

CAMT Newsletter

2023年3月29日 No.28

目次

1. 受賞のお知らせ
..... 2
2. 新論文のご紹介
..... 2

センター時限に伴うご挨拶

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）

平成25年度（2013年度）に設立しました当センターは、今年度をもって10年の時限を向かえ発展的解消することになりました。これまで当センターの活動にご協力を賜りました専任、兼任の教職員の方々、特任教員、研究員、国内外からの招へい教員、研究員の方々、そしてニュースレターやホームページの読者の方々に厚く御礼申し上げます。プラズマ技術の超高温研究から始まり、原子・分子の操作からデザインに至る55年の長きに亘る研究活動を、工学部・工学研究科の附属施設・附属研究センターとして運営することができましたのも、ひとえに関係各位の皆様のご理解とご協力の賜物と思っております。この間に蓄積されました学術的知見、そして培われてきました技術等は多くの教職員、研究員等に引き継がれるとともに、この間に出版されました学術論文、著書、解説記事や技術報告書等で後世に引き継がれます。当センターで発行されましたアニュアルレポート、配信させていただきましたニュースレター、そして工学研究科附属センターアーカイブ「プラズマから原子・分子デザインへの55年の歩み」としてこれまでの当該施設、センターで発刊されましたレポートの一部をまとめていますので、ホームページをご参照いただけましたら幸いです。

最後になりましたが、当センターの長年のご支援に感謝申し上げますとともに、関係者の皆様が今後益々発展されることを祈念いたします。

令和5年（2023年）3月



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



大阪大学工学部/大学院工学研究科
School/Graduate School of Engineering, Osaka University

1. 受賞のお知らせ

-  正岡 重行 教授が、第10回アジア生物無機化学国際会議 (AsBIC-10) にて、James Hoeschele AsBIC Awardを受賞しました。
本賞は、アジア太平洋地域の生物学的無機化学のコミュニティにおける協力関係を強化し、コラボレーションを奨励することを目的とし、卓越した科学的貢献を行った中堅研究者に授与されます。
-  藤原 邦夫 助教, 芝原 正彦 教授が、「日本機械学会関西支部賞 (研究賞)」を受賞しました。「半導体洗浄プロセスの熱流体現象に対する分子動力学解析手法の開発と展開」(内田翔太, 藤原邦夫, 芝原正彦)
この賞は、研究業績を通じて、関西支部地区の機械工学と機械工業の発展に貢献した個人、もしくは研究グループの功績に対し授与される賞です。
-  平原 佳織 准教授が、工学研究科長表彰を受賞しました。「工学研究科男女共同参画推進事業」(平原佳織, 宮部さやか)
女性研究者と女子学生の増加を目標として活動する「工学研究科総務室男女共同参画WG」において、約10年という長期に渡り、メンバーとして活躍し、イベントの企画・運営・講演等に献身的に尽力したことに対し授与されました。
工学研究科ホームページでも紹介されました。
-  小西 彬仁 助教が、「有機合成化学奨励」を受賞しました。「金属種を活用した奇数員環構築が拓く新しい非交互炭化水素類の合成と機能解明」
この賞は、有機合成化学または有機合成化学関連産業の分野で優れた研究または発明を行った若手の研究者を表彰するものです。

2. 新論文のご紹介

 Disulfide Bond-mediated Oligomerization of a Green Fluorescent Protein in Solution

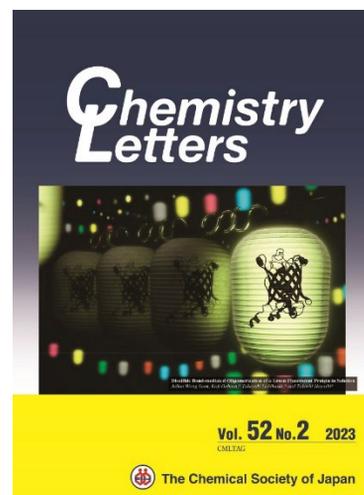
Julian Wong Soon, Koji Oohora, Takayuki Uchihashi, **Takashi Hayashi**

Chem. Lett., 52, 105-109 (2023).

DOI:10.1246/cl.220495

 雑誌表紙でハイライト紹介されました。

新規バイオマテリアルの創成を目指して、共有結合であるジスルフィド結合で連なるタンパク質集積法の開発を行いました。タンパク質のチオール基を活性化し、従来の空気酸化等による手法に比べて溶液中で簡便かつ迅速に調製できることが本手法の特徴です。また本手法で連結した蛍光タンパク質の集合体は、励起エネルギー移動を介した光捕集系として機能することを示しました。



 Evolutionary Engineering of a Cp*Rh(III) Complex-Linked Artificial Metalloenzyme with a Chimeric β -Barrel Protein Scaffold

