

平成 29 年度

共同利用・共同研究報告書

名古屋大学未来材料・システム研究所

共同利用・共同研究委員会

## 報告書目次

No.	研究代表者	所属機関	研究課題名	頁
1	呉 松竹	名古屋工業大学	高安全性 LIB 負極向けのナノポーラス TiO <sub>2</sub> -TiN 複合アノード酸化 皮膜と LiTiPO <sub>4</sub> 固体電解質とのナノ積層化	1
2	羽田 政明	名古屋工業大学	省資源省エネルギー型環境浄化触媒材料の開発	3
3	網本 正哉	陶磁器意匠研究所	安全安心な新規セラミックス系色材の研究開発	5
4	由井 樹人	新潟大学	無機層状化合物／金属ナノ粒子複合体の構造解析	7
5	遠藤 彰	東京大学	エピタキシャルグラフェンの低温電子伝導物性研究	9
6	中田 真秀	理化学研究所	第一原理大規模データ及び機械学習に依る有機イメージセンサーの開発	11
7	吉田 寿雄	京都大学	基礎的多重分析による光触媒の革新的高効率化の検討	13
8	菓子野 元郎	奈良県立医科大学	放射線で誘導される分泌因子の正常及び腫瘍細胞種への影響研究	15
9	寺門 修	函館工業高等専門学校	溶媒和電子を用いた省エネルギー型磁性ナノ材料合成プロセス	17
10	小林 千悟	愛媛大学	濡れ性を制御したTi 上での高効率細胞増殖技術	19
11	大津 直史	北見工業大学	表面吸着タンパク分別定量による省エネ生体適合評価法の開発	21
12	梅田 隼史	あいち産業科学技術総合センター	リチウムイオン電池負極用チタン酸リチウムのソルボサーマル合成と評価	非公開
13	小島 隆	千葉大学	構造規整粒子を用いた多孔質酸化チタン電極の作製	23
14	宇野 史睦	産業技術総合研究所	数値気象予報モデルと衛星画像を用いた数時間先の日射予測手法の開発	25
15	青木 睦	名古屋工業大学	インターネットを介した分散電源群の相互協調制御に関する実験的検討	27
16	小迫 雅裕	九州工業大学	機能性ナノコンポジット絶縁材料に関する基礎的研究	29
17	劉 鋹	大連理工大学	車両燃費向上と環境負荷削減のための交差点における協調的速度調整誘導システムデザイン	31
18	Venkataraman N. Shankar	Texas Tech University (前Penn State University)	事故種別間の相関を考慮した交通事故頻度分析による事故損失削減	33
19	小林 潤	工学院大学	内燃機関の排熱回収を目的としたケミカルターボシステムの開発	35

No.	研究代表者	所属機関	研究課題名	頁
20	小林 信介	岐阜大学	高効率水素製造のためのCLP 酸素キャリアーの開発	37
21	岡山 朋子	大正大学	ピコ水力発電に対する官学民の意識調査研究	39
22	池田 敏彦	信州大学	雪氷に強いエコ水車の開発	41
23	濱村 奈津子	九州大学	電気化学的微生物による新規メタルバイオテクノロジー技術に関する基盤的研究	43
24	宮田 康史	名古屋市工業研究所	微生物電気デバイス電極の解析	45
25	大平 孝	豊橋技術科学大学	大規模ビル内における電力線通信の品質に及ぼす人工雑音・伝搬損失・線路インピーダンスの総合的影響	47
26	岡澤 宏	東京農業大学	生態系・健康影響を取り入れた持続的可能な再生エネルギー資源の評価手法の開発	49
27	町村 尚	大阪大学	先進的森林バイオマスエネルギー資源量推計手法の開発	51
28	Li Dawei	中国東南大学	将来の都市交通とその交通環境への影響に関する研究	53
29	和田 忠浩	静岡大学	可視光イメージセンサ通信システムの研究開発	55
30	岡本 英二	名古屋工業大学	協調型高度道路交通システムによる交通流および無線通信の過集中緩和に関する研究開発	57
31	長谷川 豊	名古屋工業大学	水噴霧冷却システムの性能評価に関する研究	59
32	花崎 逸雄	東京農工大学	液中に分散した微粒子群から形成される塗布膜の実測に基づく解析	61
33	河南 治	兵庫県立大学	新しい温度計測技術を用いた高効率沸騰熱伝達冷却機構の研究	63
34	飯尾 昭一郎	信州大学	凸面に発生する渦構造に関する研究	65
35	内藤 克浩	愛知工業大学	ICT 活用農業のためのセンサネットワークの研究開発	67
36	荒井 伸太郎	岡山理科大学	低撮影速度のカメラを用いた省エネルギー可視光通信の実現のためのデータ復調手法の開発	69
37	西村 颯	三重大学	太陽光駆動光触媒による二酸化炭素の燃料としての再利用	71
38	布目 陽子	広島大学	グロー放電プラズマを利用した揮発性有機化合物の分解メカニズムの解明	73
39	石橋 隆幸	長岡技術科学大学	磁気光学イメージングプレートの開発	75

No.	研究代表者	所属機関	研究課題名	頁
40	山田 啓介	岐阜大学	強磁性ナノワイヤーにおける磁壁電流駆動の観測	77
41	松井 龍之介	三重大学	ハイパボリック・メタマテリアルによる高効率有機発光デバイスの開発	79
42	渋谷 寛	東邦大学	精密 $\mu$ 粒子ラジオグラフィーのための宇宙線の運動量分布測定	81
43	伊代野 淳	岡山理科大学	原子核乾板超高速読み取り装置 HTS によるミュー粒子トモグラフィーのバックグラウンドとなる低エネルギー粒子解析と重原子核同定への応用	83
44	歳藤 利行	名古屋市立西部医療センター	原子核乾板技術の陽子線治療への応用	85
45	青木 茂樹	神戸大学	超高速原子核乾板読み出し装置HTSを用いた高精度原子核フィルムの解析手法の確立	87
46	中村 琢	岐阜大学	原子核乾板による生体中の放射性核種オートラジオグラフィー	91
47	西藤 清秀	奈良県立橿原考古学研究所	ミューオンラジオグラフィーのための原子核乾板の長期利用可能化研究	93
48	吉田 朋子	大阪市立大学	銀担持酸化ガリウム光触媒の二酸化炭素還元反応メカニズム解明	95
49	原 嘉昭	茨城工業高等専門学校	シリサイドバルク結晶を用いた熱電特性の異方性評価	97
50	藤井 健太郎	量子科学技術研究開発機構	元素選択的イオン化を利用した生体分子内電荷移動の研究	99
51	高橋 可昌	関西大学	省エネルギー・低炭素化を推進する材料強度評価の新学術・技術基盤創生	101
52	宮澤 知孝	東京工業大学	Cu 基エネルギー伝送材料の低サイクル疲労における転位組織発達過程の解明	103
53	蔡 安邦	東北大学	Mg マトリックス中における準結晶粒の析出挙動の観察	105
54	西本 一恵	東北大学	ナノポーラス金属におけるナノ双晶と触媒特性	107
55	荒巻 光利	日本大学	非接触ダイバータプラズマ中の中性原子温度計測	109
56	川口 昂彦	静岡大学	自己形成超格子構造を有する熱電セラミックス薄膜の局所構造と電子状態の観測	111
57	三宅 秀人	三重大学	高温熱処理によるAlN 高品質化プロセスの解明	113
58	酒井 朗	大阪大学	超低消費電力脳型コンピュータの基幹となるメモリスタシナプス素子の材料物性評価と機能制御	115
59	若林 整	東京工業大学	超低消費電力トランジスタ用二硫化モリブデン半導体のTEM解析	117



No.	研究代表者	所属機関	研究課題名	頁
60	松田 一成	京都大学	ナノカーボン・原子層物質を用いた光エネルギー変換デバイスの研究	119
61	石井 聡	東京電機大学	放射線環境下における CNTFET のデバイス特性に関する研究	121
62	杉目 恒志	早稲田大学	ナノカーボン微細構造体の作製とデバイス応用	123
63	佐々木 進	新潟大学	GaN 結晶歪みの空間分布を超高感度核スピン計測で非破壊観測する	125
64	肖 英紀	秋田大学	超省エネ・高密度磁気メモリ開発に向けたスキルミオン物質の設計と評価	127
65	新家 寛正	千葉大学	強く捻れた光場中でのカイラル核形成による結晶カイラリティ制御	129
66	手老 龍吾	豊橋技術科学大学	基板担持脂質二重膜の相分離の制御	131
67	小島 一信	東北大学	深紫外発光ダイオード構造における発光特性の評価	133
68	片山 竜二	大阪大学	N 極性InGa <sub>N</sub> 発光ダイオードの高効率化にむけた局在発光の微視的評価	135
69	加藤 正史	名古屋工業大学	溶液法成長SiC結晶を基板として用いたパワー半導体素子の評価	137
70	太子 敏則	信州大学	溶液法 SiC 結晶成長と評価に関する研究	139
71	佐藤 威友	北海道大学	窒化物半導体を用いたMOS デバイスにおける半導体/絶縁膜界面の評価	141
72	谷川 智之	東北大学	GaN 厚膜の HVPE 成長における成長面方位と欠陥形成機構	143
73	岡田 成仁	山口大学	HVPE 法による GaN バルク結晶及び GaN 薄膜作製	145
74	塚本 勝男	大阪大学	光学観察による SiC 結晶内部欠陥の評価	147
75	千住 智信	琉球大学	電気自動車のための高効率昇降圧 DC/DC 充電器	149
76	北條 昌秀	徳島大学	小規模電力系統における仮想同期発電機の制御効果	151
77	宮本 成悟	東京大学	宇宙線ミュオンを用いた火山の三次元密度構造の解明	153
78	有賀 智子	九州大学	エマルション飛跡検出器の大規模応用に向けた巨大粒子乳剤の開発	155

## 高安全性 LIB 負極向けのナノポーラス TiO<sub>2</sub>-TiN 複合アノード酸化皮膜と LiTiPO<sub>4</sub> 固体電解質とのナノ積層化

### Nano-laminated Fabrication of Nano-porous Anodic TiO<sub>2</sub>-TiN Composite Films and LiTiPO<sub>4</sub> Solid Electrolyte toward High-Security LIB Anode Materials

呉 松竹・名古屋工業大学・物理工学科材料機能分野・准教授  
 叶 泳達・名古屋工業大学・物理工学科材料機能分野・博士 3 年  
 川上 修央・岩手大学・理工学部化学生命理工学科・技術補佐員  
 君成田 智裕・岩手大学・理工学部化学生命理工学科・修士 1 年  
 興戸 正純・名古屋大学・未来材料システム研究所・所長

#### 1. 研究目的

新規な高性能且つ低コスト LIB 電極材料の創製を目指し、Ti 箔上に高反応性と導電性を有するナノポーラス TiO<sub>2</sub>-TiN 複合アノード酸化皮膜を形成し、さらに水熱法の溶液プロセスにより LiTiPO<sub>4</sub> 固体電解質層を TiO<sub>2</sub>-TiN 複合膜上に析出させ、導電助剤とバインダーフリーの LIB 負極材料として電気化学特性を評価することを目的とする。

#### 2. 研究内容と成果

##### 2.1 アノード酸化による Ti 板へのナノポーラス TiO<sub>2</sub>-TiN 複合膜の作製および LIB 負極としての充放電特性評価

(担当：岩手大学・名古屋工業大学)

Fig.1a-1b に示すように、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>イオンを含む硫酸系および硝酸系電解液を用いたアノード酸化法により、Ti 箔上にそれぞれ、細孔直径φ30-80 nm およびφ100~300 nm を持つナノポーラスチタニア皮膜を作製することができた。また、二段階アノード酸化法を利用して、階層的な TiO<sub>2</sub>-TiN 複合皮膜を作製できた。

また、XPS 分析により、いずれの電解液の場合には、皮膜中に TiO<sub>2</sub>のほかに、TiN も同時に形成されたことを判明した。さらに、充放電試験により、TiO<sub>2</sub>-TiN 複合アノード酸化皮膜は、バインダーフリー且つ導電助剤フリーのリチウムイオン電池の負極として作動し、作製条件と加熱条件に応じて 220~440 mAh cm<sup>-2</sup>@1μm の高い電気容量を示すことが確認された。

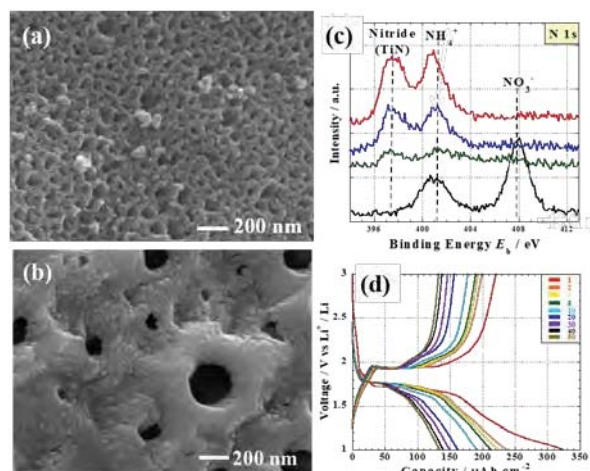


Fig.1 (a) 硝酸系と(b)硫酸系電解液中で形成した TiO<sub>2</sub>-TiN 複合アノード酸化皮膜の表面 FE-SEM 写真；硝酸系溶液中で形成した TiO<sub>2</sub>-TiN 複合膜の(c) XPS 分析結果；(d)定電流充放電曲線

## 2.2 水熱法による多孔質 TiO<sub>2</sub>-TiN 複合膜と LiTiPO<sub>4</sub> 薄膜との積層化

(担当：名古屋大学)

Fig.2a-c には、多孔質 TiO<sub>2</sub>-TiN 複合皮膜が覆われた Ti 板を基板として、ドロップレット式の水熱法を 3 時間行った試料の表面および断面 SEM 写真を示す。アノード酸化試料の上に粒子サイズが 2-10 μm の緻密膜を合成することができた。XRD 測定により、結晶性 LiTiPO<sub>4</sub>(LTP) および TiO<sub>2</sub>が検出されたため、その膜は TiO<sub>2</sub>-TiN/LTiPO<sub>4</sub>の積層型複合膜を形成したことが確認された。さらに、Al<sup>3+</sup>イオンを LTP にドーピングすることにより、LTAP 複合膜が形成され、イオン伝導度が 10<sup>-6</sup> S/cm 台から 10<sup>-3</sup> S/cm 台までに、大幅に向上したことが見出された。高性能固体電解質として LIB に応用できることが示唆された。

