



# CAMT Newsletter

2020年9月30日 No.21

**目次**

1. 新論文のご紹介 ..... 1

## 1. 新論文のご紹介



The effects of possible contamination by sample holders on samples to be returned by Hayabusa2

N. Shirai, Y. Karouji, K. Kumagai, M. Uesugi, **K. Hirahara**, M. Ito, N. Tomioka, K. Uesugi, A. Yamaguchi, N. Imae, T. Ohigashi, T. Yada, M. Abe

Meteoritics Planetary Science, Vol. 55, Issue 7, 1665-1680

地球外試料の元素分析には、計測時に、試料ホルダ（解析対象物質を置いたり固定しておく支持体）を構成する地球上物質の情報が混ざらないようにすることが求められています。本研究室で合成している、カーボンナノチューブ（CNT）を用いたヤモリテープは、軽元素である炭素単体からできており、不定型な粒子を特別なジグや接着剤を使わずにクリーンに固定できることから、今年12月に「はやぶさ2」の持ち帰る物質の元素分析用試料ホルダとして用いられることが計画されています。その準備段階において、東京都立大・白井先生らにより、CNTの中性子放射化分析が行われた論文が発表されました。本学にて合成されたCNTには、コンタミネーション（ごみ）として、10種類の不純物元素が微量に検出されましたが、CNT自体がそもそも非常に軽量であることを考慮すると、これらは隕石試料の解析には十分無視できるレベルであることが分かり、はやぶさ2帰還試料解析用の試料ホルダとしての有用性が実証されました。

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

〒565-0871 大阪府吹田市山田丘2-1  
 TEL:06-6879-7917  
 FAX:06-6879-7916  
 E-mail: info@camt.eng.osaka-u.ac.jp  
 http://www.camt.eng.osaka-u.ac.jp



Probing the surface structure via the adsorbed hydrogen atoms - The case of Cu(410)

Jessiel Siaron Gueriba, **Wilson Agerico Diño**, Seigi Mizuno, Michio Okada

Applied Surface Science, Volume 528, 146433-1-6 (2020)

With just one proton and one electron, hydrogen is the simplest and most abundant element in the universe. It plays an important role in a wide variety of applications, e.g., catalysis and metallurgy. Even with the most well-designed, well-baked ultra-high vacuum system, hydrogen persists as background gas/contaminant/adsorbate. Its simplicity and ubiquity notwithstanding, hydrogen continues to defy understanding, much less control. Here, we take advantage of hydrogen's ubiquity to determine the structure of clean Cu(410). Any slight (ca. 0.1 Å) displacement of Cu(410) surface atoms with respect to an arbitrarily chosen reference structure manifests as either a broadening or narrowing of the corresponding H-Cu(410) potential energy curve. This suggests the possibility of carrying out adsorbate mediated surface analysis, with hydrogen as the (chosen) adsorbate, in this case.



Molecular dynamics simulation on effects of nanostructure on interfacial thermal resistance during condensation

A. Fujii, **K. Fujiwara**, Y. Ueki and **M. Shibahara**

Journal of Thermal Science and Technology, 2020, 15, 20-00145

分子動力学法を用いて、ナノ構造面への凝縮過程における熱輸送・界面熱抵抗に関して解析を行いました。凝縮・液滴形成過程と熱輸送の関係性を詳細に調査し、また構造物表面の局所領域において界面熱抵抗の評価を行いました。その結果、特に疎水性表面における凝縮過程の初期において構造の上部と下部において界面熱抵抗が低減することが分かりました。



Molecular Dynamics Study of Interactions between the Water/ice Interface and a Nanoparticle in the Vicinity of a Solid Surface

S. Uchida, **K. Fujiwara** and **M. Shibahara**

Nanoscale and Microscale Thermophysical Engineering, 2020, 24, 53-65.

半導体デバイス製造工程における凝固洗浄のメカニズム解明を目的として、壁面上のナノ粒子近傍の凝固現象や氷/水界面がナノ粒子に及ぼす作用力を分子動力学法により調査しました。その結果、冷却温度により氷/水界面がナノ粒子に及ぼす力の方向が変化し、壁面上のナノ粒子の移動現象に対して凝固界面が重要な役割を担っていることを明らかにしました。



Corrected power spectral density of the surface roughness of tire rubber sliding on an abrasive material

Hiro Tanaka, Kenta Okui, Yuki Oku, Hironori Takezawa, **Yoji Shibutani**

Tribology International, Vol.153, 106632

本論文は、TOYO TIRE株式会社との共同研究で表面粗さの波数空間特性を統計的・視覚的に評価する補正パワースペクトル密度を提案しました。そして、人工生成表面および砥石表面とタイヤゴムの摩耗表面に本手法を適用し、自己アフィンフラクタル性を特徴付けるハースト指数を解析しました。



