の化学物質による分解・合成過程が競合し、さらに温度・pH により反応経路が大きく変化する。このような反応場の理解を進めることで、プラズマ誘起液中で化学反応の真の理解が進むと考えられる。

2. リポソームを用いたプラズマ処理水による細胞内酸化ストレスの評価

大気圧低温プラズマを利用した様々な医療応用が進められており、我々はプラズマ処理水 (PTW) を用いた

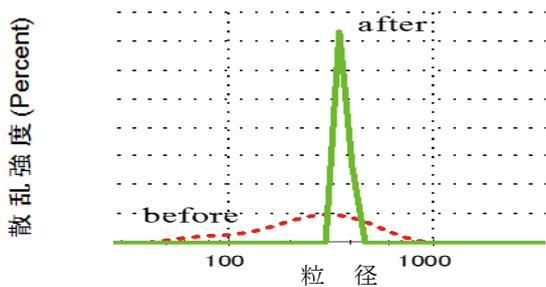


図2 調整前後におけるリポソームの粒径

殺菌・消毒の研究を進めている。PTW は、pH 4.8 以下で、中性環境下と比較して劇的に殺菌力が劇的に向上することが知られており（低 pH 法）、この効果は $O_2 \cdot$ と $HOO \cdot$ の酸解離平衡に起因していると考えている [1]。酸性下では $HOO \cdot$ 濃度が上昇する方向に平衡が傾き、この電氣的に中性な $HOO \cdot$ は細胞膜を容易に透過し、細胞内へ酸化ストレスを与えることで殺菌が進行する。このように酸解離平衡により、イオンが電氣的に中性化することで殺菌力が増すことはよく知られており、例えば次亜塩素酸 ($HClO$) の pKa 7.5 であり、これよりも酸性にすることで殺菌力が格段に向上するが、これは酸性電解水の殺菌機序でもある。PTW による殺菌効果を定量化するためには、細胞内酸化ストレスの評価が非常に重要となる。

これまで、人工細胞として用いたミセルによる実験から、細胞外の $HOO \cdot$ 濃度と細胞内酸化ストレスならび殺菌力 (1/D) が相関 (比例) していることが示されている [6]。本研究では、ミセルとは異なり脂質二重層膜内に内水層を持つリポソームを人工細胞として用い、内水層に活性酸素を検出する水溶性試薬を内包させておくことで、PTW による細胞内酸化ストレスを化学反応速度論に基づき評価することを試みた。

Bangham 法により試薬内包リポソームを作成した。速度論的な評価を行うためには、粒径の制御は重要であ

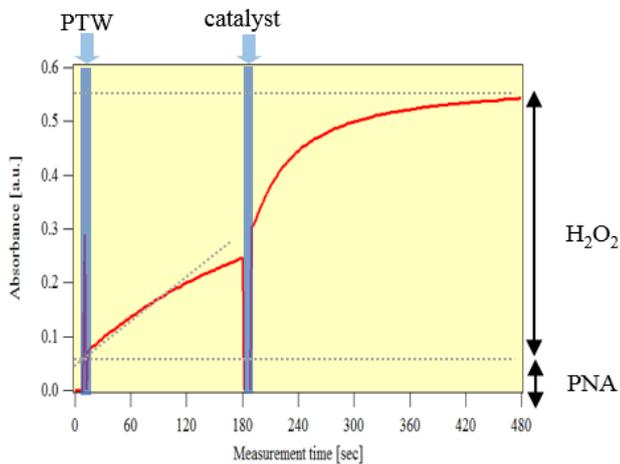


図3 KI 法によるプラズマ処理水中の測定結果

り、エクストルージョン法により粒径を均一 (200nm) に揃えた (図 2)。リポソーム合成時に使用した試薬は外水相にも混入しているため、ゲル濾過クロマトグラフィーによって試薬内包リポソームのみを取り出した。

今回、活性酸素測定用の試薬として、残留塩素の測定で用いられる発色試薬である DPD (N,N-Diethyl-p-phenylenediamine) を用いた。DPD 内包リポソームと pH 3.5、6.5 に調整した PTW を混合し、リポソーム中に存在する試薬の発色を分光光度計により測定した。pH の違いにより、リポソーム内 DPD 溶液の発色速度の違いが見られ、pH3.5 に調整した方が pH6.5 よりも発色速度が速くなっていた。pH の違いにより外水相の $HOO \cdot$ 濃度が変化したことで、膜を透過してリポソーム内へ浸透する速度の違いだと考えられる。

3. KI 法を用いたプラズマ処理水における過硝酸と過酸化水素の定量

溶液中でのプラズマ殺菌の研究に着目し、医療応用を進めている。プラズマを水に照射したプラズマ処理水 (PTW) は、pH 4.8 以下の酸性に調整することで、中性条件と比較し殺菌力が 100 倍以上強くなる (低 pH 法) [1]。PTW 中にはプラズマから供給された様々な活性種が溶存しているが、低 pH 法では過硝酸がキー物質である事が判っている [2, 3]。PTW 中に保存された過硝酸から、ラジカル解離することで生成した $HOO \cdot$ が直接的な殺菌作用をもたらしている。これまでにイオンクロマトグラフによる過硝酸の定量法を新しく開発を行っているが [7]、液体クロマトグラフは定量性があるものの簡便な方法ではない。残留塩素の測定で用いられる発色試薬である DPD を用いて過硝酸の半定量測定を行っており、イオンクロマトで校正を行うことで絶対濃度測定を行っていた。過硝酸を含む PTW では過酸化水素の濃度も重要であるために、今回、触媒を併用する KI 法を用いる事で [8]、PTW 中の過硝酸と過酸化水素を同時に定量する事を試みた。KI 法は吸光度から反応物の絶対濃度を求める事ができるという特徴があり、様々な酸化物質の定量に用いられている。

冷却した水に LF プラズマジェットを 30 分照射したものを PTW として供試した。吸光光度計にセットした KI 溶液の吸光度 (352nm) の時間変化を測定した結果を図 3 に示す。まず、PTW を滴下したが、過硝酸が直ちに反応し吸光度が上昇した。さらに、吸光度の変化が落ち着いた後に、触媒としてモリブデン酸アンモニウムを滴下することで過酸化水素を KI 法により測定した。過酸化水素と KI の反応は時間が要するが、触媒を用いる事で比較的、短時間で測定が可能となる。本手法に

より、吸光度が2段階で上昇するそれぞれの差分から過硝酸と過酸化水素を定量可能である。本手法により求めた過硝酸と過酸化水素の濃度は、従来手法でそれぞれ定量した値と比較すると、ほぼ一致していたことから、本手法は有効であると考えられる。

4. 大気圧低温プラズマによる分子シャペロンPFDの活性制御

生体中には、タンパク質の凝集を防ぎ、正しく折りたたむことを補助する分子シャペロンと呼ばれるタンパク質が存在し、生理機能維持に重要な役割を果たしている。Prefoldin (PFD)は分子シャペロンの1つであり、変性タンパク質の凝集を防ぐ作用(Arrest 活性)とタンパク質の折れたたみを促進する作用(Folding 活性)を示し、基質との親和性が弱くなる条件下(低温)ではFolding 活性が上昇することが分かっている[9]。

大気圧低温プラズマは、多種の活性種を生成でき、生体高分子への熱的負荷が少ないことから医療・バイオ分野への応用が行われ始めている。供給された活性種はアミノ酸を化学修飾し[10]、酵素は立体構造の変化により酵素活性が失活することが明らかになっているが[11]、分子シャペロンについての影響は明らかでない。そこで本研究では、PFD 溶液にプラズマを照射し(図4 A)、Arrest 活性およびFolding 活性への影響を調査した。プラズマ処理したPFDのArrest 活性をCitrate synthase (CS)の熱凝集による光散乱で評価した

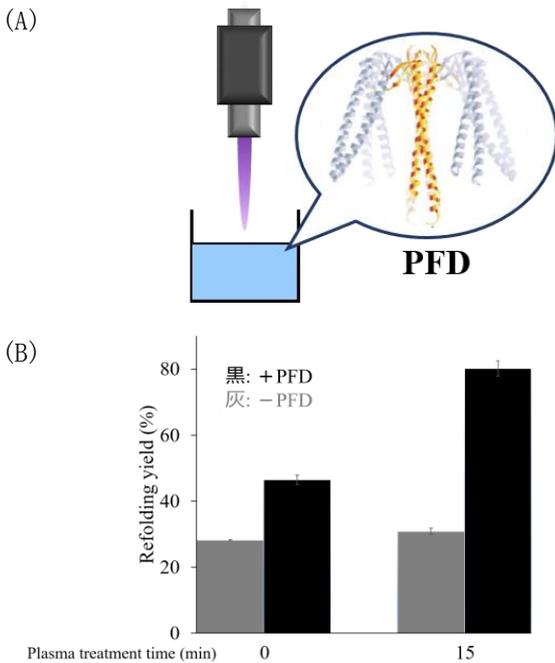


図4 (A) Model diagram of plasma-treated PFD (B) Refolding activity of plasma-treated PFD for denatured lysozyme

ところ、凝集抑制作用が減少していたことから Arrest 活性低下が示された。またプラズマ処理したPFDのFolding 活性を変性リゾチームにより評価したところ、リフォールディング収率が2.5倍に向上したことから、Folding 活性の上昇が示された(図4 B)。プラズマ照射によりPFDの表面疎水性は低下しており、Arrest 活性ならびFolding 活性の変化と相関があると考えられた。これらの結果からプラズマ照射による親水化に伴い分子シャペロンの活性を上昇できることが示唆された。従来、プラズマとタンパク質との反応の研究報告では、化学修飾による天然構造からの変性による各種活性が低下する報告しかなかったが、今回、分子シャペロンに関して特定の活性を向上させることに成功しており、プラズマの新しい応用が示唆され今後の研究展開が期待される。

5. ブタ皮表面における低 pH 法を用いた大気圧低温プラズマによる殺菌力の評価と菌回収方法の比較

プラズマ殺菌技術の医療応用の研究を進めている。我々は、これまで溶液中の殺菌に注目し、菌懸濁液にプラズマを照射する際、酸性(pH<4.8)に調整することで、中性条件と比較し、殺菌力が100倍以上強くなる「低pH法」を開発した[1]。低pH法による殺菌技術を、人体の組織表面の消毒に応用することを目的とし、ブタの表皮組織をモデル組織として用いて、有用性の検証を行ってきた。ブタの表皮組織に黄色ブドウ球菌(*Staphylococcus aureus*)を植菌した後、バッファー(pH3.5, 6.5)を塗布し、ヘリウムプラズマを照射した。表皮表面の細菌をカップスクラブ法により回収し、生菌数を求めたところ、pH 6.5と比較しpH 3.5の系では、生菌数の減少が大きく、ブタ皮表面においても低pH法は有効であることが確認された。しかし、pH 3.5における生菌数の減少(LogR)は1.7程度と、薬液消

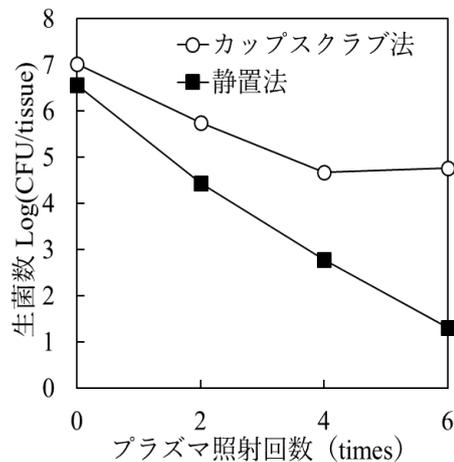


図5 菌回収方法毎の照射回数と生菌数の推移

毒の目安である 3.0 には至っていなかった。

本研究では、表皮組織からの菌回収方法の検討を行い、さらに $\text{LogR} > 3.0$ を目標にプラズマ照射条件の検討も行った。これまで様々な研究者によって、ブタの表皮組織を用いて、生体組織表面におけるプラズマの殺菌効果が検証されてきたが、菌回収方法は統一されていない。今回、菌回収方法として、薬液による表皮の殺菌試験で一般的に使用される①カップスクラブ法と、既往のプラズマ殺菌の研究で使用された実績のある②静置法[12]とを比較した。静置法によって回収された生菌数はカップスクラブ法に比べて少なく、特にプラズマ照射回数が増加した場合でその差は顕著になった(図5)。静置法を用いた従来研究ではブタ皮表面のごく表層のみの菌回収しか行えておらず、殺菌が困難な深部では回収が十分ではなかったために、殺菌力を過剰評価していた可能性が高い。

引き続きカップスクラブ法を採用することとし、プラズマ照射条件の見直しを行った。これまでは低 pH 法の検証を目的としていたために低い電圧でプラズマ生成をしていたが、約 7kV まで上昇させても表皮組織に熱傷が生じない事が確認されたために、本条件で実験を行ったところ、酸性条件下において $\text{LogR} = 3.5 (>3.0)$ が得られ、プラズマ殺菌が薬液に対して遜色ないことが示された。従来のプラズマ殺菌の研究で用いられている静置法と比べ、カップスクラブ法は菌回収率が高いために殺菌力が低く見積もられてしまうが、プラズマ生成条件を見直すことで薬液殺菌と比べて十分な殺菌力を実証できた。

6. ウルトラピュア大気圧ヘリウムプラズマの真空紫外分光

大気圧プラズマは表面処理から医療・バイオまで応用範囲が拡大しているものの、反応素過程に関してはいまだ不明な点も多い。我々は大気圧ヘリウムプラズ

マからダイマー発光である 60~100nm (13.5~17.7eV) の Hopfield emission 真空紫外光[13]を利用したガスクロマトグラフ用プラズマ検出器 (BID: Barrier disc charge ionization detector) の製品化を行っており[14]、その開発過程でプラズマ生成用ガスの純度が検出感度に大きく影響を与えていることが判り、超高純度ガスを用いたウルトラピュアプラズマに着目することとなった。東京大学の寺嶋教授らによるクライオプラズマの実験では[15]、ガスを超低温にすることで He のダイマー発光 (640nm) の強度が上がったが、それは絶対零度近くに冷却することで He 以外の不純物ガスが液化した事による He ガス純度の上昇が要因である。一般的な大気圧プラズマの実験では ppm 程度の不純物を有する高純度ガスを用い、それ以下の不純物の影響を想定しない場合が多いが、極微量不純物により発光スペクトルが変化することから、原子分子過程にも影響があり、放電そのものや各種活性種生成に対して影響を与えていると考えるべきである。

今回、ウルトラピュア大気圧ヘリウムプラズマの真空紫外分光を行った。同軸構造の誘電体バリアー放電により大気圧グロープラズマを生成した。110nm 以下の波長は窓材が存在しないために測定が困難であるが、真空紫外分光器を He ガスでパージすることで測定を行った。プラズマ生成用ガスは 99.99998% の高純度 He ガスをさらに加熱ゲッター方式のガス純化装置を通すことで、不純物濃度を 10ppb 以下にした。不純物濃度が発光強度に与える影響を評価するために、純化装置の電源を入れてから 80nm の発光強度の時間変化を測定したところ(図6)、純化装置の温度が上がり出す初期に一旦発光強度が下がるものの、純度向上と共に徐々に発光強度が上がっていき数時間後に一定の強度で落ち着いた。また、超高純度になるにつれプラズマ形状も変化していた。

理論モデルやシミュレーションでは計算コスト等の問題もあって不純物を考慮しないのが一般的で、実験と理論が乖離した状態で発展してきたが、不純物濃度が ppb オーダーのウルトラピュアプラズマを用いて研究を進めることで、新しい観点から大気圧プラズマ科学が展開できると期待できる。

7. 謝辞

本研究は物理学の範囲を超えており、本研究グループのみでは遂行困難であり、100 人を越える多くの共同研究者の協力に感謝する。特に、分子生物学は大阪産業技術研究所の井川聡主任研究員、物理化学は神戸大学の谷篤史准教授、歯学は鶴見大学歯学部の大島朋子

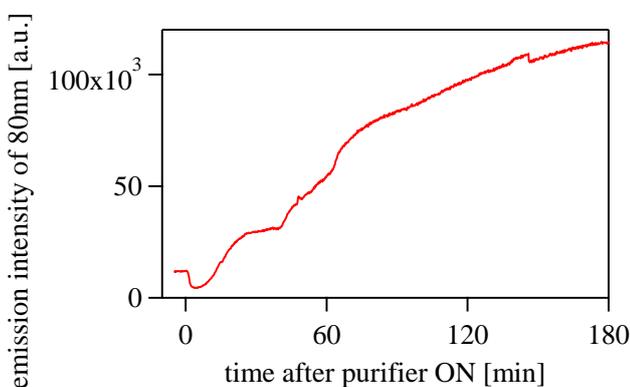


図6 ガス純化装置を入れてからの真空紫外発光強度の時間変化

学内教授、医学は国立がん研究センター東病院の矢野友規科長、構造生物学の愛媛大学の座古保教授、プラズマ光学の日本大学の荒巻光利教授、バイオイメージングは東京理科大学の曾我公平教授の皆様には大変感謝しております。また、ラボのスタッフ・学生の皆様にも繊細な実験を継続して進めて頂き、どの国際会議に出ても引けを取らないデータの取得に協力していただき感謝する。引き続き、皆様の協力を得て本分野の研究を推進していきたいと考えている。

8. 文献

- [1] S. Ikawa, *Plasma Process. Polym.*, 7, 33 (2010). 特許第 4408957 号.
- [2] K. Kitano, 6th International Conference on Plasma Medicine (ICPM-6), invited talk, Slovakia, (2016/9).
- [3] S. Ikawa, A. Tani, Y. Nakashima, K. Kitano, *J. Phys. D: Appl. Phys.* 405401 (2016). 特許第 6087029 号.
- [4] F. Raschig, *Angewandte Chemie*, 17, 1419 (1904).
- [5] P. Lukes, E. Dolezalova, I. Sisrova, M. Clupek, *Plasma Sources Sci, and Tech.*, 23, 015019 (2014).
- [6] E. Takai, S. Ikawa, K. Kitano, J. Kuwabara, K. Shiraki, *J. Phys. D: Appl. Phys.* 46, 295402 (2013).
- [7] Y. Nakashima, S. Ikawa, A. Tani, K. Kitano, *Journal of Chromatography A*, 1431, 89 (2016).
- [8] Jean-Michel Régimbal, M. Mozurkewich, *J. Phys. Chem. A*, 101, 8822 (1997).
- [9] T. Zako, S. Banba, M. Sahlan, M. Sakono, N. Tera da, M. Yohda, M. Maeda, *Biochem Biophys Res Commun.* Jan 1; 391(1):467-70 (2010).
- [10] *J. Phys. D: Appl. Phys.* 47, 285403 (2014).
- [11] *Plasma Process Polym.* 9, 77 (2012).
- [12] O. Lademann, *Skin Pharmacol. Physiol.*, 24, 5 (2011).
- [13] W.E Wentworth, *Journal of Chromatography A*, 795, 2, 319 (1998).
- [14] <http://www.shimadzu.co.jp/news/press/n00kbc000000nxb.html>. 品田ら, 島津評論, 69, 255 (2013).
- [15] Y. Noma, J. H. Choi, S. Stauss, T. Tomai, K. Terashima, *Appl. Phys. Exp.*, 1, 046001 (2008).

量子ビームと生体及び超分子等との相互作用、物性解析、 生体物質の分析に関する研究

栗津邦男, 間久直, 真鍋勇一郎, 本多典広

1. はじめに

レーザーや量子ビームは発見以来の発展は目覚しく、医療への応用が進んでいる。本研究室では医用光学、光生物学、保健物理学などを基礎とし、レーザーをはじめとする量子ビームと生体及び超分子等との相互作用、物性解析、生体物質の分析に関する研究を行っており、これらの基礎（光生体相互作用、放射線生体影響）から応用（臨床に利用できる技術開発）および装置開発（開発技術のシステム化）に至る一貫した医工融合研究を推進し、新しい医療光技術の産業・臨床応用を目指している。以下に、本年度の研究活動概要を述べる。

2. 光線力学療法の検討

2-1. はじめに

光線力学療法（photodynamic therapy; PDT）は腫瘍に集積した光感受性物質（photosensitizer; PS）とレーザー光との光化学反応を利用したがん治療法であるが、PSの低い腫瘍選択性とPS投与後の長い待機時間がもたらす副作用が課題となっている。Hemagglutinating virus of Japan envelope (HVJ-E) と称する複製能欠損ウイルス粒子は標的がん細胞に選択的かつ迅速に薬剤を輸送する。そこで、PSであるprotoporphyrin IX (PpIX) 脂質のキャリアとしてHVJ-Eを適用した薬剤porphyrus envelope (PE) に着目し、短い薬剤反応時間で高いがん選択性を有するPDTのためのPE調製条件と光照射条件を検討した。

2-2. 実験方法

抗がん剤耐性前立腺がん細胞株PC-3と正常前立腺上皮細胞株PNT2に対し、HVJ-Eに対する濃度2.38 pmol/HAUのPpIX脂質を含むPEを投与した。投与10 min後に、波長405 nmの連続波半導体レーザー光源(VPS-ENN 100×2, 住友電工)を用いて、パワー密度100 mW/cm²にて0-180 sレーザー光を照射し、光照射の24 h後、WSTアッセイ法により各細胞の生存率を評価した。また、濃度0, 5vol%のエタノール溶液に溶解させた濃度2.38 pmol/HAUのPpIX脂質を用いてPEを調製した後、レーザー回折/散乱式粒子径分布測定装置

(LA-920, 堀場製作所)を用いてPEの粒径分布を測定した。

2-3. 実験結果

従来のPSでは正常細胞に対して1.5-2倍多くのPDT効果がPC-3細胞に与えられるが¹⁾、図1(左)に示すようにPEを投与しエネルギー密度18 J/cm²にて光照射した場合、PNT2細胞に対して4.64 ± 0.09倍多くのPC-3細胞に細胞死が生じた。従ってPEによってより腫瘍選択的にPDTを行える可能性が示された。また図1(右)に、エタノールによるPpIX脂質処理前後のPEの粒径分布を示す。粒子径0.2-1 μmの薬剤は腫瘍内で持続的に滞留できるが、濃度5vol%のエタノール処理により二次粒子のピーク径は3.5 μm減少し、平均径とモード径がともに0.3-0.8 μmとなったため、本調製方法にてPEの腫瘍滞留性が向上する可能性が示された。

2-4. 結論

HVJ-Eによる腫瘍への選択的かつ迅速なPSの集積により、短時間で高い腫瘍選択性を有するPDTが行われ、またPpIX脂質のエタノールへの溶解によりPEの腫瘍滞留性が向上する可能性が得られた。

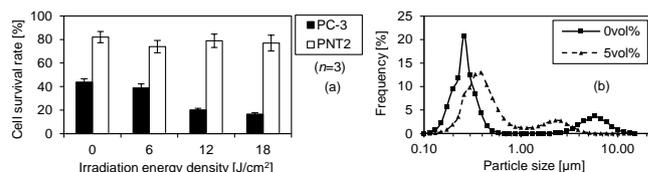


図1 PEを用いたPDTによる殺細胞効果の腫瘍選択性(左)、エタノール処理前後のPEの粒径分布(右)

3. 低侵襲な蝕治療技術の開発

3-1 はじめに

健全歯質を傷つけずに、う蝕(虫歯)部のみを選択的に切削できる治療法が求められている。波長6 μm帯では有機質由来の象牙質の吸収ピークがあり、波長5.85 μmナノ秒パルスレーザーを用いた結果、とう蝕象牙質を最も選択的に切削できることが報告されている¹⁾。しかし、臨床応用に至る上で、このナノ秒パルスレーザーは臨床現場には適さないサイズであり、また、切削効率が低いことが課題である。本研究では

低侵襲かつ高効率なう蝕切削に向けてパルス構造制御が可能な小型半導体レーザーである量子カスケードレーザー (quantum cascade laser ; QCL) のパルス構造を制御してマクロパルス (複数のマイクロパルス (パルス幅 1 μ s, パルス繰り返し周波数 500 kHz) のまとまりを 1 つのマクロパルスとして一定間隔で照射) を得た。マクロパルス照射によるウシ脱灰および健全象牙質の切削特性から、最適なパルス構造 (マクロパルス幅, マクロパルス繰り返し周波数) を検討した。

3-2 実験方法

試料にはウシ健全および脱灰象牙質を用いた。0.1 mol/L の乳酸に健全象牙質を浸漬させ脱灰象牙質を作製した。光源には波長 5.8 μ m 帯 QCL を使用した。熱閉じ込め条件を考慮し、マクロパルス幅 0.2~1.0 ms, パルスエネルギー密度 2.1~9.1 J/cm², マクロパルス繰り返し周波数 20 Hz の条件, および切削効率を高めるためにマクロパルス幅 1 ms, マクロパルス繰り返し周波数 40~100 Hz の条件で、湿潤状態の試料に 1 s 照射し、走査型電子顕微鏡 (scanning electron microscope ; SEM) と光学顕微鏡で照射痕の形態を観察し、共焦点レーザー顕微鏡で切削深さを測定した。

3-3 実験結果

図 2 に異なるマクロパルス幅での照射痕の SEM 画像を示す。マクロパルス幅 1 ms では脱灰と健全象牙質の切削深さ差が最大であり、脱灰象牙質の選択的な切削の可能性が示された。図 3 に異なるマクロパルス繰り返し周波数での照射痕の光学顕微鏡画像を示す。50 Hz 以上では健全象牙質で炭化層 (図 3) が観察されたが、40 Hz ではどちらの象牙質も炭化層は観察されなかった。

3-4 結論

波長 5.8 μ m 帯 QCL のパルス構造制御により、脱灰象牙質の選択的な切削の可能性が示された。低侵襲かつ高効率な脱灰象牙質切削のための最適マクロパルス構造はマクロパルス幅 1 ms, マクロパルス繰り返し周波数 40 Hz の条件であった。

4. 放射線生態影響評価

放射線リスクの定量評価については細胞、動物実験が多く蓄積されているが、数理モデルという観点がないため、統一的な理解が出来ない。我々は六ヶ所村、アルゴンヌ等の研究所で行われた放射線によるマウスの寿命短縮の実験に着目し、被ばく線量率に応じ手、寿命が短縮されるという数理モデルを構築した。その結果、線量率効果で寿命短縮が説明できることが分かった。

5. 文献

- (1) K. Ishii et al.: Selective removal of carious human dentin using a nanosecond pulsed laser operating at a wavelength of 5.85 μ m, J. Biomed. Opt., Vol.20, No.5, pp.051023-1-7, 2015

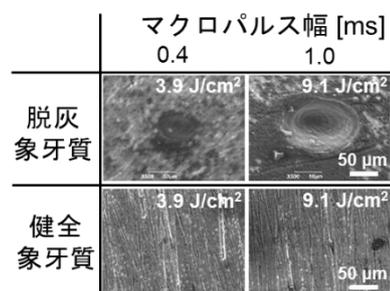


図 2 異なるマクロパルス幅での照射痕の SEM 画像

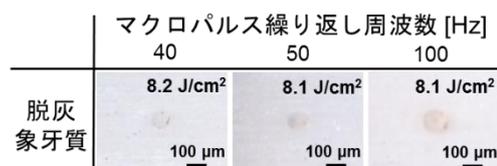


図 3 異なるマクロパルス繰り返し周波数での照射痕の光学顕微鏡画像

磁性論理演算素子の研究

中谷亮一、野村 光

1. はじめに

地球は、地球磁場（地磁気）および大気により、太陽風から守られている。地球磁場がなければ、地球が生物の住める環境ではなくなることは、サイズが小さいために早い時期に冷え、磁場を失った火星の現在の環境を見れば明白である。火星は、元は生物の住める環境であったものが、磁場を失った結果、太陽風の影響を受け、大気をほとんど失ってしまった可能性がある。最近の学説では言われている。そのことに関して、ここでは議論しないが、地球磁場の効果の小さくなる宇宙空間において、太陽風や、もっと規模の大きいコロナ質量放出の影響は無視できない。特に、地球の磁気圏を離れると、銀河放射線の影響も受ける。これらの荷電粒子、放射線は、生体に対しても問題であるが、電子機器に関しても大きな問題となる。近年、宇宙線による原子のはじき出し効果に耐性のある SiC 半導体⁽¹⁾の研究が盛んに行われているが、そのような対策のみで上記の問題を回避できるかは疑問である。

我々は、現在、本質的に放射線に対する耐性の高い磁性デバイスについて検討を行っている。既に、磁性ランダムアクセスメモリ（Magnetic Random Access Memory, MRAM）⁽²⁻³⁾は実用化されている。メモリに対しては、近年、消費電力の大幅な低減をめざした研究⁽⁴⁻⁸⁾が盛んに行われている。それでは、次に、演算素子に関して、半導体素子を磁性デバイスに置き換えることはできないだろうか。それが行えれば、全部とは言えないが、多くの機能を磁性デバイスにより行う磁性コンピュータが実現できるのではないか。磁性コンピュータは、宇宙線などの放射線に耐性の高いコンピュータになるはずで、人類がさらに宇宙空間に進出するために必要な技術なのではないかと考えている。

半導体素子に代わり演算をおこなう磁性論理演算素子は、磁壁の移動を利用した素子⁽⁹⁾も研究され、発表されたが、我々は、微小磁性体間の静磁気相互作用を利用した素子を検討している⁽¹⁰⁻¹²⁾。その磁性論理演算素子は、図1に示すように、150 nm 程度以下のサイズを有する楕円形の微小磁性体（磁性セル）を4個配置した構造を有する。磁性体の厚さは20 nm 程度である。また、磁性体の材料は典型的には Ni-20at%Fe（パーマロイ）の単層膜である。

我々は、これまでに、マイクロマグネティクス・シミュレーションにより演算素子の構造の設計を行った。

さらに、演算素子を作製し、磁気力顕微鏡の磁性プローブを利用することにより、プログラマブル NAND/NOR ゲートとしての動作検証を行った⁽¹²⁾。さらに、磁性論理演算素子が駆動するために必要な、情報を一方向に伝えることのできる機構（磁性情報ダイオード）⁽¹³⁾、情報の移動量を制御するシフトレジスタ⁽¹⁴⁻¹⁶⁾、および、情報を分岐するファンアウト機構⁽¹⁷⁾について、実験的にも動作確認を行っている。本稿では、上記のファンアウト素子について報告する。

2. 情報を分岐するファンアウト素子

磁性素子で単に演算を行うだけでは、情報が戻つづみになってしまい、演算を続行できなくなる。このため、情報を分岐する磁性ファンアウト素子が必要となる。磁性ドットを Y 字型配列し、情報を分岐することも可能であるが、ここでは、磁性細線と磁性ドットを組み合わせたファンアウト素子を紹介する。