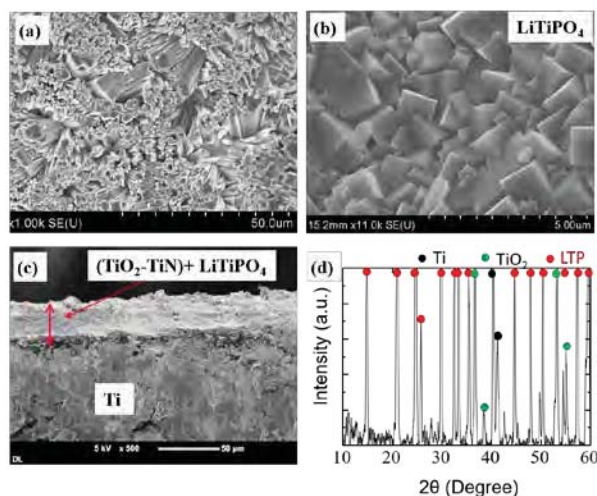


Fig.2 ロップレット式水熱法で形成した LiTiPO<sub>4</sub>膜の(a, b)表面と(c)断面 SEM 写真；(d) XRD 測定結果

### 【研究成果の公表状況】

<原著論文> (11pt 明朝体, Times)

- **Song-Zhu Kure-Chu\***, Haruki Sakuyama, Ei-ichi Suzuki, Hitoshi Yashiro, Kuniaki Sasaki, Hiroyo Segawa, and Takehiko Hihara, “Tailoring of Morphology and Crystalline Structure of Nanoporous TiO<sub>2</sub>-TiO-TiN Composite Films for Enhanced Capacity as Anode Materials of Lithium-Ion Batteries”, Journal of The Electrochemical Society, 165 (3) A477-A486 (2018.2).
- **Song-Zhu Kure-Chu\***, Yongda Ye, Nobuhiro Kawakami, Hitoshi Yashiro, Yuichi Kamiike, and Masasumi Okido, “Nano-laminated Fabrication and Characteristics of Nanoporous Anodic TiO<sub>2</sub>-TiN Composite Films and LiTiPO<sub>4</sub> Solid Electrolyte toward High-Performance LIBs”, Journal of The Electrochemical Society ~投稿準備中.

<国際会議>

- **Song-Zhu Kure-Chu\***, Haruki Sakuyama, Nobuhiro Kawakami, Hitoshi Yashiro, Yuichi Kamiike, Masasumi Okido, and Hiroyo Segawa, “Nano-laminated Fabrication of Nanoporous Anodic TiO<sub>2</sub>-TiO-TiN Composite Films and LiTiPO<sub>4</sub> Solid Electrolyte toward High-Security LIB Anode Materials”, International Conference on Materials and Systems for Sustainability 2017 (ICMaSS 2017), Nagoya University, 2017.9.29~2017.10.1.

<産業財産権>

- 出願状況、取得状況：該当なし。

## 和文共同利用・共同研究課題名（省資源省エネルギー型環境浄化触媒材料の開発）

Project Title in English: (Development of environmental catalysts with saving resource and energy)

研究代表者氏名 羽田政明・名古屋工業大学先進セラミックス研究センター・教授

研究分担者氏名 名古屋大学 未来材料・システム研究所・服部将朋・助教

研究所担当教員氏名 名古屋大学 未来材料・システム研究所・材料創製部門・小澤正邦・教授

### 1. 研究目的

燃焼排ガスの浄化には希少金属である白金族元素が触媒として多量に用いられる。環境規制の厳格化による世界的な需要の拡大により、広く使われている白金族元素の希少性が一層高くなり、これらをより資源上で安心な遷移金属等に代替する元素の探索と、その触媒化開発が検討されている。銅系触媒は、担体との相互作用により高い酸化活性を示し、比表面積や担体組成など活性に影響を及ぼす因子について検討されており、その利用の可能性が期待されている。本研究では、活性な担体として  $\text{CeO}_2\text{-ZrO}_2$  複合酸化物を用い、銅を担持させた触媒上での CO 酸化活性を調べた。

### 2. 研究内容と成果

共沈法により  $\text{CeO}_2\text{-ZrO}_2$  担体を調製し空気中で  $800^\circ\text{C}$  で 3 時間熱処理を行った。得られた担体粉末に銅担持量が 0.04~10wt.% になるように硝酸銅水溶液を含浸させ、空気中で  $800^\circ\text{C}$  で 3 時間熱処理を行い触媒試料とした。

このように調製した  $\text{CeO}_2\text{-ZrO}_2$  担持銅触媒について XRD 測定により結晶相の同定を行い、窒素吸着法による比表面積測定を行った。水素昇温還元 ( $\text{H}_2\text{-TPR}$ ) 測定により触媒の昇温還元挙動を評価した。CO 酸化反応は固定床流通式反応装置で行い、触媒の酸化処理を行ったのち、CO を 0.5%、 $\text{O}_2$  を 1.0% で He 希釈した混合ガス (50ml/min) を流し、CO 転化率を評価した。また、赤外分光計 (FT-IR) による吸着 CO 種の観察を行った。以上のような手法で、 $\text{CeO}_2\text{-ZrO}_2$  複合酸化物上に銅を担持させた触媒上での CO 酸化活性を評価するとともに、活性に影響する酸化銅の物理的、化学的状态を調べた。

XRD 測定では 10wt.% の銅を添加した触媒においてのみで酸化銅が XRD ピークとして検出された。触媒の比表面積は銅添加量の増加によって減少し、高担持量では担体表面における酸化銅種の分散が十分ではないことがわかる。CO 酸化活性データから、銅

の添加量を 0.04wt%から 1.0wt%にすると大幅に向上し、それ以上の添加量では同等かわずかに活性が低下した。すなわち、一般には 10%程度を利用する遷移金属類の触媒であるのに、本研究では 1.0wt%の少量の銅によって高い活性を呈する触媒が得られることがわかった。H<sub>2</sub>を用いた昇温還元挙動においても同様の活性傾向を示し、少ない銅量の触媒のほうが低温で反応が起こっていた。

触媒を酸化前処理したのち、吸着 CO 種の FT-IR を観測した。銅種の表面状態を調べたところいずれの触媒においても 2120 cm<sup>-1</sup>に Cu<sup>+</sup>に吸着した CO に帰属される吸収が観察された。1.0wt.%の銅を添加した触媒において最もこの CO 種の吸収強度が大きいことがわかった。この結果から、CO は Cu<sup>+</sup>上に吸着しこの活性サイトで反応する、すなわち表面 Cu<sup>+</sup>が酸化反応における活性種として作用していると考えられる。

本研究では、活性な担体として CeO<sub>2</sub>-ZrO<sub>2</sub>複合酸化物を用い、遷移金属類の銅を担持させた触媒上での CO 酸化活性を調べた。少量の銅の使用でも高い活性が示され、担体の適切な選択が省資源型環境浄化触媒材料には重要であることが明らかになった。このような低温での活性を示す触媒は、加熱のためのエネルギーを削減できるので、省エネルギー型環境浄化触媒として有用であると考えられる。

## 【研究成果の公表状況】

### <論文>

・羽田政明，砥綿篤哉，服部将朋，「汎用元素からなる酸化物触媒による一酸化炭素の低温浄化の実現」耐火物 vol. 69 (2017) 465-471

### <国際・国内会議>

・服部将朋，羽田政明，小澤正邦，「CeO<sub>2</sub>-ZrO<sub>2</sub>上の酸化銅の状態による CO 酸化活性への影響」第 120 回触媒討論会 2017 年 9 月 12 日～14 日 松山

### <産業財産権>

・なし



## 安全安心な新規セラミックス系色材の研究開発

### Study of ceramic color materials with safety

研究代表者氏名 多治見市・陶磁器意匠研究所・主査・網本正哉  
研究所担当教員氏名 名古屋大学・材料創製部門・教授 小澤正邦

#### 1. 研究目的

本研究では、地場産業地域で養ってきたセラミックス技術を基盤にして省エネルギーで環境に配慮した新規な色材の開発を行うことをめざす。

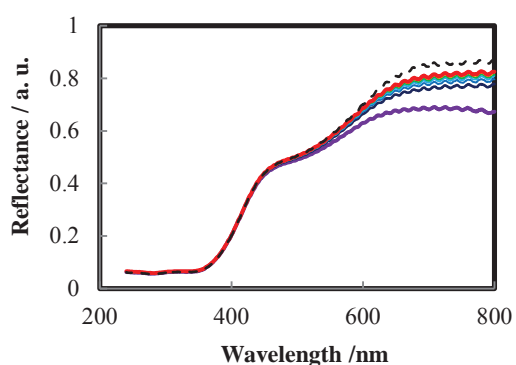
セラミックス材料の中には、蛍光、蓄光、光触媒などの自発的に特色を示し、省エネ・環境に資する光学機能を有する組成系がある。それらの材料では、特に外部から電気エネルギーを供給することなく光学的性質を発現するため、エネルギーを費やさない点で有用と考えられる。タイル材等を用いることにより耐候性と光学機能を併せ持つ景観材等とすることもできるセラミックス系色材の光学機能について研究する。本研究では、とくに、暖色でかつ機能性として光特性を示す顔料の合成を目的とし、プラセオジウムとユーロピウムをセリアに導入し合成を試みた。これまでの黄色や暖色系顔料の原料は必ずしも環境、健康面で安全なものだけを使用しているわけではない現状に着目して、安全・安心な色材としての新たな陶磁器用顔料の研究を行う。

#### 2. 研究内容と成果

日常の色彩に対するニーズの中で、赤から橙、黄色等の暖色系の顔料に関する関心は高い。暖色系の主成分となっている化合物としては、硫化カドミウム、セレン化カドミウムが知られている。本来は有毒なカドミウムがしばしば用いられている。カドミウムを含む化合物は耐熱性がそれほどよくないため、焼成して製造する際に細心の注意を要しておりその改善が求められるが、十分には達成できていない。最近、希土類元素を利用した顔料の研究がその色合いの良さと安定性から注目されており、セリア系を含めて様々な試みが行われている。申請者は、セリアジルコニア系に鉄を添加する材料で、黄色から橙の色材となる可能性を見出し、ホスト結晶構造への微量のドーパが有効な発色源となる可能性を検討した。そこで、本研究では、希土類の発行中心となる希土類元素 (Eu 等) を導入し、色材としての新奇な色合いと蛍光発光性を発現することを試みた。

$Ce_{1-x-y}Eu_xPr_yO_{2-δ}$  試料の作製では中和共沈法を用い、 $600^{\circ}C$  で 3 時間大気中で熱処理し粉砕して粉末試料を得た。結晶相評価には粉末 X 線回折を用い、光学的特性の評価のため測色試験機ならびに紫外可視分光光度計による測定を行った。測色試験の結果は CIE 系の  $L^*a^*b^*$  値で示した。

Pr のみを導入した試料,  $\text{CeO}_2$ ,  $\text{Ce}_{0.9995}\text{Pr}_{0.0005}\text{O}_{2-\delta}$ ,  $\text{Ce}_{0.95}\text{Pr}_{0.05}\text{O}_{2-\delta}$ に着目すると, Pr 量の増加に従いそれぞれ,  $a^*$ 値は-6 から 6, 13 に上昇し,  $b^*$ 値は 29 から 21, 9 に低下した.  $\text{CeO}_2$ 単独での淡黄色に対して, Pr 添加によって赤みが増して橙, 褐色の色味へと変化していた.  $\text{Ce}_{0.95}\text{Pr}_{0.05}\text{O}_{2-\delta}$ では暗い発色にあり高い明度を得るためには Pr 量を低く抑えると,  $\text{Ce}_{0.9995}\text{Pr}_{0.0005}\text{O}_{2-\delta}$ が適当な暖色顔料組成となる. さらに, 一連の測色試験を実施する中で, 一部の試料では色に変化する現象が観察され, Eu と Pr を導入した  $\text{CeO}_2$ の光照射による発色の変化をはじめて見出した. 光照射すると 600 nm 付近以上の長波長領域で反射率の低下が見られた. 最初の測定と 10 秒後の測定の間で大幅に低下し, それ以降は次第に低下が緩やかになった. 740 nm での相対的な反射率の変化量は, 10 秒後で-6%, 90 秒後で-15%あった. この吸収は赤色の低下に相当しており, その補色としての, 緑色の色味が増すものと考えられる.



フォトクロミック現象を示す化合物の多くは有機物であり, セラミックスでは限られた物質に見出されている. 本研究のような暖色系色調のセラミックスが示すフォトクロミック現象は今回はじめて見出されたものであり, 今後メカニズムの詳細について検討すれば, 広い範囲での顔色系色とその変化を制御され新顔料となる可能性がある.

**Fig. 5** Changes in reflectance spectra of  $\text{Ce}_{1-x-y}\text{Eu}_x\text{Pr}_y\text{O}_{2-\delta}$  during the measurements in darkness using the UV-vis spectrophotometer.

## 【研究成果の公表状況】

<原著論文>

・ Masaya AMIMOTO, Masakuni OZAWA, Color Properties of Eu-, Pr-doped and Codoped  $\text{CeO}_2$ , Journal of the Japan Society of Powder and Powder Metallurgy, Volume 64 (2017) Issue 12 Pages 646-648

<国際・国内会議>

・ Y. Yoshimura, M. Amimoto, M. Matsumoto, M. Ozawa, Preparation and optical properties of Eu-Ce codoped  $\text{ZrO}_2$  nanoparticles, JSPM International Conference on Powder and Powder Metallurgy; 60th Anniversary, Nov.6-9, 2017 Kyoto.