Structure and stability of vacancy-solute complexes in Al-Mg-Si alloys

Masataka Mizuno, Kazuki Sugita, Hideki Araki

Materialia Vol. 13 Page 100853\_1-7

第一原理計算と統計的手法によりAl-Mg-Si合金における空孔-溶質原子複合体の構造と安定性について調べました。Al-MgおよびAl-Si 2元系合金の場合は、溶質原子数が5個以上になると不安定になりますが、Al-Mg-Si合金では溶質原子数が増加するにつれて生成エネルギーが低下していきいます。Al-Mg-Si合金における空孔-溶質複合体の安定性は主にMg-Si結合の形成によって生じており、空孔周辺においてMg原子が内側にSi原子が外側に緩和することで、Mg-Si結合の増加が可能となっています。Mg-Mg間に働く斥力により、空孔-溶質原子複合体ではMg-Mg結合が形成されないため、溶質原子数が増加するとSi濃度が上昇し、Si過剰な空孔-溶質複合体が安定な状態になっていることが分かりました。



高精度A/D変換器の設計容易化のための機械学習の応用

松岡俊匡

システム制御情報学会誌「システム／制御／情報」, Vol. 64, No. 9, p. 355, Sep. 2020.

IoT機器やウェアラブル機器に搭載される低電力センシング用アナログ集積回路には、低電源電圧動作が望まれます。このような回路は製造プロセスに依存した素子特性に基づいて回路設計されることが一般的であり、このため、特に低電圧動作高精度A/D変換器(ADC)の設計は難易度が高いものとなります。本稿では、ADCの誤差要因(特性ばらつき、雑音)とその低減もしくは補正手法を概観し、生体信号計測向け新規ADCにおける機械学習の活用例を解説しています。また、これと関連して、CMOSアナログ集積回路におけるデジタル支援技術の重要性にも触れています。



Anomalous dislocation annihilation behavior observed in a GaN crystal grown on point seeds by the Na-flux method

M. Imanishi, K. Okumura, K. Nakamura, T. Kitamura, K. Kakinouchi, K. Murakami, M. Yoshimura, Y. Fujita, Y. Tsusaka, J. Matsui and Y. Mori

Applied Physics Express, Vol.13, No.9, pp.085510-1/5 (2020.08)

Naフラックスポイントシード法により3インチ強サイズのGaN結晶を作製することに成功しました。当該結晶中の転位挙動を調査したところ、数十 $\mu\text{m}$ 以上離れた2つの転位が近づき衝突したのち消滅する、対消滅が生じていることを発見しました。このスケールでの対消滅は報告例がなく、学術的に大変興味深い現象です。



High-rate OVPE-GaN growth by the suppression of polycrystal formation with additional H<sub>2</sub>O vapor in a high-temperature condition

Ayumu Shimizu, Shintaro Tsuno, Masahiro Kamiyama, Keiju Ishibashi, Akira Kitamoto, Masayuki Imanishi, Masashi Yoshimura, Masahiko Hata, Masashi Isemura, Yusuke Mori

Applied Physics Express 13(9) 095504-1 - 095504-5

OVPE法において、高温条件が高速成長に有利とされてきましたが、高温ではGaN結晶の分解が顕著になり、発生したGaドロップレットを起因とする多結晶の発生が問題でした。本論文ではH<sub>2</sub>Oを添加することで、Gaドロップレットを酸化ガリウムとして除去し、多結晶を抑制することに成功しました。



Production of low-energy fragment-ion beams from hexamethyldisiloxane and the irradiation of SiO<sup>+</sup> ion beam to substrates with supplemental oxygen gas for SiO<sub>2</sub> film formation

S. Yoshimura, S. Sugimoto, T. Takeuchi, M. Kiuchi

Nuclear Inst. and Methods in Physics Research B 479 (2020) 13-17.

本論文では、イオンビーム技術を用いた、酸化ケイ素 (SiO<sub>2</sub>) の新しい成膜法を提案しています。ヘキサメチルジシロキサンをプラズマ状態にして解離し、できたフラグメントからSiO<sup>+</sup>イオンを抽出し、低エネルギーSiO<sup>+</sup>イオンビームを生成しました。このイオンビームを酸素雰囲気の中で基板に照射することにより、SiO<sub>2</sub>の成膜が可能であることを実証しました。



Experimental and numerical analysis of the effects of ion bombardment in silicon oxide (SiO<sub>2</sub>) plasma enhanced atomic layer deposition (PEALD) processes

Hu Li, Tomoko Ito, Kazuhiro Karahashi, Munehito Kagaya, Tsuyoshi Moriya, Masaaki Matsukuma, Satoshi Hamaguchi