検討した素子の構造を図2に示す。図のように、素子は磁性ドットと分岐した磁性細線からなる。材料は厚さ 20 nm のパーマロイである。

図3(a)のように、素子の磁性ドット部分に「1」を入力する。磁性ドット部の磁化の向きは右向きである。また、磁性細線は左向きの磁化状態にしてある（「0」の状態）。この状態で、21.5 kA/m の右向きの磁場を印加すると、(a')のように、細線の右端に「1」の情報が出力される。「1」の情報が伝播するためには、21.5 kA/m

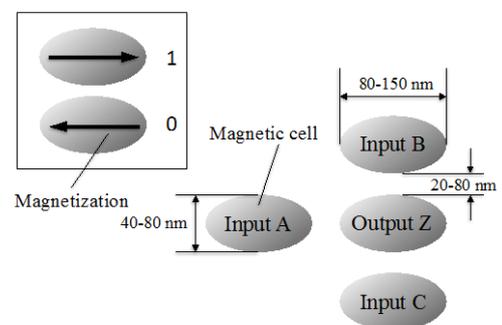


図1 磁性論理演算素子の構造。

以上の磁場が必要である。これに対し、(b)のように、素子の磁性ドット部分に「0」を入力する。磁性ドット部の磁化の向きは左向きである。また、磁性細線は左向きの磁化状態にしてある(「0」の状態)。この状態で、22.5 kA/mの右向きの磁場を印加すると、(b')のように、細線の右端に「0」の情報が出力されている状態であるが、これより高い磁場を印加すると、右向きの磁化状態、すなわち、情報が「1」となってしまう。磁性細線に「1」を入力した状態で同様の検討を行ったところ、外部磁場が21.5 kA/mから22.5 kA/mの範囲ならば、磁性細線の磁化の向きが、左右どちらであっても、磁性ドットと磁性細線の磁化の向きは同じになる。すなわち、磁性ドットの情報が、この磁場領域で分岐され、磁性細線に伝播することになる。

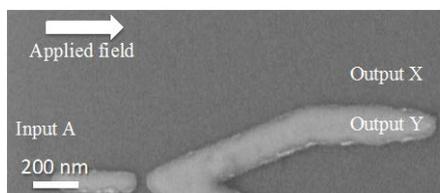


図2 ファンアウト素子の構造。

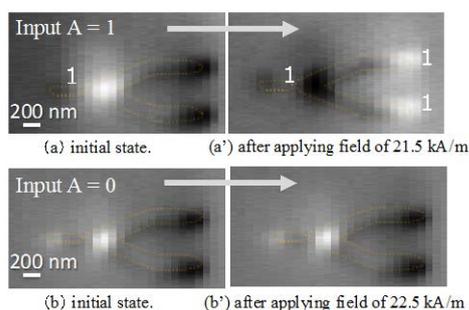


図3 ファンアウト素子 MFM 像。

- (a) A に「1」を入力した場合の初期状態
- (a') 21.5 kA/m の磁界を印加した後の状態
- (b) A に「0」を入力した場合の初期状態
- (b') 22.5 kA/m の磁界を印加した後の状態

3. まとめ

本研究では、磁性論理演算素子の周辺磁気回路の一つであるファンアウト素子について検討を行った。その結果、情報を分岐させる素子の動作を確認することができた。

文献

- (1) I. Nashiyama, *OYOBUTURI*, **59** (1990) 933-936.
- (2) S. Tehrani, J. M. Slaughter, E. Chen, M. Durlam, J. Shi and M. DeHerrera, *IEEE Trans. Magn.*, **35** (1999) 2814-2819.
- (3) S. S. P. Parkin, K. P. Roche, M. G. Samant, P. M. Rice, and R. B. Beyers, R. E. Scheuerlein, E. J. O'Sullivan, S. L. Brown, J. Bucchigano, D. W. Abraham, Yu Lu, M. Rooks, P. L. Trouilloud, R. A. Wanner and W. J. Gallagher, *J. Appl. Phys.*, **85** (1999) 5828-5833.
- (4) K. Toyoki, Y. Shiratsuchi, A. Kobane, C. Mitsumata, Y. Kotani, T. Nakamura and R. Nakatani, *Appl. Phys. Lett.*, **106** (2015) 162404.
- (5) S. Fukami, T. Anekawa, C. Zhang and H. Ohno, *Nature Nanotechnology*, **11** (2016) 621.
- (6) S. Miwa, K. Matsuda, K. Tanaka, Y. Kotani, M. Goto, T. Nakamura and Y. Suzuki, *Appl. Phys. Lett.*, **107** (2015) 162402.
- (7) Y. Shiratsuchi, H. Oikawa, S. Kawahara, Y. Takechi, T. Fujita and R. Nakatani, "Strong Perpendicular Magnetic Anisotropy at Co(111)/a-Cr₂O₃(0001) Interface", *Applied Physics Express*, **5** (2012) 043004.
- (8) Y. Shiratsuchi, K. Wakatsu, T. Nakamura, H. Oikawa, S. Maenou, Y. Narumi, K. Tazoe, C. Mitsumata, T. Kinoshita, H. Nojiri and R. Nakatani, "Isothermal Switching of Perpendicular Exchange Bias by Pulsed High Magnetic Field", *Applied Physics Letters*, **100** (2012) 262413.
- (9) D. A. Allwood, G. Xiong, C. C. Faulkner, D. Petit and R. P. Cowburn, *Science*, **309** (2005) 1688.
- (10) S. A. Haque, M. Yamamoto, R. Nakatani and Y. Endo, *J. Magn. & Magn. Mater.*, **282** (2004) 380-384.
- (11) R. Nakatani, H. Nomura and Y. Endo, *Journal of Physics, Conference Series*, **165** (2009) 012030.
- (12) H. Nomura and R. Nakatani, *Applied Physics Express*, **4**, (2011) 013004.
- (13) H. Nomura, A. Morita, S. Miura, and R. Nakatani, 58th Annual conference on magnetism and magnetic materials, 8th November 2013, Denver USA.
- (14) H. Nomura, N. Yoshioka, S. Miura and R. Nakatani, *Applied Physics Express*, **4**, (2011) 013004.
- (15) H. Nomura, A. Morita, S. Miura, and R. Nakatani, 58th Annual conference on magnetism and magnetic materials, 8th November 2013, Denver USA.
- (16) H. Nomura, N. Yoshioka, S. Miura and R. Nakatani, "Controlling operation timing and data flow direction between nanomagnet logic elements with spatially uniform clock fields", *Applied Physics Express*, **10** (2017) 123004.
- (17) H. Nomura, S. Miura, A. morita, and R. Nakatani, 2013 Japan-Taiwan Symposium on Polyscale Technologies for Biomedical Engineering and Environmental Science, 10th September 2013, Oshamambe, Hokkaido, Japan.

直接通電焼結法による熱電変換材料の高性能化プロセス

井藤幹夫

1. はじめに

β -FeSi₂ 系熱電変換材料は、原料が豊富で安価、耐酸化性に優れ大気中での使用が可能、毒性元素を用いない、pn 接合が容易、など多くの実用上の利点を有しており、その実用化が強く望まれている。一方で β -FeSi₂ 系は様々な熱電材料が開発されている中でも、その熱電性能が低いことが大きな問題点ともなっており、上記のような多くの実用上の利点を有していることも含めて、実用化へ向けた高性能化手法の開発が強く望まれている。

これまでに Fe サイトや Si サイトへの種々の元素ドーピングや、電氣的、熱的性能向上を目指した第二相との複合化効果などが数多く報告されてきた。これら β -FeSi₂ 系単相試料を対象とした研究のほかに、 α -Fe₂Si₅ 相からの共析分解を利用した β -FeSi₂/Si コンポジット材料の開発が進められている。高温相である α -Fe₂Si₅ 相は 1210K で β 相と Si 相に共析分解する。この共析変態は速やかに進行するためコンポジット相を短時間で容易に得られるほか、 β 相マトリックス中に Si 相が微細粒子となり析出すると考えられ、Si 相の微細分散化による熱伝導率の低減が期待され、新たな高性能化手法として注目されている。

本研究では SPS により作製した α -Fe₂Si₅ から共析変態により β -FeSi₂/Si コンポジット材料を合成し、その微細構造および熱電特性に及ぼす Si 複合化効果について調査検討した。

2. 試料合成方法および評価法

β -FeSi₂ 系粉末には、n 型として一般に多く用いられる Co ドープ (Fe_{0.98}Co_{0.02}Si₂) のものを使用した。まず市販の Fe, Si, Co 粉末を所定の比になるよう混合し、ステンレス製のポットおよびボールを用いて遊星型ボールミルにより 300rpm, 5 時間メカニカルミリング処理した粉末を焼結処理に供した。焼結時の印加圧力は 50MPa, 昇温速度は 100°C/min, 真空雰囲気にて 1000°C, 10min 焼結処理を行い、 α -Fe₂Si₅ 相からなる焼結体を作製した。その後焼結体を 700°C あるいは 800°C にて 3-10 時間の熱処理を行い、共析分解により β -FeSi₂/Si コンポジット材料を得た。試料名は、700°C で 4 時間熱処理した試料を AN700T4 のように表記した。これら得られた焼結体に対し、XRD による相同定、SEM による微細組織観察およびゼーベック係数、電気抵抗率、熱伝導率などの熱電特性を評価した。

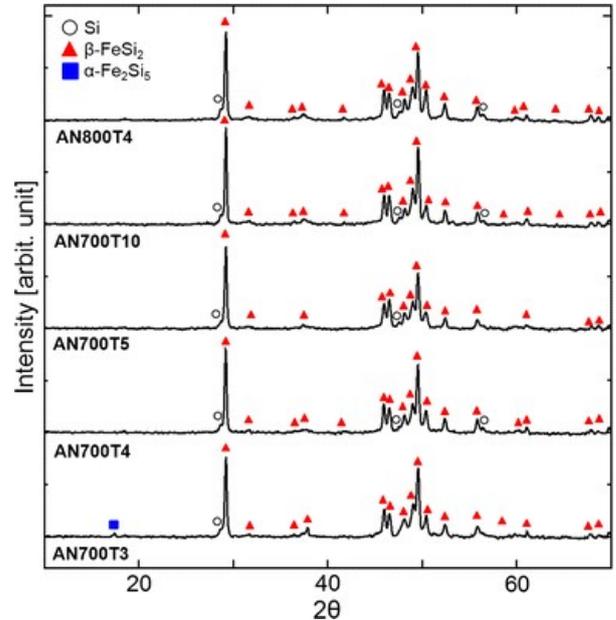


図1 熱処理後試料の XRD パターン。

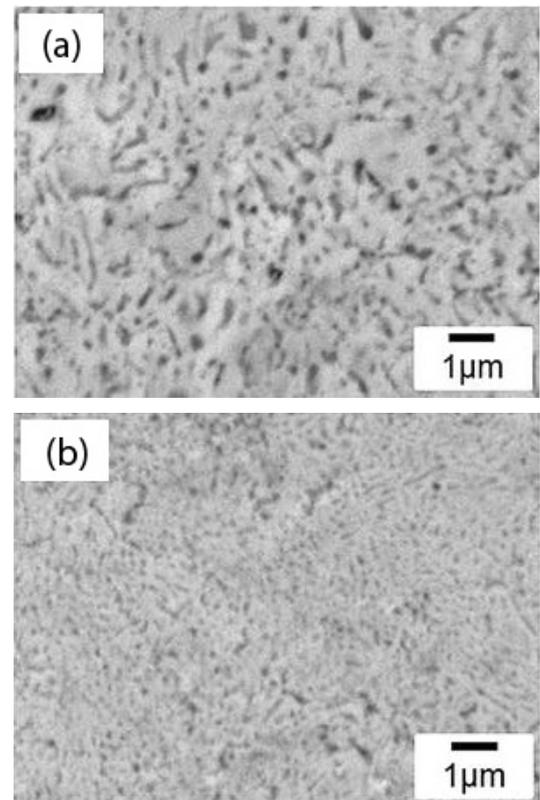


図2 (a)800°Cで4時間および(b)700°Cで4時間熱処理した焼結体の SEM 写真。

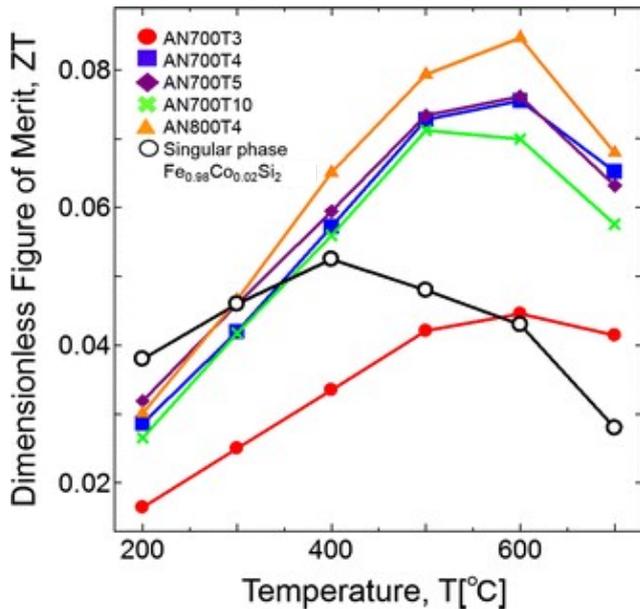


図3 β -FeSi₂/Si コンポジット材料と β -FeSi₂ 単相試料の無次元性能指数の比較。

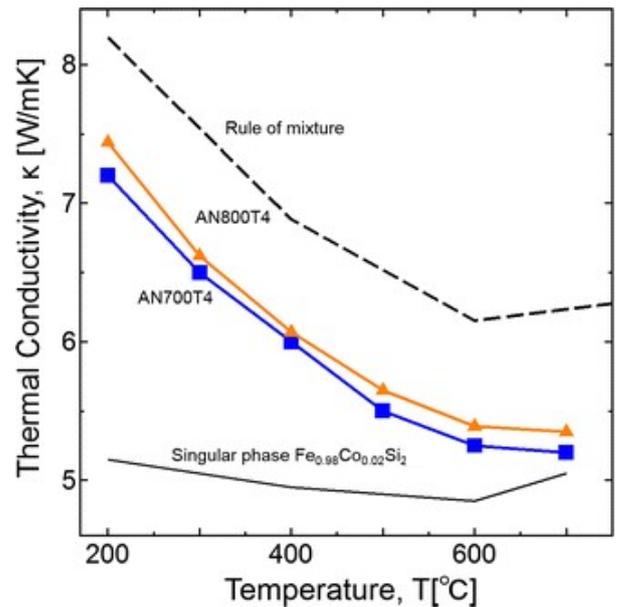


図4 複合側により求めた熱伝導率の理論値と実測および β -FeSi₂ 単相の値との比較。

3. 実験結果および考察

XRD の結果から、パルス通電焼結法により 1000°C で焼結された試料は、高温相である α -Fe₂Si₅ 相のほぼ単相であることが確認された。図 1 に種々の熱処理条件にて共析変態させた試料の XRD パターンを示す。熱処理温度 (700°C あるいは 800°C) にかかわらず焼結後の α 単相状態から β -FeSi₂/Si 複合相が得られており、ほぼ共析分解が完了していることが分かる。700°C、3 時間の熱処理条件 (AN700T3) では、少量ながら未分解の α 相が見られた。図 2 には (a) 800°C で 4 時間熱処理した試料 (AN800T4) および (b) 700°C で 4 時間熱処理した試料 (AN700T4) の SEM 写真を示す。(a) では灰色の β 相をマトリックス相として、黒色の Si 相が一様に微細分散されていることが分かる。Si 粒のサイズはおおむね 100-200nm 程度となっており、サブミクロンサイズの Si 分散された β -FeSi₂/Si コンポジット材料が作製されていることが確認された。また、熱処理温度が低い 700°C で処理された試料 (b) では、析出 Si 粒子のサイズがやや小さくなる傾向がみられた。

得られた各種コンポジット材料の熱電性能を評価したところ、700°C 3 時間熱処理試料では金属相である α 相が未分解で残存していたことによりゼーベック係数の低下および熱伝導率の上昇がみられ、低い性能指数を示したが、その他の試料は良好な熱電特性を示し、本熱処理条件の中では 800°C 4 時間の試料において最大の性能指数を示した。これをホットプレス法を用いて作製された従来の β -FeSi₂ 単相と比較した結果を図 3 に示す。本コンポジット材料の電気抵抗率および熱伝導率は β 単相試料と比較して高い値を示したものの、ゼーベック係数については大きく改善され、図 3 に示さ

れるように無次元性能指数では従来の β 単相試料から大きく向上する。このように α -Fe₂Si₅ 相の共析分解を利用した β -FeSi₂/Si コンポジット材料化が β -FeSi₂ 熱電材料の高性能化に有効であることが分かった。

図 4 に β -FeSi₂/Si コンポジット材料の熱伝導率を、Maxwell-Eucken の複合則⁽²⁾により求めた理論値および従来の β 単相試料と比較した。コンポジット材料は β 単相試料よりも高い熱伝導率を示すものの、理論値よりは大きく低下しており、このことは Si 微細分散によりフォノン散乱が効果的に強められていることを示している。今後さらなる Si 粒子の微細分散化手法を開発することによりさらに低い熱伝導率を実現することで一層の高性能化が可能になるものと期待される。

4. まとめ

本研究では SPS により作製した α -Fe₂Si₅ に熱処理を施し、共析変態による β -FeSi₂/Si コンポジット材料化を行った。熱処理条件により 100nm 程度の微細な Si 微粒子が β 相マトリックスに均一に分散し、従来の β 単相試料よりも優れた熱電性能が得られた。今後、Si 相の高い電気抵抗率・熱伝導率を低減するため、熱処理プロセスの最適化による微粒子化やドーピング効果を用いたさらなる高性能化が期待される。

5. 文献

- (1) Ito M, Nagai H, Oda E et al Effects of P doping on the thermoelectric properties of β -FeSi₂. J Appl Phys 91, (2002), 2138–2142.
- (2) Pietrak K, Winiewski, TS A review of models for effective thermal conductivity of composite materials. Open Access J J Power Technol 95, (2015), 14–24.

コバルト触媒によるフッ化アルキルとアルキルグリニャール試薬とのクロスカップリング反応

神戸 宣明

1. はじめに

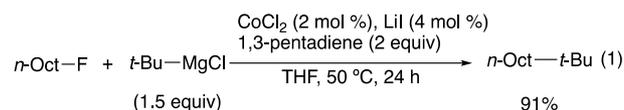
遷移金属触媒による有機ハロゲン化物と有機金属試薬とのクロスカップリング反応は、炭素骨格を構築する上で最も信頼性の高い反応の一つである。本手法は、1970年代より sp^2 炭素上でのクロスカップリング反応が精力的に研究されてきた。また、2000年代には、従来難しいと考えられてきた sp^3 炭素上でのクロスカップリング反応が我々のグループおよび国内外のグループにより立て続けに報告された。

ハロゲン化アルキルとして反応性に優れる臭化アルキルが多くの場合利用される。一方、フッ化アルキルはその炭素—フッ素結合が強固なことより、クロスカップリング反応の反応基質としては未利用であった。フッ化アルキルが多くの反応試薬に対しては安定であることより、炭素—フッ素結合をカップリング反応の基質として用いることができれば、この化学的に安定な特徴を利用した新たな合成戦略を提案できると期待できる。

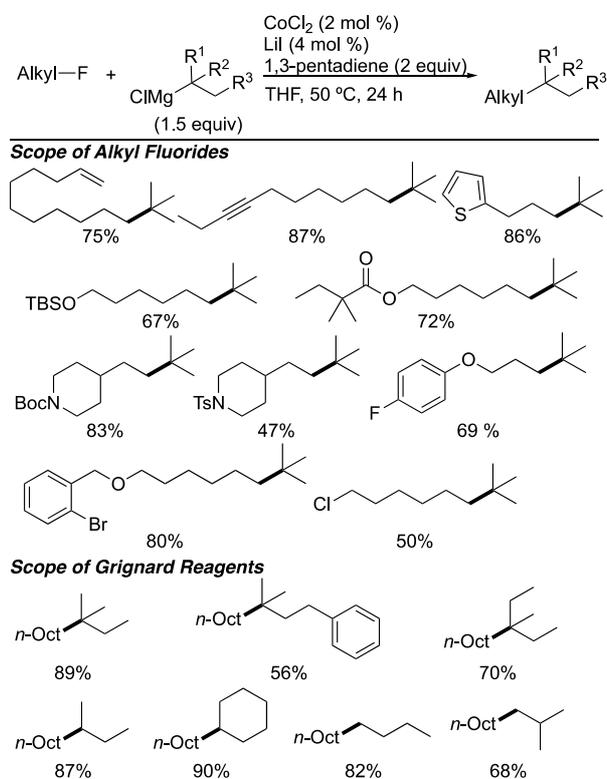
2. コバルト触媒によるフッ化アルキルとアルキルグリニャール試薬とのクロスカップリング反応

我々は、コバルト触媒とイソプレン添加剤を用いたハロゲン化アルキル類と第三級アルキルグリニャール試薬とのクロスカップリング反応による第四級炭素構築反応を2013年に報告した。本触媒系をフッ化オクチルと $t\text{-BuMgCl}$ との反応に適用したところ、反応時間の延長は必要なものの、中程度の収率で対応するカップリング生成物が得られた。しかしながら、収率の再現性が得られなかった。そこで、反応生成物を精査したところ、イソプレンへの $t\text{-BuMgCl}$ の付加反応に由来すると考えられる副生成物が観測された。これらの知見をもとに、触媒系の改良に取り組む、ジエン添加剤として1,3-ペンタジエンを用

いることにより、良好な収率でカップリング生成物を再現性よく得ることに成功した(eq 1)。



最適条件下、基質適用範囲について検討を行ったところ、種々の官能基を有するフッ化アルキルおよび第三級および第二級、第一級アルキルグリニャール試薬に本反応は適用可能であった(Scheme 1)。特筆すべき点として、比較的酸性度の高いチオフェン環やエステルなどの極性官能基、芳香環上の炭素—臭素結合も損なうことなくカップリング生成物が得られた。

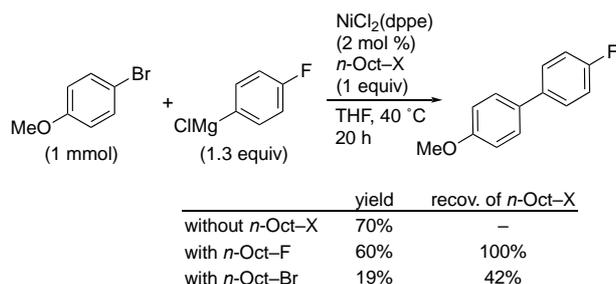


Scheme 1. コバルト触媒によるクロスカップリング反応の基質適用範囲

3. フッ化アルキルの安定性を利用した炭素骨格構築

フッ化アルキルは炭素—フッ素結合が強固なことより、様々な反応試剤に対して不活性である。よって、今回開発した炭素—フッ素結合の変換反応は、既存の反応と組み合わせることにより、反応点の保護や合成途中での反応点の導入を必要としない直截的な合成戦略を提供すると期待される。そこで、フッ化アルキルの各種反応に対する安定性を検討することとした。

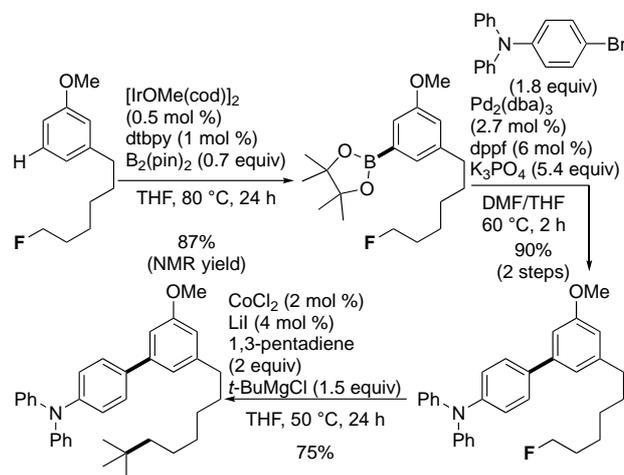
ニッケル触媒による臭化アレーンとアリールグリニヤール試薬とのクロスカップリング反応をフッ化オクチルを添加して行ったところ、フッ化オクチルは反応することなくすべて回収され、クロスカップリング反応を阻害することもなかった。一方、アルキル化試薬として汎用される臭化物を添加して反応を行うと、58%の臭化オクチルが消費され、クロスカップリング反応生成物の収率も大きく低下した (Scheme 2)。同様の検討をパラジウム触媒反応についても検討したが同様の結果を与えた。このことは、臭化物とは異なり、フッ化アルキルが種々の触媒反応と共存できることを示すものである。



Scheme 2. フッ化アルキルの共存性の検討

この知見を踏まえ、合成反応への応用を検討した (Scheme 3)。フルオロアルキル基を有するアレーンに対して、イリジウム触媒による炭素—水素結合のホウ素化反応と続く鈴木—宮浦クロスカップリング反応を行うことにより、ビアリール骨格を構築した。

これらの、触媒反応においても炭素—フッ素結合は損なわれることはなかった。引き続き、コバルト触媒による炭素—フッ素結合の切断を伴うクロスカップリング反応により第四級炭素を導入することが可能であった。



Scheme 3. 炭素—フッ素結合の切断反応を利用した合成終盤における第四級炭素導入

4. まとめ

本研究では、炭素—フッ素結合の切断を伴ったクロスカップリング反応を開発した。また、本手法以外にもフッ化アルキルをアルキル化試薬とする多成分反応を開発した²。炭素—フッ素結合が既存の触媒反応に対して不活性であることを利用することにより新たな合成戦略を提供し得ることを示した。

研究発表

- (1) “Co-Catalyzed Cross-Coupling Reaction of Alkyl Fluorides with Alkyl Grignard Reagents”, Takanori Iwasaki, Koji Yamashita, Hitoshi Kuniyasu, and Nobuaki Kambe, *Org. Lett.*, **19**, 3691-3694 (2017).
- (2) “Nickel-Catalyzed Coupling Reaction of Alkyl Halides with Aryl Grignard Reagents in the Presence of 1,3-Butadiene: Mechanistic Studies of Four-Component Coupling and Competing Cross-Coupling Reactions”, Takanori Iwasaki, Asuka Fukuoka, Wataru Yokoyama, Xin Min, Ichiro Hisaki, Tao Yang, Masahiro Ehara, Hitoshi Kuniyasu, and Nobuaki Kambe, *Chem. Sci.*, **9**, 2195-2211 (2018).

反芳香族性と開殻性が調和した分子の合成とその物性解明

小西 彬仁

1. はじめに

有機化学において(反)芳香族性の概念は、分子の性質や機能を理解する上で最も基本的な概念であると同時に、その提唱以来、数多くの実験的検証と理論的考察が行われてきた概念である。とりわけ、(反)芳香族性の発現が鍵となって、特異な電子構造のあらわれることに注目が集まっている。本研究では6員環と5員環が6-5-5-6とUの字型に縮環したジベンゾペンタレンとよばれる分子に注目し、反芳香族性と開殻性が織りなす特異な物性について紹介する。

複数の6員環(ベンゼン環)や5員環が縮合した多環式共役系化合物は機能性有機材料の構成単位として盛んに研究が行われている。なかでも、開殻性や反芳香族性を有する化合物¹⁾は、閉殻化合物や芳香族化合物に比べて小さなHOMO-LUMOギャップを有することから、その構造と物性の相関について近年特に注目を集めている。本研究では、8 π 反芳香族化合物であるペンタレン $\mathbf{1}$ にベンゼン環を縮環したジベンゾペンタレンに着目した(Figure 1)。ジベンゾペンタレンにはベンゼン環の縮環形式により2種類の構造異性体が存在する。ジベンゾ[a,e]ペンタレン $\mathbf{2}$ ²⁾は合成法が確立され機能性色素としての展開もなされているが、ジベンゾ[a,f]ペンタレン $\mathbf{3}$ ³⁾は未知化合物であった。両者はともに16 π 電子系を有するが、[a,e]体は両端の6員環でベンゼン環の性質を強く維持する。しかし、[a,f]体はベンゼン環の性質が一方の6員環上でしか維持されず、相対的に系の反芳香族性が強まる(3-A, B)と考えられる。さらに、両方の6員環での芳香族安定化を得るために開殻構造の寄与(3-C)が発現すると考えられる。これらの理由から[a,f]体は非常に不安定であると考えられた。そこでメシチル基を導入したジベンゾ[a,f]ペンタレン誘導体 $\mathbf{4}$ を設計し、合成に取り組んだ。

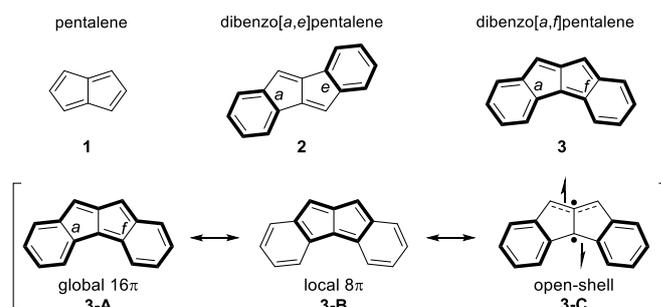
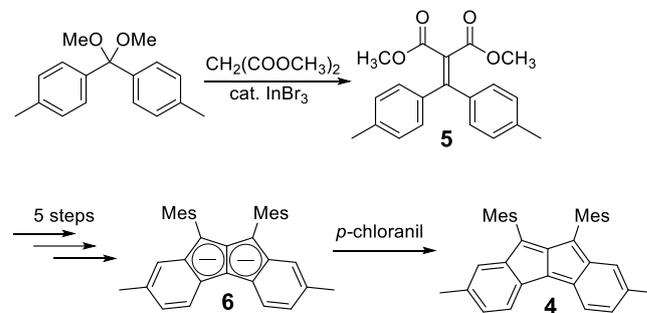


Figure 1. Structures of pentalene, dibenzo[a,e]pentalene, and dibenzo[a,f]pentalene.