<産業財産権>

・ 網本, 小澤, 出願 2017-206278 「フォトクロミック物質およびその製造方法」(2017年10月25日)

## 無機層状化合物／金属ナノ粒子複合体の構造解析

Structural analysis of the inorganic layered compound and metal-nanoparticle hybrids

研究代表者：由井樹人 新潟大学工学部機能材料工学科 准教授

研究分担者：乗松航 名古屋大学大学院工学研究科 化学生物工学専攻 助教

研究所担当教：楠美智子 名古屋大学未来材料・システム研究所 教授

### 1. 研究目的

Layered metal oxide semiconductors; LMOSs は、半導体特性を示す酸化物層が積層した 2 次元的な空間を有するユニークな材料群であり、その層間には様々な化学種を導入可能なことから、LMOS と光機能性化学種との複合体は光触媒などへの応用が行われている。金属ナノ粒子(MNPs)は、その名の通りナノメートルサイズの金属粒子であり、バルクの金属とは異なる物性を示す材料群である。特に表面プラズモン共鳴(SRP)により、特異的な着色を示すことが知られている。近年、半導体材料と MNPs を複合化した Plasmonic photocatalysts が新たな光触媒として注目を集めている。しかし一般的なバルク半導体粒子の表面積は極めて小さく、MNPs の担持量や活性表面量などには限界があった。この点を克服するため、広い表面積を有する LMOSs と MNPs の複合化が行われているが、その例は極めて少ない。また少数存在する報告例も予め MNPs を合成したのち、LMOSs と複合化する手法を取っている。一方、我々は LMOSs の層間で MNPs の成長をさせることに着目した。LMOSs の極めて限定された空間で MNPs を成長させることで、液相合成の MNPs とは異なった形態のナノ粒子が成長し、形態に応じて光学物性を大きく変化させることが可能と予想される。実際に銅イオンを LMOS 層間に導入し化学的な還元処理を施すと、50-200 nm 程度の銅ナノ粒子が生成することを見出している。さらに、銀で類似の反応を行うと、極めて特徴的な光学応答を示す材料が得られた。しかし、層間における MNPs のナノレベルでの形態といった情報を得ることはできていなかった。本研究では、層間で生成した MNPs の分布や形状を透過電子顕微鏡にて観察を行うことで、層内での MNPs の形態を直接観察し光学特性との相関、さらにはこれらの情報を基盤としてさらなる高性能な MNPs/LMOS 複合体合成の基礎的知見を得ることを目的に研究を行った。

### 2. 研究内容と成果

前駆体となる銀イオンと LMOSs の一種であるチタニアナノシート(TNS)の透明複合膜は、先行研究である銅の系を参照に合成した(Yui et al, *J. Mater. Chem. C* **2016**, *J. Vis. Exp.* **2017**)。銀イオンを含む前駆体複合膜を還元剤である NaBH<sub>4</sub>溶液に浸漬すると、膜の色が青色に変化したことから、層間で銀ナノ粒子(AgNP)が生成していることが示唆



された。XRD, EDS, XPS などの測定では、結晶性の銀ナノ粒子が生成したことを示唆していた。特に TEM および電子線回折では、層間で 50-200 nm 程度の結晶性の銀粒子を直接観測することに成功した。さらに従来の  $\text{NaBH}_4$  による還元手法に換えて、TNS の光触媒特性を利用した光化学的な銀イオンの還元を行った。光照射に伴い、銀イオンを含む膜は青色に変化したことから、化学還元と同様に層間で AgNP が生成していると考えられる。特筆すべきは、光還元法で得られた AgNP の Extinction (吸収と散乱の和) スペクトルは、350 – 2300 nm という極めて長い波長領域に応答を示していた(Fig. 1)。通常の AgNP は 400 nm 付近にしか Extinction を示さず、特異な構造制御がなされた AgNP であっても 1300 nm 以上に優位な Extinction を示す材料は報告されていない。800 nm もしくは 1000 nm 以上の近赤外領域(NIR)の光は非常に特異的な光であるため、様々な応用分野への展開が期待されており、それに伴い NIR に応答する材料の創成が求められている。本材料のように NIR 領域に極めて強い光学応答を示す材料群は新規 NIR 応用材料としての展開が期待される。

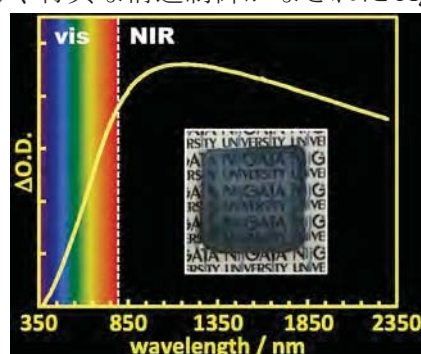


Fig. 1. TNS/AgNP の Extinction スペクトル。非常に幅広い波長領域で光学応答を示している。

### 【研究成果の公表状況】

<原著論文>

- Kawamura, S.; Matsubara, K.; Sakai, S.; Sasaki, K.; Saito, M.; Saito, K.; Norimatsu, W.; Sasai, R.; Kusunoki, M.; Eguchi, M.; Yin, S.; Asakura, Y.; Yui, T.\* *Global Challenges*. **2018**. In press.

<国際・国内会議>

- “Unique Photo and Optical Properties of Layered Compounds and Dye Hybrids” The 4th International Workshop on Chromogenic Materials and Devices, Tokyo Metropolitan University Akihabara Branch, January 15th 2018. Tatsuto Yui
- 「層状化合物をテンプレートとする金属ナノ粒子の合成」由井樹人、日本化学会低次元系光機能材料研究会 第6回研究講演会 (化学会館、平成29年6月23日)
- “In-situ Synthesis of Metal Nanoparticles within the Interlayer Space of Inorganic Layered Material Transparent Films” International Symposium on Pure & Applied Chemistry (ISPAC2017), Hotel Continental Saigon, Ho Chi Minh City, Jun 8-10th 2017. Tatsuto Yui
- “Synthesis of silver nanoparticle within interlayer space of layered semiconductor” International Conference on Materials and Systems for Sustainability 2017 (ICMaSS2017) (Nagoya University, Nagoya City, Sept.29 – Oct.01, 2017). T. Yui, S. Sakai, H. Saito, W. Norimatsu,

## エピタキシャルグラフェンの低温電子伝導物性研究 Low-temperature electronic transport properties of epitaxial graphene

遠藤 彰・東京大学・物性研究所・助教

乗松 航・名古屋大学・大学院工学研究科・助教

楠 美智子・名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授

### 1. 研究目的

厚さ 1 原子層の炭素物質であるグラフェンは、高い移動度を持ち、線形分散関係に起因する特異な量子ホール効果が観測されるなど、科学的にも応用上も注目される材料である。SiC 熱分解グラフェンは、絶縁性基板上にウェハースケールの単結晶グラフェンを直接形成できる唯一の手法である。本研究では、SiC 上グラフェンの電子伝導の機構を明らかにするため、グラフェン層数の異なる複数の試料を用いて低温での磁気輸送測定を行う。また、高温超伝導現象発現の可能性が期待される高濃度ホウ素ドープグラフェンや、グラフェンと同等の手法で作製されるカーボンナノチューブアレイ薄膜、グラフェンに微細加工技術を用いて人工的周期を導入して作製する平面超格子試料についても抵抗の温度・磁場依存性の測定を行い、それらの試料に特有の電子伝導機構を研究する。

### 2. 研究内容と成果

本年度は特にカーボンナノチューブ(CNT)薄膜の伝導測定に注力した。SiC 基板を、酸素が残留するやや低真空度雰囲気中で加熱すると、エピタキシャルグラフェンの代わりに CNT が密充填された薄膜 (図 1(a)挿入図) が成膜される。CNT 軸は膜面に垂直方向に互いに平行となるように揃っている。このような膜の面内方向の電気伝導を測定した。伝導の大きな特徴として、インピーダンスの絶対値 $|Z|$ の著しい周波数依存性を見出した (図 1(a))。 $|Z|$ は周波数の増加とともに減少し、低温になるほど減少はより顕著になる。この依存性は、隣接する CNT 間の静電的結合が伝導に大きく寄与していることを示唆するが、実際 $|Z|$ は、抵抗  $R_0$  と電気容量  $C$  が並列する簡単な等価回路 (図 1(b)右下挿入図) から期待される振る舞い、 $|Z|^{-2} = R_0^{-2} + \omega^2 C^2$ 、で非常に良く記述できる (図 1(b))。電気容量  $C$  は数 100 nF と非常に大きな値になり、これは隣接する CNT 間の距離が非常に小さいこと、および多数の接合が並列していることを反映しているものと考えられる。このように大きな  $C$  を持つ素材として、CNT 薄膜を将来的に電子素子として応用することが期待される。

このほか、エピタキシャルグラフェンを用いた平面超格子の作製を目指し、フォトリソグラフィと酸素プラズマエッチングを用いた微細加工の研究を行った。

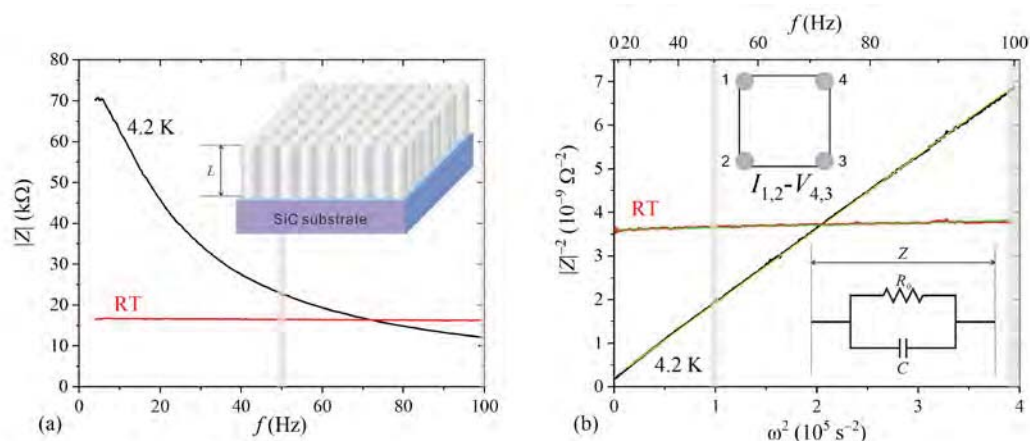


図 1.(a) 室温および 4.2 K でのインピーダンス絶対値 $|Z|$ の周波数 $f$ 依存性。挿入図: 試料の概要。(b)左上挿入図: 電極の模式図。右下挿入図: 等価回路。主図:  $|Z|^{-2}$ 対 $\omega^2$ でのデータの再プロット。細直線:  $|Z|^{-2} = R_0^{-2} + \omega^2 C^2$ へのフィッティング。

## 【研究成果の公表状況】

### <原著論文>

- A. Endo, S. Katsumoto, K. Matsuda, W. Norimatsu, and M. Kusunoki, “Frequency dependent ac transport of films of close-packed carbon nanotube arrays”, accepted for publication in J. Phys.: Conf. Ser.
- Akira Endo, Jianfeng Bao, Wataru Norimatsu, Michiko Kusunoki, Shingo Katsumoto, Yasuhiro Iye, Two-carrier model on the magnetotransport of epitaxial graphene containing coexisting single-layer and bilayer areas, *Philos. Mag.* **97**, 1755-1767 (2017) .

### <国際・国内会議>

- A. Endo, S. Katsumoto, K. Matsuda, W. Norimatsu, and M. Kusunoki, “Frequency dependent ac transport of films of close-packed carbon nanotube arrays”, 28-th Int. Conf. Low Temperature Physics (LT28), Gothenburg Sweden, 2017.8.9—8.16.
- A. Endo, J. Bao, K. Matsuda, W. Norimatsu, and M. Kusunoki, “Characterization of Epitaxial Graphene Layers on SiC Substrate by Low-temperature Magnetotransport Measurements”, Int. Conf. on Materials and Systems for Sustainability (ICMaSS2017), 名古屋大学, 2017年9月29日～10月1日.
- A. Endo, S. Katsumoto, J. Bao, W. Norimatsu, and M. Kusunoki, “Low-temperature magnetotransport of inhomogeneous epitaxial graphene grown on SiC”, Int. Symposium on Epitaxial Graphene (ISEG2017), 名古屋大学, 2017年11月22日～11月25日.

### <産業財産権>

ありません。

## 第一原理大規模データ及び機械学習に依る 有機イメージセンサーの開発

A large scale ab initio data approach and machine learning technique  
for material design of organic image sensing devices

中田真秀・理化学研究所・情報基盤センター・技師  
島崎智実・理化学研究所・計算科学研究機構・研究員  
安田耕二・名古屋大学・未来材料・システム研究所・准教授

### 1. 研究目的

我々の研究目的は、これまでに存在しなかった幅広い物性値と大量の分子データを持つデータベースを構築し、物性値をキーとしての分子検索システムを構築し、材料開発への応用、特に有機イメージセンサー材料の開発に貢献することを目的とする。そのために、量子化学計算を用いた巨大な分子データベース構築だけでなく、機械学習による分子の電子構造・幾何構造予測法を開発する。

### 2. 研究内容

#### データベース構築について

PubChem(<https://pubchem.ncbi.nlm.nih.gov/>) に登録されている分子について、分子量の小さい順から計算を行っている。分子の初期座標生成はInChI表記のOpen Babelを用いた。この初期座標を用い、PM3、HF/STO-6G、B3LYP/6-31G\* の順で構造最適化(量子化学計算)を行った。B3LYP/6-31G\*およびTDDFT/6-31+G\*計算も行い、10個の低いエネルギー状態の励起状態を求めた。

これらについて得られた分子に対してInChIによるバリデーションを行った。構造最適化によって構造が変化し、分子としての解釈が変化することが有るためである。バリデーションの可否については、PubChemに登録されているInChIと、構造最適化によって得られたInChIの化学式サブレイヤーおよび原子のコネクションレイヤーを比較して一致した分子を用いた。計算結果から、軌道エネルギー、HOMO-LUMOギャップ、励起エネルギー、双極子モーメントなどを抽出し、PostgreSQLデータベースで管理を行った。

#### 機械学習について:

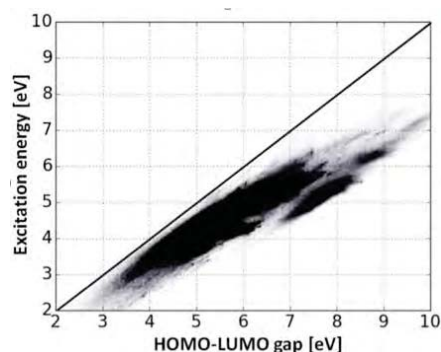
今回はSMILES表記の分子から、HOMO-LUMOギャップなど電子構造を予想することを行った。これにはSMILES表記から1024bit Topological fingerprintに変換し、support vector machine(SVM)およびGaussian radial basis function (RBF)をカーネルとして機械学習を行った。教師データとしてはInChIバリデーションを行った分

子で、4.5-6.5eVまでHOMO-LUMOギャップが一様に分布するよう、ランダムに2万分子選んだ。そこから98万分子のHOMO-LUMOギャップの予想を行った。

### 3. 成果

データベース構築:

左図は、220万分子についてHOMO-LUMOギャップを横軸に励起エネルギーを縦軸にその相関をプロットしたものである。これから励起状態はHOMO-LUMOギャップとよい相関に有ることが解った。尚、約10%の分子がバリデーションに失敗した。分子検索エンジンも<http://pcpdb.org/>で公開中である。



機械学習:

下図はHOMO-LUMOギャップをSVMおよびRidge regressionによって予測した結果である。RMSEは0.3~0.4eV程度と、SMILESのみを用いて予測したが、TDDFTによる結果とよく一致した。

Table 1. HOMO-LUMO gap predictions based on the machine learning approach.