Shunsuke Kato, Akira Onoda, Ulrich Schwaneberg, **Takashi Hayashi**

Journal of the American Chemical Society

✦✦ 雑誌表紙でハイライト紹介されました。

非天然の金属錯体とタンパク質を組み合わせた人工金属酵素は、生体触媒の反応性を拡張する新たな手段として注目を集めています。本研究では、Cp*Rh(III)錯体を活性中心に有する人工金属酵素を構築し、さらに遺伝子組み換えによりキメラ型の β -バレルタンパク質を化学反応場として創出することで、芳香族C-H結合に対する触媒活性を向上させることに成功しました。

 Brønsted Acid/Base Site Isolated in a Pentanuclear Scaffold

Misa Tomoda, Mio Kondo, Hitoshi Izu, and **Shigeyuki Masaoka**

Chem. Eur. J., 2023, 29, e202203253.

✦✦ 雑誌表紙でハイライト紹介されました。

本研究では、ブレンステッド酸・塩基点を異種金属多核錯体の内部に配置し立体的に隔離することで、プロトンを熱力学的に準安定な状態で存在させることができることを見出しました。本研究は、従来の酸塩基化学の枠組みから逸脱したプロトンを与える新しい戦略を提供するものです。



 Molecular dynamics simulation of energy transfer in reaction process near supported nanoparticle catalyst

Y. Fujii, K. Fujiwara, S. Tsushima, **M. Shibahara**

Journal of Thermal Science and Technology, 2023, accepted.

ナノ粒子表面で生じる触媒反応は工業的にも非常に重要性が高い現象ですが、反応時のエネルギーがどのように分配され触媒反応に影響を及ぼすのかは、これまでに明らかになっておりませんでした。本研究では、反応を模擬可能な分子動力学シミュレーションを用いて、Pt粒子表面で生じるCO酸化反応に関して、反応時の熱エネルギーがどの程度ナノ粒子や気相側に分配されるかを見積もりました。また、反応時の触媒粒子の温度上昇を予測するモデルを構築しました。



The van der Waals cohesive force between two carbon nanotubes

Hiromu Hamasaki, **Kaori Hirahara**

Applied Physics Express 2023

透過電子顕微鏡内でカーボンナノチューブ2本を互いに接触させた形態を人為的に形成し、これを剥離する瞬間に要する力を検出することで、接合界面に働くファンデルワールス (vdW) 力を評価し、界面サイズ依存性や、接触形態による違いを実験により明らかにしました。ナノチューブや二次元層状物質などのフレキシブルなvdW材料系において界面における相互作用の大きさと熱・電気伝導特性の相関を解き明かすことは、vdW材料系の界面エンジニアリングにおいて必須であり、本論文で得られた成果はこれに貢献できるものと考えています。



Effect of annealing treatment on the mechanical properties of spiked-shell aerographite particles

Yuexuan Li, Hiromu Hamasaki, **Kaori Hirahara**

Carbon 2023

中空炭素ナノロッドが放射状に連結してできたシェル構造を有するエアログラファイト粒子は、70%以上圧縮しても元の形状に戻るという非常に柔軟な変形挙動を示しますが、40%以上の圧縮ひずみにおいて大きなクラックが生じたり、繰り返し変形させると残留ひずみの蓄積により徐々に形が変わっていくことも見られました。本論文ではこのエアログラファイト粒子を不活性ガス中で加熱処理を行い、粒子の力学特性におよぼす影響を調べました。従来の黒鉛材料で結晶性向上を目的とする加熱処理は2000°C以上で行われてきましたが、この粒子では、結晶性を良くすると同時にシェル構造も壊れ、柔軟な性質が失われてしまうことが分かりました。これに対し、1600°Cでの加熱処理を行うと、シェルの形態をそのまま保ちつつ炭素層中の欠陥が適度に修復された粒子が得られました。個々の粒子の圧縮試験では、黒鉛層内に微小欠陥が生じるなどしてひずみが蓄積されていく傾向は変わらなかったものの、それが粒子の割れに繋がるような亀裂発生源にはなりにくくなることが示唆されました。結果として、粒子の割れが顕著に抑制でき、ひずみ30%の繰り返し負荷後でも優れた柔軟性を示すことがわかりました。



Low-energy Ar⁺ ion-beam-induced chemical vapor deposition of silicon dioxide films using tetraethyl orthosilicate