Japanese Journal of Applied Physics 59(SJ) SJJ A01 - SJJ A01

現在、NANDフラッシュ素子等の多層構造を有する3次元構造デバイスプロセスにおいて、原子スケールの超高精細パターンニングを実現するプロセス技術としてAtomic layer deposition/etching(ALD/ALE)技術の開発が盛んに進められています。本論文は、SiO<sub>2</sub>のPlasma Enhanced ALD (PE-ALD)プロセス開発を目的として、プラズマ中のイオンとALD前駆体吸着表面との表面反応に着目し、in-situ XPSを用いたイオンビーム実験およびMDシミュレーションを行いました。その結果、ALD前駆体由来の炭素や窒素とSiO<sub>2</sub>表面との反応に入射イオンエネルギー依存性があることを明らかにし、PE-ALDプロセスにおけるSiO<sub>2</sub>の膜質制御においてプラズマ中のイオンのエネルギーの制御が重要であることを示しました。



Kinetics Analysis of the Reactions between Peroxynitric Acid and Amino Acids

Takashi Yokoyama, Shinya Miyazaki, Satoshi Ikawa, Yoichi Nakashima, Katsuhisa Kitano

Chemical Research in Toxicology 33(7) 1633 - 1643

過硝酸 (HOONO<sub>2</sub>) を用いた殺菌技術は当研究室が世界で初めて開発した技術であり、殺菌力と安全性の比に優れた新規の殺菌剤として利用が期待できます。生体への作用を検討する上で生体分子との化学反応性を評価する必要がありますが、過硝酸はバイオ分野で利用されたことがなく、本論文では、アミノ酸との反応速度定数を反応速度論的な実験から求めました。一般的な殺菌剤と比べて、反応速度定数が桁低く、メチオニンのみに特異的に反応することが判明しました。化学反応性に関するこの2つの特異性が、過硝酸の特異な殺菌特性に寄与していると考えられます。



High microbicidal effect of peroxyntic acid on biofilm-infected dentin in a root carious tooth model and verification of tissue safety

Tatsuya Iwaki, Tomoko Ohshima, Tatsuya Tasaki, Yasuko Momoi, Satoshi Ikawa, **Katsuhisa Kitano**, Takatsugu Yamamoto

Journal of Oral Biosciences 62(2) 189 - 194

過硝酸 (HOONO<sub>2</sub>) を用いた殺菌技術は当研究室が世界で初めて開発した技術であり、殺菌力と安全性の比に優れた新規の殺菌剤として利用が期待できます。歯科分野での利用を目的として、ヒト抜去歯に根面う食のモデルを構築し、22mMの過硝酸溶液を塗布したところ10秒で無菌化することに成功しました。また三次元皮膚組織モデルを用いた安全性試験 (OECD TG439) を行ったところ、220mMの過硝酸溶液でも為害性が出ることはありませんでした。従来の消毒剤では、安全性試験で問題のない濃度だと、このような高い殺菌力が得られることはないので、過硝酸の歯科分野への実用化が期待されます。



Pentanuclear scaffold: a molecular platform for small-molecule conversions

Mio Kondo and **Shigeyuki Masaoka**

Acc. Chem. Res., 2020, in press.

地球上に豊富に存在する水・二酸化炭素などの小分子を多電子酸化還元により変換する反応 (小分子変換反応) は、再生可能エネルギーの効率的な利用の観点から極めて重要です。今回、有機配位子と金属イオンの自己集合により構築される金属五核錯体が、様々な小分子変換反応の触媒として機能することを報告しました。また、金属五核錯体は特異な反応機構により小分子変換反応を駆動することも見出され、今後この特徴を活かした革新的触媒分子の開発が期待できます。



Selective Activation of Aromatic Aldehydes Promoted by Dispersion Interactions: Steric and Electronic Factors of a  $\pi$  - Pocket within Cage - Shaped Borates for Molecular Recognition

Daiki Tanaka, Yuya Tsutsui, **Akihito Konishi**, Koichi Nakaoka, Hideto Nakajima, Akio Baba, Kouji Chiba, Makoto Yasuda

Chemistry A European Journal

選択的な炭素-炭素結合形成反応の開発は、有機化学において大変重要な課題です。選択性の発現には、触媒金属と基質のヘテロ原子間の配位結合を用いることが主流ですが、今回我々は、そのような結合形成部位のない炭化水素基質間での選択性の発現を見出し、その詳細を系統的に調査しました。カゴ型ホウ素錯体に着目し、芳香環置換基と基質の炭化水素基の間に働く、非結合性相互作用が、重要な役割を果たしていることを明らかにしました。今回の知見は触媒設計のあらたな指針になると期待されます。



Characterization of Highly Coordinated Allylgermanes: Pivotal Players for Enhanced Nucleophilicity and Stereoselectivity

Yohei Minami, Kento Nishida, **Akihito Konishi**, Makoto Yasuda

Chemistry - An Asian Journal 15(12) 1852 - 1857

アリル金属化合物は有用な結合形成試剤として広く用いられています。炭素-金属結合とアリル位の立体関係は、その生成物の位置立体選択性をつかさどる重要な因子です。今回、アリルゲルマニウム化合物に注目し、その反応性と立体選択性について、実験と理論の両面から明らかにしました。特に、金属中心が高配位化することで、これらの性質が大きく変化することを見出しました。今回の知見は、より高機能なアリル求核剤の新たな設計指針になると期待されます。