Method	Kernel	RMSE [eV]
SVM regression	RBF	0.36
	second-order polynomial	0.39
	third-order polynomial	0.43
Ridge regression	RBF	0.37
	second-order polynomial	0.38
	third-order polynomial	0.38
	fourth-order polynomial	0.48

#### 【研究成果の公表状況】

<原著論文>

- Maho Nakata and Tomomi Shimazaki, "PubChemQC Project: a Large-Scale First-Principles Electronic Structure Database for Data-driven Chemistry", J. Chem. Inf. Model., 2017, 57 (6), pp 1300-1308

<国際・国内会議>

- 中田真秀, 島崎智実, PubChemQC プロジェクト:分子データベース構築と機械学習による電子構造の推定, 分子科学討論会 2017, 仙台, 2017/9/15-28
- NAKATA Maho, SHIMAZAKI Tomomi, PubChemQC Project: a Large-Scale First-Principles Electronic Structure Database for Data-driven Chemistry, ICMaSS2017, 名古屋, 2017/9/29-2017/10/1
- 中田真秀, 島崎智実, PubChemQC プロジェクト:分子データベース構築と機械学習による電子構造の推定, 日本コンピュータ化学会年会:2017 秋季年会, 熊本, 2017/10/21-22



## 基礎的多重分析による光触媒の革新的高効率化の検討

Fundamental multi-analysis for the innovative development of  
highly-efficient photo-catalysts

吉田寿雄・京都大学・人間・環境学研究科・教授

吉田朋子・大阪市立大学・複合先端研究機構・教授

熊谷 純・名古屋大学・未来材料・システム研究所・准教授

### 1. 研究目的

光触媒としてのアナターゼ型酸化チタンはその粒子サイズや表面積は多種多様であり、触媒学会では既に 10 種類以上のそれが学会参照触媒となっている。その 1 つである ST01 (JRC-TIO-14) を 573 K で焼成すると、15 分程度で比表面積は  $298 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$  から約半分になることを見出した。わずかな焼成時間での大きな比表面積の減少は、その光触媒反応の効率に大きく影響するものと思われる。本研究では、吸着メタノールの酸化による  $\text{H}_2$  生成反応をモデルとし、焼成時間と比表面積・結晶子サイズ・バンドギャップ、生成ラジカル種を、それぞれ BET 法・XRD・DR-UV-Vis・ESR にて評価し、反応効率との関係を調べたので報告する。

### 2. 研究内容と成果

大気下 573 K で ST01 を 0, 5, 15, 240 min 焼成した試料(ST01-0, -5, -15, -240)を BET 法, XRD, DR-UV-Vis で測定し、比表面積・結晶子サイズ・バンドギャップを求めた。また、メタノールを ST01 と等モル量添加して 20 K とし、光照射( $\lambda = 365 \text{ nm}$ )後に生成するラジカル種を ESR で、同じサンプルに生成した  $\text{H}_2$  を microGC で定量した。Table 1 に焼成時間に対する比表面積・結晶子サイズ・バンドギャップ、水素生成量を示した。焼成時間の増加と共に BET 表面積は 40%にまで減少し、結晶子サイズはその表面積の減少から導かれる比におおよそ比例して大きくなった。バンドギャップは焼成による有意な変化はみられなかった。 $\text{Ti}^{3+}$ として ESR 観測される未反応の捕捉電子の量も、焼成するに従って大きく減少した。 $\text{H}_2$ の生成量は焼成時間が長いほど多くなり、光照射を 20 K で行った場合の方が、室温の場合よりも多くなった。

Fig. 1 に ST01-240 をメタノール存在下 20 K で 120 min 光照射したときの ESR スペク

**Table 1.** Characterization of calcined ST01 samples.

Calcination time / min	BET surface area / $\text{m}^2\text{g}^{-1}$	Crystalline size / nm	Band gap / eV	$\text{H}_2$ yields / $\text{nmol g}^{-1}$	
				20 K	Room temp.
0	298.0	8.1	3.20	68	41
5	213.3	9.1	3.20	76	44
15	147.3	9.8	3.20	135	73
240	115.9	11.4	3.20	156	78

トルとそのシミュレーションスペクトルを示した。実測スペクトルは、光照射された ST01 内に生成する格子酸素のホール( $O_L^-$ )、欠陥準位の Ti 上に捕捉された電子( $Ti^{3+}$ )、Ti と配位結合したホルミルラジカル ( $\bullet CH_2OTi-(TiO_2)$ ) のシミュレーションスペクトルの和(b)でおおよそ再現された。メタノールから水素引き抜きで生成されると思われるメタノールラジカル ( $\bullet CH_2OH$ )のシミュレーションスペクトル( $g = 2.0033, A_{iso}(2H) = 1.9\text{ mT}$ )では、実測スペクトルで 327.80 mT 付近に出ている肩を再現できない。ホルミルラジカルの ESR パラメーターは  $g = 1.9992, A_{iso}(2H) = 2.1\text{ mT}$  と  $g$  値が自由電子のそれより負にシフトしているが、これは Ti への不対電子のわずかな分布の影響であり、 $A_{iso}$  のわずかな増加と共に理論計算からも支持された。また、methanol- $d_4$  を添加した場合に 322.14 と 327.80 mT 付近の肩が見えなくなるが、これは D の  $A_{iso}$  が H のそれの約 15% しかないために信号が中心に偏ったためと解釈でき、このことも Ti と配位結合したホルミルラジカルへの同定を支持している。このラジカルが ESR で観測・同定されたのは本研究が初めてである。

これらより、焼成により結晶性が向上したことと、メタノールが表面と反応してできた表面メトキシ基が光照射で生成したホールで容易に酸化されるようになることにより、比表面積の低下にもかかわらず  $H_2$  生成が向上したと考えられる。

## 【研究成果の公表状況】

<原著論文>

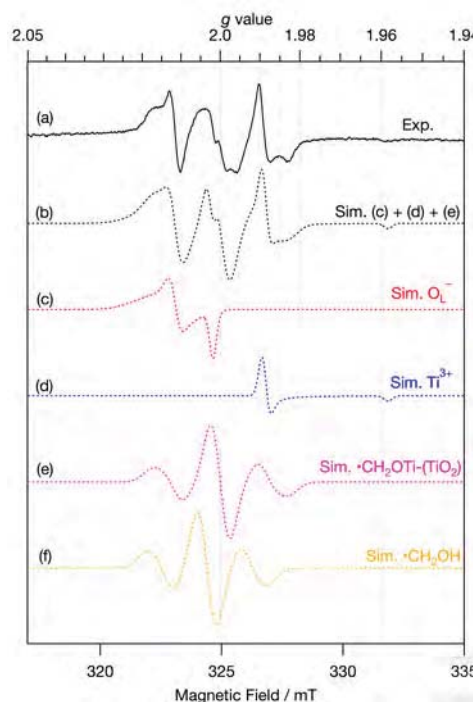
- J. Kumagai, Y. Uto, M. Yamamoto, S. Naniwa, H. Yoshida, T. Yoshida, Mechanistic study by electron spin resonance spectroscopy for  $H_2$  production from methanol on photoirradiated  $TiO_2$  at cryogenic temperature, *prepared for submission* (2018).

<国際・国内会議>

- 宇都靖了, 佐橋寛之, 吉田朋子, 吉田寿雄, 熊谷 純, アルコール存在下酸化チタン光触媒に生成する  $Ti^{3+}$  の ESR とその減衰挙動, 第 120 回触媒討論会, 松山, 2017 年 9 月 12-14 日

<産業財産権>

- 出願状況、取得状況 特になし



**Fig. 1.** ESR spectrum of ST01-240 photoirradiated at 20 K for 120 min with methanol- $h_4$  is plotted in solid black line (a). Simulated spectra are plotted by dotted lines (b): summation of (c) to (e) (black); (c): lattice oxygen hole (red); (d):  $Ti^{3+}$  (blue); (e):  $\bullet CH_2OTi-(TiO_2)$  (purple); and (f):  $CH_2OH$  radicals (orange).

## 放射線で誘導される分泌因子の正常及び腫瘍細胞種への影響研究 Effects of secreted factors for several normal and carcinoma cell species induced by ionizing radiation

菓子野元郎・奈良県立医科大学・先端医学研究機構・准教授  
福島秀哉・名古屋大学・工学部・学部 4 年  
熊谷 純・未来材料・システム研究所・准教授

### 1. 研究目的

放射線治療はがん治療の標準的方法であり、その装置も革新的省エネルギー技術の発展によってより小型軽量化して多くの医療機関へ導入されていくものと期待される。放射線治療において、正常組織にはできるだけその影響を与えず、腫瘍だけを死滅させるのが理想ではあるが、部位によっては正常組織が大きな影響を受けるほか、腫瘍も徐々に放射線抵抗性を有してくることが知られている。放射線抵抗性の獲得には放射線照射された細胞が生き残り、抵抗性を獲得していく場合と、放射線照射された細胞から分泌される分泌因子を周りの細胞が受け取って抵抗性を獲得していく場合が考えられる。昨年度は、放射線照射された幹細胞・がん細胞（ドナー）を培養している培地を、未照射の正常細胞・がん細胞（レシピエント）へ培地移動した際の細胞中の長寿命ラジカルレベルを測定し、被照射ドナー細胞が 0.2 Gy の低線量照射の場合に、レシピエントの正常細胞・がん細胞の長寿命ラジカルレベルが下がり、細胞内の抗酸化性が向上することによって放射線抵抗性を獲得している結果を得た。今年度は、ドナーとレシピエントを正常細胞とした場合に、低線量(0.2 Gy)で同様の効果が現れるのかどうかを検討した。また、我々のこれまでの研究において、ラット C6 グリオーマ細胞は放射線を照射された後に、IL-6 サイトカインを分泌して放射線抵抗性を獲得することがわかっているが、この細胞が栄養欠損になった場合に抵抗性を獲得できるかどうかを長寿命ラジカルレベルで調べたので報告する。

### 2. 研究内容と成果

低線量バイスタンダー効果実験は、BJ/hTERT ヒト繊維芽正常細胞を用い、ドナーのフラスコ  $7.0 \times 10^6$  個の細胞を蒔き、24 時間後に  $\gamma$  線を 0.2 Gy の線量で照射した。照射後 24 時間後にドナーと同時間に播いたレシピエント細胞のフラスコの培地を吸い出して PBS(-) で 2 回洗浄した後、ドナーから培地をレシピエントのフラスコに移動し、24 時間後に細胞を回収して長寿命ラジカル測定用サンプルとした。培地移動時にはドナー細胞の混入を防ぐために孔径 0.45  $\mu\text{m}$  のフィルターを通した。細胞内の長寿命ラジカルレベルは電子スピン共鳴法で計測した。

Fig. 1 に 0.2 Gy 照射された BJ/hTERT 細胞の分泌因子を含む培地に 24 時間晒された未照射の BJ/hTERT 細胞の長寿命ラジカルレベルを示した。シャムコントロールの結果と



比べて、ドナーの線量が 0.2, 4 Gy となっても、レシピエント細胞中の長寿命ラジカルレベルは、その平均値がわずかに下がっているものの有意差は見られなかった。従って、低線量照射された照射正常細胞から未照射の正常細胞への分泌因子による放射線抵抗性の獲得はみられない結果となった。これまで正常レシピエント細胞の長寿命ラジカルレベル低下がみられたのはドナーががん抑制遺伝子 p53(-/-)の細胞であり、p53(+/-)の BJ/hTERT 細胞では放射線抵抗性を誘導する分泌因子が分泌されなかった可能性が考えられる。

ラット C6 グリオーマ細胞を通常の培地(D-MEM)で 24 時間培養した後、培地を吸い取って PBS(-)で 2 回洗浄後、グルタミン酸を欠損した Glu(-)の D-MEM で 24 時間経過後の細胞を回収し、長寿命ラジカルレベルを測定した (Fig. 2)。その結果、Glu(+)のコントロールと比較して、Glu(-)の場合には長寿命ラジカルレベルが有意に増加した。グルタミン酸は細胞中の抗酸化剤であるグルタチオン(GSH)の原料であり、グルタミン酸の欠損によって GSH 合成が妨げられることによって、細胞内に発生する活性酸素を除去できなくなり、活性酸素との反応で生じる長寿命ラジカルレベルが上がったものと解釈できる。これらの結果より、放射線抵抗性の獲得は、分泌因子の影響に加えて、その後の栄養成分の影響も重要であり、腫瘍周辺の栄養欠損を行うなどによって、放射線治療の成績の向上が期待されることがわかった。

## 【研究成果の公表状況】

<原著論文>

- ・ J. Kumagai, S. Kobashikawa, S. Fukushima, A. Oohashi, G. Kashino, Effects of secreted factors and nutrition on acquisition of radiation resistant ability, (2018) in preparation.

<国際・国内会議>

- ・ 熊谷 純, 大橋茜音, 菓子野元郎, 細胞内抗酸化性を向上する低線量放射線バイスタンダー効果, 第 60 回放射線化学討論会, 産総研つくば, 2017 年 9 月 27~29 日.
- ・ 菓子野元郎, 小橋川新子, 熊谷 純, グルタミン欠損による酸化ストレス依存的放射線増感機構, 日本放射線影響学会第 60 回大会, 京葉銀行プラザ(千葉市), 2017 年 10 月 25 日~28 日.
- ・ 熊谷 純, 大橋茜音, 菓子野元郎, レシピエント細胞の長寿命ラジカルレベルを下げる培地移動放射線バイスタンダー効果, 日本放射線影響学会第 60 回大会, 京葉銀行プラザ(千葉市), 2017 年 10 月 25 日~28 日.