2. ジベンゾ[a,f]ペンタレン誘導体の合成と単離

ジベンゾ[a,f]ペンタレン $\mathbf{4}$ の合成において、ベンズヒドリリデン骨格を有するジエステル $\mathbf{5}$ は鍵中間体である。インジウム塩を用いることで⁴⁾、ジメチルアセタールとマロン酸ジメチルから $\mathbf{5}$ を合成した(Scheme 1)。ここから比較的安定なジアニオン $\mathbf{6}$ を経由し、*p*-クロラニルで酸化することで $\mathbf{4}$ の合成と単離に成功した。



Scheme 1. Synthetic route of $\mathbf{4}$

3. ジベンゾ[a,f]ペンタレンの構造と諸物性

[a,f]体 $\mathbf{4}$ は大気下では20分で分解するほど不安定であり、安定な[a,e]体とは全く異なっていた。そこで空気や水を厳密に除いた脱気封管容器を用いて再結晶することで $\mathbf{4}$ の単結晶を得た。X線結晶構造解析でその構造を決定し(Figure 2A)、さらに別途合成した[a,e]体 $\mathbf{7}$ と結合長の比較を行った。



4は**7**とは対照的に5員環上で著しい結合交替の減少が観測され、開殻性の発現と反芳香族性の誘起が示唆された(Figure 2B)。開殻性の特徴は熱励起三重項種の挙動を観測することで明らかにすることができた。**4**のESR測定では、三重項種に特有のシグナルが観測され、温度の低下に伴いそのシグナル強度は減少したことから、基底状態は一重項と決定された。また、 $^1\text{H-NMR}$ 測定では、室温では熱励起三重項種の影響によりシグナルは観測できないが、室温から $-100\text{ }^\circ\text{C}$ へと温度を下げることで先鋭化したシグナルが得られた。主骨格のプロトンのシグナルは $4.5\text{--}5.4\text{ ppm}$ に観測され、反芳香族性に由来する常磁性環電流の誘起が示唆された(Figure 2C)。このように、開殻性と反芳香族性が共存する $[a,f]$ 体の特徴を明らかにした⁵⁾。また、サイクリックボルタンメトリー(CV)測定より、**4**のHOMO-LUMOギャップは $[a,e]$ 体**7**の 2.79 eV に対し半分以下の 1.34 eV であり、これは**4**の開殻性と反芳香族性の存在を反映したものといえる。

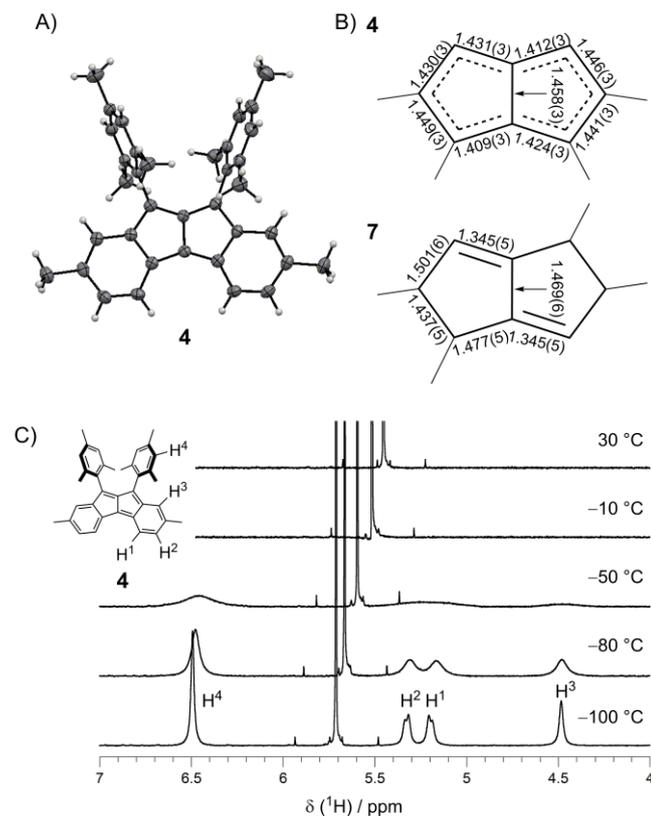


Figure 2. (A) Ortep drawing of **4**, (B) the observed bond lengths in the pentalene unit, and (C) variable-temperature $^1\text{H-NMR}$ spectra (THF- d_8) of **4** in the aromatic region.

4. $[a,f]$ 縮環型 π 拡張ペンタレン誘導体 **8, 9** の合成と物性

化合物**4**で見出された開殻性と反芳香族性が π 拡張とどのような相関があるのかを評価するため、**4**に対しベンゼン環を縮環させた**8**および**9**を合成した。得られた**8, 9**は**4**とは異なり比較的安定で、NMR測定では室温で明瞭なシグナルが観測され、閉殻化合物であることが明らかとなった。X線結晶構造解析(Figure 3A)からは、両端の6員環の結合交替は小さい一方で、ペンタレン部分には大きな結合交替が現れることが見出された。この結果はNICS計算でも支持され、特に**9**ではペンタレン部分で反芳香族性が強く維持されることが示唆された(Figure 3B)。また、**8, 9**はCV測定により小さなHOMO-LUMOギャップが見積もられた(**8**: 1.67 eV , **9**: 1.41 eV)。ジベンゾ $[a,f]$ ペンタレン**4**は開殻性と周辺 16π 系反芳香族性の影響により、特異的にHOMO-LUMOギャップが小さくなるが、**8, 9**は主にペンタレン部分の反芳香族性の増加に伴いその値が小さくなったと考えられる。また、この結果はペンタレンに対する $[a,f]$ 縮環が効果的な系のHOMO-LUMOのギャップの減少を誘起するというを示している。

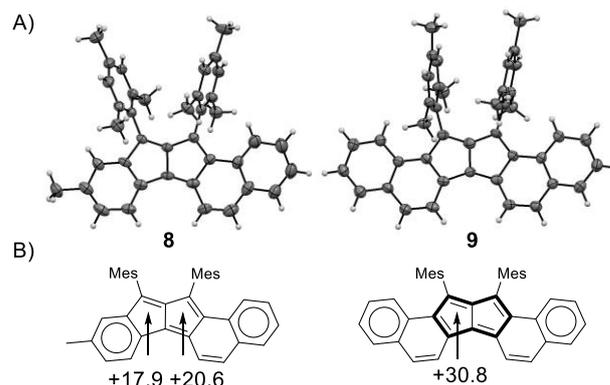


Figure 3. (A) Ortep drawings, and (B) main canonical structures with NICS(1) value (B3LYP/6-31G(d,p)/B3LYP/6-31G(d,p)) in five-membered rings of **8** and **9**.

5. 参考文献

- (1) a) M. Abe, *Chem. Rev.* **2013**, *113*, 7011. b) V. I. Minkin, M. N. Glukhovtsev, B. I. A. Simkin, *Aromaticity and Antiaromaticity: Electronic and Structural Aspects*; Wiley-Interscience publication; J. Wiley & Sons, (1994).
- (2) First synthesis of dibenzo $[a,e]$ pentalene; K. Brand, *Ber. Dtsch. Chem. Ges.* **1912**, *45*, 3071.
- (3) W. Beker, J. F. W. McOmie, S. D. Parfitt, D. A. M. Watkins, *J. Chem. Soc.* **1957**, 4026.
- (4) M. Yasuda, T. Somyo, A. Baba, *Angew. Chem. Int. Ed.* **2006**, *45*, 793.
- (5) A. Konishi, Y. Okada, M. Nakano, K. Sugisaki, K. Sato, T. Takui, M. Yasuda, *J. Am. Chem. Soc.* **2017**, *139*, 15284.

生体分子を活用した金ナノ粒子と半導体のハイブリッド材料

林 高史

1. はじめに

近年の機器分析の飛躍的進歩により、タンパク質の立体構造や機能の解明が進み、分子量が1万を超える生体分子も有機化合物として取り扱える時代が到来している。したがって、以前は単に構造解析や機能解析の研究にとどまっていたタンパク質においても、今日では我々有機化学者の手で改変したり、新しく創成することが可能になっている。その中でも、ある特定の機能を有するタンパク質を人工的な分子やナノ粒子、電極、樹脂等に修飾したハイブリッドは、両者の特色を生かした新しい生体材料として注目されている。中でも、タンパク質を活用してナノ粒子の集合構造を制御することにより、新たな機能性デバイスの創出が期待される。

我々のグループでは、電子移動・触媒・センサー機能を有するヘムタンパク質をターゲットとして選択し、ヘムとタンパク質マトリクスの精密かつ強固な分子間相互作用を基盤としてタンパク質集積構造を構築した多彩な階層構造を電極基板上に作製してきた^{1,2)}。また、タンパク質の集合化能を活用した金属ナノ粒子と半導体の融合材料の創製に取り組んできた^{3,4)}。その延長線として、会合特性を有するアミロイドペプチドを活用して、機能性ブロックとなる金ナノ粒子等の複合体と酸化タングステン WO₃ 半導体を融合した材料構築を実施しており、その成果を本稿に記す⁵⁾。

2. アミロイド-修飾金ナノ粒子の繊維状集合体を担持した酸化タングステン複合体の調製と光電変換特性

WO₃ は TiO₂ と比較してバンドギャップエネルギーが小さく、より可視光域に近い波長 ($\lambda < 400 \text{ nm}$) を利用できるため、可視光応答触媒として注目されている。金属ナノ粒子-WO₃ 複合体は、担持金属ナノ粒子のプラズモン共鳴吸収に起因する局所電場増強効果によって、励起効率および触媒活性の増強が報告されている。アミロイドβ (Aβ) は金属ナノ粒子と複合化することにより、特に繊維状の集合体を形成することが知られるタンパク質である。そこで、自己集合化能を示す生体分子としてAβを採用し、Aβ修飾金ナノ粒子 (Aβ-AuNP) を担持した WO₃ 複合体 (Aβ-AuNP@WO₃) の表面形状の制御とその光電変換活性について検証した (Figure 1)。ヒト Aβ の 1-16 残基 C 末端にグリシンとシステインを伸長した Aβ ペプチドを調製した。Aβ ペプチドを 1% ドデシル硫酸ナトリウム界面活性剤の存在下、直径 15 nm のクエン酸保護金ナ

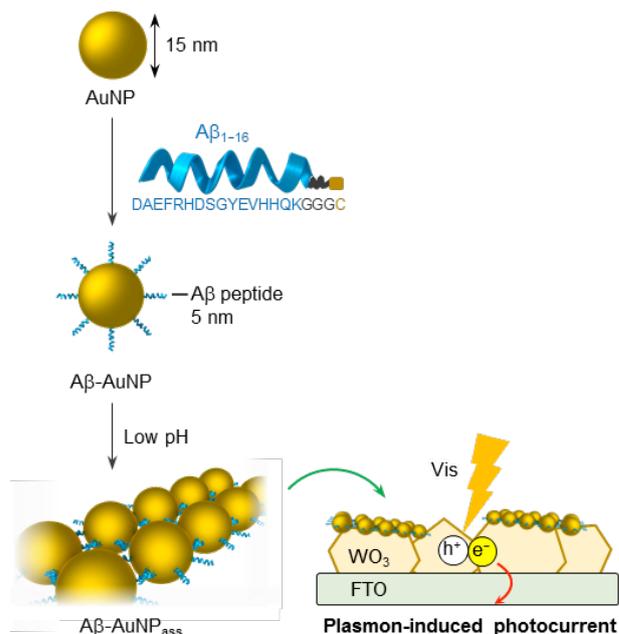


Figure 1. Preparation of a WO₃ composite with fibrous AuNP assembly using amyloid-β.

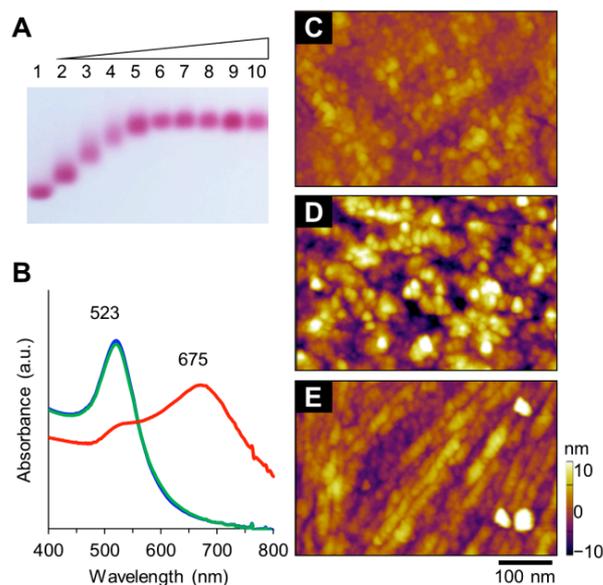


Figure 2. (A) Agarose gel electrophoresis of Aβ-AuNPs: from lane 1 to 10 (0, 80, 160, 240, 320, 390, 470, 550, 630, and 710 eq. Aβ-peptide vs AuNP). (B) UV/vis absorption spectra of Aβ-AuNP at pH 11 (blue), pH 7.0 (green), and pH 4.5 (red) in 10 mM KPi or NaOAc buffer. (C)-(E) AFM images of Aβ-AuNP at pH 11, pH 7.0, and pH 4.5, respectively.

ノ粒子に修飾後、過剰のリポ酸(LA)を添加して A β -AuNP を得た。電気泳動より、約 300 のペプチド鎖が一つの A β -AuNP に修飾していること(Figure 2A)、また異なる pH 条件(pH = 11, 7, 4.5) で A β -AuNP 溶液の UV/vis 吸収が、塩基性から中性域で観測された 523 nm から、酸性条件下で 675 nm へと長波長シフトすることから、A β -AuNP は酸性条件下で集合体を形成することが示唆された(Figure 2B)。A β -AuNP をガラス基板に乾固させ原子間力顕微鏡観察したところ、A β -AuNP は pH 11 で分散(A β -AuNP_{dis})、pH 4.5 で線維状の集合体(A β -AuNP_{ass})を形成する(Figure 2C-2E)。以上の結果より A β -AuNP は pH 依存的に集合構造が変化し、酸性条件下で線維状の集合構造を形成することが示された。

次に、AuNP 担持形状が異なる WO₃ 複合体を FTO 基板上に作製し、その光触媒能を評価した。WO₃ を焼結した FTO 基板上に、pH 11、あるいは pH 4.5 に調製した A β -AuNP を吸着させて触媒電極、A β -AuNP_{dis}@WO₃、A β -AuNP_{ass}@WO₃ をそれぞれ調製した。いずれの基板も 1.2-1.3 Au wt% の同程度の金担持量であることを ICP 発光分光分析より確認した。可視光照射実験において(420 nm < λ < 750 nm)、A β -AuNP_{ass}@WO₃ は約 54 $\mu\text{A cm}^{-2}$ の最も大きな光電変換応答を示し、約 25 $\mu\text{A cm}^{-2}$ を示した LA-AuNP@WO₃ に比べ、大きな活性向上が見られた(Figure 3A)。A β -AuNP_{dis}@WO₃ は約 25 $\mu\text{A cm}^{-2}$ を示し、分散担持された金ナノ粒子は活性向上にほとんど寄与しないことが示唆された。また、アクションスペクトル測定の結果、A β -AuNP_{ass}@WO₃ は 550 nm 以上の波長域で光電変換効率の向上が見られた(Figure 3B)。線維状の集合体形成により、金ナノ粒子が長波長域に吸光特性を獲得したためと推測される(Figure 3C)。

以上、可視光応答性光触媒である金ナノ粒子-WO₃ 複合体において、担持された金ナノ粒子の集合構造を自己集合性

A β ペプチドにより制御し、その光電変換効率を評価した。A β を修飾した金ナノ粒子は酸性条件下で繊維状の金ナノ粒子集合体を形成し、長波長域のプラズモン共鳴吸収を示すとともに WO₃ の光電変換効率を向上させることを明らかにした。

3. 総括

可視光応答性光触媒である金ナノ粒子-WO₃ 複合体において、担持された金ナノ粒子の集合構造を自己集合性A β ペプチドにより制御し、その光電変換効率を評価した。A β を修飾した金ナノ粒子は酸性条件下で繊維状の金ナノ粒子集合体を形成し、長波長域のプラズモン共鳴吸収を示すとともに WO₃ の光電変換効率を向上させることを明らかにした⁵⁾。

References

- 1) Oohora, K.; Onoda, A.; Hayashi, T. *Chem. Commun.* **2012**, *48*, 11714-11726.
- 2) Onoda, A.; Kakikura, Y.; Uematsu, T.; Kuwabata, S.; Hayashi, T. *Angew. Int. Chem. Ed.* **2012**, *51*, 2628-2631.
- 3) Harada, H.; Onoda, A.; Uematsu, T.; Kuwabata, S.; Hayashi, T. *Langmuir* **2016**, *32*, 6459-6467.
- 4) Harada, H.; Onoda, A.; Moriguchi, S.; Hayashi, T. *ChemistrySelect* **2016**, *1*, 5666-5670.
- 5) Onoda, A.; Harada, H.; Uematsu, T.; Kuwabata, S.; Yamanaka, R.; Sakurai, S.; Hayashi, T. *RSC Adv.* **2017**, *7*, 1089-1092.

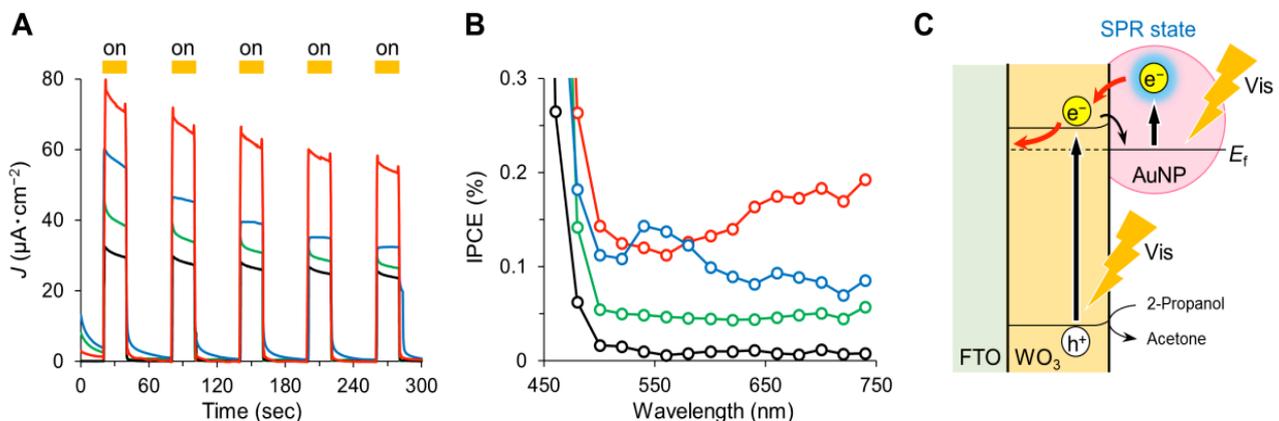


Figure 3. (A) Photocurrent response of WO₃ (black), LA-AuNP@WO₃ (green), A β -AuNP_{dis}@WO₃ (blue), and A β -AuNP_{ass}@WO₃ (red) during on-off cycles of visible light irradiations ($\lambda = 420-750$ nm). Photoanodes under constant bias voltage at +300 mV (vs. Ag/AgCl) in 1.0 M KOH with 0.5 M 2-propanol. (B) Action spectra of WO₃ (black), AuNP@WO₃ (green), A β -AuNP_{dis}@WO₃ (blue), and A β -AuNP_{ass}@WO₃ (red). IPCE values are averaged through three independent experiments. (C) Schematic representation of surface plasmon-induced photocurrent generation.

ニッケル触媒による芳香族アミドのオルト位直接ベンジル化反応

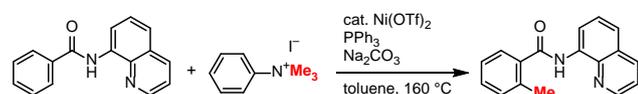
阿野 勇介

1. はじめに

遷移金属触媒を用いるクロスカップリング反応は、多様な炭素-炭素 (C-C) 結合の効率的な形成法として、有機合成化学において現在最も信頼されている手法の1つである。一般的なクロスカップリング反応では、求電子反応剤と求核反応剤が遷移金属触媒を介して反応することで新たな結合が形成される。求電子反応剤としては有機ハロゲン化合物が最もよく用いられているが、これを他の有機化合物が代替するクロスカップリング反応も報告されている。例えば、第四級アンモニウム塩と種々の有機金属化合物とのクロスカップリング反応は、ニッケル触媒やロジウム触媒などを用いることで達成されている。また、単純な有機化合物と遷移金属触媒の反応によって高活性な有機金属種を反応系中で発生させ、それを変換反応に利用する炭素-水素 (C-H) 結合の直接官能基化法が、近年盛んに研究されている。この手法においても、第四級アンモニウム塩を求電子反応剤として利用する試みがなされているが、その適用範囲は限られている。²⁾

これに対して、われわれはニッケル触媒を用いる芳香族アミドのオルト位 C-H 結合のアルキル化反応に関する研究の過程で、フェニルトリメチルアンモニウム塩が C-H 結合の直接メチル化反応において有効な反応剤であることを見出している (図 1a)。³⁾ そこで、このアンモニウム塩をベンジルトリメチルアンモニウム塩に替えて検討したところ、芳香族アミドのオルト位 C-H 結合の直接ベンジル化反応が進行することを見出した (図 1b)。⁴⁾ 以下にその詳細を報告する。

(a) Previous Work



(b) This Work

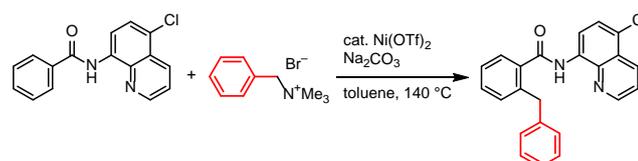
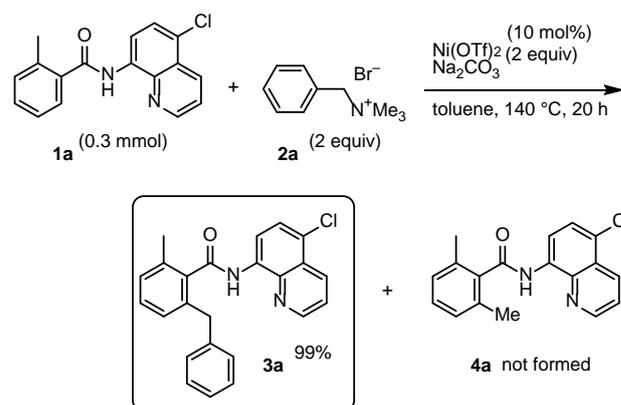


図 1 ニッケル触媒による第四級アンモニウム塩を用いた芳香族アミドのオルト位アルキル化反応

2. ニッケル触媒による C-H ベンジル化反応

先にわれわれは、二価のニッケル錯体を触媒とする芳香族アミドのオルト位 C-H 結合の変換反応において、8-アミノキノリン骨格を有する芳香族アミドが高い反応性を示すことを明らかにしている。そこで、芳香族アミド **1a** と臭化ベンジルトリメチルアンモニウム **2a** との反応に関して、反応条件を種々検討した。その結果、10 mol% の $\text{Ni}(\text{OTf})_2$ と 2 当量の Na_2CO_3 存在下、トルエン中 140 °C、20 時間反応させる条件において、目的とするベンジル化生成物 **3a** を単離収率 99% で得た (式 1)。このとき、先に報告したようなメチル化生成物 **4a** は全く得られなかった。



式 1 臭化ベンジルトリメチルアンモニウムを用いたニッケル触媒による芳香族アミドの直接ベンジル化反応

なお、他のニッケル触媒前駆体や、ホスフィン配位子の添加、用いるアンモニウム塩についても検討したが、いずれも有効な結果は得られなかった。

続いて、上述の条件を標準条件として芳香族アミドの適用範囲を検討した (図 2)。オルト位に嵩高い置換基を有する基質でも対応するベンジル化生成物が高収率で得られた。また、芳香環上に電子供与性あるいは電子求引性の置換基を有する基質やハロゲン置換された基質も、良好な収率でベンジル化生成物を与えた。これらの反応はいずれも立体的に空いた位置で選択的に進行し、ジベンジル化生成物はほとんど得られなかった。3-チオフェンカルボン酸アミドでは、酸性度の高い 2-位の C-H 結合が切断されてベンジル化が進行した。

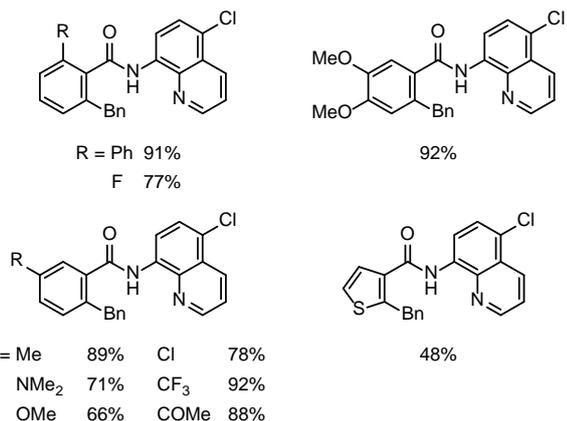


図2 芳香族アミドの適用範囲

置換ベンジルアンモニウム塩について検討したところ、その芳香環上の置換様式に関わらず目的の反応は良好に進行した。しかし、ジフェニルメチル基を有する第四級アンモニウム塩を用いても対応する生成物は得られなかった (図3)。

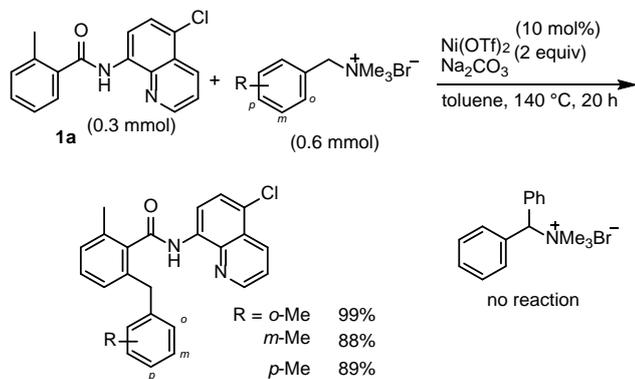


図3 第四級ベンジルアンモニウム塩の適用範囲

反応機構に関する知見を得るために、以下に示す検討を行った。まず、ラジカル中間体の関与について調べるために、ラジカル捕捉剤として 2,2,6,6-テトラメチルピペリジン 1-オキシル (TEMPO) を共存させる条件下で反応を行った。その結果、目的の生成物が収率 50% で得られるとともに TEMPO のベンジル化生成物が収率 23% で進行することが明らかになった (図4a)。TEMPO のベンジル化に関する反応機構の詳細は明らかではないが、この結果は **1a** のベンジル化においてラジカル中間体が関与する可能性は低いことを示唆している。また、本反応系中でのベンジルアンモニウム塩の熱分解によって臭化ベンジルが生成し、これがベンジル化反応剤として作用することが想定される。そこで、芳香族アミド **1a** と臭化ベンジルおよびヨウ化メチルの反応を標準反応条件下にて実施したところ、ベンジル化生成物 **3a** が低収率で得られたものの、大部分の芳香族アミド **1a** が回収された (図4b)。したがって、本反応では第四級ベンジルアンモニウム塩が有効なベンジル化反応剤として作用しているといえる。

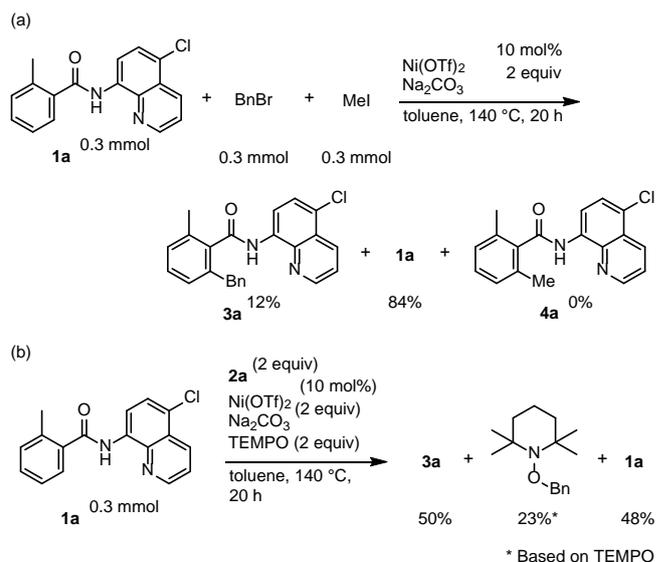


図4 反応機構に関する研究

最後に、本反応の想定機構を図4に示す。まず、二価ニッケル錯体の配位子交換によって **II** を形成し、C-H 結合の切断を経てニッケラサイクル **III** が生じる。**III** とベンジルアンモニウム塩の反応による四価ニッケル中間体 **IV** の形成と、続く **V** の還元的脱離とプロトン化を経て、ベンジル化生成物が得られるとともに、二価ニッケル触媒が再生する。

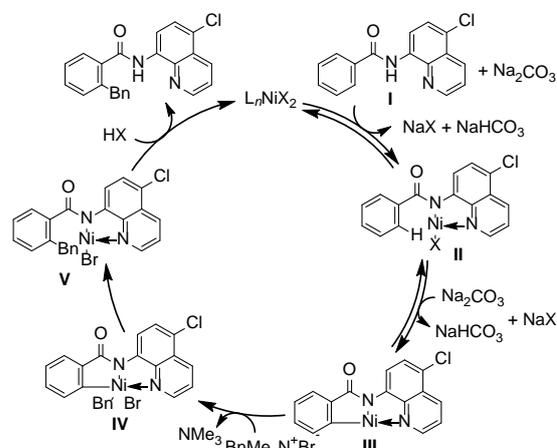


図5: 想定反応機構

参考文献

- (a) Suzuki, A.; Yamamoto, Y. *Chem. Lett.* **2011**, *40*, 894–901.
- (b) Negishi, E.-i. *Angew. Chem., Int. Ed.* **2011**, *50*, 6738–6764.
- Zhu, F.; Tao, J.-L.; Wang, Z.-X. *Org. Lett.* **2015**, *17*, 4926–4929.
- Uemura, T.; Yamaguchi, M.; Chatani, N. *Angew. Chem., Int. Ed.* **2016**, *55*, 3162–3165.
- Sasagawa, A.; Yamaguchi, M.; Ano, Y.; Chatani, N. *Isr. J. Chem.* **2017**, *57*, 964–967.