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

Heliyon

イオンビーム誘起CVD(IBICVD)では、基板に原料ガスを吹き付け、そこにイオンビームを照射することにより、基板上の両者が当たる箇所に局所的に成膜を行うことができます。IBICVDは、ナノスケールの立体構造形成、磁気媒体の開発、金属酸化膜や同窒化膜の形成、などの多方面で利用されています。IBICVDを酸化ケイ素膜の形成に用いる場合には、入射イオンビームとして、これまでは酸素が用いられてきました。しかしながら、酸素イオンは強い反応性を持つため、酸素イオンビームを用いた実験では、基板上の、本来は酸化すべきではない箇所までもが酸化してしまうことがあります。一方、TEOSはその分子中に1個のケイ素原子と4個の酸素原子を持っています。そのため、TEOSを原料に用いる場合には、酸化膜形成のために酸素イオンビームを用いる必要はありません。我々は、0.7sccmの流量でTEOSを基板に吹き付けつつ、そこに100eVのアルゴンイオンビームを照射することによりIBICVD反応を誘起すれば、炭素をほぼ含有しない酸化ケイ素 (SiO₂) の成膜が可能であることを実証しました。

 Neutronics Design of Fusion Reactor-Based Boron Neutron Capture Therapy in ITER

Isao Murata, Shingo Tamaki, Sachie Kusaka, Indah Rosidah Maemunah, Fuminobu Sato, Hiroyuki Miyamaru, Shigeo Yoshida

Fusion Science and Technology 1-11 2023

現在ホウ素中性子捕捉療法 (BNCT) が世界的に注目されており、近年、その中性子源として原子炉から加速器に移行する動きが盛んになっています。本研究では、この中性子源として未来のエネルギー源と目されている核融合炉を用いた場合、BNCTとして成立するかどうかを調べました。核融合炉は今、フランスのカダラッシュにその実験炉 (ITER) を建設中であり、ITERを用いた場合に、治療に十分な性能を有するBNCT装置が製作できるかどうかを理論計算により調べました。その結果、従来のBNCT装置よりも性能の向上が見込めることが明らかになりました。これは、これまで治療が難しかった深部の腫瘍についても治療が可能になる可能性があることを意味する重要な結果です。

 Boron Delivery to Brain Cells via Cerebrospinal Fluid (CSF) Circulation in BNCT of Brain-Tumor-Model Rats-Ex Vivo Imaging of BPA Using MALDI Mass Spectrometry Imaging.

Sachie Kusaka, Yumi Miyake, Yugo Tokumaru, Yuri Morizane, Shingo Tamaki, Yoko Akiyama, Fuminobu Sato, **Isao Murata**

Life (Basel, Switzerland) 12(11) 2022

腫瘍細胞選択的に治療できると注目されているホウ素中性子捕捉療法では、腫瘍組織と正常組織のホウ素濃度の比(T/N比)が重要です。本研究では、脳腫瘍モデルラットの脳脊髄液にホウ素薬剤を投与し、脳腫瘍でのT/N比を高めることを目指しました。脳脊髄液投与を実施した脳腫瘍モデルラットから得られた脳組織での質量分析イメージングにより、脳脊髄液中のホウ素薬剤は脳細胞、特に脳腫瘍細胞に多く移行することがわかりました。またそのT/N比は、投与時間に依存して増加しました。したがって、脳脊髄液投与法の確立には、投与時間の十分な検討が必要であると考えられます。

 Visible-Light-Driven Hydroacylation of Unactivated Alkenes Using Readily Available Acyl Donors

Yutaka Saga, Yusuke Nakayama, Taito Watanabe, Mio Kondo, **Shigeyuki Masaoka**

Organic Letters 2023

本論文では、不活性アルケンの可視光駆動型ヒドロアシル化反応について報告しました。ベンズイミダゾリン類をアシルドナーとして用いることで、穏和な条件で、高い位置選択性、優れた官能基耐性、広い基質適用性を示すヒドロアシル化反応が実現可能であることを見出しました。

 The Road to Bis-periazulene (Cyclohepta[def]fluorene): Realizing One of the Longstanding Dreams in Nonalternant Hydrocarbons

A. Konishi, K. Horii, M. Yasuda

J. Phys. Org. Chem. 2023, DOI: 10.1002/poc.4495.

ビスペリアズレンは1955年にその構造が提唱されて以降、2022年に著者らが合成を達成するまで長らく未知の分子でした。この総説では、関連化合物の動向と従来の歴史的背景を詳解し、著者らの結果を中心にまとめました。関連分子について、極めて網羅的な総説となっています。

 Palladium-Catalyzed Skeletal Rearrangement of Cyclobutanones via C-H and C-C Bond Cleavage

Y. Ano, D. Takahashi, Y. Yamada, and N. Chatani

ACS Catal. 2023, 13, 2234-2239.

パラジウム触媒を用いた3-アリアルシクロブタノンの開環を伴う骨格再配列反応により、生理活性物質の骨格のひとつである1-インダノンが見出されました。類似の触媒的変換反応は既に報告されていますが、いずれの反応もホウ素やハロゲンのような反応性の高い置換基、または分子内配向基の導入を必要とします。これに対して、本反応ではN-ヘテロ環状カルベン配位子を用いることで、このような足掛かりとなる官能基を用いることなく炭素-炭素および炭素-水素結合の切断が進行し、1-インダノンが見出されることを明らかにしました。