<産業財産権>

- ・ 特になし

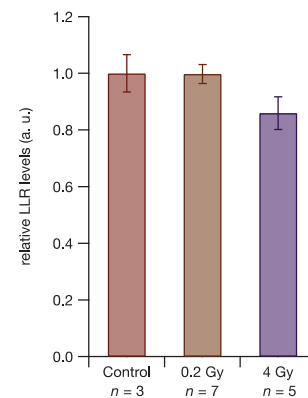


Fig.1  $\gamma$ 線線量 0.2, 4 Gy で照射された BJ/hTERT 細胞の分泌因子を含む培地に 24 時間晒された未照射の BJ/hTERT 細胞の長寿命ラジカルレベル

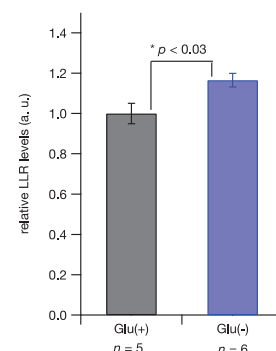


Fig.2 グルタミン欠損 (Glu(-))培地で 24 h 培養されたラット C6 グリオーマ細胞中の長寿命ラジカルレベル

## 溶媒和電子を用いた省エネルギー型磁性ナノ材料合成プロセス Energy-saving synthesis process of nanoscale magnetic materials with help of solvated electrons

寺門修・函館工業高等専門学校・物質環境工学科・准教授  
平澤政廣・名古屋大学大学院・工学研究科物質制御工学専攻・教授  
谷春樹・名古屋大学大学院・工学研究科物質制御工学専攻・助教  
黒田健介・名古屋大学・未来材料・システム研究所・准教授

### 1. 研究目的

本課題においては、非水溶媒中の溶媒和電子を用い、Sm-Co 系磁性材料の省エネルギー型ナノ微粒子合成プロセスの開発を目的とした。アルカリ・アルカリ土類・一部の希土類金属はアンモニアなどの非水溶媒に溶解し、溶媒和電子を放出して準安定な均一溶液を生成する。この溶液は還元性が極めて高いため、希土類などの還元も可能であるが、得られる粒子が高活性なため、速やかに酸化されてしまうデメリットがある。本研究では、無電解銅メッキ処理を併用することで、金属銅コーティングによるナノ粒子の安定化が可能か検討した。

### 2. 研究内容と成果

溶媒和電子として、本研究ではナトリウムアンモニア溶液を用いて、磁性材料合成を行った。溶液の調製はすべて真空下で実施した。この溶液に前駆体となる Sm および Co の金属塩を投入して材料合成を行った。得られたナノ粒子 (以下 as-made) について、引き続き真空下で銅の塩を添加して、無電解銅メッキ処理を行った。

得られた反応生成物に対して名大・未来材料・システム研究所の透過電子顕微鏡などによりキャラクターゼーションを行うとともに、振動試料型磁力計を用いて磁気特性評価を行い、還元剤溶液のアルカリ金属濃度や前駆体塩・メッキ処理塩の種類や溶液中濃度などのプロセス因子の最適化を図ることを試みた。

得られた粒子を SEM により観察したところ、20-30 nm 程度のサイズであった。Figure 1 に反応生成物の XRD 回折パターンを示す。すべての生成物について  $\text{SmCo}_5$  合金によるものと考えられる回折ピークが見られることから、前駆体塩の  $\text{Na-NH}_3$  溶液による還元が進行しているだけでなく、共還元により合金化も起きているといえる。一方で、as-made の試料については、生成物の再酸化によるものと考えられる酸化物のピークが見られるのに対して、無電解銅メッキ処理を行った試料については酸化物由来のピーク強度が相対的に低くなった。また、アニール処理を加えることで結晶化の進行も認められた。

振動試料型磁力計による磁化率測定を行ったところ、無電解銅メッキとアニール処理を行った試料の保磁力  $H_c$  は  $3.8 \times 10^2$  Oe であった。この値はポリオール法で合成した粒子と同程度であり、溶媒和電子と無電解メッキを使ったプロセスでも、十分な磁氣的性質をもった粒子を合成できることが明らかとなった。

溶媒和電子を使ったプロセスは簡便で、エネルギーコストの抑制にもつながると期待されるが、得られる粒子の活性が極めて高く、容易に再酸化されるというデメリットがあった。本研究で検討した無電化メッキ処理により、再酸化が抑制されることがわかった。本研究期間においてメッキ膜についての観察を十分に行うことができなかった。今後、これらのキャラクタリゼーションを行い、メッキ膜厚のコントロール法についての検討を進める必要がある。更に、他の金属・合金粒子の合成を行うことで、新たな省エネルギー型ナノ粒子合成プロセスを確立することができると考えられる。

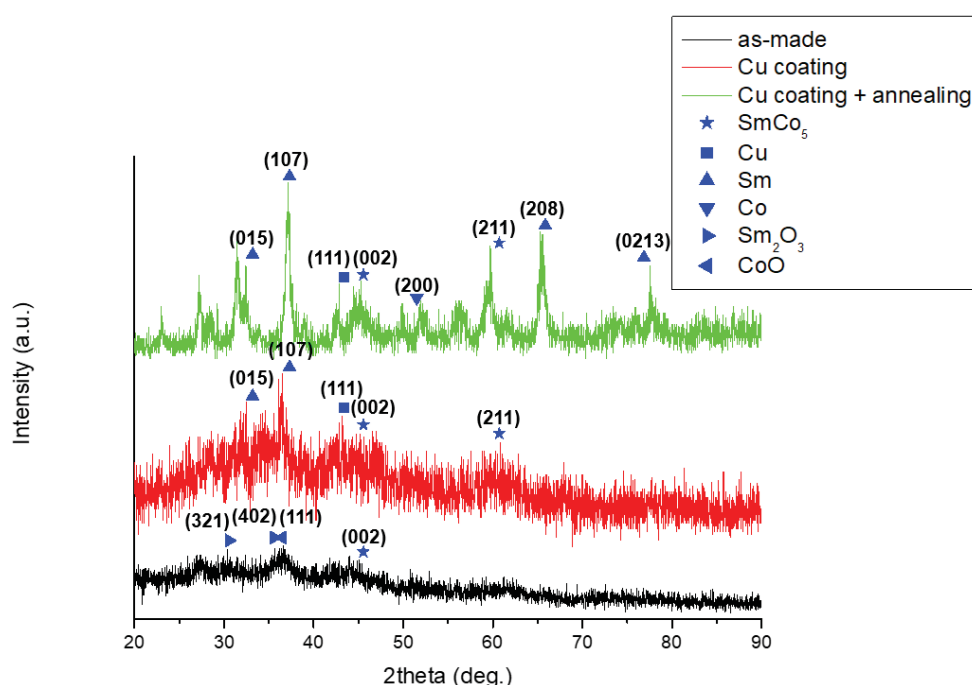


Figure 1 XRD patterns of co-reduction products.

### 【研究成果の公表状況】

<国際会議>

- Osamu Terakado, Masataka Shiino, Haruki Tani, Masahiro Hirasawa, Synthesis of Sm-Co Alloy Nanoparticles by the Solvated Electrons in Sodium-Ammonia Solution, International Conference on Materials and Systems for Sustainability 2017, 名古屋大学, 2017年9月29日~10月1日.

## 濡れ性を制御した Ti 上での高効率細胞増殖技術

High proliferation of cells on Ti with controlled wettability

研究代表者 小林千悟・愛媛大学大学院・理工学研究科・教授

研究分担者 黒田健介・名古屋大学・未来材料・システム研究所・准教授

岡野 聡・愛媛大学・理工学研究科・助教

森 雅之・愛媛大学大学院・理工学研究科・修士 1 年

福尾智裕・愛媛大学・工学部・学部 4 年

二艘木健太・愛媛大学・工学部・学部 4 年

研究所担当教員 黒田健介・名古屋大学・未来材料・システム研究所・准教授

### 1. 研究目的

超高齢社会である日本において、高齢者が健康で活動的であることは重要といえる。しかし、高齢者は代謝の低下、免疫力の低下等により疾病にかかりやすい。疾病の治療には様々な手段が取られるが、今後ますます重要になると考えられるのは再生医療であり、それぞれの治療に対して種々の細胞の培養が必要となる。そして、そのような治療方法を普及させるためには、細胞を培養する工場が不可欠であり、細胞の大量生産が求められる。高効率に細胞を培養する技術の確立は、細胞培養工場の省エネルギー化を実現する上で欠かすことのできない技術といえる。そこで本研究では、Ti を種々の方法で表面処理し、骨芽細胞を高効率に増殖させる技術を確立することを目的とした。

### 2. 研究内容と成果

純 Ti 板(株式会社ニラコ製)を  $\phi 6\text{mm}$ 、 $t=0.3\text{mm}$  に打ち抜き、表面を鏡面研磨することで  $Ra < 0.1 \mu\text{m}$  以下とした。得られた試料をエタノール、アセトンで超音波洗浄した後、 $180^\circ\text{C}$  で 1~3h 乾熱滅菌処理を施し、さらにその後大気中に 6 時間保存した試料を作製した。得られた試料に対して、XPS による表面分析、水滴接触角試験及び細胞培養試験を行った。水滴接触角試験は、Ti 板表面に  $0.5 \mu\text{L}$  の精製水を滴下し、15s 後の接触角を  $\theta/2$  法にて算出した。細胞には、マウス骨芽細胞様細胞 MC3T3-E1 を用いた。細胞培養後、蛍光顕微鏡による細胞形態の観察及び WST-8 による細胞数の定量評価を行い、表面状態と細胞挙動の関係性について検討した。

純 Ti の研磨まま材の水滴接触角は  $57^\circ$  であったのに対し、表面に乾熱滅菌処理を行うことで濡れ性は疎水側に制御でき、水滴接触角を最大で  $98^\circ$  まで調整することができた。乾熱滅菌処理により疎水性を呈するようになった理由は、表面形成被膜の非晶質化によるものと考えられる。

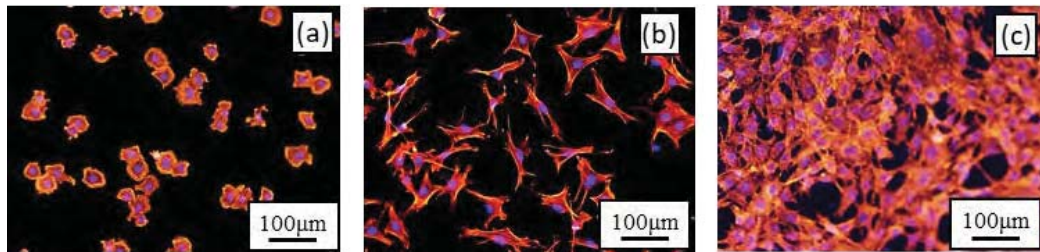


Fig. 1 各培養時間における蛍光顕微鏡による細胞の観察結果

(a) 培養時間 1h (b) 培養時間 6h (c) 培養時間 48h

Fig. 1 に、各培養時間における蛍光顕微鏡による細胞形態観察の一例を示す。培養時間 1h では、細胞は球状の形態を有し、Ti 上に接着している状態であり、培養時間 6h で細胞は伸展し、培養時間 48h では細胞増殖が活発に行われていることが分かる。これら Ti 板上の細胞の数に対して WST-8 法による定量解析を行った。Fig. 2 に比増殖速度  $\mu$  と Ti 表面の水滴接触角(WCA)の関係性について示す。比増殖速度  $\mu$  は培養時間当たりの、初期接着数に対する細胞の増加率を示しており、 $\mu$  値が大きいほど大量に細胞を培養する場合に適した Ti 表面であるといえる。WCA=57° の研磨まま材と比較して、疎水側へ制御することで比増殖速度  $\mu$  が 10%増加していることが分かる。これは、Ti 表面を疎水側へ制御することによって細胞増殖に有効なたんぱく質の吸着が増加したためであると考えられる。以上のことから、本研究の結果、骨芽細胞を効率的に増殖させる Ti 表面の作製に成功したと言える。

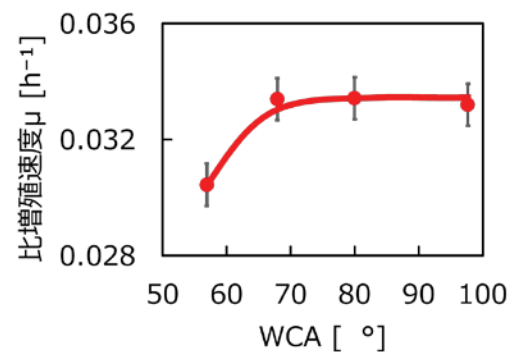


Fig. 2 濡れ性を制御した Ti 板上における比増殖速度  $\mu$

### 【研究成果の公表状況】

<国際・国内会議>

1. M. Mori, S. Kobayashi, S. Okano, K. Kuroda, T. Okamoto: Effects of surface morphology and composition of Ti alloy with nanotube on cell culture, International Conference on Materials and Systems for Sustainability (ICMaSS) 2017, Nagoya University, Nagoya, Japan, Sept. 29th - Oct. 1<sup>st</sup>.
2. 岡野 聡, 二艘木健太, 小林千悟, 黒田健介, 岡本威明, 様々な手法で濡れ性を制御した Ti 板上における細胞挙動, 日本金属学会 2017 年秋期(第 161 回)講演大会, 北海道大学, 9 月 6 日~8 日.
3. 岡野 聡, 福尾 智弘, 小林 千悟, 黒田 健介, 岡本 威明, 骨芽細胞様細胞 MC3T3-E1 の接着挙動に及ぼすアルブミン吸着効果, 日本金属学会 2018 年春期(第 162 回)講演大会, 千葉工業大学, 3 月 19 日~21 日.