シンポジウム・研究会等

- (1) 第31回コンピューショナル・マテリアルズ・デザイン (CMD®) ワーク ショップ
2017年9月11日(月)～9月15日(金)
大阪大学大学院基礎工学研究科 (豊中キャンパス)
- (2) 9th ASIA Computational Materials Design Workshop
2017年11月29日(水) ～ 12月1日(金)
Location : Vietnam Japan University, Hanoi, Vietnam
Cochairmen : Shibutani Yoji (OU, VJU), Oguchi Tamio (OU), Nguyen Hoang Oanh (VJU)
- (3) 第32回コンピューショナル・マテリアルズ・デザイン (CMD®) ワーク ショップ
2018年2月26日(月)～3月2日(金)
大阪大学大学院基礎工学研究科 (豊中キャンパス)

刊行物

- (1) CAMT Newsletter No.12 2017年4月28日発行
- (2) アトミックデザイン研究センター アニュアルレポート 2017年5月18日発行
- (3) CAMT Newsletter No.13 2017年8月31日発行
- (4) アトミックデザイン研究センター紹介パンフレット 2017年11月22日発行
- (5) CAMT Newsletter No.14 2017年12月26日発行

 量子設計研究部門 量子表面構造設計分野 論文

- (1) “Local mass and energy transports in evaporation processes from a vapor-liquid interface in a slit pore based on molecular dynamics”, K. Fujiwara, M. Shibahara, AIP Advances, (2018) in press
- (2) “Molecular dynamics study on effects of nanostructured surfaces on heterogeneous nucleation of liquid droplets”, G. Uno, K. Fujiwara, Y. Ueki, M. Shibahara, Transactions of the JSME (in Japanese), (2018) in press.
- (3) “Molecular dynamics study of thermal resistance of solid-liquid interface in contact with single layer of nanoparticles”, Y. Ueki, Y. Miyazaki, M. Shibahara, T. Ohara, International Journal of Heat and Mass Transfer, 120, pp. 608-623 (2018).
- (4) “Thermophysical properties of carbon-based material nanofluid”, Y. Ueki, T. Aoki, K. Ueda, M. Shibahara, International Journal of Heat and Mass Transfer, 113, pp. 1130-1134 (2017).
- (5) “Thermal conductivity of molten salt-based nanofluid”, Y. Ueki, N. Fujita, M. Kawai, M. Shibahara, AIP Advances, 7(5) 055117 (2017).
- (6) “A molecular dynamics study on the thermal energy transfer and momentum transfer at the solid-liquid interfaces between gold and sheared liquid alkanes”, A. R. Saleman, H. K. Chilukoti, G. Kikugawa, M. Shibahara, T. Ohara, International Journal of Thermal Sciences, 120, 273-288 (2017).
- (7) “Key factors limiting carbon nanotube strength:Structural characterization and mechanical properties of multi-walled carbon nanotubes”, Keiichi Shirasu, Itaru Tamaki, Takamichi Miyazaki, Go Yamamoto, Raman Bekarevich, Kaori Hirahara, Yoshinobu Shimamura, Yoku Inoue, Toshiyuki Hashida, Mechanical Engineering Journal, vol. 4 (5) (2017) 17-00029.
- (8) “Coalescence of Metal Nanoparticles as the Origin of Nanocapillary Forces in Carbon Nanotubes”, Raman Bekarevich, Masami Toyoda, Kaifeng Zhang, Toshihiko Nakata, Shin-ichi Taniguchi, Kaori Hirahara, ACS Journal of Physical Chemistry C vol. 121 (2017), 9606–9611.
- (9) “Joule Heat-Assisted Loading of an Individual Gold Nanoparticle into Carbon Nanotube”, Raman Bekarevich, Masami Toyoda, Shuichi Baba, Kaifeng Zhang, Toshihiko Nakata, Shin-ichi Taniguchi, Kaori Hirahara, Proceeding of Chemistry Conferences vol. 2 (Lectures and Workshop: In Series of Nanotechnology and Nanomaterial), (2017) 7-13.
- (10) “Effects of Adsorbates (CO, COH, and HCO) on the Arrangement of Pd Atoms in PdCu(111)”, Allan Abraham B. Padama, Anna Patricia S. Cristobal, Joey D. Ocon, Wilson Agerico Diño, Hideaki Kasai, Journal of Physical Chemistry C 121 (2017) 17818-17826 (0.1021/acs.jpcc.7b02794).
- (11) “Conformational effects on hydrazine and OH coadsorption on Ni(111): A first-principles investigation”, Mohammad Kemal Agusta, Prasetyo Hadi Purwoko, Adhitya Gandaryus Saputro, Fadjar Fathurrahman, Hermawan K. Dipojono, Wilson Agerico Diño, Surface Science 664 (2017) 185-193 (10.1016/j.susc.2017.06.013).
- (12) “Molecular Adsorption, Hindered Rotation, and Species Separation of H₂/SrTiO₃(001)”, Koji Shimizu, Wilson Agerico Diño, Hiroshi Nakanishi, Hideaki Kasai, Katsuyuki Fukutani, Ayako Yajima, Journal of the Physical Society of Japan 86 (2017) 073601-1-4 (10.7566/JPSJ.86.073601).
- (13) “Influence of reactive gas-phase species on the structure of an air/water interface”, Takahiro Kondo, Masanao Tsumaki, Wilson Agerico Diño, Tsuyohito Ito, Journal of Physics D: Applied Physics 50 (2017) 244002-1-5 (10.1088/1361-6463/aa7159).
- (14) “超音速酸素分子ビームによる銅合金表面の酸化過程解明”, 岡田美智雄、津田泰孝、吉越章隆, Wilson Agerico Diño, 銅と銅合金、第56巻1号 (2017) 232-236

- (copper-brass.gr.jp/wordpress/wp-content/uploads/institute/gakkai-shi/56th/vol56-mokujiwa1-8.pdf)
 “Oxidation Processes of Copper-Gold Alloy Surface Induced by Supersonic Oxygen Molecular Beam”, Michio Okada, Yasutaka Tsuda, Akitaka Yoshigoe, Wilson Agerico Diño (in Japanese), Journal of Japan Institute of Copper, Volume 56:(1) (2017) 232-236.
- (15) “CO-induced Pd segregation and the effect of subsurface Pd on CO adsorption on CuPd surfaces”, Allan Abraham Bustria Padama, R.A.B. Villaos, J.R. Albia, Wilson Agerico Diño, Hiroshi Nakanishi, Hideaki Kasai, Journal of Physics: Condensed Matter 29:(2) (2017) 025005-1-8 (10.1088/0953-8984/29/2/025005).
- (16) 「分子動力学法によるマグネシウムナノツイン構造の塑性変形機構解析」, 奥村大, 大塚真生, 渋谷陽二, 材料, Vol.67, pp.215-221 (2018)
- (17) “Buckling and Postbuckling of Etching-induced Wiggling in a Bilayer Structure with Intrinsic Compressive Stress”, D. Okumura, J. Sugiura, H. Tanaka, Y. Shibutani, International Journal of Mechanical Sciences, (accepted), 2018年03月
- (18) “Simple Evaluation Method of Adhesive Failure Criterion in Multiaxial Stress States by Uniaxial Tensile Tests”, M. Iimori, H. Tanaka, M. Kimura, Y. Shibutani, Y. Liu, JSME Mechanical Engineering Journal, Vol.5, No.1, 17-00577, 2018年02月

●国際会議

- (1) “Molten salt thermal conductivity enhancement by mixing nanoparticles”, Y. Ueki, N. Fujita, M. Kawai, M. Shibahara, Proc. of 13th International Symposium on Fusion Nuclear Technology, ISFNT-13, Kyoto, Japan, September 25-29, 2017.
- (2) “Local energy transport in evaporation processes of the liquid in a slit pore based on the molecular dynamics method”, K. Fujiwara, M. Shibahara, Proc. of the Ninth JSME-KSME Thermal and Fluids Engineering Conference, Okinawa, Japan, October 27-30, (2017).
- (3) “Thermal resistance measurement of nanoparticle layer deposited solid-liquid interface”, Y. Ueki, K. Kurata, T. Oyabu, M. Shibahara, Proc. of the Ninth JSME-KSME Thermal and Fluids Engineering Conference, Okinawa, Japan, October 27-30, (2017).
- (4) “Mechanism of thermal energy transfer in nanoscale solid-liquid systems”, M. Shibahara, G. Kikugawa, T. Ohara, Proc. of the 17th International Symposium Advanced Fluid Information, November 1-3, Sendai, Japan, (2017).
- (5) “Qualification experiment of ultrasonic doppler velocimetry of lead-lithium flow”, Y. Ueki, Y. Noguchi, M. Shibahara, Proc. of 11th Pacific Symposium on Flow Visualization and Image Processing (PSFVIP-11), Kumamoto, Japan, December 1-3 (2017).
- (6) “Surface as a Playground for Studying Gas-Surface Reaction Dynamics - increasing the ortho-para H₂ conversion yield via molecular orientation , a case study (invited talk) ”, Wilson Agerico Diño, 13th International Conference of Computational Methods in Science and Engineering (ICCMSE 2017), The MET Hotel, Thessaloniki, Greece, 21-25 April 2017.
- (7) “Surface as a Foundation for Realizing Designer Materials (invited lecture)”, Wilson Agerico Diño, SUMMER SCHOOL NANOSCIENCES Fundamental and Applications Emphasizing in Nanomedicine, Institut Teknologi Bandung, Indonesia, 24 July - 5 August 2017.
- (8) “Experimental and Theoretical Studies on Oxidation of Cu-Au Alloy Surfaces—Effect of Bulk Au Concentration—”, Wilson Agerico Diño, Michio Okada, Kohei Oka, Kazuki Kojima, Ashitaka Yoshigoe, Hideaki Kasai, 33rd European Conference on Surface Science (ECOSS 33), Szeged, Hungary, 27 August - 1 September 2017.
- (9) “Interstitial impurity induced magnetism on lead oxide surface”, Elvis Flaviano Arguelles, Shuichi Amino, Susan Aspera, Hiroshi Nakanishi, Hideaki Kasai, Wilson Agerico Diño, 33rd European Conference on Surface Science (ECOSS 33), Szeged, Hungary, 27 August - 1 September 2016.

- (10) “Nuclear bound states of H₂ on a stepped metal surface”, Elvis Flaviano Arguelles, Hideaki Kasai, Katsuyuki Fukutani, Ayako Yajima, Kohei Nakayama, Seiji Yamashita, Wilson Agerico Diño, 33rd European Conference on Surface Science (ECOSS 33), Szeged, Hungary, 27 August - 1 September 2017.
- (11) “Finite element simulations on the elastic constants and large deformations of orthotropic laminated open-cell frameworks with negative Poisson’s ratios”, H. Tanaka, K. Suga, N. Iwata, D. Okumura, Y. Shibutani, 20th International Conference of Composite Structures (ICCS20), 4-7 September, 2017 (Paris, France)

●国内会議

- (1) 「スリット構造内に存在する液体の蒸発過程時の局所エネルギー輸送に関する分子動力学解析」, 藤原邦夫, 芝原正彦, 第 54 回日本伝熱シンポジウム講演論文集, (2017) .
- (2) 「炭素系材料微粒子を含む液体の熱物性変化」, 植木祥高, 青木貴嗣, 上田健太, 芝原正彦, 第 54 回日本伝熱シンポジウム講演論文集, (2017).
- (3) 「単一微小液滴の蒸発過程における混合分子の挙動と影響に関する分子動力学的研究」, 伊森大記, 芝原正彦, 植木祥高, 藤原邦夫, 第 54 回日本伝熱シンポジウム講演論文集, (2017).
- (4) 「スリット構造内に気液界面を有する系における局所エネルギー輸送に関する分子動力学解析」, 藤原邦夫, 芝原正彦, 日本機械学会 2017 年度年次大会講演論文集, (2017).
- (5) 「スペクトル解析に基づく固液界面熱抵抗に関する分子動力学的研究」, 中田尚吾, 藤原邦夫, 植木祥高, 芝原正彦, 日本機械学会関西学生会 2017 年度学生員卒業研究発表講演会, (2018).
- (6) 「凝固界面と微粒子の相互作用に関する分子動力学的研究」, 宮本智也, 藤原邦夫, 植木祥高, 芝原正彦, 日本機械学会関西学生会 2017 年度学生員卒業研究発表講演会, (2018).
- (7) 「親水・疎水平板間の液体蒸発に関する分子動力学的研究」, 村島秀明, 植木祥高, 藤原邦夫, 芝原正彦, 日本機械学会関西学生会 2017 年度学生員卒業研究発表講演会, (2018).
- (8) 「微細構造を有する壁面上での凝固過程に関する分子動力学的研究」, 松尾聡志, 植木祥高, 藤原邦夫, 芝原正彦, 日本機械学会関西学生会 2017 年度学生員卒業研究発表講演会, (2018).
- (9) 「微粒子混合による熔融塩の熱伝導率変化」, 植木祥高, 藤田尚之, 芝原正彦, 原子力学会 2018 年春の年会予稿集, (2018)
- (10) 「カーボンナノチューブの直径が濡れ性に与える影響の分子動力学解析」, 今立呼南, 古田悠真, 平原佳織, 山口康隆, 第 54 回日本伝熱シンポジウム講演論文集 (2017-5) (2017) G235, 大宮ソニックシティ, 大宮市, 5 月 25 日.
- (11) 「小動物の足裏の巧妙さとその模倣 —粘着テープへの応用—」, 平原佳織, 日本繊維技術士センター第 59 回公開講演会 (繊維技術), 大阪産業創造館, 大阪市, 5 月 26 日.
- (12) 「原子間力顕微鏡を用いた力計測によるカーボンナノチューブ 1 本の濡れ性に対する曲率が及ぼす影響の評価」, 今立呼南, 古田悠真, 山口康隆, 平原佳織, 日本顕微鏡学会第 73 回学術講演会 要旨集, (2017) p.60, 札幌コンベンションセンター, 札幌市, 6 月 1 日.
- (13) 「エアログラファイト球殻粒子の合成における酸化亜鉛除去方法の検討」, 徐振梓, 平原佳織, 第 78 回応用物理学会学術講演会講演予稿集 (2017) 7a-C11-12, 福岡国際会場、福岡市, 9 月 5- 8 日.
- (14) 「カーボンナノチューブ・ヤモリテープの水中フォースカーブ計測」, 辻田康平, 平原佳織, 第 78 回応用物理学会学術講演会講演予稿集 (2017) 6a-C19-7, 福岡国際会場、福岡市, 9 月 5- 8 日.
- (15) “Morphology Effect on Proton Dynamics in Nafion^(R) 117, Sulfonated Polyether Ether Ketone (SPEEK), and Graphene Oxide-Sulfonated Polyether Ether Ketone (GO-SPEEK) ”, Jun Xing Leong, Wilson Agerico Diño, Ahmad Azizan, Daud Wan Ramli Wan, 笠井秀明, 第 78 回応用物理学会秋

- 季学術講演会, 福岡国際会議場・福岡国際センター・福岡サンパレス, 2017年9月.
- (16) “SrTiO₂(001)における H₂ 分子吸着、束縛回転、及び回転状態選別”, 清水康司, Wilson Agerico Diño, 中西寛, 笠井秀明, 福谷克之, 矢嶋理子, 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会, 福岡国際会議場・福岡国際センター・福岡サンパレス, 2017年9月.
 - (17) “Interstitial Impurity-Induced Magnetism on a Layered Oxide Surface”, Elvis Flaviano Arguelles, Shuichi Amino, Susan Aspera, Hiroshi Nakanishi, Hideaki Kasai, Wilson Agerico Diño, 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会, 福岡国際会議場・福岡国際センター・福岡サンパレス, 2017年9月.
 - (18) “Quantum Dynamics of H₂ Nuclear Spin States in a Stepped Metal Surface”, Elvis Flaviano Arguelles, Hideaki Kasai, Katsuyuki Fukutani, Ayako Yajima, Kyusuke Nakayama, Seiji Yamashita, Wilson Agerico Diño, 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会, 福岡国際会議場・福岡国際センター・福岡サンパレス, 2017年9月.
 - (19) “H₂ nuclear spin isomers transition on a stepped metal surface”, Elvis Flaviano Arguelles, 笠井秀明, 福谷克之, Wilson Agerico Diño, 日本物理学会 2017 年秋季大会, 岩手大学上田キャンパス, 2017年9月.
 - (20) “SrTiO₂(001)における H₂ 分子吸着、束縛回転、及び回転状態選別”, 清水康司, Wilson Agerico Diño, 中西寛, 笠井秀明, 福谷克之, 矢嶋理子, 日本物理学会 2017 年秋季大会, 岩手大学上田キャンパス, 2017年9月.
 - (21) “ナフィオン(Nafion[®])117、スルホン化ポリエーテルエーテルケトン(SPEEK)及び酸化グラフェン・スルホン化ポリエーテルエーテルケトン(GO-SPEEK)におけるプロトンダイナミクス・形態学的効果”, Jun Xing Leong, Wilson Agerico Diño, Ahmad Azizan, Daud Wan Ramli Wan, 笠井秀明, 日本物理学会 2017 年秋季大会, 岩手大学上田キャンパス, 2017年9月.
 - (22) “Interface of Polyethylene Terephthalate (PET) Directly Laser Joined with Stainless Steel (SUS304)”, Wilson Agerico Diño, 川人洋介, 第 65 回応用物理学会春季学術講演会, 早稲田大学西早稲田キャンパス, 2018年3月.
 - (23) “Interface of Polyethylene Terephthalate (PET) Directly Laser Joined with Stainless Steel (SUS304)”, Wilson Agerico Diño, 川人洋介, 日本物理学会第 73 回年次大会 (2018 年), 東京理科大学野田キャンパス, 2018年3月.
 - (24) 「ひずみ勾配弾性理論の数理的特徴とその応用」, 垂水竜一, 渋谷陽二, 第 2 回マルチスケール材料力学シンポジウム (2017-05.26, 名城大学 天白キャンパス)
 - (25) 「分子動力学法による Mg ナノツイン構造の欠陥の生成と発露挙動」, 大塚真生, 奥村大, 渋谷陽二, 日本材料学会第 66 期通常総会・学術講演会 (2017-05.26-28, 名城大学 天白キャンパス)
 - (26) 「二次元カイラル系構造体の連続体近似とそのマルチスケール解析」, 垂水竜一, 野瀬勇斗, 渋谷陽二, 第 22 回計算工学講演会 (2017-05.31-06.02, ソニックシティー)
 - (27) 「多軸応力状態の接着層の強度評価手法の提案と接着層厚み効果の検討」, 飯森理人, 田中展一, 渋谷陽二, 2017 年計算力学講演会 (2017-09.16-18, 近畿大学)
 - (28) 「二次元周期構造体の曲げ変形特性に現れるサイズ効果の解析」, 木村雄大, 垂水竜一, 渋谷陽二, 2017 年計算力学講演会 (2017-09.16-18, 近畿大学)
 - (29) 「ひずみ勾配弾性理論を用いた転位芯近傍の応力場解析」, 小林舜典, 堀川由人, 垂水竜一, 渋谷陽二, 2017 年計算力学講演会 (2017-09.16-18, 近畿大学)
 - (30) 「群論を用いたひずみ勾配弾性体の構成式の再構成」, 垂水竜一, 小林舜典, 渋谷陽二, 2017 年計算力学講演会 (2017-09.16-18, 近畿大学)
 - (31) 「ひずみ勾配弾性理論を用いた点欠陥のモデリング」, 小林舜典, 垂水竜一, 渋谷陽二, 2017 年日本物理学会秋季大会 (2017-09.22-25, 岩手大学)
 - (32) 「二次元周期構造体の基準振動モードとサイズ効果」, 木村雄大, 垂水竜一, 渋谷陽二, 2017

- 年日本物理学会秋季大会 (2017-09.22-25, 岩手大学)
- (33) 「非線形分子振動に現れる高調和振動の対称性とその選択則」, 垂水竜一, 渋谷陽二, 2017年日本物理学会秋季大会 (2017-09.22-25, 岩手大学)
- (34) 「交異方性積層セル構造体の力学特性評価とその応用」, 田中 展, 須賀 海斗, 奥村 大, 渋谷 陽二, 第 28 回新構造・機能制御と傾斜機能材料シンポジウム (2017-08.07-08, 名古屋工業大学)
- (35) 「分子動力学法による Mg ナノツイン構造の変形機構解析」, 奥村大, 大塚真生, 渋谷陽二, 日本機械学会 M&M2017 材料力学カンファレンス (2017.10.07-09, 北海道大学)
- (36) 「離散的なねじり回転に伴う環状弾性体のもつれ変形に関する考察」, 田中 展, 南條 隆正, 渋谷 陽二, 日本機械学会 M&M2017 材料力学カンファレンス (2017-10.07-09, 北海道大学)
- (37) 「単軸圧縮下における低自由度周期リンク構造の変形遷移解析」, 浜田 一駿, 田中 展, 渋谷 陽二, 日本機械学会 M&M2017 材料力学カンファレンス ポスターセッション (2017-10.07-09, 北海道大学)
- (38) 「均質化法に基づく負のポアソン比を示す異方性積層セル構造体の有限要素解析」, 須賀海斗, 田中 展, 奥村 大, 渋谷 陽二, 日本機械学会 M&M2017 材料力学カンファレンス ポスターセッション (2017-10.07-09, 北海道大学)
- (39) 「タイヤゴムの摩擦・摩耗に関する粗い表面の特性評価」, 田中 展, 松尾 勇汰, 竹澤 宏典, 渋谷 陽二, トライボロジー会議 2017 秋 (2017-11.15-17, サンポートホール高松)

● 著書・解説

- (1) 「ナノスケールの微細構造が流体-固体界面のエネルギー輸送機構に与える影響」, 芝原正彦, 伝熱, Vol. 56, No. 236, pp.25-30, (2017).
- (2) 「機械工学年鑑 2017 (8・1・3 伝熱の分担執筆)」, 芝原正彦, 日本機械学会, pp.3-5, (2017).
- (3) 「低圧燃焼場で生成するナノ粒子」, 日本機械学会流体工学部門ニューズレター, 芝原正彦, 香月正司, (2004). ヤモリ足裏構造を模した粘着テープ, 平原佳織, 中山喜萬, 月刊せんい(日本繊維機械学会誌) vol. 70, No. 11 (2017), 25-31.
- (4) 「材料力学 (機械系コアテキストシリーズ)」, 渋谷陽二, 中谷彰宏, コロナ社(2017)

量子設計研究部門 量子機能材料設計分野

● 論文

- (1) 「第一原理計算による Al 合金中の空孔-溶質原子クラスターの構造解明」, 水野正隆, 杉田一樹, 荒木秀樹, 白井泰治, 陽電子科学 10 (2018) 13-19.
- (2) “Origin of pseudoelasticity by twinning in D0₃-type Fe₃Ga”, Masataka Mizuno, Hiroyuki Y. Yasuda, Hideki Araki, Computational Materials Science 145 (2018) 154-162.
- (3) “Effect of silicon content on densification, mechanical and thermal properties of Al-xSi binary alloys fabricated using selective laser melting”, Takahiro Kimura, Takayuki Nakamoto, Masataka Mizuno, Hideki Araki, Materials Science and Engineering A 682 (2017) 593-602

● 国内会議

- (1) 「焼戻しマルテンサイト鋼の水素脆化特性に及ぼすひずみ速度の影響」, 崎山裕嗣, 大村朋彦, 杉田一樹, 水野正隆, 荒木秀樹, 白井泰治, 日本鉄鋼協会第 174 回秋季講演大会, 北海道 (2017/9/6).
- (2) 「陽電子寿命法による改良 9Cr-1Mo 鋼溶接接手のクリープ損傷解析」, 細川宏幸, 杉田一樹, 荒木秀樹, 白井泰治, 藤田明吾, 竹内勉, 中別府克司, 日本鉄鋼協会第 174 回秋季講演大

会, 北海道 (2017/9/6).

- (3) 「CrMnFeCoNi 高エントロピー合金における原子空孔の安定性」, 水野正隆, 杉田一樹, 山田豊, 荒木秀樹, 日本金属学会第 161 回秋期講演大会, 北海道 (2017/9/7).
- (4) 「電子線照射された FeCrNiCoMn 高エントロピー合金の原子空孔回復挙動」, 山田豊, 杉田一樹, 水野正隆, 荒木秀樹, 白井泰治, 藪内敦, 木野村淳, 京都大学原子炉実験所専門研究会「陽電子科学とその理工学への応用」, 大阪 (2017/12/8).

● 著書・解説

- (1) 「新版 はじめての電子状態計算」, 足立裕彦, 小笠原一禎, 小和田善之, 坂根弦太, 水野正隆, 三共出版 (2017)

量子設計研究部門 機能デバイス設計分野

● 論文

- (1) “Reversible Switching of Liquid Crystal Micro-particles in a Nematic Liquid Crystal”, Koki Imamura, Hiroyuki Yoshida, and Masanori Ozaki, *Soft Matter*, Vol.12, Issue 3 (2016) pp. 750-755.
- (2) “Selective crystal growth of polymorphs and crystal-to-crystal thermal phase transition of non-peripherally alkyl-substituted phthalocyanine and tetrabenzotriazaporphyrin”, Masashi Ohmori, Chika Nakano, Akihiko Fujii, Yo Shimizu, and Masanori Ozaki, *J. Cryst. Growth*, Vol.468 (2017) pp.804-809.
- (3) “Single crystal preparation and X-ray structure analysis of non-peripherally alkyl-substituted phthalocyanine blends”, Chika Nakano, Masashi Ohmori, Norimitsu Tohnai, Akihiko Fujii, and Masanori Ozaki, *J. Cryst. Growth*, Vol.468 (2017) pp.810-815.
- (4) “Efficiency enhancement in perovskite solar cell utilizing solution-processable phthalocyanine hole transport layer with thermal annealing”, Quang-Duy Dao, Akihiko Fujii, Ryotaro Tsuji, Yuko Takeoka, and Masanori Ozaki, *Organic Electronics*, Vol.43 (2017) pp.156-161.
- (5) “Study on degradation mechanism of perovskite solar cell and their recovering effects by introducing CH₃NH₃I layers”, Quang-Duy Dao, Ryotaro Tsuji, Akihiko Fujii, and Masanori Ozaki, *Organic Electronics*, Vol.43 (2017) pp.229-234.
- (6) “Broadband optical vortex generation from patterned cholesteric liquid crystals”, Junji Kobashi, Hiroyuki Yoshida, and Masanori Ozaki, *Mol.Cryst.Liq.Cryst.*, Vol.646, (2017) pp.116-124.
- (7) “Field-induced dynamics of liquid crystal/liquid crystal micro-particle composites”, Koki Imamura, Hiroyuki Yoshida, and Masanori Ozaki, *Mol.Cryst.Liq.Cryst.*, Vol.646 (2017) pp.125-131.
- (8) “Morpho-Butterfly-Inspired Patterning of Helical Photonic Structures for Circular-Polarization-Sensitive, Wide-Angle Diffuse Reflection”, Yoshinori Mohri, Junji Kobashi, Hiroyuki Yoshida, and Masanori Ozaki, *Advanced Optical Materials*, Vol.5 (2017) p1601071.
- (9) “Characterization of crystal polymorphs of the organic semiconductor non-peripheral octa-hexyl phthalocyanine”, Makoto Yoneya, Ayano Miyamoto, Yo Shimizu, Masashi Ohmori, Akihiko Fujii, and Masanori Ozaki, *Jap. J. Appl. Phys.*, Vol.56 (2017) p081601.
- (10) “Bulk-Heterojunction Thin-Film Solar Cells Utilizing Miscible Binary Donor Materials of Liquid Crystalline Phthalocyanine and its Analogue”, Kento Fujita, Dai Nakagawa, Chika Nakano, Quang Duy Dao, Akihiko Fujii, and Masanori Ozaki, *J. Phys. Conf. Ser.*, Vol.924 (2017) p012003.
- (11) “Field strength and frequency tunable, two-way rotation of liquid crystal micro-particles dispersed in a liquid crystal host”, Koki Imamura, Hiroyuki Yoshida, and Masanori Ozaki, *Soft Matter*, Vol.13 (2017) pp.4433-4440.

- (12) "Circularly-polarized, large-angle reflective deflectors based on periodically patterned cholesteric liquid crystals", Junji Kobashi, Yoshinori Mohri, Hiroyuki Yoshida, and Masanori Ozaki, *Optical Data Processing and Storage*, Vol.3 (2017) pp.61-66.
- (13) "Improved Synthesis of Non-peripherally Alkyl-substituted Tetrabenzotriazaporphyrins", A. Fujii, Hiromichi Itani, Koichi Watanabe, Quang-Duy Dao, Lydia Sosa-Vargas, Yo Shimizu, and M. Ozaki, *Mol.Cryst.Liq.Cryst.*, Vol.653 (2017) 22-6.
- (14) "Circularly-polarized, semitransparent and double-sided holograms based on helical photonic structures", Junji Kobashi, Hiroyuki Yoshida, and Masanori Ozaki, *Scientific Reports*, Vol.7 (2017) p16470.
- (15) "Three-dimensional X-ray Crystal Structure Analysis of Solution-processed Oriented Thin Film utilizing Liquid-crystalline Phthalocyanine", Masashi Ohmori, Mitsuhiro Nakatani, Masaya Kurokawa, Akihiko Fujii, and Masanori Ozaki, *Proc. of SPIE*, Vol.10555 (2018) p105550D-1-11.
- (16) "Orientation of liquid crystalline blue phases on unidirectionally orienting surfaces", Misaki Takahashi, Takuma Ohkawa, Hiroyuki Yoshida, Jun-ichi Fukuda, Hirotsugu Kikuchi, and Masanori Ozaki, *Journal of Physics D: Applied Physics*, Vol.51 (2018) p104003.
- (17) "Shape control of surface-stabilized disclination loops in nematic liquid crystals", Kanta Sunami, Koki Imamura, Tomohiro Ouchi, Hiroyuki Yoshida, and Masanori Ozaki, *Physical Review E*, Vol.97 (2018) p020701.
- (18) "Sandwich-cell-type bulk-heterojunction organic solar cells utilizing liquid crystalline phthalocyanine", Yuya Nakata, Toshiki Usui, Yuki Nishikawa, Fabien Nekelson, Yo Shimizu, Akihiko Fujii, and Masanori Ozaki, *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol.57 (2018) p03EJ03.
- (19) "Fabrication of field-effect transistor utilizing oriented thin film of octahexyl-substituted phthalocyanine and its electrical anisotropy based on columnar structure", Masashi Ohmori, Mitsuhiro Nakatani, Hirotake Kajii, Ayano Miyamoto, Makoto Yoneya, Akihiko Fujii, and Masanori Ozaki, *Jpn. J. Appl. Phys.*, Vol.57 (2018) p03EH10.
- (20) 「ナノフォトニクス材料としての液晶の20年」, 尾崎雅則, 日本液晶学会誌, Vol.21 (2017) pp. 225-235.
- (21) 「液晶性を活かした有機半導体と塗布型太陽電池」, 尾崎雅則, 藤井彰彦, Vol.69 (2018) pp. 28-34.
- (22) "Improvement of metastable crystal of acetaminophen via control of crystal growth rate", K. Nii, M. Maruyama, S. Okada, H. Adachi, K. Takano, S. Murakami, H. Y. Yoshikawa, H. Matsumura, T. Inoue, M. Imanishi, K. Tsukamoto, M. Yoshimura, and Y. Mori, *Applied Physics Express*, Vol.11(2018)035501-1
- (23) "Control of dislocation morphology and lattice distortion in Na-flux GaN crystals", S. Takeuchi, Y. Mizuta, M. Imanishi, M. Imade, Y. Mori, K. Sumitani, Y. Imai, S. Kimura, and A. Sakai, *Journal of Applied Physics*, Vol.122(2017)105303-1
- (24) "Vacancy-type defects in bulk GaN grown by the Na-flux method probed using positron annihilation", A. Uedono, M. Imanishi, M. Imade, M. Yoshimura, S. Ishibashi, M. Sumiya and Y. Mori, *Journal of Crystal Growth*, Vol. 475(2017) 261-265
- (25) "Enhancement of lateral growth of the GaN crystal with extremely low dislocation density during the Na-flux growth on a point seed", M. Hayashi, M. Imanishi, D. Matsuo, K. Murakami, M. Maruyama, M. Imade, M. Yoshimura and Y. Mori, *Journal of Crystal Growth*, Vol.468(2017)827-830
- (26) "Homoepitaxial Hydride Vapor Phase Epitaxy Growth on GaN Wafers Manufactured by the Na-Flux Method", M. Imanishi, T. Yoshida, T. Kitamura, K. Murakami, M. Imade, M. Yoshimura, M. Shibata, Y. Tsusaka, J. Matsui, and Y. Mori, *Crystal Growth & Design*, Vol.17,

No.7(2017)3806-3811

- (27) "Increase in the growth rate of GaN crystals by using gaseous methane in the Na flux method", K. Murakami, S. Ogawa, M. Imanishi, M. Imade, M. Maruyama, M. Yoshimura, and Y. Mori, *Japanese Journal of Applied Physics*, Vol.56 (2017) 055502.
- (28) "Development of GaN substrate with a large diameter and small orientation deviation", T. Yoshida, M. Imanishi, T. Kitamura, K. Otaka, M. Imade, M. Shibata, and Y. Mori, *Physica Status Solidi B*, Vol.254 (2017) 1600671-1.

●国際会議

- (1) "Submillisecond electro-optic response in polymer/cholesteric liquid crystal nanocomposites", Hoekyung Kim, Hiroyuki Yoshida, and Masanori Ozaki, *2017 Korean Physical Society Spring Meeting*, Daejeon, Korea, 4/21, 2017.
- (2) "Single-Crystalline Thin-Film Growth of Polymorphic Alkyl-Substituted Phthalocyanine", Akihiko Fujii, Takuya Higashi, Masashi Ohmori, Takashi Uno, Mihary Fiderana Ramanarivo, Yusaku Anzai, Mitsuhiko Nakatani, Takahiro Kitagawa, Koichi Sudoh, and Masanori Ozaki, *13th International Symposium on Functional π -Electron Systems (F π -13)*, Hong Kong, China, 6/5, 2017.
- (3) "Liquid Crystal for Large Scale Electronics", Masanori Ozaki, *1st International Symposium on Nanotechnology and Mesophase Engineering (ISNME 2017)*, Osaka, Japan, 6/10, 2017.
- (4) "Sandwich-cell-type Bulk-heterojunction Organic Solar Cells Utilizing Liquid Crystalline Phthalocyanine", Yuya Nakata, Toshiki Usui, Yo Shimizu, Akihiko Fujii, and Masanori Ozaki, *9th International Conference on Molecular Electronics and Bioelectronics (M&BE9)*, Kanazawa, Japan, 6/26, 2017.
- (5) "Fabrication and Electrical Anisotropy of Field Effect Transistors Based on Oriented Thin Films of Liquid Crystalline Phthalocyanine", Masashi Ohmori, Mitsuhiko Nakatani, Makoto Yoneya, Akihiko Fujii, and Masanori Ozaki, *9th International Conference on Molecular Electronics and Bioelectronics (M&BE9)*, Kanazawa, Japan, 6/26, 2017.
- (6) "Characteristics of fluorene-type polymer light-emitting diodes by incorporating the active layer fabricated by contact printing and the copper thiocyanate hole transporting layer", Hirotake Kajii, Kyosuke Mizuno, Atsushi Marutani, Yutaka Ohmori, Masanori Ozaki, and Masahiko Kondo, *9th International Conference on Molecular Electronics and Bioelectronics (M&BE9)*, Kanazawa, Japan, 6/26, 2017.
- (7) "Loop defects in nematic liquid crystals generated by surface alignment control", Kanta Sunami, Koki Imamura, Tomohiro Ouchi, Hiroyuki Yoshida, and Masanori Ozaki, *21st International Symposium on Advanced Display Materials & Devices (ADMD2017)*, Nagoya, Japan, 7/24, 2017.
- (8) "Cholesteric liquid crystal diffractive optical elements for optical vortex generation", Hiroyuki Yoshida, Junji Kobashi, and Masanori Ozaki, *4th International Conference on Optical Angular Momentum*, Anacapari, Italy, 9/22, 2017.
- (9) "Fabrication of Single-Crystalline Thin-Film Utilizing Liquid-Crystalline Alkyl-Substituted Phthalocyanine" Akihiko Fujii, Takahiro Kitagawa, Yusaku Anzai, Mitsuhiko Nakatani, Masashi Ohmori, Hirotake Kajii, and Masanori Ozaki, *2017 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM 2017)*, Sendai, Japan, 9/21, 2017.
- (10) "Temperature Dependence of Carrier Mobility on Non-peripherally Octahexyl-substituted Copper Phthalocyanine", Ken Watanabe, Koichi Watanabe, Norimitsu Tohnai, Akihiko Fujii, and Masanori Ozaki, *2017 International Conference on Solid State Devices and Materials (SSDM 2017)*, Sendai, Japan, 9/21, 2017.
- (11) "Freely Controlling Wavefront with Metasurface based on Patterned Helix-Phase of Cholesteric Liquid Crystal", Masanori Ozaki, Junji Kobashi, and Hiroyuki Yoshida, *17th Optics of Liquid*

- Crystals (OLC2017)*, Guarujá, Brazil, 9/25, 2017.
- (12) "Large scale thin single crystals with high carrier mobility based on self-organized phthalocyanine", Masanori Ozaki, *ValyFest Symposium*, Salt Lake City, USA, 10/27, 2017.
 - (13) "Organic Solar Cells Utilizing Non-Peripheral Octahexylphthalocyanine and its Analogues", Akihiko Fujii, Quang-Duy Dao, Makoto Yoneya, Yo Shimizu, and Masanori Ozaki, *27th International Photovoltaic Science and Engineering Conference (PVSEC-27)*, Otsu, Japan, 11/13, 2017.
 - (14) "Double-sided holograms based on the Bragg-Berry effect in soft chiral photonic crystals", Hiroyuki Yoshida, Junji Kobashi, SeongYong Cho, Masaru Ono, and Masanori Ozaki, *6th Toyota Riken International Workshop on Chirality in Soft Matter*, Nagoya, Japan, 11/24, 2017.
 - (15) "Complex Rotational Motion of Liquid Crystalline Microparticles in Nematic Liquid Crystals", Koki Imamura, Hiroyuki Yoshida, and Masanori Ozaki, *6th Toyota Riken International Workshop on Chirality in Soft Matter*, Nagoya, Japan, 11/25, 2017.
 - (16) "Fully Transparent Hologram Using Photo Patterned Cholesteric Liquid Crystals", SeongYong Cho, Hiroyuki Yoshida, and Masanori Ozaki, *6th Toyota Riken International Workshop on Chirality in Soft Matter*, Nagoya, Japan, 11/25, 2017.
 - (17) "Image Evaluation of Large Aperture Liquid Crystal Fresnel Lens", Giichi Shibuya, Hisashi Abe, Akiko Tamaki, Shohei Yamano, Hiroyuki Yoshida, and Masanori Ozaki, *International Display Workshops 2017 (IDW '17)*, Sendai, Japan, 12/8, 2017.
 - (18) "Study on Carrier Mobility in Hexyl-substituted Phthalocyanine Thin Film Utilizing Photo-CELIV Method", Yuki Nishikawa, Yuya Nakata, Sigehiro Ikehara, Akihiko Fujii, and Masanori Ozaki, *Global Nanophotonics 2017 (GNP2017)*, Puerto Princesa, Philippine, 12/7, 2017.
 - (19) "Photo-Patterned Cholesteric Liquid Crystals for Transparent Hologram", SeongYong Cho, Masaru Ono, Hiroyuki Yoshida, and Masanori Ozaki, *Global Nanophotonics 2017 (GNP2017)*, Puerto Princesa, Philippine, 2017/12/7.
 - (20) "Three-dimensional X-ray crystal structure analysis and electrical anisotropy of solution-processed oriented thin film utilizing liquid crystalline phthalocyanine", Masashi Ohmori, Mitsuhiro Nakatani, Makoto Yoneya, Akihiko Fujii, Masanori Ozaki, *SPIE Photonics West 2018*, San Francisco, USA, 1/23, 2018.
 - (21) "Improving stability and efficiency of perovskite solar cell utilizing phthalocyanine-tetrabenzoporphyrin hybrid macrocycle hole transport layer", Quang-Duy Dao, Akihiko Fujii, Ryotaro Tsuji, and Masanori Ozaki, *International Conference Asia-Pacific Hybrid and Organic Photovoltaics (AP-HOPV18)*, Kitakyushu, Japan, 1/29, 2018.
 - (22) "Improvement of GaN crystallinity in OVPE growth using carbothermal reduction of Ga₂O₃ ", Y. Yamaguchi, S. Tsuno, K. Ishibashi, H. Gunji, H. Kobayashi, N. Murashima, T. Oshiba, Y. Sakamoto, A. Kitamoto, M. Imanishi, M. Imade, M. Yoshimura, M. Isemura, Y. Mori, 36th Electronic Materials Symposium (EMS-36), (2017) We2-4.
 - (23) "Effect of H₂ carrier gas on the growth of thick GaN layers by Oxide Vapor Phase Epitaxy ", H. Gunji, Y. Yamaguchi, K. Ishibashi, S. Tsuno, A. Kitamoto, M. Imanishi, M. Imade, M. Yoshimura, M. Isemura, Y. Mori, 36th Electronic Materials Symposium (EMS-36), (2017)We2-5.
 - (24) "Effects of NH₃/H₂ ratio on the polycrystal formation during GaN growth using OVPE method ", S. Tsuno, H. Gunji, Y. Yamaguchi, K. Ishibashi, A. Kitamoto, M. Imanishi, M. Imade, M. Yoshimura, M. Isemura, T. Sumi, J. Takino, Y. Okayama, M. Nobuoka, Y. Mori, 36th Electronic Materials Symposium (EMS-36), (2017)We2-6.
 - (25) "Growth of GaN crystals by OVPE method with a three-layer frow gas injection reactor " K. Ishibashi, H. Kobayashi, T. Oshiba, S. Tsuno, H. Gunji, Y. Yamaguchi, A. Kitamoto, M. Imanishi,

- M. Imade, M. Yoshimura, Y. Mori, 36th Electronic Materials Symposium (EMS-36), (2017)We2-7.
- (26) "Enlargement of transparent region of GaN crystals by thin-flux-growth in Na-flux point seed technique ", M. Hayashi, M. Imanishi, K. Murakami, M. Maruyama, M. Imade, M. Yoshimura, Y. Mori, 36th Electronic Materials Symposium (EMS-36), (2017) We2-8.
- (27) "Effects of Yields and Surface Morphology of GaN Crystal using Cyanide Addition in Na-flux Method ", N. Takeda, M. Imanishi, T. Yamada, M. Hayashi, K. Murakami, K. Kakinouchi, M. Imade, Y. Mori, 36th Electronic Materials Symposium (EMS-36), (2017)We2-9.
- (28) "Influence of Sapphire thickness on GaN wafer bowing grown by the Na-flux method with sapphire dissolution process ", T. Yamada, K. Murakami, K. Nakamura, T. Kitamura, K. Kakinouchi, K. Okumura, M. Imanishi, M. Imade, M. Yoshimura, Y. Mori, 36th Electronic Materials Symposium (EMS-36), (2017)We2-10.
- (29) "The Evaluation of carrier concentration on Na-flux-grown GaN crystals by capacitance-voltage (C-V) measurements ", K. Endo, R. Kuramoto, T. Yamada, M. Imanishi, H. Kubo, M. Imade, Y. Mori, 36th Electronic Materials Symposium (EMS-36), (2017)We2-11.
- (30) "Growth of bulk GaN crystal by Na flux method", Y. Mori, M. Imanishi, M. Yoshimura, M. Imade, International Conference on Materials and Systems for Sustainability 2017 (ICMaSS2017), (2017) 30-Nitride-7, 1335.
- (31) "Growth of bulk GaN crystals by the Na-flux point seed technique", Y. Mori, M. Imade, M. Imanishi, M. Yoshimura, The 8th Asia-Pacific Workshop on Widegap Semiconductors(APWS), (2017) MOBDI 1
- (32) "Nano beam X-ray diffraction analysis of Na flux GaN bulk crystals grown with controlling seed crystal surfaces and growth mode ", S. Takeuchi, Y. Mizuta, M. Imanishi, M. Imade, Y. Mori, Y. Imai, S. Kimura, A. Sakai, 12th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS12),(2017) A 2.3.
- (33) "Effects of Mask Patterns on Threading Dislocation Density during the Na-Flux GaN Growth on a Point Seed Technique ", Y. Sawada, T. Yamada, K. Murakami, M. Honjo, H. Imabayashi, K. Kakinouchi, K. Harimiya, K. Nakamura, T. Kitamura, M. Imanishi, M. Imade, M. Yoshimura, Y. Mori, 12th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS12), (2017) A 2.39.
- (34) "Effect of gaseous carbon addition in GaN crystal growth by Na-flux method ", N. Takeda, M. Imanishi, K. Murakami, M. Hayashi, M. Imade, M. Yoshimura, Y. Mori, 12th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS12), (2017) A 2.42.
- (35) "Control of dislocation propagation behaviors in Na flux GaN bulk crystals ", S. Takeuchi, Y. Mizuta, M. Imanishi, M. Imade, Y. Mori, Y. Imai, S. Kimura, A. Sakai, 12th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS12), (2017) A 2.45.
- (36) "Blocking of Dislocation Propagation by Bunched Steps in GaN crystals Grown by the Na-flux Method ", R. Kuramoto, M. Imanishi, M. Honjo, K. Murakami, H. Imabayashi, M. Imade, M. Yoshimura, Y. Mori, 2th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS12), (2017) A 2.47.
- (37) "Influence of GaN template thickness on GaN wafer bowing grown by the Na-flux method with a sapphire dissolution process ", T. Yamada, K. Murakami, K. Nakamura, H. Imabayashi, M. Honjo, K. Kakinouchi, T. Kitamura, K. Harimiya, M. Imanishi, M. Imade, M. Yoshimura, Y. Mori, 12th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS12), (2017) A 2.52.
- (38) "Evaluation of stacking faults free semipolar {11-22} GaN substrate grown by Na-flux point seed technique ", N. Okada, H. Ikeuchi, N. Morishita, T. Matsubara, T. Tanikawa, K. DoHun, Ma. Imanishi, M. Imade, Y. Mori, K. Tadatomo, 12th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS12), (2017) A 4.2.

- (39) "Effect of gaseous carbon addition in GaN crystal growth by Na-flux method", N. Takeda, M. Imanishi, K. Murakami, M. Hayashi, M. Imade, M. Yoshimura, Y. Mori, The 5th International Conference on Light-Emitting Devices and Their Industrial Applications (LEDIA '17),(2017) LED5-4
- (40) "Blocking of Dislocation Propagation by Bunched Steps in GaN crystals Grown by the Na-flux Method", R. Kuramoto, M. Imanishi, M. Honjo, K. Murakami, H. Imabayashi, M. Imade, M. Yoshimura, Y. Mori, The 5th International Conference on Light-Emitting Devices and Their Industrial Applications (LEDIA '17),(2017) LEDp2-9.
- (41) "Suppression of polycrystalline formation during thick-GaN growth by Oxide Vapor Phase Epitaxy", H. Gunji, Y. Yamaguchi, Y. Taniyama, A. Kitamoto, M. Imanishi, M. Imade, M. Isemura, Y. Mori, The 5th International Conference on Light-Emitting Devices and Their Industrial Applications (LEDIA '17),(2017) LEDp2-32.
- (42) "Dependence of Mask Patterns on Threading Dislocation Density during the Na-Flux Growth using Point Seed Technique", Y. Sawada, T. Yamada, K. Murakami, M. Honjo, H. Imabayashi, K. Kakinouchi, M. Imanishi, M. Imade, M. Yoshimura, Y. Mori, The 5th International Conference on Light-Emitting Devices and Their Industrial Applications (LEDIA '17),(2017) LEDp2-33.

●国内会議

- (1) 「液晶物質におけるトポロジカル欠陥と界面配向によるその制御」, 吉田浩之, 尾崎雅則, 日本学術振興会光エレクトロニクス第130委員会第307回講演会, 東京, 2017/5 (招待講演).
- (2) 「フレネル構造を導入した液晶レンズにおける特異的な分子配向ねじれに関する研究」, 山野 翔平, 澁谷義一, 吉田 浩之, 尾崎 雅則, 第 310 回電気材料技術懇談会, 310-4, 大阪, 2017/7.
- (3) 「半導体性液晶材料を用いたサンドイッチセル型有機太陽電池」, 仲田裕哉, 臼井稔喜, 清水 洋, 藤井彰彦, 尾崎雅則, 第 310 回電気材料技術懇談会, 310-13, 大阪, 2017/7 (発表奨励賞受賞).
- (4) 「微小角入射広角 X 線散乱法を用いた液晶性フタロシアニン配向薄膜の三次元構造解析」, 大森雅志, 中谷光宏, 藤井彰彦, 尾崎雅則, 第 14 回 SPring-8 産業利用報告会, P47/J-21, 川崎, 2017/9.
- (5) 「アルキルフタロシアニン配向薄膜を用いた電界効果トランジスタの作製とカラムナー構造に基づく電気的異方性」, 大森雅志, 中谷光宏, 梶井博武, 藤井彰彦, 尾崎雅則, 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会, 7a-A203-7, 福岡, 2017/9.
- (6) 「結晶多形を有するペンチルフタロシアニンのバーコート薄膜における分子配向および結晶構造評価」, 中谷光宏, 大森雅志, 藤井彰彦, 尾崎雅則, 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会, 6p-A413-1, 福岡, 2017/9.
- (7) 「接種凍結に伴う液晶性フタロシアニンの分子配向における高分子添加効果」, 北川貴大, ラマナナリヴォミハリフィデラナ, 藤井彰彦, 尾崎雅則, 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会, 6p-A413-2, 福岡, 2017/9.
- (8) 「パターン配向液晶を用いた非対称な反射型回折光学素子」, 吉田浩之, 小橋淳二, 毛利文律, 尾崎雅則, 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会, 5p-C13-1, 福岡, 2017/9 (招待講演).
- (9) 「パターン配向したコレステリック液晶を用いた選択反射型大偏向素子」, 吉田浩之, 毛利文律, 小橋淳二, 小野 優, 尾崎雅則, 2017 年日本液晶学会討論会, 3C10, 弘前, 2017/9.
- (10) 「ねじれ配向セルにおけるブルー相液晶の格子配向に関する研究」, 高橋実咲, 大川拓真, 吉田浩之, 尾崎雅則, 2017 年日本液晶学会討論会, 3B04, 弘前, 2017/9.
- (11) 「ネマティック液晶の界面配向制御によるループ状欠陥の誘起」, 角南寛太, 今村弘毅, 大内智弘, 吉田浩之, 尾崎雅則, 2017 年日本液晶学会討論会, PA44, 弘前, 2017/9 (ポスタ

- 一賞（若葉賞）受賞）。
- (12) 「高分子／ネマティック液晶複合材料における異方的散乱特性に関する研究」, 小野 優, 前田恭孝, 小橋淳二, 吉田浩之, 尾崎雅則, 2017 年日本液晶学会討論会, PB37, 弘前, 2017/9 (ポスター賞 (若葉賞) 受賞)。
 - (13) 「界面配向制御によりコレステリック液晶中に誘起した線欠陥形状の温度依存性に関する研究」, 大内智弘, 角南寛太, 今村弘毅, 吉田浩之, 尾崎雅則, 2017 年日本液晶学会討論会, PB52, 弘前, 2017/9。
 - (14) 「ネマティック液晶中における 転傾ループの弾性収縮」, 吉田浩之, 角南寛太, 今村弘毅, 大内智弘, 尾崎雅則, 第 7 回ソフトマター研究会, 3, 京都, 2017/10。
 - (15) 「一様配向およびねじれ配向セルにおけるブルー相液晶の格子配向に関する研究」, 高橋実咲, 大川拓真, 吉田浩之, 尾崎雅則, 第 7 回ソフトマター研究会, P39, 京都, 2017/10。
 - (16) 「欠陥線を有する高分子/ネマティック液晶複合系の重合形成過程の観察」, 大川拓真, 吉田浩之, 尾崎雅則, 第 7 回ソフトマター研究会, P40, 京都, 2017/10。
 - (17) 「結晶成長を伴うペンチルフタロシアニンのバーコート製膜における多形選択性」, 中谷光宏, 大森雅志, 藤井彰彦, 尾崎雅則, 電子情報通信学会有機エレクトロニクス研究会, 7, 大阪, 2017/11。
 - (18) 「液晶性フタロシアニンを用いたサンドイッチセル型太陽電池デバイス」, 仲田裕哉, 臼井稔喜, 西川裕己, Fabien Nekelson, 清水 洋, 藤井彰彦, 尾崎雅則, 有機エレクトロニクス研究会, 3, 大阪, 2017/11。
 - (19) 「パターン配向したコレステリック液晶を用いた反射型ホログラム素子の作製」, 小野 優, 小橋淳二, 趙 成龍, 毛利文律, 吉田浩之, 尾崎雅則, 平成 29 年電気関係学会関西支部連合大会, P-14, 大阪, 2017/11。
 - (20) 「Photo-CELIV 法によるフタロシアニン誘導体薄膜のキャリア移動度評価における電荷分離層導入効果」, 西川裕己, 池原成拓, 藤井彰彦, 尾崎雅則, 平成 29 年電気関係学会関西支部連合大会, G6-1, 大阪, 2017/11。
 - (21) 「接種凍結を利用した液晶性フタロシアニン配向薄膜の作製における高分子添加効果」, 北川貴大, ラマナナリヴォミハリフィデラナ, 藤井彰彦, 尾崎雅則, 平成 29 年電気関係学会関西支部連合大会, G6-2, 大阪, 2017/11。
 - (22) 「溶液媒介多形転移によるフタロシアニン誘導体の単結晶薄膜成長と電気的性質」, 安西佑策, 東 卓也, 梶井博武, 藤井彰彦, 尾崎雅則, 第 27 回日本 MRS 年次大会, D-O6-009, 横浜, 2017/12。
 - (23) 「Non-peripheral 型オクタヘキシル置換フタロシアニン銅錯体の電荷移動度における温度依存性」, 渡辺 健, 渡辺光一, 藤内謙光, 藤井彰彦, 尾崎雅則, 第 27 回日本 MRS 年次大会, D-O6-012, 横浜, 2017/12 (奨励賞受賞)。
 - (24) 「Photo-CELIV 法によるアルキルフタロシアニン塗布薄膜の両極性キャリア移動度評価」, 西川裕己, 仲田裕哉, 藤井彰彦, 尾崎雅則, 第 65 回応用物理学会春季学術講演会, 18a-F104-8, 東京, 2018/3。
 - (25) 「カラムナー液晶性半導体の薄膜中におけるホメオトロピック配向過程の評価と光電変換特性」, 大森雅志, 黒川真紗也, 西川裕己, 藤井彰彦, 尾崎雅則, 第 65 回応用物理学会春季学術講演会, 18p-G205-6, 東京, 2018/3。
 - (26) 「アルキルフタロシアニンの結晶多形と結晶間熱相転移挙動」, 大森雅志, 中野知佳, 米谷 慎, 藤井彰彦, 尾崎雅則, 第 65 回応用物理学会春季学術講演会, 18a-G205-4, 東京, 2018/3。
 - (27) 「接種凍結法により作製される高分子添加液晶性フタロシアニン配向薄膜におけるクラック抑制効果」, 北川貴大, ラマナナリヴォミハリフィデラナ, 藤井彰彦, 尾崎雅則, 第 65 回応用物理学会春季学術講演会, 18p-G205-7, 東京, 2018/3。
 - (28) 「溶液媒介多形転移により作製したフタロシアニン誘導体単結晶薄膜の光学異方性と電気

- 的性質」, 安西佑策, 東卓也, 梶井博武, 藤井彰彦, 尾崎雅則, 第 65 回応用物理学会春季学術講演会, 18a-G205-3, 東京, 2018/3.
- (29) 「Non-peripheral 型オクタヘキシルフタロシアニン銅錯体の両極性キャリア輸送に関する考察」, 渡辺 健, 渡辺光一, 藤内謙光, 藤井彰彦, 尾崎雅則, 第 65 回応用物理学会春季学術講演会, 18p-P11-7, 東京, 2018/3.
- (30) “Transparent hologram based on photo-patterned cholesteric liquid crystals”, SeongYong Cho, 小野 優, 吉田浩之, 尾崎雅則, 第 65 回応用物理学会春季学術講演会, 17p-P6-30, 東京, 2018/3.
- (31) 「結晶育成技術が拓くイノベーションとベンチャー起業」, 森 勇介, 今西 正幸, 今出 完, 丸山 美帆子, 吉村 政志, 第65回応用物理学会春季学術講演会,(2017) 17p-B301-1.
- (32) 「ホウ酸系光学材料 SrB_4O_7 の結晶育成及びレーザー損傷耐性評価(2)」, 四方 啓太, 田中 康教, 村井 良多, 高橋 義典, 今西 正幸, 森 勇介, 吉村 政志, 第65回応用物理学会春季学術講演会,(2017) 17p-B301-3.
- (33) 「外場印加による医薬化合物アスピリンの準安定形晶出」, 釣 優香, 仁井 滉允, 丸山 美帆子, 岡田 詩乃, 安達 宏昭, 吉川 洋史, 高野 和文, 村上 聡, 松村 浩由, 井上 豪, 塚本 勝男, 今西 正幸, 吉村 政志, 森 勇介, 第 65 回応用物理学会春季学術講演会,(2017)17p-B301-6.
- (34) 「OVPE法を用いたGa₂N育成におけるNH₃/H₂比の多結晶形成への影響」, 津野 慎太郎, 郡司 祥和, 山口 陽平, 石橋 桂樹, 北本 啓, 今西 正幸, 今出 完, 吉村 政志, 伊勢村 雅士, 隅 智亮, 滝野 淳一, 岡山 芳央, 信岡 政樹, 森 勇介, 第65回応用物理学会春季学術講演会, (2017) 18a-E202-1.
- (35) 「OVPE法を用いたGa₂N結晶成長におけるメタン添加の効果」, 北本 啓, 山口 陽平, 津野 慎太郎, 石橋 桂樹, 郡司 祥和, 今西 正幸, 今出 完, 吉村 政志, 伊勢村 雅士, 隅 智亮, 滝野 淳一, 岡山 芳央, 信岡 政樹, 森 勇介, 第65回応用物理学会春季学術講演会,(2017) 18a-E202-2.
- (36) 「Naフラックス法で作製したGa₂N結晶における酸素濃度が電気特性に与える影響」, 遠藤 清人, 山田 拓, 蔵本 流星, 林 正俊, 久保 等, 丸山 美帆子, 村上 航介, 今西 正幸, 今出 完, 吉村 政志, 森 勇介, 第65回応用物理学会春季学術講演会, (2017) 18p-E202-2
- (37) 「OVPE法によるバルクGa₂N結晶成長技術の現状と展望」, 滝野 淳一, 隅 智亮, 岡山 芳央, 信岡 政樹, 北本 啓, 今出 完, 今西 正幸, 吉村 政志, 森 勇介, 第46回結晶成長国内会議,(2017) 27a-C04.
- (38) 「放射線検出器に向けたNa-flux法Ga₂N育成方法の検討と電気特性評価」, 矢野 雄大, 中川 央也, 井上 翼, 青木 徹, 今西 正幸, 今出 完, 森 勇介, 中野 貴之, 第46回結晶成長国内会議, (2017) 28a-A01.
- (39) 「OVPE法における三層流炉を用いたGa₂N結晶育成」, 石橋 桂樹, 大芝 啓嘉, 小林 大也, 津野 慎太郎, 郡司 祥和, 山口 陽平, 北本 啓, 今西 正幸, 今出 完, 伊勢村 雅士, 吉村 政志, 森 勇介, 第46回結晶成長国内会議, (2017) 29p-A07.
- (40) 「OVPE法を用いたGa₂N成長におけるNH₃/H₂比の多結晶形成への影響」, 津野 慎太郎, 郡司 祥和, 山口 陽平, 石橋 桂樹, 北本 啓, 今西 正幸, 今出 完, 吉村 政志, 伊勢村 雅士, 隅 智亮, 滝野 淳一, 岡山 芳央, 信岡 政樹, 森 勇介, 第46回結晶成長国内会議,(2017) 29p-A08.
- (41) 「結晶光学軸方位分布からみたGa₂NやSiCの光学異常」, 塚本 勝男, 今西 正幸, 村山 健太, 森 勇介, 第46回結晶成長国内会議,(2017) 29p-B03.
- (42) 「Naフラックス法で育成したGa₂N結晶のCV測定を用いたキャリア濃度評価」, 遠藤 清人, 蔵本 流星, 山田 拓海, 今西 正幸, 久保 等, 今出 完, 吉村 政志, 森 勇介, ワイドギャップ半導体光・電子デバイス第162委員会, 第100回記念特別公開シンポジウム, (2017)P14.

- (43) 「OVPE法によるGaN厚膜成長に向けた寄生成長の抑制」, 郡司 祥和, 山口 陽平, 石橋 桂樹, 津野 慎太郎, 北本 啓, 今西 正幸, 吉村 政志, 今出 完, 伊勢村 雅士, 森 勇介, 第78回応用物理学会秋季学術講演会, (2017) 6a-A301-4.
- (44) 「高品質化に向けた半極性面Ga₂O₃結晶のNaフラックス法による厚膜成長」, 蔵本 流星, 金度 勲, 山田 拓海, 村上 航介, 今西 正幸, 今出 完, 吉村 政志, 森 勇介, 第78回応用物理学会秋季学術講演会, (2017) 6a-A301-5
- (45) 「Naフラックスサファイア溶解法においてポイントシード面積がGa₂O₃結晶反りに与える影響」, 山田 拓海, 村上 航介, 中村 幸介, 北村 智子, 垣之内 啓介, 奥村 加奈子, 今西 正幸, 今出 完, 吉村 政志, 森 勇介, 第78回応用物理学会秋季学術講演会, 6a-A301-6.
- (46) 「NaフラックスGa₂O₃単結晶内の孤立転位に起因した局所漏れ電流特性評価」, 濱地 威明, 竹内 正太郎, 今西 正幸, 今出 完, 森 勇介, 酒井 朗, 第78回応用物理学会秋季学術講演会, (2017) 6p-A301-11.
- (47) 「圧電応答顕微鏡法によるNaフラックスGa₂O₃単結晶の局所圧電物性解析」, 植田 瑛, 竹内 正太郎, 今西 正幸, 今出 完, 森 勇介, 酒井 朗, 第78回応用物理学会秋季学術講演会, (2017) 6p-A301-12.