## 表面吸着タンパク分別定量による省エネ生体適合評価法の開発 Energy-saving biocompatibility evaluation method using fractional determination of surface adsorptive proteins

大津直史・北見工業大学・工学部・准教授  
沢口肇・北見工業大学・バイオ環境化学専攻・修士 2 年  
川上拓野・北見工業大学・バイオ環境化学科・学部 4 年  
黒田健介・名古屋大学・未来材料・システム研究所・准教授

### 1. 研究目的

無機及び有機生体材料から成る医療用デバイスにおいて、生体適合性は不可欠な特性である。生体適合性の評価は、動物細胞試験 (*in-vitro* 試験) や動物実験 (*in-vivo* 試験) によって行われているが、これら評価における“細胞培養”や“動物飼育”には多くの使い捨てプラスチック製品用いられ、さらに、温度環境管理のため大量の電力を浪費する。ところで医療用デバイスが血液などの体液に触れたとき最初に起こる界面反応は、タンパク質の表面吸着であり、そのタンパク吸着表面の特性が細胞接着及び増殖を支配することが知られている。したがって、表面吸着タンパクを分別定量し、その吸着特性と細胞適合性の関係性を明らかにすることができれば、医療用デバイスの生体適合性を細胞培養や動物飼育に依ることなく、タンパク質の分析のみによって迅速かつ簡易的に評価することが可能となる。本研究では、生体適合性評価に伴うエネルギー消費を飛躍的に削減することを目指し、電気泳動法を利用して医療用デバイス表面のタンパク質を簡便・迅速に分別定量するプロセスを確立し、タンパク吸着特性と生体適合性の相関を明らかにすることを試みる。

### 2. 研究内容と成果

本年度は、「表面吸着タンパク質の抽出法」及び「タンパク質の分離・定量法」を検討することで、表面吸着タンパク質を高精度で分別定量する方法の確立することを目指した。

[表面吸着タンパク質の抽出法の検討]

吸着タンパクを完全に抽出できるプロセスを検討するため、まず #1200 の研磨紙で研磨したチタン(Ti)基板上に 25 mg/mL の蛍光アルブミンを含むリン酸生理食塩水溶液を吸着させ、その後種々濃度のドデシル硫酸ナトリウム (SDS) で超音波洗浄することでタンパク質を抽出した。抽出前後表面の蛍光強度を比較することでタンパク除去率を算出し、さらに SDS 溶液中に含まれるタンパクを定量することで抽出量を算出した。この研究を通じて、吸着タンパクを高効率抽出できるプロセスの探索をおこなった。

タンパク質吸着直後および抽出後におけるTi表面の蛍光顕微鏡象を比較したところ、吸着直後では蛍光アルブミンによる蛍光が確認できるのに対し、1%SDS 溶液で超音波洗浄するとアルブミンに由来する蛍光が消失しており、タンパク質が除去できることを視覚的に確認できた。超音波および SDS が抽出に与える影響を明らかにするために、各濃度の SDS 溶液で Ti 表面タンパク質を抽出したときの、材料表面からのタンパク質除去率および実際の抽出量を同時に評価した(図1)。SDS の濃度によらず表面吸着タンパク質を 80%~90%除去出来ていたことから、除去は超音波洗浄による作用が支配的であり、SDS の関与は殆どないことが分かる。他方、実際のタンパク抽出量は、SDS 濃度の大きく依存し、0.2%以下の SDS 溶液と用いたときはタンパクを表面から除去できているにもかかわらず、その値はほぼゼロとなった。以上より、超音波によって効率的に材料表面のタンパク質を除去できるが、0.5%程度の SDS を加えないとタンパク質は容器等に再吸着してしまい適切に抽出できないと言える。

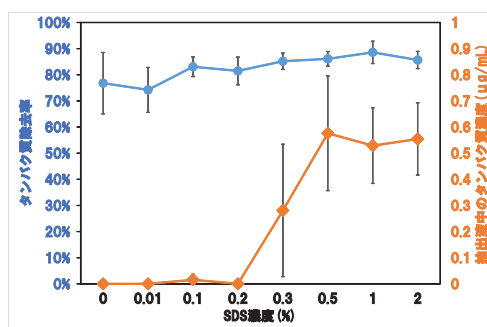


図1 各濃度の SDS 溶液で Ti 表面タンパク質を抽出したときの材料表面からのタンパク質除去率および実際の抽出量

#### 【SDS-PAGE によるタンパク質の分離・定量の検討】

種々濃度のアルブミン、リゾチーム及びフィブリノゲンを含む混合溶液を SDS-PAGE により分別し、蛍光染色をおこなってみたところ全てのタンパクで 0.5  $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$  以上でバンドを視認できた。またバンドの強度を画像処理により数値的に見積もり、その値を用いて検量線を作成してみたところ、強度はタンパク濃度に対して単調増加しており、さらに濃度 5  $\mu\text{g}/\text{mL}$  までは直線性があることも確認できた(図2)。実際に、1 mL の 1% SDS 溶液中に表面積 4  $\text{cm}^2$  の Ti に吸着したタンパクを抽出してみたところ、その濃度は数  $\mu\text{g}/\text{mL}$  程度であったのでこのプロセスで吸着タンパク質の分別定量が可能であると考えられる。

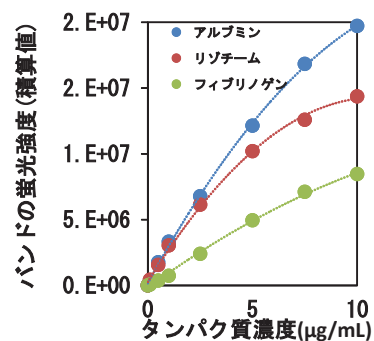


図2 SDS-PAGE におけるアルブミン、リゾチーム及びフィブリノゲンの検量線

#### 【研究成果の公表状況】

<国際・国内会議>

- 川上拓野、沢口肇、黒田健介、大津直史、吸着タンパク質分別定量のための表面タンパク質抽出方法の検討、日本金属学会 2018 年春季大会、千葉工大、平成 30 年 3 月 19~21 日

## 構造規整粒子を用いた多孔質酸化チタン電極の作製

### Fabrication of Porous Titania Electrode Using Well-Defined Titania Particles

研究代表者氏名・小島 隆・千葉大学・大学院工学研究院・准教授

研究分担者氏名・上川直文・千葉大学・大学院工学研究院・教授

研究所担当教員 坂本 渉・名古屋大学・未来材料・システム研究所・准教授

#### 1. 研究目的

本研究では、色素増感太陽電池、水の光分解による水素製造用、光燃料電池等の電極材料として不可欠な、多孔質酸化チタン電極（薄層）を高機能かつ安価に作製する手法の確立を目的とした。また、近年、千葉大学において開発が進められている光燃料電池等の電極材料としての応用の可能性を検討した。多孔質薄層の作製については、昨年度に引き続き、まず特定の結晶面が広がるよう

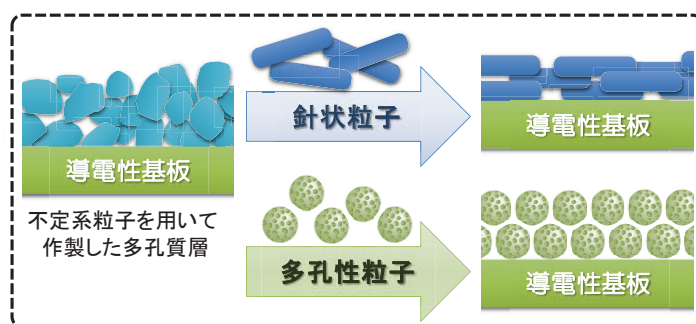


Fig. 1 構造規整粒子・多孔性粒子の積層によるチタニア多孔質層の作製と構造精密化

うに針状に構造規整した粒子や、粒径が均一で球状の多孔性粒子を液相合成により合成し、基板上に塗布する手法による微構造の精密な制御を試みた (Fig. 1)。本年度は特に、各種酸化チタン粒子の粒径や仮焼条件、多孔質層の層厚が性能に与える影響を検討した。また、球形の多孔性粒子に関しては、チタニア以外の複合酸化物の合成も試みた。特定の結晶面が優先的に配向した多孔質層や、構成粒子の細孔を活かした多孔質層を安価に作製できれば、酸化チタン系電極材料の有用性を大いに高められると期待される。

#### 2. 研究内容と成果

本研究では、粒子の形状・結晶面を規整した酸化チタン粒子および多孔性粒子の合成をまず行い、それぞれの粒子を透明導電性基板上へ積層することにより、多孔質薄層の構築を試みた。

粒子の形状・結晶面を規整した粒子は、昨年度と同様に水熱法により合成した。チタン錯体の水溶液にエチレンジアミン（構造規整用吸着剤）を添加し、100°Cで加熱することによりゲル化した。このゲルをさらに140°Cで水熱処理することにより、酸化チ

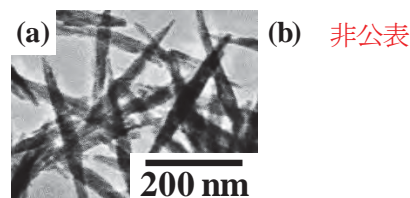


Fig. 2 構造規整した酸化チタン粒子

- (a) 針状に構造規整した粒子
- (b) \*\*\*\*\*  
\*\*\*\*\*

\*\*\*\*\*  
\*\*\*\*\* 非公表 \*\*\*\*\*  
\*\*\*\*\*

\*\*\*\*\* ドクターブレード法を用いて酸化チタン粒子を透明導電性基板上に塗布し、乾



乾燥後に電気炉で焼成することにより多孔質層を形成したところ、均一に粒子が塗布された多孔性の酸化チタン薄層を得ることができた (Fig. 3)。この薄層を用いてキセノンランプによる紫外・可視光照射下でのサイクリックボルタンメトリー (CV) 測定を行ったところ、合成直後の粒子をそのまま塗布した薄層の光電極としての性能は、市販の電極用酸化チタン粒子を用いて作製した薄層に劣るものであった。\*\*\*\*\*  
 \*\*\*\*\*  
 \*\*\*\*\*非公表\*\*\*\*\*  
 \*\*\*\*\*

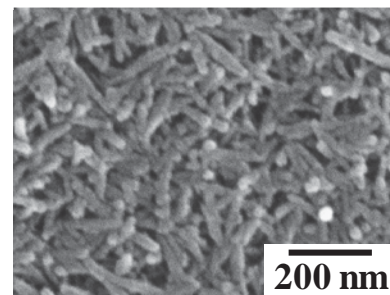


Fig. 3 構造規整酸化チタン粒子を用いて作製した粒子積層体の表面部の表面部

多孔質の酸化チタン粒子は、金属アルコキシドの加水分解により生成した水和チタニアをアルコールで洗浄することにより多孔化し、さらに 100°C、24 h の水熱処理で結晶化することによって調製した。この粒子をチタン錯体のエタノール溶液中に分散し、ドクターブレード法により透明導電性基板上に積層した。この積層膜を乾燥後、400°C で 30 分焼成したところ、粒子が強固に基盤に固定された多孔質薄層を得ることができた。昨年度は粒子単層膜の作製を行っていたが、今年度は、ブレードのギャップ深さと粒子分散濃度の調整により、それぞれ粒子単層分から 10 μm 程度の層厚を有する薄層を

任意に作製することができた (Fig. 4)。\*\*\*\*\*  
 \*\*\*\*\*  
 \*\*\*\*\*非公表\*\*\*\*\*  
 \*\*\*\*\*  
 \*\*\*\*\*現在、チタニア以外の複合酸化物系の多孔性粒子の合成も可能としており、今後はチタニア系と合わせて電極材料としての応用について検討していく予定である。

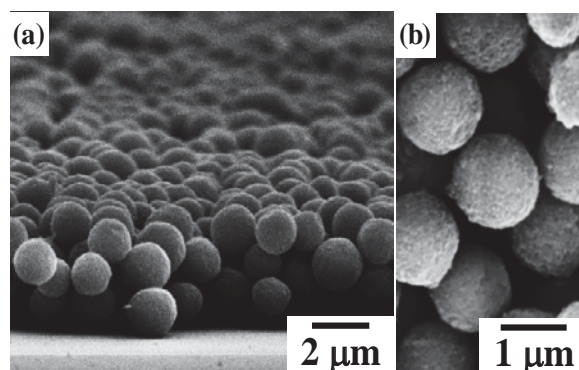


Fig. 4 多孔性酸化チタン粒子を用いて作製した薄層の (a) 断面および (b) 表面部の拡大像

### 【研究成果の公表状況】

<国際・国内会議>

- T. Kojima, T. Baba, C. Yukita, K. Inamoto, M. Ueda, K. Yamaki, and N. Uekawa, Hot Water or Hydrothermal Crystallization of Porous Hydrous Titania Particles Prepared by Alkoxide Method, The 34th International Japan-Korea Seminar on Ceramics (JK-Ceramic34), 浜名湖ロイヤルホテル (浜松), 2017 年 11 月 22 日～25 日.
- T. Kojima, Y. Goshima, M. Tamba, N. Uekawa, W. Sakamoto, and Y. Yogo, Fabrication of Porous Titania Layers Using Well-Defined Titania Particles, International Conference on Materials and Systems for Sustainability 2017 (ICMaSS2017), 名古屋大学, 2017 年 9 月 29 日～10 月 1 日.
- T. Kojima, K. Ota, N. Onda, and N. Uekawa, Preparation of Porous Metal Titanate Particles by Hot Water or Hydrothermal Conversion of Hydrous Titania, 7th Asian Particle Technology Symposium (APT 2017), Chang Gung University (Taiwan), 2017 年 7 月 30 日～8 月 3 日.