表面反応制御設計研究部門 表面反応設計分野

論文

- (1) “The effect of photoemission on nanosecond helium microdischarges at atmospheric pressure,” Zoltan Donko, Satoshi Hamaguchi, Timo Gans, *J. Phys. D: Appl. Phys.* *submitted*.
- (2) “Progress in nanoscale dry processes of high-aspect-ratio features: How can we control critical dimension uniformity at the bottom?” Kenji Ishikawa, Kazuhiro Karahashi, Tatsuo Ishijima, Sung Il Cho, Simon Elliott, Dennis Hausmann, Dan Mocuta, Aaron Wilson, and Keizo Kinoshita, *submitted*.
- (3) “Low-energy mass-selected ion beam production of fragments from tetraethylorthosilicate for the formation of silicon dioxide film,” S. Yoshimura, S. Sugimoto, T. Takeuchi, K. Murai, M. Kiuchi, *Thin Solid Films*, *submitted*.
- (4) “Identification of fragment ions produced from hexamethyldisilazane and low-energy mass-selected fragment ion beam production for nitrogen containing SiC film formations,” S. Yoshimura, S. Sugimoto, T. Takeuchi, K. Murai, M. Kiuchi, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sec. B*, *submitted*.
- (5) “Cyclic etching of ITO using H-induced modified-layer,” A. Hirata, M. Fukasawa, K. Nagahata, H. Li, K. Karahashi, S. Hamaguchi, and T. Tatsumi, *J. Appl. Phys.* (2018) *in press*
- (6) “Effects of Hydrogen on the Chemically Enhanced Etching of Tin-doped Indium Oxide (ITO),” Hu Li, Kazuhiro Karahashi, Pascal Friederich, Karin Fink, Masanaga Fukasawa, Akiko Hirata, Kazunori Nagahata, Tetsuya Tatsumi, Wolfgang Wenzel, and Satoshi Hamaguchi, *J. Appl. Phys.* (2018) *in press*.
- (7) “Deposition of indium nanoparticles on powdered material by pulse arc plasma to synthesize catalysts for Friedel-Crafts alkylation,” S. Yoshimura, Y. Nishimoto, S. Sugimoto, M. Kiuchi, M. Yasuda, *e-J. Surf. Sci. Nanotechnol.* (2018), *in press*.
- (8) “Impact of non-thermal plasma surface modification on porous calcium hydroxyapatite ceramics for bone regeneration,” Yu Moriguchi, Dae-Sung Lee, Ryota Chijimatsu, Khair Thamina, Kazuto Masuda, Dai Itsuki, Hideki Yoshikawa, Satoshi Hamaguchi, Akira Myoui, *PLOS ONE* (2018), *in press*.
- (9) “Injected ion energy dependence of SiC film deposited by low-energy SiC₃H₉⁺ ion beam produced from hexamethyldisilane,” S. Yoshimura, S. Sugimoto, T. Takeuchi, K. Murai, M. Kiuchi, *Nucl.*

Instrum. Methods Phys. Res. Sec. B, **420** (2018) 6-11.

- (10) “Foundations of low-temperature plasma enhanced materials synthesis and etching,” Gottlieb S. Oehrlein and Satoshi Hamaguchi, *Plasma Sources Sci. Technol.* **27** (2018) 023001 (pp 21).
- (11) “Editorial for achieving atomistic control in plasma–material interactions,” Gottlieb S Oehrlein, Satoshi Hamaguchi and Achim Von Keudell , *J. Phys. D: Appl. Phys.* **50** (2017) 490201 (pp4).
- (12) “Catalytic property of an indium-deposited powder-type material containing silicon and its dependence on the dose of indium nano-particles irradiated by a pulse arc plasma process,” S. Yoshimura, Y. Nishimoto, M. Kiuchi, Y. Agawa, H. Tanaka, M. Yasuda, *AIP Adv.* **7** (2017) 065117(pp9).
- (13) “The 2017 Plasma Roadmap: Low temperature plasma science and technology,” I Adamovich, S D Baalrud, A Bogaerts, P J Bruggeman, M Cappelli, V Colombo, U Czarnetzki, U Ebert, J G Eden, P Favia, D B Graves, S Hamaguchi, G Hieftje, M Hori, I D Kaganovich, U Kortshagen, M J Kushner, N J Mason, S Mazouffre, S Mededovic Thagard, H-R Metelmann, A Mizuno, E Moreau, A B Murphy, B A Niemira, G S Oehrlein, Z Lj Petrovic, L C Pitchford, Y-K Pu, S Rauf, O Sakai, S Samukawa, S Starikovskaia, J Tennyson, K Terashima, M M Turner, M C M van de Sanden, and A Vardelle, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **50** (2017) 323001 (pp 46).
- (14) “Effects of hydrogen-damaged layer on tin-doped indium oxide etching by H₂/Ar plasma,” Akiko Hirata, Masanaga Fukasawa, Takushi Shigetoshi, Masaki Okamoto, Kazunori Nagahata, Hu Li, Kazuhiro Karahashi, Satoshi Hamaguchi, and Tetsuya Tatsumi, *Jps. J. Appl. Phys.* **56** (2017) 06HD02 (pp 4).
- (15) “Effects of Hydrogen Ion Irradiation on Zinc Oxide Etch,” Hu Li, Kazuhiro Karahashi, Pascal Friederich, Karin Fink, Masanaga Fukasawa, Akiko Hirata, Kazunori Nagahata, Tetsuya Tatsumi, Wolfgang Wenzel, and Satoshi Hamaguchi, *J. Vac. Sci. Tech.* **A35** (2017) 05C303 (pp9).
- (16) “Etching yields and surface reactions of amorphous carbon by fluorocarbon ion irradiation,” Kazuhiro Karahashi, Hu Li, Kentaro Yamada, Tomoko Ito, Satoshi Numazawa, Ken Machida, Kiyoshi Ishikawa, and Satoshi Hamaguchi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **56** (2017) 06HB09 (pp 5).
- (17) “Progress and prospects in nanoscale dry processes - How can we control atomic layer reactions?” Kenji Ishikawa, Kazuhiro Karahashi, Takanori Ichiki, Jane P. Chang, Steven M. George, W. M. M. Kessels, Hae June Lee, Stefan Tinck, Jung Hwan Um, and Keizo Kinoshita, *Jpn. J. Appl. Phys.* **56** (2017) 06HA02 (pp13).

● 国際会議

- (1) “Numerical simulation for metabolic reactions of E. coli in water exposed to plasma irradiation,” Kazumasa Ikuse and Satoshi Hamaguchi, in the *Book of Abstracts of 2017 International Forum on Functional Materials (IFFM2017):7th International Symposium on Plasma Biosciences (ISPB2017-7)* (June 27-29, 2017, Ramada Plasma Jeju Hotel, Jeju, Korea) p.173 [invited].
- (2) “Analyses of device manufacturing processes by molecular dynamics simulations,” Satoshi Hamaguchi, International Conference on Simulation of Semiconductor Processes and Devices (SISPAD) 2017 Workshop 1: *Application of Atomistic Approaches in Semiconductor Device Physics and Simulations* (September 7-9, 2017, Kamakura Prince Hotel, Kamakura, Japan) [invited]
- (3) “Science of Plasma-Surface Interaction for Modern Semiconductor Process Technologies,” Satoshi Hamaguchi and Kazuhiro Karahashi, in the *Book of Abstracts of the AVS 64th International Symposium & Exhibition* (Oct. 6-Nov. 3, 2017, Tampa, Florida, USA) PS-WeA11, p.160. [invited]
- (4) “Effects of Ion induced Damages on Etching Characteristics of ITO Thin Films,” H. Li, K. Karahashi, M. Fukasawa, A. Hirata, K. Nagahata, T. Tatsumi, and S. Hamaguchi, in the *Book of Abstracts of the AVS 64th International Symposium & Exhibition* (Oct. 6-Nov. 3, 2017, Tampa,

- Florida, USA) PS+AS+SS-MoA2, p.39
- (5) "Molecular Dynamics Simulation of Ni Self-sputtering and Modeling of Interatomic Potential Functions," N. Mauchamp, M. Isobe, and S. Hamaguchi, *in the Book of Abstracts of the AVS 64th International Symposium & Exhibition* (Oct. 6-Nov. 3, 2017, Tampa, Florida, USA) PS-TuP7, p.103
 - (6) "Si, SiO₂, and Si₃N₄ Etching Characteristics of Silicon Halide Ions (SiF_x⁺, SiCl_x⁺, and SiBr_x⁺)," K. Karahashi, T. Ito, H. Li, Y. Muraki, M. Matsukuma, and S. Hamaguchi, *in the Book of Abstracts of the AVS 64th International Symposium & Exhibition* (Oct. 6-Nov. 3, 2017, Tampa, Florida, USA) PS-TuP9, p. 103
 - (7) "Numerical Simulations of Atomic-Layer Etching (ALE) for SiO₂ and SiN," Y. Okada, R. Sugano, M. Isobe, T. Ito, H. Li, K. Karahashi, and S. Hamaguchi, *in the Book of Abstracts of the AVS 64th International Symposium & Exhibition* (Oct. 6-Nov. 3, 2017, Tampa, Florida, USA) PS+NS+SS+TF-ThM12, p. 182
 - (8) "Cyclic etching of ITO using controlled modified-layer," A. Hirata, M. Fukasawa, K. Nagahata, H. Li, K. Karahashi, S. Hamaguchi, and T. Tatsumi, *in Proceedings of the 39th International Symposium on Dry Process (DPS2017)* (November 16 & 17, 2017, Tokyo Tech Front, Tokyo Institute of Technology, Tokyo, Japan) E-1, pp39-40.
 - (9) "Surface reactions of metal surfaces with adsorbed organic compounds by Ar⁺ ion irradiation," Tomoko Ito, Kazuhiro Karahashi and, Satoshi Hamaguchi, *in Proceedings of the 39th International Symposium on Dry Process (DPS2017)* (November 16 & 17, 2017, Tokyo Tech Front, Tokyo Institute of Technology, Tokyo, Japan) E-4, pp.45-46.
 - (10) "Molecular dynamics simulations of atomic-layer etching (ALE) of SiO₂," Yuki Okada, Michiro Isobe, Tomoko Ito, Kazuhiro Karahashi, and Satoshi Hamaguchi, *in Proceedings of the 39th International Symposium on Dry Process (DPS2017)* (November 16 & 17, 2017, Tokyo Tech Front, Tokyo Institute of Technology, Tokyo, Japan) E-5, pp.47-48.
 - (11) "Etching mechanisms of ITO by low energy hydrocarbon ions," Hu Li, Kazuhiro Karahashi, Masanaga Fukasawa, Akiko Hirata, Kazunori Nagahata, Tetsuya Tatsumi, Pascal Friederich, Karin Fink, Wolfgang Wenzel, and Satoshi Hamaguchi, *in Proceedings of the 39th International Symposium on Dry Process (DPS2017)* (November 16 & 17, 2017, Tokyo Tech Front, Tokyo Institute of Technology, Tokyo, Japan) P-7, pp.63-64.
 - (12) "Collision Cascade Dynamics for Self-Sputtering of Lennard-Jones Atoms," Nicolas A. Mauchamp, Michiro Isobe, and Satoshi Hamaguchi, *in Proceedings of the 39th International Symposium on Dry Process (DPS2017)* (November 16 & 17, 2017, Tokyo Tech Front, Tokyo Institute of Technology, Tokyo, Japan) P-31, pp111-112.
 - (13) "Characteristics of Laminar and Turbulent Modes of Cold Atmospheric Pressure Plasma Jet," Abdulrahman H. Basher and Abdel-Aleam H. Mohamed, *in the Book of Abstracts of the 10th EU-Japan Joint Symposium on Plasma Processing* (Dec. 4-7, 2017, Bankoku Shinryokan, Okinawa, Japan) P-5, p.30.
 - (14) "Construction and Function Test of Rogowski Coil for Plasma Spot and Plasma Discharge Currents Measurement in Plasma Cathode Electron Source (PCES)" A.H. Anjar, Suprpto, A. Ihwanul, P. Agus, Badiwiyana, and W. Agus, *in the Book of Abstracts of the 10th EU-Japan Joint Symposium on Plasma Processing* (Dec. 4-7, 2017, Bankoku Shinryokan, Okinawa, Japan) P-6, pp.31-32.
 - (15) "Molecular dynamics simulations of high-density polyethylene etching by argon plasma," Aubrey Faith Mella, Trung Phung, Magdaleno Vasquez Jr., and Satoshi Hamaguchi, *in the Book of Abstracts*

- of the 10th EU-Japan Joint Symposium on Plasma Processing (Dec. 4-7, 2017, Bankoku Shinryokan, Okinawa, Japan) P-9, pp36-37.
- (16) "Numerical Simulation of Plasma-induced Hypochlorous Acid Generation at the Plasma-liquid Interface," Kazumasa Ikuse and Satoshi Hamaguchi, *in the Book of Abstracts of the 10th EU-Japan Joint Symposium on Plasma Processing* (Dec. 4-7, 2017, Bankoku Shinryokan, Okinawa, Japan) P-16, pp.49-50.
 - (17) "Surface Conditioning via RF Plasma Irradiation of Natural Zeolite for Chromium Adsorption," Charisse Marie D. Cagomoc and Magdaleno R. Vasquez Jr., *in the Book of Abstracts of the 10th EU-Japan Joint Symposium on Plasma Processing* (Dec. 4-7, 2017, Bankoku Shinryokan, Okinawa, Japan) P-20, pp55-56.
 - (18) "Amino Group Surface Modification of Cell Culture Polystyrene Dishes by an Inverter Plasma Process," Satoshi Sugimoto, Tomoko Ito, Kai Kubota, Kazuma Nishiyama and Satoshi Hamaguchi, *in the Book of Abstracts of the 10th EU-Japan Joint Symposium on Plasma Processing* (Dec. 4-7, 2017, Bankoku Shinryokan, Okinawa, Japan) P-26, p.65.
 - (19) "Surface reactions of nickel by carbon monoxide cluster beams," Kazuhiro Karahashi, Toshio Seki, Keizo Kinoshita, Jiro Matsuo, and Satoshi Hamaguchi, *in the Book of Abstracts of the 82nd IUVSTA Workshop on Plasma-based Atomic Layer Processes* (Dec. 4-7, 2017, Bankoku Shinryokan, Okinawa, Japan) P-101, pp.17-18.
 - (20) "XPS Analysis of Adsorbed Organic Compounds on Magnetic Materials Surfaces," Tomoko Ito, Kazuhiro Karahashi and, Satoshi Hamaguchi, *in the Book of Abstracts of the 82nd IUVSTA Workshop on Plasma-based Atomic Layer Processes* (Dec. 4-7, 2017, Bankoku Shinryokan, Okinawa, Japan) P-103, pp.20-21.
 - (21) "Molecular dynamics simulation of Ni self-sputtering and modeling of interatomic potential functions," Nicolas Mauchamp, Michiro Isobe and Satoshi Hamaguchi, *in the Book of Abstracts of the 82nd IUVSTA Workshop on Plasma-based Atomic Layer Processes* (Dec. 4-7, 2017, Bankoku Shinryokan, Okinawa, Japan) P-104, p.22.
 - (22) "Molecular dynamics simulations of atomic-layer etching (ALE) of SiO₂," Yuki Okada, Michiro Isobe, and Satoshi Hamaguchi, *in the Book of Abstracts of the 82nd IUVSTA Workshop on Plasma-based Atomic Layer Processes* (Dec. 4-7, 2017, Bankoku Shinryokan, Okinawa, Japan) P-105, pp. 24-25.
 - (23) "Customising ion flux-energy distributions in low-pressure capacitive RF discharges," Z. Donkó, J. Schulze, E. Schuengel, A. Derzsi, M. Vass, and S. Hamaguchi, *in the Book of Abstracts of the 82nd IUVSTA Workshop on Plasma-based Atomic Layer Processes* (Dec. 4-7, 2017, Bankoku Shinryokan, Okinawa, Japan) I-17, pp.49-50. [invited]
 - (24) "Reactive Species Generated in Water Exposed to Atmospheric-pressure Plasmas or Water Discharges," Kazumasa Ikuse, Tomoko Ito, and Satoshi Hamaguchi, *in the Book of Abstracts of the 10th Asia-Pacific International Symposium on the Basics and Applications of Plasma Technology (APSPT)* (Dec. 15-17, 2017, Chung Yuan Christian University, Taoyuan, Taiwan) S5 - 01 [invited]
 - (25) "Numerical and experimental analyses of atmospheric-pressure plasmas and plasma-liquid interaction," Satoshi Hamaguchi, Kazumasa Ikuse, and Tomoko Ito, *in the Book of Abstracts of the 2nd International Symposium of the Vacuum Society of the Philippines (ISVSP)* (09-12 January 2018, GT-Toyota Asian Center Auditorium, University of the Philippines-Diliman, Quezon City, Philippines) p. 62. [invited]

- (26) “Plasma Surface Functionalization of Biocompatible Materials,” Tomoko Ito, Anjar Anggraini Harumningtyas, Satoshi Sugimoto, and Satoshi Hamaguchi, in the *Book of Abstracts of the 2nd International Workshop On Plasma Agriculture (IWOPA2)* (March 9-11, 2018, Takayama Civic Cultural Hall, Takayama, Gifu, Japan) P-53, p. 85.
- (27) “Numerical Simulation of Plasma Water Treatment with Chlorine,” Satoshi Hamaguchi and Kazumasa Ikuse, in the *Book of Abstracts of the 2nd International Workshop On Plasma Agriculture (IWOPA2)* (March 9-11, 2018, Takayama Civic Cultural Hall, Takayama, Gifu, Japan) I-10, p10. [invited]

●国内会議

- (1) 「ビーム実験によるエッチング反応解析」、唐橋一浩、3rd Atomic Layer Process (ALP) Workshop (2017年6月23日、東京大学工学部4号館、東京都文京区) [招待講演]
- (2) 「大気圧プラズマによって気液界面に生成される次亜塩素酸の数値シミュレーション解析」、幾世和将、浜口智志、第78回応用物理学会秋季学術講演会(2017年9月15-20日、福岡国際会議場、福岡県福岡市) 8p-A402-10.
- (3) 「SiN/SiO₂ 積層深孔加工におけるパターン内壁の表面組成解析」、岩瀬拓、唐橋一浩、浜口智志、第78回応用物理学会秋季学術講演会(2017年9月15-20日、福岡国際会議場、福岡県福岡市) 7p-A402-1.
- (4) 「Ni 表面に対するヘキサフルオロアセチルアセトンによる表面反応の解明」、伊藤智子、唐橋一浩、浜口智志、第78回応用物理学会秋季学術講演会(2017年9月15-20日、福岡国際会議場、福岡県福岡市) 7a-A402-2.
- (5) 「金属表面における XeF₂ 曝露によるフッ化物層のエッチング反応」、唐橋一浩、伊藤智子、浜口智志、第78回応用物理学会秋季学術講演会(2017年9月15-20日、福岡国際会議場、福岡県福岡市) 7a-A402-4.
- (6) 「フルオロカーボンプラズマとアルゴンプラズマによる SiO₂ 原子層エッチングの分子動力学シミュレーション」、岡田裕貴、磯部倫郎、浜口智志、第78回応用物理学会秋季学術講演会(2017年9月15-20日、福岡国際会議場、福岡県福岡市) 7p-A402-4.
- (7) 「H による変質層を用いた ITO エッチレートの高精度制御」、平田瑛子、深沢正永、長畑和典、李虎、伊藤智子、唐橋一浩、浜口智志、辰巳哲也、第78回応用物理学会秋季学術講演会(2017年9月15-20日、福岡国際会議場、福岡県福岡市) 7p-A402-2.
- (8) 「He⁺イオン照射により前処理された ZnO エッチング機構の解明」、李虎、伊藤智子、唐橋一浩、深沢正永、平田瑛子、長畑和典、辰巳哲也、浜口智志、第78回応用物理学会秋季学術講演会(2017年9月15-20日、福岡国際会議場、福岡県福岡市) 7a-A402-3.
- (9) 「Evaluation of Nickel Self-Sputtering Yields by Molecular Dynamics Simulation」、Nicolas Aini Mauchamp、Michiro Isobe、Satoshi Hamaguchi、第78回応用物理学会秋季学術講演会(2017年9月15-20日、福岡国際会議場、福岡県福岡市) 5p-S22-3.
- (10) 「分子動力学シミュレーションによるプラズマプロセス表面反応機構解析」、浜口智志、2017年度精密工学会秋季大会(2017/09/20-09/22、大阪大学豊中キャンパス、大阪府豊中市) 精密工学会学術講演会講演論文集 2017A 巻 (2017) D36 [基調講演]
- (11) 「Molecular dynamics simulation of damage formation in Ni due to H⁺ ion bombardment」、Trung Phung、磯部倫郎、森川良忠、稲垣耕司、浜口智志、2017年度精密工学会秋季大会(2017/09/20-09/22、大阪大学豊中キャンパス、大阪府豊中市) 精密工学会学術講演会講演論文集 2017A 巻 (2017) D39
- (12) 「プラズマ医療：生体材料プロセスとプラズマ液体相互作用」、浜口智志、第2回「プラズマバイオサイエンス基盤研究促進」勉強会(2017年10月19日、自然科学研究機構、東京都港区) [招待講演]

- (13) 「気液界面プラズマにおける理論モデルおよびシミュレーション解析の現状と課題」、浜口智志、Plasma Conference 2017 (PLASMA2017) [応用物理学会第 35 回プラズマプロセスング研究会/プラズマ・核融合学会第 34 回年会/日本物理学会 (領域 2) 2017 年秋季大会 /第 30 回プラズマ材料科学シンポジウム] (2017 年 11 月 20 日—24 日、姫路商工会議所、兵庫県姫路市) S11-6 [招待講演].
- (14) 「プラズマによって誘起された液中次亜塩素酸の反応輸送シミュレーション解析」、幾世和将、浜口智志、Plasma Conference 2017 (PLASMA2017) [応用物理学会第 35 回プラズマプロセスング研究会/プラズマ・核融合学会第 34 回年会/日本物理学会 (領域 2) 2017 年秋季大会 /第 30 回プラズマ材料科学シンポジウム] (2017 年 11 月 20 日—24 日、姫路商工会議所、兵庫県姫路市) 22Ea-03.
- (15) 「数学・情報科学的手法は未来の製造業にどう役立つか？—半導体産業の例」、浜口智志、大阪大学 MMDS ワークショップ “工学と数学の接点を求めて” (2017 年 11 月 28 日—29 日：大阪大学基礎工学国際棟シグマホール、大阪府豊中市) [招待講演]
- (16) 「プラズマ技術が拓く新しい診断・治療・創薬の未来」、浜口智志、第 9 回プラズマ医療・健康産業シンポジウム (2017 年 12 月 21 日、(国研) 産業技術総合研究所・臨海副都心センター、東京都江東区) [招待講演]
- (17) 「Molecular Dynamics Simulation for Physical Sputtering of Surfaces made of Lennard-Jones Atoms」、Nicolas Aini Mauchamp、Michiro Isobe、Satoshi Hamaguchi、第 65 回応用物理学会春季学術講演会 (2018 年 3 月 17-20 日、早稲田大学西早稲田キャンパス、東京都新宿区) 18a-C204-3.
- (18) 「ヘキサフルオロアセチルアセトン吸着表面金属 (Ni, Cu) におけるエッチング反応」、伊藤智子、唐橋一浩、浜口智志、第 65 回応用物理学会春季学術講演会 (2018 年 3 月 17-20 日、早稲田大学西早稲田キャンパス、東京都新宿区) 19p-C204-3.
- (19) 「フルオロカーボン ($C_x F_y^+$) イオンによる SiO_2 および Si エッチング反応」、唐橋一浩、李虎、伊藤智子、浜口智志、第 65 回応用物理学会春季学術講演会 (2018 年 3 月 17-20 日、早稲田大学西早稲田キャンパス、東京都新宿区) 19p-C204-7.
- (20) 「エッチングケミストリー ～磁性体材料から酸化物半導体まで～」、唐橋一浩、平成 29 年度実践セミナー『エッチング実践セミナー』(2017 年 9 月 13 日、産業技術総合研究所、TIA 推進センター、つくば) [招待講演]
- (21) 「各種ビームを用いた表面反応解析」、唐橋一浩、第 28 回プラズマエレクトロニクス講習会～プラズマプロセスの基礎と先端分野への応用～ (2017 年 11 月 15 日、東京大学、本郷キャンパス) [招待講演] pp71-86
- (22) 「 SiO_2 の Atomic Layer Etching (ALE) に関する分子動力学シミュレーション」、岡田裕貴、磯部倫郎、伊藤智子、唐橋一浩、浜口智志、応用物理学会/シリコンテクノロジー分科会 第 206 回研究集会：デバイスプロセスとシミュレーション (2018 年 2 月 9 日、福東京大学、本郷キャンパス) [招待講演] pp9-13.

● 著書・解説

- (1) “Simulation of Reactive Species: Kinetics in Aqueous Phase,” Kazumasa Ikuse and Satoshi Hamaguchi, *Plasma Medical Science* (ed. Shinya Toyokuni, Masaru Hori, Yuzuru Ikehara, and Fumitaka Kikkawa, Academic Press, Elsevier, London 2018), *in press*.
- (2) 「プラズマが生成する化学種の数値予測」、浜口智志，“高度物理刺激と生体応答” (佐藤岳彦・大橋俊朗・川野聡恭・白樫了 編著：養賢堂、2017) pp. 104–108.

表面反応制御設計研究部門 プラズマ物性設計分野

●論文

- (1) “Injected ion energy dependence of SiC film deposited by low-energy SiC_3H_9^+ ion beam produced from hexamethyldisilane”, S. Yoshimura, S. Sugimoto, T. Takeuchi, K. Murai, M. Kiuchi, Nuclear Inst. and Methods in Physics Research B 420 (2018) 6-11.

●国際会議

- (1) “Amino Group Surface Modification of Cell Culture Polystyrene Dishes by an Inverter Plasma Process”, Satoshi Sugimoto, Tomoko Ito, Kai Kubota, Kazuma Nishiyama and Satoshi Hamaguchi, The 10th EU-Japan Joint Symposium on Plasma Processing (JSPP2017) (December 4-7, 2017, Bankoku Shinryokan, Okinawa).
- (2) “Indium nano-particles deposition to zeolite powder by a pulse arc plasma process for synthesizing catalysts”, Y. Nishimoto, S. Sugimoto, M. Kiuchi, M. Yasuda, The 8th International Symposium on Surface Science (October 22-26, 2017, Tsukuba International Congress Center, Tsukuba, Japan).

●国内会議

- (1) 「低エネルギーケイ素分子イオンビームの生成と酸化ケイ素成膜への応用」, 吉村智, 杉本敏司, 竹内孝江, 村井健介, 木内正人, 第65回応用物理学会春季学術講演会, 17p-C201-2, 2018年3月17日.

●表面反応制御設計研究部門 プラズマ応用設計分野

●国際会議

- (1) "Effective disinfection of the infected skin model using porcine tissue by low temperature atmospheric pressure plasma with the reduced-pH method", Takashi Yokoyama, Satoshi Ikawa, Katsuhisa Kitano, The 10th Asia-Pacific International Symposium on the Basics and Applications of Plasma Technology (APSPT-10), Taoyuan, Taiwan, Dec 15-17, (2017).
- (2) "Smart disinfection technique using peroxyntic acid (HOONO_2) in cryo-preserved plasma-treated water with the reduced-pH method", Katsuhisa Kitano, Satoshi Ikawa, Yoichi Nakashima, Atsushi Tani, Norihito Kawashita, Yusuke Kawashima, Takashi Yokoyama, The 10th EU-Japan Joint Symposium on Plasma Processing (JSPP2017), Okinawa, Japan, Dec. 4-7, (2017). (Invited talk)
- (3) "Disinfection of the skin surface by low temperature atmospheric pressure plasma with the reduced-pH method", Takashi Yokoyama, Satoshi Ikawa, Katsuhisa Kitano, The 10th EU-Japan Joint Symposium on Plasma Processing (JSPP2017), Okinawa, Japan, Dec. 4-7, (2017).
- (4) "Peroxyntic acid (HOONO_2) is the key chemical species of plasma-treated water for effective and safety disinfection", Katsuhisa Kitano, The 70th gaseous electronics conference (GEC-70), Pittsburgh, USA, Nov 6-10, (2017). (Invited talk)
- (5) "Peroxyntic acid (HOONO_2) is the active component in cryo-preserved plasma-treated water with the reduced-pH method for effective and safety disinfection", K. Kitano, S. Ikawa, Y. Nakashima, N. Kawashita, A. Tani, he 23rd International Symposium on Plasma Chemistry (IPSC-23), Montreal, Canada, July 30-August 4, (2017).

●国内会議

- (1) 「過硝酸溶液を用いたまごで画期的な殺菌法 ～プラズマばいばいきーん～」, 北野勝久, 井川聡, 中島陽一, 谷篤史, 大島朋子, 座古保, 9th バイオメディカルインターフェースワークショップ, 石垣島 大濱信泉記念館, 沖縄, (2018/3/15-17).

- (2) 「大気圧低温プラズマによる分子シャペロン PFD の Folding 活性向上メカニズム」、小豆澤友希、井川聡、養王田正文、北野勝久、座古保、9th バイオメディカルインターフェースワークショップ、石垣島 大濱信泉記念館、沖縄、(2018/3/15-17) .
- (3) 「プラズマ処理水中に生成した過硝酸による殺菌消毒」、北野勝久、井川聡、中島陽一、谷篤史、2018 年度第一回静電気学会研究会、東京大学、東京、(2018/3/6) . (招待講演)
- (4) 「気液界面プラズマから見たプラズマ医療における多階層反応の理解」、北野勝久、「自然科学における階層と全体」シンポジウム、名古屋ルーセントタワー、愛知県、(2018/2/19) . (招待講演)
- (5) 「大気圧プラズマを用いた抗酸化機能を有する界面の構築」、池田豊、北野勝久、長崎幸夫、第 2 7 回日本 MRS、横浜市開港記念会館、神奈川、(2017/12/5-7) .
- (6) 「ウルトラピュア大気圧 He プラズマ中の準安定 He 原子の吸収分光測定」、羽田拓実、池田隼輝、北野勝久、品田恵、荒巻光利、第 50 回 (平成 29 年度) 学術講演会、日本大学、千葉、(2017/12/2) .
- (7) 「プラズマ処理水中の殺菌化学種である過硝酸の同定」、北野勝久、井川聡、中島陽一、谷篤史、Plasma Conference 2017 (PLASMA2017)、姫路商工会議所、兵庫、(2017/11/20-24) .
- (8) 「ウルトラピュア大気圧ヘリウムプラズマの極端紫外線分光」、北野勝久、吉田実加、荒巻光利、品田恵、松岡諭史、Plasma Conference 2017 (PLASMA2017)、姫路商工会議所、兵庫、(2017/11/20-24) .
- (9) 「ブタ表皮感染モデルの低 pH 法を用いた大気圧低温プラズマの殺菌力の検証」、横山高史、井川聡、北野勝久、Plasma Conference 2017 (PLASMA2017)、姫路商工会議所、兵庫、(2017/11/20-24) .
- (10) 「リポソームを用いたプラズマ処理水による細胞内酸化ストレスの評価」、寺脇大紘、吉澤俊祐、白木賢太郎、横山高史、井川聡、北野勝久、Plasma Conference 2017 (PLASMA2017)、姫路商工会議所、兵庫、(2017/11/20-24) .
- (11) 「プラズマ処理水における殺菌効果の有機夾雑物による阻害効果の速度論的検証」、宮崎慎也、横山高史 1、井川聡、北野勝久、Plasma Conference 2017 (PLASMA2017)、姫路商工会議所、兵庫、(2017/11/20-24) .
- (12) 「KI 法を用いたプラズマ処理水における過硝酸と過酸化水素の定量」、小田雄斗、横山高史、遠藤佑真、井川聡、中島陽一、北野勝久、Plasma Conference 2017 (PLASMA2017)、姫路商工会議所、兵庫、(2017/11/20-24) .
- (13) 「大気圧低温プラズマ処理がブロッコリー種子の発芽率と吸水速度に与える影響」、友光平 1、吉村信次、横山高史、井川聡、北野勝久、Plasma Conference 2017 (PLASMA2017)、姫路商工会議所、兵庫、(2017/11/20-24) .
- (14) 「プラズマ処理水中における過硝酸の生成過程」、遠藤佑真、井川聡、中島陽一、谷篤史、北野勝久、Plasma Conference 2017 (PLASMA2017)、姫路商工会議所、兵庫、(2017/11/20-24) .
- (15) 「ウルトラピュア大気圧 He プラズマ中の準安定原子の分光測定」、羽田拓実、北野勝久、品田恵、荒巻光利、Plasma Conference 2017 (PLASMA2017)、姫路商工会議所、兵庫、(2017/11/20-24) .
- (16) 「プラズマ液中化学反応による分子シャペロン Prefoldin のフォールディング活性向上」、小豆澤友希、井川聡、養王田正文、座古保、北野勝久、Plasma Conference 2017 (PLASMA2017)、姫路商工会議所、兵庫、(2017/11/20-24) .
- (17) 「大気圧低温プラズマ照射による分子シャペロン Prefoldin の高活性化」、小豆澤友希、北野勝久、養王田正文、井川聡、座古保、2017 年日本化学会中国四国支部大会、鳥取産業体育館、鳥取、(2017/11/11,12) .
- (18) 「過硝酸溶液を用いた新しい殺菌手法の提案」、北野勝久、井川聡、中島陽一、谷篤史、日本防菌防黴学会第 44 回年次大会、千里ライフサイエンスセンター、大阪、(2017/9/26,27) .

- (19) 「大気圧低温プラズマの医療応用」、北野勝久、大阪大学蛋白研究所セミナー 産業応用を志向するタンパク質溶液研究、大阪大学、(2017/9/11, 12). (招待講演)
- (20) 「大気圧低温プラズマによる分子シャペロン PFD の Folding 活性向上」、小豆澤 友希、井川聡、養王田正文、北野 勝久、座古保、第 69 回日本生物工学会大会、早稲田大学、東京、(2017/9/11-14) .
- (21) 「プラズマ処理水中における過硝酸の生成過程」、北野勝久、井川聡、中島陽一、谷篤史、第 78 回応用物理学会秋季学術講演会、福岡国際会議場、福岡、(2017/9/5-8) .
- (22) 「ウルトラピュア大気圧ヘリウムプラズマの真空紫外分光」、北野勝久、吉田実加、荒巻光利、品田恵、松岡諭史、第 78 回応用物理学会秋季学術講演会、福岡国際会議場、福岡、(2017/9/5-8) .
- (23) 「ブタ皮表面における低 pH 法を用いた大気圧低温プラズマによる殺菌力の評価と菌回収方法の比較」、横山高史、井川聡、北野勝久、第 78 回応用物理学会秋季学術講演会、福岡国際会議場、福岡、(2017/9/5-8) .
- (24) 「リポソームを用いたプラズマ処理水による細胞内酸化ストレスの評価」、寺脇大紘、吉澤俊祐、白木賢太郎、横山 高史、井川聡、北野勝久、第 78 回応用物理学会秋季学術講演会、福岡国際会議場、福岡、(2017/9/5-8) .
- (25) 「KI 法を用いたプラズマ処理水における過硝酸と過酸化水素の定量」、小田雄斗、横山高史、井川聡、北野勝久、第 78 回応用物理学会秋季学術講演会、福岡国際会議場、福岡、(2017/9/5-8) .
- (26) 「大気圧低温プラズマによる分子シャペロン PFD の活性制御」、小豆澤友希、井川聡、養王田正文、座古保、北野勝久、第 78 回応用物理学会秋季学術講演会、福岡国際会議場、福岡、(2017/9/5-8) .
- (27) 「プラズマ処理水中の過硝酸の分解に関する量子化学計算」、川嶋裕介、川下理日人、高木達也、井川聡、北野勝久、第 57 回分子科学若手の会 夏の学校、分子科学研究所、愛知、(2017/8/21-25) .
- (28) 「大気圧 LF ジェットプラズマ中の準安定 He 原子の測定」、羽田拓未、荒巻光利、北野勝久、品田恵、プラズマ科学のフロンティア 2017 研究会、核融合科学研究所、岐阜、(2017/8/2-4) .
- (29) 「細胞の品質管理を可能にする培養機材表面の構築 -大気圧プラズマを用いた検討-」、池田豊、北野勝久、長崎幸夫、第 46 回医用高分子シンポジウム、産業技術研究所 臨海副都心センター、東京、(2017/7/24, 25) .
- (30) 「低温大気圧プラズマ照射による分子シャペロン PFD の活性制御」、小豆澤友希、井川聡、養王田正文、北野勝久、座古保、第 17 回日本蛋白質科学会年会、仙台国際センター、宮城、(2017/6/20-22) .

● 著書・解説

- (1) 「プラズマ誘起液中化学反応場における液中化学種の診断」、北野勝久、谷篤史、井川聡、中島陽一、応用物理学会プラズマエレクトロニクス分科会会報、(2017/12) .
- (2) 「プラズマ殺菌から過硝酸を用いた化学殺菌へ」、北野勝久、日本防菌防黴学会誌、46、No2、(2018) .

● 特許

- (1) EP 特許査定 (EP 8833279.6、「Sterilization method, formulation for sterilization use, and device for producing sterilizing liquid」、出願人：北野勝久、谷篤史、井川聡、中島陽一、発明者：北野勝久、谷篤史、井川聡、中島陽一、2018/3/1)
- (2) 米国出願 (US-15/698331、「Dielectric barrier discharge ionization detector」、出願人：島津製作所、大阪大学、発明者：品田恵、北野勝久、2017/9/7) .
- (3) 米国出願 (US-15/698312、「Dielectric barrier discharge ionization detector」、出願人：島津製

- 作所、大阪大学、発明者：品田恵、北野勝久、2017/9/7）。
- (4) 中国出願（201710798472.X、「Dielectric barrier discharge ionization detector」、出願人：島津製作所、大阪大学、発明者：品田恵、北野勝久、2017/9/7）。
 - (5) 中国出願（201710798500.8、「Dielectric barrier discharge ionization detector」、出願人：島津製作所、大阪大学、発明者：品田恵、北野勝久、2017/9/7）。
 - (6) 日本国登録（特許第 6176110 号、「水素化処理方法および水素化処理装置」、出願人：日産化学工業、発明者：北野勝久、2017/6/1）。

表面反応制御設計研究部門 環境反応設計分野

論文

- (1) “Enhanced sterilization and healing of cutaneous pseudomonas infection using 5-aminolevulinic acid as a photosensitizer with 410-nm LED light”, Bunpei Katayama, Toshiyuki Ozawa, Kuniyuki Morimoto, Kunio Awazu, Nobuhisa Ito, Norihiro Honda, Naoki Oiso, Daisuke Tsuruta, Journal of dermatological science, in press,(2018).
- (2) “Highly Selective Photodynamic Therapy with a Short Drug-Light Interval Using a Cytotoxic Photosensitizer Porphyrus Envelope for Drug-Resistant Prostate Cancer Cells”, Youngsoon Hong, Mizuho Inai, Norihiro Honda, Hisanao Hazama, Manjusha A. Joshi, Hiroyuki Nakamura, Tomoyuki Nishikawa, Yasufumi Kaneda, Kunio Awazu, International Journal of Clinical Medicine, Vol.9, No.1 (2016) 8-22.
- (3) “Photodynamic therapy using a cytotoxic photosensitizer porphyrus envelope that targets the cell membrane”, M. Inai, N. Honda, H. Hazama, S. Akter, S. Fuse, H. Nakamura, T. Nishikawa, Y. Kaneda, K. Awazu, Vol.20, (2018) 238-245.
- (4) “Continuous flow reduced - pressure infrared laser desorption/ionization mass spectrometry”, Yasunari Iguchi, Hisanao Hazama, Kunio Awazu, Rapid Communications in Mass Spectrometry, Vol. 31, No. 21 (2017), 1845-1850.

国際会議

- (1) “3D Monte Carlo Simulation for Estimation of Treatment Area in PDT for Malignant Brain Tumor”, D. Kajioka, N. Honda, K. Awazu, European Conferences on Biomedical Optics (2017.6.25-29, Messe Munich, Munich, Germany)
- (2) “Estimation of anisotropy factor spectrum for determination of optical properties in biological tissues”, M. Iwamoto, N. Honda, K. Ishii, K. Awazu, European Conferences on Biomedical Optics (ECBO) 2017, (2017.6.25-6.29, International Congress Center Munich, Munich, Germany)
- (3) “Evaluation of a Novel Photosensitizing Drug Having Antitumor Effect for Advanced Prostate Cancer”, Sachiko Saito, Mizuho Inai, Norihiro Honda, Hisanao Hazama, Yasufumi Kaneda, Kunio Awazu, European Conference on Biomedical Optics (2017.6.25-29, Messe Munich, Munich, Germany)
- (4) “Development of an Optical System for Uniform Laser Irradiation in Stigmatic Imaging Mass Spectrometry”, Yuma Turumoto, Hisanao Hazama, Jun Aoki, Mitisato Toyoda, Kunio Awazu, 65th ASMS Conference on Mass Spectrometry and Allied Topics (2017.6.4~8, Indiana convention center, Indianapolis, USA)
- (5) “Improvement of the Ionization Efficiency of MALDI Using Zeolite Matrix for Simultaneous Imaging of Multiple Drugs Administered in Cancer Cells”, S. Nomura, H. Hazama, Y. Kaneda, T. Fujino, K. Awazu, 65th American Society for Mass Spectrometry (ASMS) Conference on Mass

- Spectrometry and Allied Topics(2017.6.4-8, Indiana convention center, Indianapolis, USA)
- (6) “In silico evaluation of damage area induced by iPDT for glioblastoma”, N. Honda, D. Kajioka, H. Hazama, K. Awazu, 5th International ALA and Porphyrin Symposium (IAPS5) (2017.12.2, Ludwig-Maximilians-University Munich, Munich, Germany)
 - (7) “Biological tissue optical properties measurement for light medicine”, K. Awazu, N. Honda, H. Hazama, The 24th congress of the international commission of optics (2017.8.24, Keio Plaza Hotel Tokyo in Shinjuku, Tokyo)
 - (8) “Quantitative evaluation of the safety of mucosal incision and submucosal dissection for colon during endoscopic submucosal dissection using carbon dioxide laser”, Takuma Noguchi, Norihiro Honda, Hisanao Hazama, Yoshinori Morita, Kunio Awazu, SPIE PHTONICS WEST 2018 (2018/01/26-2018/02/02, San Francisco, USA)
 - (9) “Development of a Continuous Flow Infrared (IR) Laser Desorption Electrospray Ionization Source for Online LC/MS Analysis of Peptides and Proteins”, Koichi. Kimura, Hisanao. Hazama, Kunio. Awazu, 65th ASMS Conference on Mass Spectrometry and Allied Topics, 2017.6.4-8, Indiana convention center, Indianapolis, USA

●国内会議

- (1) 「タラポルフィンナトリウム封入不活化センダイウイルスを用いた PDT の in vivo 抗腫瘍効果」, 稲井瑞穂, 斎藤祥子, 本多典広, 大崎智弘, 間久直, 岡本芳晴, 金田安史, 栗津邦男, 第 27 回日本光線力学学会(2017.7.14-15, 京都大学芝蘭会館, 京都府京都市)
- (2) 「タラポルフィンナトリウム封入不活化センダイウイルスを用いた PDT の in vivo での抗腫瘍効果」, 稲井瑞穂, 斎藤祥子, 本多典広, 大崎智弘, 間久直, 岡本芳晴, 金田安史, 栗津邦男, 第 38 回日本レーザー医学会総会(2017.11.10-11, 慶應義塾大学 日吉キャンパス, 神奈川県横浜市)
- (3) 「PDT により生じる一重項酸素による治療効果の In silico による評価」, 伊豆元敦貴, 本多典広, 間久直, 栗津邦男, 一般社団法人レーザー学会学術講演会第 38 回年次大会 (平成 30 年 1 月 24 日(水)~26 日(金) 京都府京都市勧業館みやこめっせ)
- (4) 「象牙質の低侵襲かつ高効率な切削に向けた波長 5.8 μm 帯量子カスケードレーザーのパルス構造の検討」, 松尾優希, 間久直, 石井克典, 吉川一志, 保尾謙三, 山本一世, 栗津邦男, 第 29 回日本レーザー歯学会総会・学術大会 (2017.9.23-24, 日本歯科大学 新潟生命歯学部 講堂・アイヴィホール, 新潟県新潟市)
- (5) 「複製能欠損ウイルス粒子とプロトポルフィリン IX 脂質を用いた PDT における腫瘍選択性向上のための治療条件の検討」, 洪暎淳, 稲井瑞穂, 本多典広, 間久直, 布施新一郎, 中村浩之, 金田安史, 栗津邦男, 第 27 回日本光線力学学会学術講演会(2017.7.14-15, 京都大学医学部創立百周年記念施設 芝蘭会館, 京都府京都市)
- (6) 「がんに対する PDT における局所投与用新規注射針の有効性評価のための薬剤濃度分布シミュレーションの構築」, 福光理美子, 本多典広, 間久直, 栗津邦夫, レーザー学会学術講演会第 38 回年次大会 (2018.1.24-26, 京都市勧業館みやこめっせ, 京都府京都市)
- (7) 「レーザー照明による蛍光脳血管造影の臨床応用へ向けた安全性の評価」, 井川萌子, 本多典広, 間久直, 栗津邦男, 第 38 回日本レーザー医学会総会 (2017. 11. 10-11), 慶應義塾大学 日吉キャンパス 協生館, 東京
- (8) 「大気圧レーザーイオン化質量分析による細胞内分子イメージングに向けた透過型レーザー照射光学系の開発」, 川井颯人, レーザー学会学術講演会第 38 回年次大会 (2018.1.26, 京都市勧業館みやこめっせ, 京都府京都市)
- (9) 「炭酸ガスレーザーを用いた内視鏡的粘膜下層剥離術における大腸の粘膜層切開と粘膜下層剥離の安全性評価」, 野口拓真, 本多典広, 間久直, 森田圭紀, 栗津邦男, 第 30 回レーザー医学会関西地方会、2017 年 7 月 29 日、神戸大学

- (10) 「異方性因子スペクトルの吸収および波長依存性を考慮した生体組織の光学特性値算出」, 岩本美沙子, 本多典広, 石井克典, 栗津邦男, 電気学会 光・量子デバイス研究会「バイオメディカルフォトニクス応用」2017.9.25, 東北大学東京分室, 東京)
- (11) 「ホルモン抵抗性ヒト前立腺がん細胞への迅速な薬剤輸送に向けた脂質鎖を有するプロトポルフィリン IX の複製能欠損ウイルス粒子への封入」, 洪暎淳, 稲井瑞穂, 本多典広, 間久直, 布施新一郎, 中村浩之, 金田安史, 栗津邦男, 第3回先端 PDDT フォーラム(2017.5.20, 高知城ホール, 高知県高知市)
- (12) 「細胞スケールの投影型イメージング質量分析に向けた均一レーザー照射光学系の開発」, 鶴本侑万, 間久直, 青木順, 豊田岐聡, 栗津邦男, 光・量子デバイス研究会・バイオメディカルフォトニクス応用(2017.9.25, 東北大学東京分室, 東京都千代田区)
- (13) 「投影型イメージング質量分析におけるビームシェイパーを用いた均一なレーザー照射に向けた光学系の検討」, 鶴本侑万, 間久直, 栗津邦男, 第65回質量分析総合討論会(2017.5.17~19, つくば国際会議場 エポカルつくば 茨城県つくば市)
- (14) 「がん細胞内複数薬剤の同時イメージングに向けたゼオライトマトリックスによるレーザーイオン化技術の開発」, 野村秀成, 間久直, 金田安史, 藤野竜也, 栗津邦男, 第65回質量分析総合討論会(2017.5.17-19, つくば国際会議場, 茨城県つくば市)
- (15) “Evaluation of therapeutic efficacy induced by a novel photosensitizer: talaporfin sodium-incorporated viral particle”, Sharmin Akter, Sachiko Saito, Mizuho Inai, Norihiro Honda, Hisanao Hazama, Yoshiharu Okamoto, Yasufumi Kaneda, Kunio Awazu, レーザー学会第507回研究会「光・レーザーの医学・医療応用」(2017.8.4, 北海道大学大学院 情報科学研究科棟, 北海道札幌市)
- (16) “Development of continuous flow IR laser desorption electrospray ionization method for analysis of peptides and proteins by LC/MS”, 木村公一・間久直・栗津邦男, 第65回質量分析総合討論会、2017.5.17-19、つくば国際会議場 エポカルつくば、茨城県つくば市
- (17) 「ペプチドおよびタンパク質のオンラインLC/MSに向けた連続流赤外レーザーエレクトロスプレーイオン化技術の開発」, 木村公一・間久直・栗津邦男, 第44回BMSコンファレンス(BMS2017)、2017.7.10-12、長浜ロイヤルホテル、滋賀県長浜市
- (18) 「悪性脳腫瘍に対する interstitial photodynamic therapy に用いられるレーザー機器の性能評価」, 栢野尊, 第4回先端 PDDT フォーラム, 2018.3.24, 東京大学医科学研究所病院棟8階, 東京都港区
- (19) 「悪性脳腫瘍に対する interstitial photodynamic therapy の治療計画に向けた3次元モンテカルロシミュレーションの構築」, 伊豆元敦貴, 第4回先端 PDDT フォーラム, 2018.3.24, 東京大学医科学研究所病院棟8階, 東京都港区
- (20) “A novel photodynamic therapy with lysosomal-targeted drug delivery using talaporfinsodium incorporated inactivated virus particles for drug-resistant prostate cancer”, Sharmin Akter, 第4回先端 PDDT フォーラム, 2018.3.24, 東京大学医科学研究所病院棟8階, 東京都

● 著書・解説

- (1) 「感染皮膚潰瘍に対する PDT」, 白鳥 実友, 小澤 俊幸, 片山 文平, 本多 典広, 栗津 邦男, 鶴田 大輔, 日本レーザー医学会誌, 38(4)(2017.12)
- (2) 「消化器科領域の炭酸ガスレーザー—より安全な内視鏡的粘膜下層剥離術を目指した, 炭酸ガスレーザーを用いた新たな展開—」, 森田 圭紀, 有吉 隆佑, 本多 典広, 間 久直, 栗津 邦男, 日本レーザー医学会誌 38(4) (2017.12)
- (3) 「レーザーイオン化を用いた投影型イメージング質量分析」, 間 久直, 応用物理, 86(5): 402-406 (2017)
- (4) 「中赤外レーザーの医療応用」, 間久直, 栗津邦男, 月刊オプトロニクス, 36(7): 76-80 (2017.7)

- (5) “Evaluation of Endovenous Laser Ablation for Varicose Veins Using a Computer Simulation Model (Secondary publication)”, Hisanao Hazama, Masato Yoshimori, Norihiro Honda, Kunio Awazu, *LASER THERAPY*, 26(4) (2017.12)
- (6) 「消化器科領域の炭酸ガスレーザー—より安全な内視鏡的粘膜下層剥離術を目指した，炭酸ガスレーザーを用いた新たな展開—」，森田 圭紀，有吉 隆佑，本多 典広，間 久直，栗津 邦男，*日本レーザー医学会誌* 38(4) (2017.12)

材料・構造・機能設計研究部門 コンポジット材料設計分野

論文

- (1) “Controlling operation timing and data flow direction between nanomagnet logic elements with spatially uniform clock fields”, Hikaru Nomura, Naomichi Yoshioka, Soichiro Miura and Ryoichi Nakatani, *Applied Physics Express*, 10 (2017) 123004.
- (2) “Magnetic field dependence of threshold electric field for magnetoelectric switching of exchange-bias polarity”, Thi Van Anh Nguyen, Yu Shiratsuchi, Atsushi Kobane, Saori Yoshida and Ryoichi Nakatani, *Journal of Applied Physics*, 122 (2017) 073905.
- (3) “Simultaneous achievement of high perpendicular exchange bias and low coercivity by controlling ferromagnetic/antiferromagnetic interfacial magnetic anisotropy”, Yu Shiratsuchi, Wataru Kuroda, Thi Van Anh Nguyen, Yoshinori Kotani, Kentaro Toyoki, Tetsuya Nakamura, Motohiro Suzuki, Kohji Nakamura and Ryoichi Nakatani, *Journal of Applied Physics*, 121 (2017) 073902.
- (4) “Pulse-voltage-driven dynamical switching of perpendicular exchange bias in Pt/Co/Au/Cr₂O₃/Pt thin film”, Thi Van Anh Nguyen, Yu Shiratsuchi, and Ryoichi Nakatani, *Applied Physics Express*, 10 (2017) 083002.
- (5) 「電気磁気効果を利用した垂直交換バイアス反転とそのダイナミクス」，Thi Van Anh Nguyen、白土 優，中谷亮一，*電子情報通信学会技術研究報告*，117 巻，247 号，(2017) 47-71.
- (6) “Thermal conductivity of cubic boron nitride (cBN) particle dispersed Al matrix composites fabricated by SPS”, Kiyoshi Mizuuchi, Kanryu Inoue, Yasuyuki Agari, Motohiro Tanaka, Takashi Takeuchi, Jun-ichi Tani, Masakazu Kawahara, Yukio Makino, Mikio Ito, *Materials Science Forum*, Vol.879, (2017), 2413-2418.
- (7) “Magnetocrystalline anisotropy of cementite pseudo single crystal fabricated under a rotating magnetic field”, Sukeyoshi Yamamoto, Tomoyuki Terai, Takashi Fukuda, Kazunori Sato, Tomoyuki Kakeshita, Shigeru Horii, Mikio Ito, Mitsuharu Yonemura, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Vol.451, (2018) 1-4.
- (8) “Synthesis of Co-doped β -FeSi₂/Si composites through eutectoid decomposition and its thermoelectric properties”, Farah Liana Binti Mohd Redzuan, Mikio Ito, Masatoshi Takeda, *Journal of Materials Science*, (2018) in press.

国際会議

- (1) “Dynamical magnetoelectric switching of perpendicular exchange bias in Pt/Co/Au/Cr₂O₃/Pt thin film using pulse voltage”, Yu Shiratsuchi, Thi Van Anh Nguyen, Atsushi Kobane, Saori Yoshida and Ryoichi Nakatani, 62nd Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, November 6-10, Pittsburgh, (2017).
- (2) “Magnetic field dependence of threshold electric field for magnetoelectric switching of perpendicular exchange bias”, Yu Shiratsuchi, Thi Van Anh Nguyen, Atsushi Kobane and Ryoichi Nakatani, 62nd Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, November 6-10,

- Pittsburgh, (2017).
- (3) “Electrostatic force measurement on magnetic thin film under soft X-ray irradiation”, Naoki Samura, Hikaru Nomura, Ryoichi Nakatani, Nobuaki Kikuchi, Satoshi Okamoto, Yoshinori Kotani, Kentaro Toyoki and Tetsuya Nakamura, Magnetism and Optics Research International Symposium (MORIS), January 7-10, New York, (2018).
 - (4) “Fanout element for nanomagnet logic circuit”, Hikaru Nomura, Naomichi Yoshioka, Soichiro Miura, Ryoichi Nakatani, Magnetism and Optics Research International Symposium (MORIS), January 7-10, New York, (2018).
 - (5) “Influence of Phosphorus Addition to the Microstructure of n-type β -FeSi₂/Si Duplex Composites’ Thermoelectric Material”, Farah Liana Binti Mohd Redzuan, Mikio Ito, Masatoshi Takeda, 4th International Conference on Powder Metallurgy in Asia (APMA2017), April 9-11, Hsinchu, Taiwan, (2017).
 - (6) “Densification behavior and thermoelectric properties of β -FeSi₂ synthesized by directly applied current sintering”, Mikio Ito, International Conference on Frontiers in Materials Processing Applications, Research and Technology, FiMPART’2017, July 11, Bordeaux, France, (2017). (Invited)
 - (7) “Effects of Cu addition to Si precipitations in β -FeSi₂/Si composite and its thermoelectric properties”, Farah Liana Binti Mohd Redzuan, Mikio Ito, JSPM International Conference on Powder and Powder Metallurgy ~ 60th Anniversary ~ (JSPMIC2017), November 8, Kyoto, (2017).
 - (8) “Synthesis of thermoelectric β -FeSi₂ via directly applied current sintering”, Mikio Ito, The 6th Global Conference on Materials Science and Engineering (CMSE 2017), October 26, Beijing, China, (2017). (Invited)
 - (9) “Synthesis of thermoelectric materials by directly applied current sintering process”, Mikio Ito, The 8th International Conference on Key Engineering Materials (ICKEM 2018), March 17, Osaka, Japan, (2018), (Keynote Speaker)

●国内会議

- (1) 「磁性シフトレジスタを用いたファンアウト素子」, 野村 光, 吉岡直倫, 中谷亮一, 第 41 回日本磁気学会学術講演会, 糸島, (2017).
- (2) 「Pt/Co/Au/Cr₂O₃/Pt 薄膜における電気磁気効果による交換バイアス反転過程」, 渡邊駿介, 白土 優, 岸田憲明, Thi Van Anh Nguyen, 中谷亮一, 小谷佳範, 豊木研太郎, 中村哲也, 日本金属学会 2017 年秋期大会, 札幌, (2017).
- (3) 「パルス電圧による交換磁気異方性反転過程の観察」, 吉田大哲, 白土 優, Thi Van Anh Nguyen, 中谷亮一, 小谷佳範, 豊木研太郎, 中村哲也, 日本金属学会 2017 年秋期大会, 札幌, (2017).
- (4) 「Co/Pt 多層膜に対する軟 X 線照射下での走査型プローブ顕微鏡測定」, 佐村直樹, 野村 光, 若狭凌生, 中谷亮一, 菊池伸明, 岡本 聡, 小谷佳範, 豊木研太郎, 中村哲也, 日本金属学会 2017 年秋期大会, 札幌, (2017).
- (5) 「Co²⁺および[PtCl₄]²⁻イオンをソーキングした PfV 結晶の電子密度分布」, 福西亮太, 吉川靖矩, 白土 優, 中谷亮一, 東浦彰史, 中川敦史, 日本金属学会 2017 年秋期大会, 札幌, (2017).
- (6) 「電気磁気効果を利用した垂直交換バイアス反転とそのダイナミクス」, Thi Van Anh Nguyen, 白土 優, 中谷亮一, 電子情報通信学会, 磁気記録・情報ストレージ研究会, 柏崎, (2017).
- (7) 「X 相 Cr₃Al 薄膜の作製と電気特性評価」, 奥本剛史, 播本祥太郎, 白土 優, 中谷亮一, 日本金属学会・鉄鋼協関西支部, 材料物性工学談話会, 大阪, (2018).
- (8) 「磁性薄膜に対する軟 X 線照射下での静電気力測定」, 佐村直樹, 野村 光, 中谷亮一, 日本金属学会・鉄鋼協関西支部, 材料物性工学談話会, 大阪, (2018).