## 数値気象予報モデルと衛星画像を用いた数時間先の日射予測手法の開発

Development of Several Hours-Ahead Forecasting of Irradiance using

Numerical Weather Prediction Model and Satellite Images

宇野史睦・産業技術総合研究所・太陽光発電研究センター・特別研究員

舟橋俊久・名古屋大学・未来材料・システム研究所・客員教授

加藤丈佳・名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授

### 1 研究目的

革新的省エネに資する太陽光発電の有効活用のためには、高精度の予測手法の利用が不可欠であり、数時間先の予測には気象衛星画像の利用が有効とされている。昨年度の検討では、気象庁によるメソモデル (MSM-GPV) の下・中・上層の雲量と大気外日射強度を説明変数とする重回帰式によって空間平均日射強度を予測する手法に、MTSAT-2 の可視画像または赤外画像を説明変数に追加することで、予測誤差を数%低減できることを示した。

今年度は、2種類の数値気象予報モデルを組み合わせることで精度向上を図るとともに、移動性低気圧などの総観規模の気象現象に起因する大きな雲域の移動による日射ランプアップの予測精度向上のため、衛星画像を利用してランプアップ前の曇天時の日射量からランプアップ後の晴天時への状態変化に着目した新たな予測手法を構築した。

### 2 研究内容と成果

#### 2.1 WRF と MSM-GPV の併用による日射強度予測の高精度化

NCEP/NCAR によって開発されている Weather Research Forecasting (WRF)モデルを用いた予測(手法1)は、初期値・境界値に水平解像度 0.25 度の Global Forecasting System(GFS)を用いて 15km, 3km と 2-way nesting を用いた高解像度予測を行った。また、WRF の予測値は Support Vector Machine (SVM)を用いて全天日射量の補正を行っている。MSM-GPV に基づく予測(手法2)は、下・中・上層の雲量と相対湿度を説明変数とする重回帰式による手法を用いた。

予測対象は 2015 年 2 月 1 日～12 月 31 日の 8 時～15 時の名古屋地方気象台における水平面全天日射量とした。両者とも、初期時刻(予測に利用した初期値・境界値の予測開始時刻)として 3 時と 21 時を用いた。WRF と MSM-GPV の併用方法は第一段階の検討として、単純平均した結果を予測値とした。

その結果、3 時の初期時刻では、手法 1、2 における年間の%MAE はそれぞれ 29.9%および 24.5%であり、2つの予測を併用すると%MAE が 23.1%となり改善が見られた。これは、予測対象時間の 38.3%において、手法 1、2 の予測誤差の正負が逆であったことから、誤差が相殺されたと考えられる。一方、21 時の初期時刻では、3 時の予測と比較して両手法とも誤差は減少したが、併用の効果は限定的であった。初期時刻が予測対象時刻に近づくことで、手法による誤差の傾向が類似するようになったためと考えられる。これらの結果より、予測時間がより長い場合に複数手法の併用の効果があることが確認できた。

## 2.2 衛星画像を用いた日射ランプアップ予測手法の構築

総観規模の大きな雲域の移動による日射量のランプアップは、曇天時の全天日射量  $I_L(t)$  から晴天時の全天日射  $I_H(t)$  への二値的な変化であることに着目し、全天日射量の予測値  $I_f(t)$  を求める。二値的な変化は(2)式のシグモイド関数を用いてランプアップを次式のように表した。

$$I_f(t) = (1 - \sigma(t))I_L(t) + \sigma(t)I_H(t) \quad (1)$$

$$\sigma(t) = \frac{1}{1 + \exp\left(-\frac{t - t_0}{T}\right)} \quad (2)$$

予測開始時刻を 8 時とし、 $I_L(t)$  は 7 時半の衛星可視画像（雲域は雲のアルベドを示す）を用いて算出した対象エリアの晴天指数が終日継続すると仮定する。 $I_H(t)$  は予測対象日の直近の快晴日における晴天指数より算出する。 $I_L$  と  $I_H$  の比率を変化させる起点となる、ランプアップ開始前の時刻  $t_1$  とランプアップ開始時刻  $t_2$  は後述の雲の移動ベクトルより予測した数時間先の雲アルベドが条件 1(2)を満たすものを  $t_1$  ( $t_2$ ) とする。ここで、 $t_1$  および  $t_2$  の条件は、

- ・条件 1: 予測した雲アルベドが、 $I_L(t)$  の算出に用いたアルベドの 0.8~1.0 倍である時刻のうち最も早い時刻。
  - ・条件 2: 予測した雲アルベドが、 $I_H(t)$  の算出に用いたアルベドの 0.8 倍未満である時刻のうち最も遅い時刻。
- である。8 月 3 日の事例の  $t_1$  は午前 9 時、 $t_2$  は午前 11 時であった。

この  $I_f(t_1)$  と  $I_f(t_2)$  を(1)式に代入し、 $T$  と  $t_0$  から  $I_f(t)$  を求める。 $I_f(t_1)$  および  $I_f(t_2)$  の算出に必要な雲の移動は、当日の 7 時から 7 時半の 2 つの衛星画像から予測対象エリア付近の雲を抽出して雲の移動ベクトル（風速）を算出する。これと同程度の風速を持つ気圧面の GPV の風速分布にしたがって雲を移動させた。

提案手法を用いて算出した 2013 年 8 月 3 日のランプアップ事例の観測値・予測値の時間変化を図 1 に示す。 $I_f(t)$  はランプアップの開始時刻がやや早く予測されているものの、急激な日射の上昇が適切に予測されており、提案手法の有用性が確認できた。

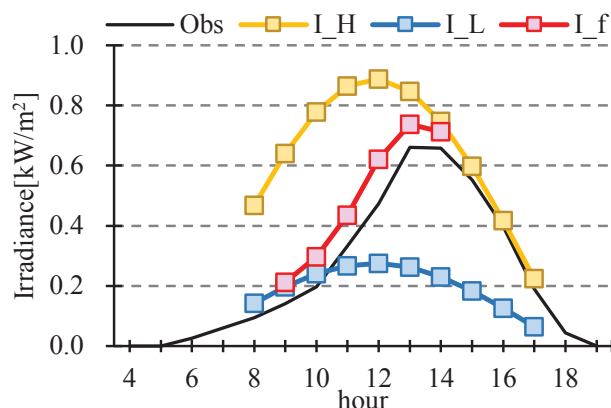


図 1 日射ランプアップの予測結果

### 【研究成果の公表状況】

1. 甲斐直登、真鍋勇介、栗本宗明、舟橋俊久、加藤丈佳、宇野史睦：「WRF による気象要素予報値を用いた日射予測に関する基礎的検討」, 平成 29 年度日本太陽エネルギー学会／日本風力エネルギー学会合同研究発表会, No.65 (2017)
2. N. Kai, M. Kurimoto, Y. Manabe, T. Funabashi, T. Kato, F. Uno : “Influence of Short-wave Radiation Schemes in WRF on Irradiance Forecasting Accuracy”, ICMaSS, P-5-4 (2017)
3. N. Kai, M. Kurimoto, Y. Manabe, T. Funabashi, T. Kato, F. Uno: “Influence of WRF Radiation Scheme on Precision of Irradiance Forecasting“, 27th Int. Photovoltaic Science and Engineering Conf., 9TuO8.4 (2017)
4. 甲斐直登、栗本宗明、舟橋俊久、加藤丈佳、宇野史睦：「WRF と MSM-GPV の併用による日射強度予測の高精度化に関する一検討」, 平成 30 年電気学会全国大会, 6-229 (2018)

# インターネットを介した分散電源群の相互協調制御に関する実験的検討

## Experimental Study on Remote Control of Distributed Generators using Internet Network

青木 睦・名古屋工業大学・大学院工学研究科・准教授  
舟橋俊久・名古屋大学・未来材料・システム研究所・客員教授  
加藤丈佳・名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授

### 1. 研究目的

革新的省エネの実現には、大量導入される太陽光発電の有効活用が不可欠である。その際、多数の太陽光発電に対し、出力を相互に協調する制御を適用することで、さらなる有効活用が期待される。その効果検証では計算機シミュレーションが主体であるが、本研究ではインターネット回線を介してリアルタイムシミュレータ(RTS)と実機の分散電源等とを接続した実験環境において検証することを目的とする。そのような実験環境構築のための基礎検討として、本年度は通信プロトコルを User Datagram Protocol (UDP)として電圧瞬時値を送信する場合の実用性を検証した。また、RTS 側と実機側とで周波数と有効電力出力の情報を交換する実験環境を用いて、周波数変動に応じて有効電力を調整する制御 ( $P-f$  ドループ制御) を分散電源に適用すること効果を実験的に評価した。

### 2. 研究内容と成果

#### 2. 1 UDP による瞬時値データ通信の実用性

Ethernet を介して 2 台の Electronic Control Unit (ECU-1 と ECU-2)を接続し、ECU-1 においてサンプリング間隔  $50 \mu\text{s}$  で生成された振幅  $1 \text{ V}$ 、周波数  $60 \text{ Hz}$  の正弦波電圧の瞬時値を UDP によって通信間隔  $T \mu\text{s}$  ( $50 \mu\text{s} \sim 500 \mu\text{s}$ ) で ECU-2 に通信し、実機側のパワーアンプで  $100 \text{ V}$  に昇圧して三相抵抗負荷に通電する実験を行った。その結果、 $T=300 \mu\text{s}$  とすれば、三相抵抗負荷に概ね適切に通電できた。しかし、 $T=50 \mu\text{s}$  では、データ処理時間等のばらつきによってアンプ出力電圧波形のひずみが大きくて適切に通電できず、逆に  $T=500 \mu\text{s}$  では、出力電圧波形の離散的な変化によって短時間の不平衡状態が発生して三相抵抗負荷に適切に給電ができなかった。また、 $T=300 \mu\text{s}$  の場合でも、アンプ出力電圧波形にひずみが生じていることから、インターネットを介した正弦波電圧の瞬時値の送信においては、波形を補正するなどの対策が必要であることが確認できた。

#### 2. 2 太陽光発電の $P-f$ ドループ制御による系統周波数調整に関する実験的検討

電気学会の需給・周波数シミュレーション標準モデル (AGC30 モデル) を参考に、ECU-1 内に実時間で需給偏差から系統周波数偏差を算出する電力システムの慣性モデ



ルを構築し、これに PV 模擬電源を接続した Power Hardware In-the-Loop(PHIL)試験環境において、PV に  $P$ - $f$  ドループ制御を適用した場合の周波数変動の抑制効果を実験的に検証した。ECU-1 は、系統モデルに入力した日射量データから設備容量 1 kW の PV の日射量に応じた最大出力  $P_{\text{mpp}}$  を算出し、10 ms ごとに PV 模擬電源の制御ボードにアナログ信号で出力して PV 模擬電源のインバータ出力を更新するとともに、系統モデルが算出した系統周波数偏差を ECU-2 に送信する。ECU-2 は、系統周波数偏差を受信後、直ちにパワーアンプの出力電圧の周波数を更新するとともに、パワーアンプの出力電圧・電流を収録して PV 模擬電源の出力有効電力を算出し 10 ms ごとに ECU-1 に送信する。ECU-1 は、受信した有効電力を  $10^6$  倍することで 1 GW の PV 群の出力有効電力に変換し、慣性モデルにフィードバックする。

Case-1 : 計算機シミュレーションで 8 GW の PV が最大電力点で動作, Case-2 : 計算機シミュレーションで 8 GW 中の 1 GW が  $P$ - $f$  ドループ制御, Case-3 : PHIL 試験にて 8 GW 中の 1 GW に対応する PV 模擬電源に  $P$ - $f$  ドループ制御とする場合について、図 1 に、系統周波数偏差と需給偏差の時間変化を示す。 $P$ - $f$  ドループ制御を適用することで (Case-2, Case-3) 需給偏差の変動が小さくなり、系統周波数変動が抑制されたことを確認した。また、Case-2 と Case-3 の周波数変動は概ね一致しており、 $P$ - $f$  ドループ制御を適用した PV は周波数調整力として機能することを実験的に確認できた。ただし、 $P$ - $f$  ドループ制御を行う PV 容量を拡大すると Case-2 と Case-3 との差が無視できなくなることから、周波数計測の遅れや比較的低い計測分解能に影響を緩和する工夫が必要であることが確認できた。

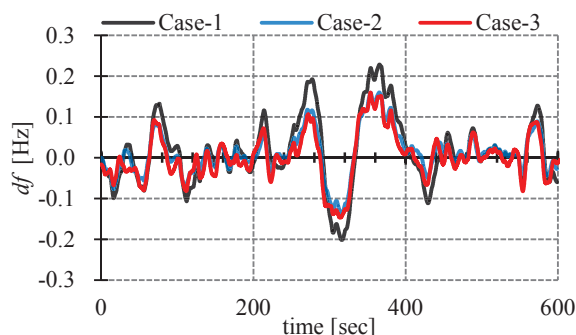


図 1 周波数偏差の測定結果

## 【研究成果の公表状況】

< 国際・国内会議 >

- Y. Tamakoshi, M. Kurimoto, Y. Manabe, T. Funabashi, T. Kato, S. Mitsunari, M. Aoki: “A Study on Practical Performance of PHIL using Internet”, 2017 Int. Conf. on Electrical Engineering (ICEE), Weihai Bluesky Hotel, China, July 4-7, 2017
- Y. Tamakoshi, M. Kurimoto, Y. Manabe, T. Funaashi, T. Kato, S. Mitsunari, M. Aoki: “Development of Power Hardware In the Loop (PHIL) using Internet - Comparison of Data Transfer Performance by Data Transfer Protocol-”, Int. Conf. on Materials and Systems for Sustainability (ICMaSS), Nagoya Univ. Sep. 29-Oct. 1, 2017
- 加藤丈佳, □ 越祐作, 栗本宗明, 真鍋勇介, □ 橋俊久, 光成真, □ □ 睦: 「インターネットを利用した Power Hardware-in-the-Loop に関する □ 検討」, 電気設備学会全国大会, 愛媛大学, 2017 年 8 月 31 日～9 月 1 日
- 玉越祐作, 栗本宗明, 真鍋勇介, 舟橋俊久, 加藤丈佳, 河村雄騎, 青木睦: 「インターネットを利用した PHIL 実験環境の構築～UDP による瞬時値データ通信の実用性～」, 平成 29 年度電気・電子情報関係学会東海支部連合大会, 名古屋大学, 2017 年 9 月 7 日～8 日

## 機能性ナノコンポジット絶縁材料に関する基礎的研究

### Feasibility study on functional nanocomposite insulator

小迫雅裕・九州工業大学      ・工学研究院      ・准教授  
村上義信・豊橋技術科学大学・工学研究科      ・准教授  
栗本宗明・名古屋大学      ・工学研究科      ・助 教  
舟橋俊久・名古屋大学・未来材料システム研究所・教 授  
加藤丈佳・名古屋大学・未来材料システム研究所・教 授

#### 1. 研究目的

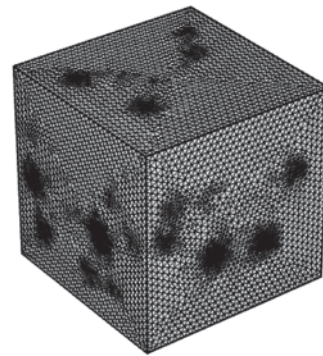
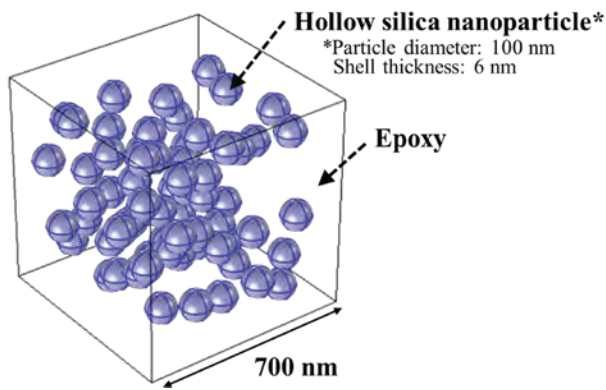
大電力の発生・流通・制御・使用の要となる、電力用発電機やガス絶縁開閉機器 (GIS) などの電力機器において、機器の信頼性、小型化、省エネルギー性、効率等を実質的に大きく左右するのは、機器の電気絶縁性能である。従来は、エポキシ樹脂に、たとえば大きさが数～数 100 $\mu\text{m}$  といった大きな粒径のシリカ ( $\text{SiO}_2$ ) やアルミナ ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) などの無機フィラーを充填した複合体 (コンポジット) を絶縁材料として用いていた。本研究では、充填する無機フィラーを、その径又は内部構造が 0.1 $\mu\text{m}$  以下と非常に小さいナノ構造フィラーとした機能性ナノコンポジットの基礎研究を行い、従来レベルを超える電気絶縁性を有する絶縁材料創出に目途を付ける。