- (9) 「スピンドルフィルター素子に向けた極薄 Cr₂O₃層を有する Pt/Co/Spacer/Cr₂O₃/Pt 薄膜の作製」, 田淵友和, 白土 優, 中谷亮一, 日本金属学会・鉄鋼協関西支部, 材料物性工学談話会, 大阪, (2018).
- (10) 「蛋白質 PfV 結晶に合成した Co-Pt ナノ粒子の放射光による構造解析」, 福西亮太, 白土 優, 中谷亮一, 東浦彰史, 中川敦史, 日本金属学会・鉄鋼協関西支部, 材料物性工学談話会, 大阪, (2018).
- (11) 「電気磁気効果による交換バイアス反転閾電圧の磁場依存性」, 青野 晃, Thi Van Anh Nguyen, 白土 優, 中谷亮一, 日本金属学会・鉄鋼協関西支部, 材料物性工学談話会, 大阪, (2018).
- (12) “Antiferromagnetic layer thickness dependence of magnetoelectric switching condition of perpendicular exchange bias”, Thi Van Anh Nguyen, Yu Shiratsuchi, Syogo Yonemura, Ryoichi Nakatani, 第 65 回応用物理学会春季学術講演会, 東京, (2018).
- (13) 「Pt/Cr₂O₃ 積層膜における非線形ホール効果と X 線 MCD 測定」, 白土 優, 青野 晃, 森山貴広, 鈴木基寛, 中村哲也, 小野輝男, 中谷亮一, 日本金属学会 2018 年春期大会, 習志野, (2018).
- (14) 「PfV 結晶内に合成した Co-Pt ナノ粒子の粒径評価」, 福西亮太, 谷口 誠, 白土 優, 岸田憲明, 中谷亮一, 東浦彰史, 中川敦史, 田口英次, 保田英洋, 日本金属学会 2018 年春期大会, 習志野, (2018).
- (15) 「メカニカルアロイングおよびパルス通電焼結により作製した Ti/MgO 複合材料の強度特性」, 青木俊憲, 山田和俊, 井藤幹夫, 粉体粉末冶金協会平成 29 年度春季大会, 5 月 31 日, 東京, (2017).
- (16) “Thermoelectric Performance of Phosphorous Doped n-type Heterogeneous β -FeSi₂/Si composite”, Farah Liana Binti Mohd Redzuan, Mikio Ito, Masatoshi Takeda, 粉体粉末冶金協会平成 29 年度春季大会, 6 月 2 日, 東京, (2017).
- (17) “Thermoelectric properties of Phosphorous and Cobalt doped β -FeSi₂/Si composite and its microstructure”, Farah Liana Binti Mohd Redzuan, Mikio Ito, 日本熱電学会平成 29 年学術講演会, 9 月 12 日, 大阪, (2017).
- (18) 「RF 熱プラズマによる低酸素 FeCo 磁性ナノ粒子の合成」, 木下尊臣, 井藤幹夫, 鈴木一行, 平山悠介, 山口 渡, 高木健太, 尾崎公洋, 粉体粉末冶金協会平成 29 年度秋季大会, 11 月 9 日, 京都, (2017).
- (19) 「熱プラズマプロセスによる FeCo-N 系ナノ粒子の合成」, 鈴木一行, 平山悠介, 山口 渡, 高木健太, 尾崎公洋, 木下尊臣, 井藤幹夫, 粉体粉末冶金協会平成 29 年度秋季大会, 11 月 9 日, 京都, (2017).
- (20) 「共析変態を利用した β -FeSi₂/Si コンポジット材料の合成と熱電特性」, 井藤幹夫, フアラリアナ, 武田雅敏, 第 22 回通電焼結研究会, 12 月 1 日, 仙台, (2017). (招待講演)
- (21) 「直接通電焼結における金属粉末の緻密化挙動に及ぼす加熱速度の影響」, 吉田優太郎, 井藤幹夫, 日本金属学会 2018 年春期講演大会, 3 月 19 日, 習志野, (2018).

● 著書・解説

- (1) 「磁性コンピュータの実現に向けて」, 中谷亮一, 野村 光, 日本磁気学会誌, Vol 13, (2018) 5-10.



材料・構造・機能設計研究部門 機能分子材料設計分野

● 論文

- (1) "Synthesis of Cyclic NigerosylNigerose (CNN) Bis-Imidazolium Salts", Susumu Tsuda, Yuya Komatsu, Yohei Minami, Ryoji Ueda, Shin-ichi Fujiwara, Takanori Iwasaki, Hitoshi Kuniyasu, and Nobuaki Kambe, *Heterocycles*, Vol. 95, No. 2, (2017), 1197-1203.
- (2) "Intramolecular, Site-Selective, Iodine-Mediated, Amination of Unactivated (sp^3)C-H Bonds for the Synthesis of Indoline Derivatives", Jinguo Long, Xin Cao, Longzhi Zhu, Renhua Qiu, Chak-Tang Au, Shuang-Feng Yin, Takanori Iwasaki, and Nobuaki Kambe *Org. Lett.*, Vol. 19, No. 11, (2016), 2793-2796.
- (3) "Nickel-Catalyzed Direct Alkylation of Thiophenes via Double C(sp^3)-H/C(sp^2)-H Bond Cleavage: The Importance of KH_2PO_4 ", Xie Wang, Peipei Xie, Renhua Qiu, Longzhi Zhu, Ting Liu, You Li, Takanori Iwasaki, Chak-Tong Au, Xinhua Xu, Yuanzhi Xia, Shuang-Feng Yin, and Nobuaki Kambe, *Chem. Commun.*, Vol. 53, No. 59, (2017), 8316-8319.
- (4) "Co-Catalyzed Cross-Coupling Reaction of Alkyl Fluorides with Alkyl Grignard Reagents", Takanori Iwasaki, Koji Yamashita, Hitoshi Kuniyasu, and Nobuaki Kambe, *Org. Lett.*, Vol. 19, No. 14, (2017), 3691-3694.
- (5) "Cu-Catalyzed Reductive Coupling of Perfluoroarenes with 1,3-Dienes", Takanori Iwasaki, Kanako Okamoto, Hitoshi Kuniyasu, and Nobuaki Kambe, *Chem. Lett.*, Vol. 46, No. 10, (2017), 1504-1507.
- (6) "Nickel-Catalyzed Coupling Reaction of Alkyl Halides with Aryl Grignard Reagents in the Presence of 1,3-Butadiene: Mechanistic Studies of Four-Component Coupling and Competing Cross-Coupling Reactions", Takanori Iwasaki, Asuka Fukuoka, Wataru Yokoyama, Xin Min, Ichiro Hisaki, Tao Yang, Masahiro Ehara, Hitoshi Kuniyasu, and Nobuaki Kambe, *Chem. Sci.*, Vol. 9, No. 8, (2018), 2195-2211.
- (7) 「触媒化学 - 基礎から応用まで」、田中庸裕、山下弘巳 編、田中庸裕、山下弘巳、薩摩篤、町田正人、穴戸哲也、神戸宣明、岩崎孝紀、江原正博、森浩亮、三浦大樹 著、講談社サイエンティフィク
- (8) "1,8-Diphenyl-9,10-Bis(arylethynyl)phenanthrenes: Synthesis, Distorted Structure, and Optical Properties", Akihito Konishi, Atsushi Morinaga, Gaku Fukuhara, Masaki Nishijima, Tadashi Mori, Toshiyuki Kida, Makoto Yasuda, *Chem. Eur. J.*, in press, (2018).
- (9) "Benzenoid Quinodimethanes", Akihito Konishi, Takashi Kubo, *Top. Curr. Chem.*, 375, 83, (2017).
- (10) "Synthesis and Characterization of Dibenzo[*a,f*]pentalene: Harmonization of the Antiaromatic and Singlet Biradical Character", Akihito Konishi, Yui Okada, Motohiro Nakano, Kenji Sugisaki, Kazunobu Sato, Takeji Takui, Makoto Yasuda, *J. Am. Chem. Soc.* 139, 43, 15284-15287, (2017).
- (11) "Tuning Lewis Acidity by a Transannular $\pi\pi$ - σ^* Interaction between Boron and Silicon/Germanium Atoms Supported by a Cage-Shaped Framework", Akihito Konishi, Koichi Nakaoka, Hideto Nakajima, Kouji Chiba, Akio Baba, Makoto Yasuda, *Chem. Eur. J.*, 23, 22, 5219-5223, (2017).
- (12) "Anthroxyl-based biradical: toward the construction of highly stable multi-spin systems", Yasukazu Hirao, Akihito Konishi, Takashi Kubo, *Org. Chem. Front.*, 4, 828-838, (2017).

● 国際会議

- (1) "Alkyl Fluorides as Promising Alkylating Reagents for the Alkylation of 1,3-Dienes", Takanori Iwasaki, Ryohei Shimizu, Reiko Imanishi, Asuka Fukuoka, Xin Min, Hitoshi Kuniyasu, Nobuaki Kambe, The 8th International Meeting on Halogen Chemistry (HALCHEM VIII) (September 12-15 (2017), Inuyama), Poster P15
- (2) "The Synthesis of α -Mycolic Acid by Integration of C(sp^3)-C(sp^3) Cross-Coupling Reactions", Yufei WANG, Shohei TERAHIGASHI, Takanori IWASAKI, Nobuaki KAMBE, Japanese-German Graduate Externship Program, Biotechnology and Chemistry for Green Growth, March 13-14 (2018), Awaji, Poster P10
- (3) "Synthesis and Electronic Structure of Dibenzo[*a,f*]pentalene", Akihito Konishi, Yui Okada,

Motohiro Nakano, Kenji Sugisaki, Kazunobu Sato, Takeji Takui, and Makoto Yasuda, the 5th AWEST 2017, 18th–21st, June, 2017, Awaji-island, Japan.

- (4) “Dibenzo[*a,f*]pentalene: A 16 π -Electronic System with Antiaromatic and Singlet Biradical Character”, Akihito Konishi, Yui Okada, Motohiro Nakano, Kenji Sugisaki, Kazunobu Sato, Takeji Takui, and Makoto Yasuda, The 11th Japanese-Russian workshop, 12th–15th, November, 2017, Awaji-island, Japan.

●国内会議

- (1) 「2つの完全メチル化シクロデキストリンを有するメタロセンの合成」, 高倉健太、津田 進、山内大樹、岩崎孝紀、藤原眞一、国安 均、神戸宣明, 第50回有機金属若手の会 夏の学校 (2017年8月7~9日、定山溪万世閣 ホテルミリオーネ (北海道)) ポスター発表 (8月8日)
- (2) 「ハロゲン化アルキルによるアレン類のアルキル化反応」, 佐々木惟莉亜、岩崎孝紀、国安均、神戸宣明, 第50回有機金属若手の会 夏の学校 (2017年8月7~9日、定山溪万世閣 ホテルミリオーネ (北海道)) ポスター発表 (8月8日)
- (3) 「フッ化アルキルを用いたジエンの触媒的アルキル化反応」, 岩崎孝紀、神戸宣明, 第67回フッ素化学若手の会 (2017年8月21-22日、京都(湯の花温泉 溪山閣)), ポスター発表P44 (8月21日)
- (4) 「Co-catalyzed Cross-coupling Reaction of Alkyl Fluorides with Alkyl Grignard Reagents」, 山下晃司、岩崎孝紀、国安均、神戸宣明, 第 67 回フッ素化学若手の会, (2017年8月21-22日、京都(湯の花温泉 溪山閣)), ポスター発表 P41 (8月21日)
- (5) 「完全メチル化シクロデキストリンが連結されたルテノセンの合成」, 高倉健太、津田 進、山内大樹、岩崎孝紀、藤原眞一、国安 均、神戸宣明, シクロデキストリンシンポジウム (2017年8月31日~9月1日、名古屋 (愛知学院)), ポスター発表
- (6) 「ニッケル触媒による1,3-ブタジエン存在下におけるハロゲン化アルキルとアリアルグリニャール試薬との反応における4成分およびクロスカップリング反応に関する機構研究」, 岩崎孝紀、福岡明日香、横山航、関欣、タオヤン、江原正博、国安均、神戸宣明, 第64回有機金属化学討論会 (2017年9月7-9日、宮城(東北大学川内キャンパス)), ポスター発表 P3-59 (9月9日)
- (7) 「Co-catalyzed Cross-coupling Reaction of Alkyl Fluorides with Alkyl Grignard Reagents」, 山下晃司、岩崎孝紀、国安均、神戸宣明, 第 64 回有機金属化学討論会 (2017年9月7-9日、宮城(東北大学川内キャンパス)), ポスター発表 P3-37 (9月9日)
- (8) 「完全メチル化シクロデキストリン連結シクロペンタジエンをCp配位子前駆体として用いたメタロセンの合成」, 高倉健太、津田進、山内大樹、岩崎孝紀、藤原眞一、国安均、神戸宣明, 第 64 回有機金属化学討論会 (2017年9月7-9日、宮城(東北大学川内キャンパス)), ポスター発表 P2-52 (9月8日)
- (9) 「Anionic Ni(II) Complex Promoted Multicomponent Coupling Reactions」, Takanori Iwasaki, Xin, Min, Asuka Fukuoka, Wataru Yokoyama, Hitoshi Kuniyasu, Nobuaki Kambe, 錯体化学会第 67 回討論会 (2017年9月16-18日、北海道(北海道大学札幌キャンパス)), 口頭発表 1Db-08 (9月16日)
- (10) 「完全メチル化シクロデキストリンが連結されたシクロペンタジエン誘導体とその金属錯体の合成」, 高倉健太、津田進、山内大樹、岩崎孝紀、藤原眞一、国安均、神戸宣明, CSJ 化学フェスタ (2017年10月17-19日、東京 (タワーホール船堀)), ポスター発表 P2-063
- (11) 「アルキル-アルキルカップリング反応を用いた α -ミコール酸の合成研究」, 汪宇飛、寺東祥平、岩崎孝紀、国安均、神戸宣明, 第 34 回有機合成化学セミナー (2017年9月12-14日、金沢市 (金沢市文化ホール)), ポスター発表
- (12) 「1,3,6,8位に様々なアルキル基を有する テトラアルキルピレンの合成とその固体状態における光学特性」, 村上心、岩崎孝紀、国安均、神戸宣明, 第 34 回有機合成化学セミナー (2017

- 年 9 月 12-14 日、金沢市 (金沢市文化ホール)), ポスター発表
- (13) 「集積型 sp^3 カップリング反応を利用した α -ミコール酸の合成」, 汪 宇飛、寺東 祥平、岩崎 孝紀、神戸 宣明、日本化学会第 98 春季年会(2018) (2018 年 3 月 20-23 日、千葉県、日本大学船橋キャンパス), 口頭発表 4D1-42 (3 月 23 日)
 - (14) 「キラルアルコールを用いた有機亜鉛試薬のアルデヒドへの付加反応における不斉認識に関する研究」, 西尾 美保、岩崎 孝紀、神戸 宣明、日本化学会第 98 春季年会(2018) (2018 年 3 月 20-23 日、千葉県、日本大学船橋キャンパス), 口頭発表 4H2-01 (3 月 23 日)
 - (15) 「ロジウム触媒を用いた環状エーテルとグリニャール試薬とのクロスカップリング反応」, 石賀 渉、岩崎 孝紀、神戸 宣明、日本化学会第 98 春季年会(2018) (2018 年 3 月 20-23 日、千葉県、日本大学船橋キャンパス), 口頭発表 1H2-57 (3 月 20 日)
 - (16) 「キラルアルコールを用いた有機亜鉛試薬のアルデヒドへの付加反応における不斉認識に関する研究」, 西尾 美保、岩崎 孝紀、神戸 宣明、日本化学会第 98 春季年会(2018) (2018 年 3 月 20-23 日、千葉県、日本大学船橋キャンパス), 口頭発表 4H2-01 (3 月 23 日)
 - (17) 「完全メチル化シクロデキストリンが連結されたメタロセンの合成」, 高倉健太、津田 進、山内大樹、岩崎孝紀、藤原眞一、神戸宣明、日本化学会第 98 春季年会(2018) (2018 年 3 月 20-23 日、千葉県、日本大学船橋キャンパス), 口頭発表 3B1-39 (3 月 22 日)
 - (18) 「ゲルマニウムエノラートの構造と反応性および多官能性化合物への合成展開」, 南 陽平・小西 彬仁・安田 誠、第 111 回有機合成シンポジウム P-46、岡山大学
 - (19) 「 π 拡張フェナントレンの合成と物性および反応性」, 小西 彬仁・森永 充志・安田 誠、第 37 回有機合成若手セミナー P-74、同志社大学
 - (20) 「ジベンゾ[*a,f*]ペンタレンの合成と開殻性及び反芳香族性の評価」, 小西 彬仁・岡田 優衣・安田 誠、第 37 回有機合成若手セミナー P-26、同志社大学
 - (21) 「 α,β -不飽和ケトン由来のキレート型ゲルミルエノラートの反応性と官能性化合物への変換」, 南 陽平・小西 彬仁・安田 誠、第 65 回有機金属化学討論会 P3-17、東北大学
 - (22) 「平面に固定化された π 拡張ヘプタレンの合成」, 小西 彬仁・掘井 康稀・安田 誠、第 29 回基礎有機化学討論会 1P027、九州大学
 - (23) 「複数のハロゲン原子を導入したカゴ型ホウ素錯体の合成と性質」, 小西 彬仁・田中 大貴・安田 誠、第 29 回基礎有機化学討論会 1P080、九州大学
 - (24) 「近接したフェニル基とエチニル基間の酸化的環化反応と縮合多環式カチオンの合成」, 小西 彬仁・森永 充志・安田 誠、第 29 回基礎有機化学討論会 2P025、九州大学
 - (25) 「 π 拡張[*a,f*]縮環ペンタレン誘導体の合成と物性」, 小西 彬仁・岡田 優衣・安田 誠、第 29 回基礎有機化学討論会 2P058、九州大学
 - (26) 「カゴ型ホスファイトの合成と反応への応用」, 小西 彬仁・富田 和馬・安田 誠、日本化学会第 98 春季年会 1G5-47、日本大学
 - (27) 「ホウ素原子周りの環境制御に基づくカゴ型ホウ素錯体の性状調節とルイス酸触媒としての展開」, 小西 彬仁・田中 大貴・安田 誠、日本化学会第 98 春季年会 1B1-41、日本大学
 - (28) 「ホウ素原子周りの環境制御に基づくカゴ型ホウ素錯体の性状調節とルイス酸触媒としての展開」, 小西 彬仁・田中 大貴・安田 誠、日本化学会第 98 春季年会 1B1-41、日本大学
 - (29) “Utilization of Chelated Germyl Enolates toward Synthesis of Functionalized Compounds: Diastereoselective Aldol Reaction and Transformation of Germanium-Carbon Bond”, MINAMI, Yohei; KONISHI, Akihito; YASUDA, Makoto, The 98th CSJ Annual Meeting, 2H2-03, Nihon University
 - (30) 「ヘプタレン骨格を組み込んだ平面縮合多環式炭化水素の合成と物性」, 小西 彬仁・掘井 康稀・安田 誠、日本化学会第 98 春季年会 2F2-50、日本大学
 - (31) “Synthesis and Properties of π -Extended Dibenzo[*a,f*]pentalenes: Effect of Ring-annulation on the Open-shell and Antiaromatic Character”, KONISHI, Akihito; Okada, Yui; YASUDA, Makoto, The

● プレスリリース

- (1) 「最強の結合を切る！コバルト触媒による有機フッ素化合物のクロスカップリング反応を開発」、神戸宣明、岩崎孝紀、2017年7月13日（大阪大学）

● 材料・構造・機能設計研究部門 分子集積設計分野

● 論文

- (1) “Nonprecious-metal Fe/N/C Catalysts Prepared from π -Expanded Fe Salen Precursors toward an Efficient Oxygen Reduction Reaction”, Yuta Tanaka, Akira Onoda, Shin-ichi Okuoka, Tomoyuki Kitano, Koki Matsumoto, Takao Sakata, Hidehiro Yasuda and Takashi Hayashi, *ChemCatChem*, **2018**, 10, 743–750.
- (2) “Cavity Size Engineering of a β -Barrel Protein Generates Efficient Biohybrid Catalysts for Olefin Metathesis”, Alexander R. Grimm, Daniel F. Sauer, Mehdi D. Davari, Leilei Zhu, Marco Bocola, Shunsuke Kato, Akira Onoda, Takashi Hayashi, Jun Okuda and Ulrich Schwaneberg, *ACS Catal.*, **2018**, 8, 3358–3364.
- (3) “A Whole Cell *E. coli* Display Platform for Artificial Metalloenzymes: Poly(phenylacetylene) Production with a Rhodium-Nitrobindin Metalloprotein”, Alexander R. Grimm, Daniel F. Sauer, Tino Polen, Leilei Zhu, Takashi Hayashi, Jun Okuda and Ulrich Schwaneberg, *ACS Catal.*, **2018**, 8, 2611–2614.
- (4) “Preparation and characterization of myoglobin reconstituted with Fe(II) oxaporphyrin: The monoanionic macrocycle provides unique cyanide binding behavior for the ferrous species”, Hiroyuki, Meichin, Koji Oohora and Takashi Hayashi, *Inorg. Chim. Acta*, **2018**, 472, 184–191.
- (5) “Successive Energy Transfer within Multiple Photosensitizers Assembled in a Hexameric Hemoprotein Scaffold”, Tsuyoshi Mashima, Koji Oohora and Takashi Hayashi, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **2018**, 20, 3200–3209.
- (6) “Bimetallic M/N/C catalysts prepared from π -expanded metal salen precursors toward an efficient oxygen reduction reaction”, Akira Onoda, Yuta Tanaka, Koki Matsumoto, Minoru Ito, Takao Sakata, Hidehiro Yasuda and Takashi Hayashi, *RSC Adv.*, **2018**, 8, 2892–2899.
- (7) “Mitochondrial-targeting Polyamine–Protoporphyrin Conjugates for Photodynamic Therapy”, Fargol Taba, Akira Onoda, Urara Hasegawa, Toshiaki Enoki, Yousuke Ooyama, Joji Ohshita and Takashi Hayashi, *ChemMedChem*, **2018**, 13, 15–19.
- (8) “Substitution of an amino acid residue axially coordinating to the heme molecule in hexameric tyrosine-coordinated hemoprotein to enhance peroxidase activity”, Tsuyoshi Mashima, Koji Oohora and Takashi Hayashi, *J Porphyrins Phthalocyanines*, **2017**, 21, 824–831.
- (9) “Manganese(V) Porphycene Complex Responsible for Inert C–H Bond Hydroxylation in a Myoglobin Matrix”, Koji Oohora, Hiroyuki Meichin, Yushi Kihira, Hiroshi Sugimoto, Yoshitsugu Shiro and Takashi Hayashi, *J Am. Chem. Soc.*, **2017**, 139, 18460–18463.
- (10) “Catalytic Cyclopropanation by Myoglobin Reconstituted with Iron Porphycene: Acceleration of Catalysis due to Rapid Formation of the Carbene Species”, Koji Oohora, Hiroyuki Meichin, Liming Zhao, Matthew W. Wolf, Akira Nakayama, Jun-ya Hasegawa, Nicolai Lehnert and Takashi Hayashi, *J Am. Chem. Soc.*, **2017**, 139, 17265–17268.
- (11) “Cofactor-specific Anchoring of Horseradish Peroxidase onto a Polythiophene-modified Electrode”, Akira Onoda, Yasunari Umeda and Takashi Hayashi, *Chem. Lett.*, **2017**, 46, 1818–1821.

- (12) “*meso*-Tetraaryl(porphyrinato)cobalt(III)-Catalyzed Oxygenation of Disilanes under Aerobic Conditions”, Joji Ohshita, Yohei Matsumura, Takahiro Nakayama, Hiroto Yoshida, Atsutaka Kunai, Yoshio Hisaeda and Takashi Hayashi, *Chem. Lett.*, **2017**, *46*, 1807–1809.
- (13) “A Pyrene-linked Cavity within a β -Barrel Protein Promotes an Asymmetric Diels-Alder Reaction”, Tomoki Himiyama, Naomasa Taniguchi, Shunsuke Kato, Akira Onoda and Takashi Hayashi, *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2017**, *56*, 13618–13622.
- (14) “Interdomain flip-flop motion visualized in flavocytochrome cellobiose dehydrogenase using high-speed atomic force microscopy during catalysis”, Hirofumi Harada, Akira Onoda, Takayuki Uchihashi, Hiroki Watanabe, Naoki Sunagawa, Masahiro Samejima, Kiyohiko, Igarashi and Takashi Hayashi, *Chem. Sci.*, **2017**, *8*, 6561–6565.
- (15) “CuAAC in a Distal Pocket: Metal Active-Template Synthesis of Strapped-Porphyrin [2]Rotaxanes”, Yuta Miyazaki, Christophe Kahlfuss, Ayumu Ogawa, Takashi Matsumoto, Jennifer A. Wytko, Koji Oohora and Takashi Hayashi, *Chem. Eur. J.*, **2017**, *23*, 13579–13582.
- (16) “A supramolecular assembly based on an engineered hemoprotein exhibiting a thermal stimulus-driven conversion to a new distinct supramolecular structure”, Koji Oohora, Yoshitaka Onuma, Yuta Tanaka, Akira Onoda and Takashi Hayashi, *Chem. Commun.* **2017**, *53*, 6879–6882.
- (17) “Iron-Strapped Porphyrins with Carboxylic Acid Groups Hanging over the Coordination Site: Synthesis, X-ray Characterization, and Dioxygen Binding”, Bernard Boitrel, Ismail Hijazi, Thierry Roisnel, Koji Oohora and Takashi Hayashi, *Inorg. Chem.*, **2017**, *56*, 7373–7383.
- (18) “Nickel-Catalyzed C–H/N–H Annulation of Aromatic Amides with Alkynes in the Absence of a Specific Chelation System”, Atsushi Obata, Yusuke Ano, and Naoto Chatani, *Chem. Sci.* **2017**, *8*, 6650–6655.
- (19) “Nickel-Catalyzed Benzoylation of C–H Bonds in Aromatic Amides with Benzyltrimethylammonium Halides”, Akane Sasagawa, Mao Yamaguchi, Yusuke Ano, and Naoto Chatani, *Isr. J. Chem.* **2017**, *57*, 964–967.

● 国際会議（招待講演のみ）

- (1) “Myoglobin Reconstituted with Cobalt or Nickel Tetradehydrocorrin as a Cofactor for an Enzyme Mode”, Takashi Hayashi, Yoshitsugu Morita and Koji Oohora, The 6th Georgian Bay International Conference on Bioinorganic Chemistry (CanBIC6), Parry Sound, Canada, May 2017.
- (2) “Modification of Metalloproteins to Generate New Biocatalysts”, Takashi Hayashi, 14th International Symposium on Applied Bioinorganic Chemistry (ISABC14), Toulouse, France, June 2017.
- (3) “Supramolecular Hemoprotein Assembly toward Photoinduced Catalysts”, Takashi Hayashi, Tsuyoshi Mashima, Shota Hirayama and Koji Oohora, 1st Molecular Technology Workshop: “Energy and Electron Transfers in Molecular Engineered Materials”, Strasbourg, France, June 2017.
- (4) “A Biohybrid Catalyst Using a Heme-Pocket with an Artificial Metallocomplex”, Takashi Hayashi, Akira Onoda and Koji Oohora, 6th Asian Conference of Coordination Chemistry (ACCC6), Melbourne, Australia, July 2017.
- (5) “Hemoproteins Reconstituted with Organometallic Complexes as an Artificial Cofactor”, Takashi Hayashi, Akira Onoda and Koji Oohora, 18th International Conference on Biological Inorganic Chemistry (ICBIC18), Florianopolis, Brazil, August 2017.
- (6) “Supramolecular Hemoprotein Assemblies via Heme–Heme Pocket Interaction”, Takashi Hayashi, 11th Japan-China Joint Symposium on Metal Cluster Compounds, Nagoya, October 2017.
- (7) “Artificial Metalloenzyme: A Hybrid between an Active Metal Complex and a Protein Having a Unique Cavity”, Takashi Hayashi, 2nd International Symposium on Biofunctional Chemistry (ISBC2017), Uji, December 2017.

●国内会議（招待講演のみ）

- (1) “Biohybrid Catalysts with a Protein Scaffold, an Asymmetric Second Coordination Sphere”, Takashi Hayashi, 日本化学会第97春季年会, 横浜, 3月, 2017.
- (2) 「タンパク質と金属錯体の複合化による新しい生体触媒の開発」、林 高史、有機合成化学協会中国四国支部パネル討論会、東広島、5月, 2017

●著書・解説等

- (1) 「不斉合成の新展開—触媒的・エナンチオ選択的 C(sp³)-H 結合活性化」阿野 勇介, 茶谷 直人, 化学, **2017**, 72, 64-65.



- (1) 第 83 回高エネルギービーム加工研究委員会 優秀講演賞, 「金属積層造形体の組織と異方性」, 荒木秀樹 (平成 29 年 5 月)
- (2) Academy Prize of Hungarian Academy of Sciences, 「低温プラズマおよび強結合プラズマのモデル化と数値シミュレーション」, Zoltan Donko, (2017.6)
- (3) 21st International Symposium on Advanced Display Materials & Devices (ADMD2017) Poster Award, “Loop defects in nematic liquid crystals generated by surface alignment control”, Kanta Sunami, Koki Imamura, Tomohiro Ouchi, Hiroyuki Yoshida, and Masanori Ozaki, 2017/7.
- (4) 日本液晶学会ポスター賞 (若葉賞), 「高分子/ネマティック液晶複合材料における異方的散乱特性に関する研究」, 小野 優, 前田恭孝, 小橋淳二, 吉田浩之, 尾崎雅則, 2017/9.
- (5) 日本液晶学会ポスター賞 (若葉賞), 「ネマティック液晶の界面配向制御によるループ状欠陥の誘起」角南寛太, 今村弘毅, 大内智弘, 吉田浩之, 尾崎雅則, 2017/9.
- (6) Nishizawa Award, Dry Process Symposium (DPS) 2017, David B. Graves, (2017.10)
- (7) 日本機械学会 創立 120 周年記念功労者表彰, 渋谷陽二, 2017/11.
- (8) 日本 MRS 年次大会奨励賞, 「Non-peripheral 型オクタヘキシル置換フタロシアニン銅錯体の電荷移動度における温度依存性」, 渡辺 健, 渡辺光一, 藤内謙光, 藤井彰彦, 尾崎雅則, 2017/12.
- (9) Best oral paper award, Takashi Yokoyama, Satoshi Ikawa, Katsuhisa Kitano, The 10th Asia-Pacific International Symposium on the Basics and Applications of Plasma Technology (APSPT-10) (2017/12/15-17)
- (10) 電気材料技術懇談会発表奨励賞「半導体性液晶材料を用いたサンドイッチセル型有機太陽電池」, 仲田裕哉, 臼井稔喜, 清水 洋, 藤井彰彦, 尾崎雅則, 2018/1.



職員名簿(専任・兼任教員以外)

特任教授	唐橋 一浩
特任教授	木内 正人
特任教授	CZARNETZKI Uwe
特任教授	Graves, David B.
特任研究員	幾世 和将
特任研究員	磯部 倫郎
特任研究員	伊藤 智子
日本学術振興会特任研究員	李 虎
特任研究員	吉田 実加
招へい教授	大島 朋子
招へい教授	荒巻 光利
招へい教授	Donko, Zoltan
招へい准教授	谷 篤史
招へい准教授	Zajíčková, Lenka
招へい研究員	Kutasi, Kinga
招へい研究員	Vasquez, Magdaleno R. Jr.
客員教授	Sadrudin. Benkadda
特例嘱託技術職員	矢野 美一
事務嘱託職員	美作 美幸
事務補佐員	長尾 文
事務補佐員	梅村 優子
技術補佐員	矢野 公子

アトミックデザイン研究センター
アニュアルレポート Vol.5
平成 29(2017)年度

平成 30 年 5 月発行

大阪大学大学院工学研究科附属
アトミックデザイン研究センター
〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1
<http://www.camt.eng.osaka-u.ac.jp/>



工学研究科附属

アトミックデザイン 研究センター

Center for Atomic and Molecular Technologies