#### 2. 研究内容と成果

ナノ構造フィラーとして、平均粒径 100 nm、粒子空孔率 50~70 vol%の中空シリカナノ粒子を用いた。これをエポキシ樹脂に対して 16 vol%充填したエポキシ/中空シリカナノコンポジットに関する誘電率計算モデルを名古屋大学内設備で構築した。

図 1 に構築した計算モデルを示す。電界の計算には有限要素法を用いた。本モデル内の電界強度を積分することにより静電エネルギーを求め、これを平均電界の 2 乗項で除して平均の誘電率を計算した。

その結果、エポキシ/中空シリカナノコンポジットの比誘電率(図 2)および内部電界分布(図 3)を推定できることが示された。



(a) 粒子配置モデル

(b)有限要素メッシュ表示

図 1. エポキシ/中空シリカナノコンポジットに関する誘電率計算モデル

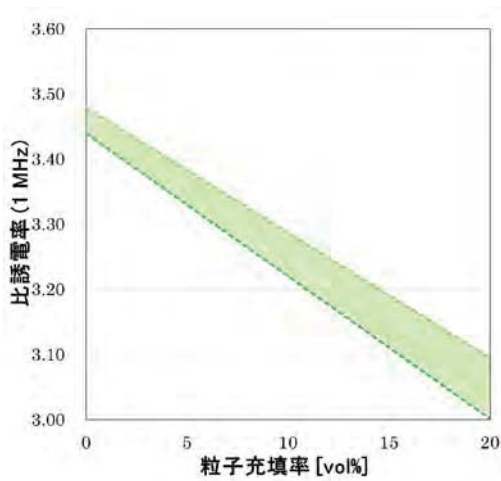


図 2. エポキシ/中空シリカナノコンポジットの比誘電率（粒子充填率特性）

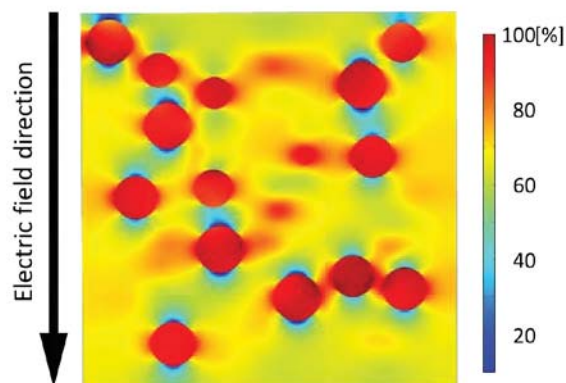


図 3. エポキシ/中空シリカナノコンポジット内部断面の電界強度分布

## 車両燃費向上と環境負荷削減のための交差点における協調的速度調整誘導システムデザイン

### Intersection Cooperative Adaptive Speed Guidance System Design for Vehicle Energy Saving and Traffic Emission Reduction

劉鋈・大連理工大学・交通運輸学院・准教授  
劉棟・大連理工大学・交通運輸学院・大学院生  
劉超・大連理工大学・交通運輸学院・大学院生  
山本俊行・名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授

#### 1. 研究目的 (12pt ゴシック体)

In order to address the issues of various implementation effects under intelligent speed guidance system (ISA), the human factors should be integrated into the current ISA system. That is, the design of an ISA should consider more the individuals' bounded rationality, including at least different response time, various acceptance threshold value and execution level. On the other hand, there are more and more Electric Vehicles (EVs) entering in the traffic flow, which make the conventional ISA system that designed for Internal Combustion Engine Vehicles (ICEVs) less effective. Based on our previous study, this study further plan to propose a more realistic speed guidance model to study the impacts of the driver's bounded rationality, together those of the mixed traffic flow with both Electric Vehicles and Gasoline Vehicles, on the traffic system (especially driver's driving behavior, fuel consumption and emissions) with or without signalized intersections.

#### 2. 研究内容と成果 (12pt ゴシック体)

当該年度に実施した研究内容とその成果につき、記述下さい。(11pt 明朝体)

- We tried to model the driving style and driving pattern and considered how to integrate these factors into the speed guidance model. However, we find that it is difficult to represent these factors by using the indicators of speed or acceleration/deceleration velocities directly. Therefore, we currently failed to integrate the driving style/pattern into the simulation model that we proposed last year for quantizing the energy and emission reduction. In future, it may be helpful by using decision model to connect the driving style and speed guidance model.
- We collected some experimental data of energy consumption from pure/hybrid EVs both in Nagoya, Japan and Dalian, China, which help to validate the parameters of energy consumption model. Then, based on our developed traffic simulation and emission estimation system that integrated VISSIM and MOVES, we propose an Eco-Speed control model that considers the queue effects to optimize speed trajectory for EVs and ICEVs. This



model takes into account the different characteristics of EV and ICEV to give the optimal speed recommendations. The different accelerated velocities for EV and ICEV are proposed in the model. Results show the various energy/emission reduction proportion under different EV penetration rate.

- In order to evaluate the effects of dedicated EV lanes at an isolated or several successive signalized intersection(s), we compare the energy efficiency and emission efficiency between the case of setting a dedicated EV lane and that of no dedicated EV lane. Two cases with both the inner straight lane and the outside straight lane are set as the dedicated EV lane. We compared the difference between these two cases. Furthermore, the impacts of different EV penetration rate are also compared. This part is not yet finished and will be concluded and submit to journal soon.

•

#### 【研究成果の公表状況】(12pt ゴシック体)

<原著論文> (11pt 明朝体, Times)

- Liu D., Liu K. and Yamamoto T. Eco-Speed Control for the Mixed Electric Vehicles and Internal Combustion Engine Vehicles on an Isolated Signalized Intersection, submitted to 2018 World Transport Convention.

<国際・国内会議> (11pt 明朝体, Times)

- None

<産業財産権>

- None

## 事故種別間の相関を考慮した交通事故頻度分析による事故損失削減 Traffic accident loss reduction by crash types frequency analysis considering correlation

Venkataraman N. Shankar, Penn State University, College of Engineering, Professor  
Ghasak I.M.A. Mothafer, 名古屋大学・未来材料・システム研究所・研究員  
山本俊行・名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授

### 1. 研究目的

交通事故は当事者の死亡，身体損傷等の人的損失や車両，構造物等の損壊による物的損失，交通事故に関連して発生する社会福祉費用，救急費用，車両・医療設備費用，裁判費用，保険運営費といった各種公的機関等において発生する損失等を引き起こす。また交通事故渋滞による環境負荷ももたらす。本研究では，交通事故頻度分析により交通事故多発地点を特定し，交通事故防止・軽減対策による交通事故削減効果および事故渋滞による環境負荷削減効果を算出することを目的とする。特に，交通事故発生危険個所は事故種別によって異なり，さらに，事故種別によって効果的な防止・軽減対策も異なるため，事故種別を区別した交通事故分析が必要である。本研究では，事故種別間の相関を考慮した交通事故頻度分析により，効率的な交通事故対策および環境負荷削減を可能とする。

### 2. 研究内容と成果

多変量の頻度データに内在する変量間の相関を考慮するための実用的で簡便な統計モデルを開発した。開発したモデルは，頻度モデルをオーダーレスポンスモデルの形式で表現した形を基本として，変数間の相関をコンピュータによって表現したものである。コンピュータを用いることによって非線形で非対称な相関構造を柔軟に表現可能である。また，複合周辺尤度（composite marginal likelihood）を用いることによってシミュレーションによることなく尤度関数を評価することを可能としている。さらに，頻度モデルの分散パラメータを説明変数で構造化することにより，説明変数が頻度に及ぼす影響のランダム性をシミュレーションによる数値積分を用いることなく表現することを可能としている。同時に，コンピュータ関数に含まれる相関パラメータも説明変数で構造化し，分散と共分散の両方の異質性を表現することを可能とした。

米国ワシントン州で 274 の高速道路区間を対象に 2005 年から 2007 年の 3 年間に収集された交通事故データに対して開発したモデルを適用し，その有効性を確認した。交通事故は追突事故，側面衝突事故，障害物衝突事故，その他，の 4 種類に分類し，それらの交通事故の相関を分析した。分析結果より，交通事故種別間の相関には非観測異質性が有意に含まれることを明らかとした。また，非観測異質性が交通事故種別毎の分散や

交通事故種別間の共分散に影響するとともに、道路環境が交通事故数に及ぼす影響の推定にも影響を及ぼすことを確認した。実務的な知見としては、図にも示すように交通事故種別間の相関構造はガンベルコピュラで最も良く表されることが示された。

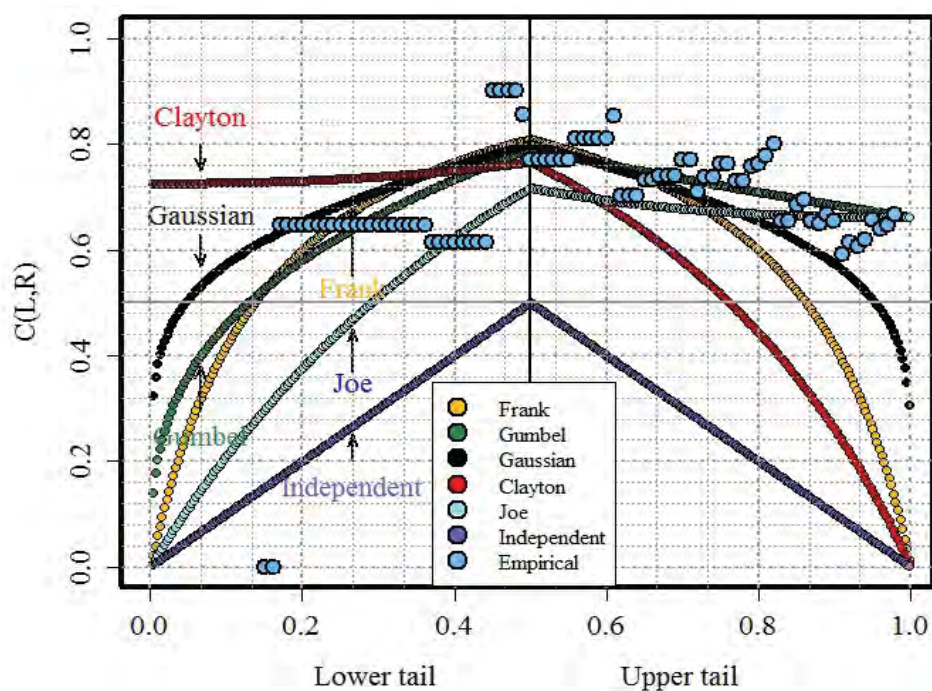


図 分布の裾での依存関係の比較（追突事故と側面衝突事故）

### 【研究成果の公表状況】

<原著論文>

- Mothafer, G.I.M.A., Yamamoto, T. and Shankar, V.N. (2018). A multivariate heteroskedastic copula-based count model for asymmetric interdependent freeway crash types, *Transportation Research Part B*, 108, 84-105.

<国際・国内会議>

- Mothafer, G.I.M.A., Yamamoto, T. Shankar, V.N., A multivariate panel copula-based count model to examine intertemporal and inter-crash type correlations, 97th Annual Meeting of the Transportation Research Board, Washington D.C., Jan. 7-11, 2018.

## 内燃機関の排熱回収を目的としたケミカルターボシステムの開発

### Development of fast reforming for exhaust heat recovering of SI engine

小林 潤・工学院大学・工学部機械工学科・准教授

成瀬 一郎・名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授

#### 1. 研究目的

内燃機関の変換効率向上を図る上で、排気ガスが有するエネルギーを可能な限り回収し再利用することが極めて重要と考える。本研究では、排気ガスが有している熱エネルギーを利用して燃料の改質を行い、この熱エネルギーを化学的に回収し再度エンジンに投入するケミカルターボシステムを提案する。本研究では、迅速なエネルギー回収が可能となるフルメタル改質反応器を設計・試作し、その特性について評価・検討を行うと共に、改質ガスを再供給した場合の燃焼特性について明らかにする。

#### 2. 研究内容と成果

昨年度に引き続き、本年度は改質反応器の設計・試作および改質ガス予混合気の燃焼速度評価等基礎的な検討を主に行った。

##### 2. 1 模擬ガスによる燃料改質特性評価

エタノールを燃料として考慮した場合の燃焼排ガスによる改質挙動について評価することを目的とし、模擬排ガス（窒素 73%、二酸化炭素 13%、水蒸気 14%混合気）による触媒改質実験を行った。触媒は排ガス処理用として実際に使用されている貴金属担持ステンレスハニカム触媒を用いた。なお、比較として触媒を担持していないハニカムによる改質実験も行っている。Fig. 1 に反応温度 600℃、GHSV=8000 [h<sup>-1</sup>]にて触媒改質を行った結果得られた生成ガス組成の経時変化を示す。

本図より、水素および一酸化炭素の生成が確認され、600℃においても改質反応が進行することが明らかとなった。また、2 時間程度では触媒活性の低下は認められなかった。なお、エタノールの反応率は概ね 60%程度であり、GHSV=22000 [h<sup>-1</sup>]まで流量を増加させてもガス組成および反応率は殆ど変化しなかった。

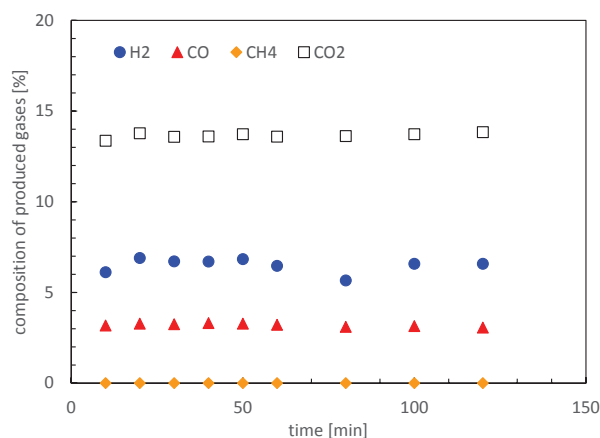


Fig. 1 Composition of produced gases by steam reforming of ethanol

## 2. 2 改質ガスおよび排ガス混合気の層流燃焼速度評価

改質ガスと排ガスを模擬した希釈ガスの添加率およびガス組成が燃焼速度に及ぼす影響についてまとめた結果を、Fig. 2 に示す。なお、図中にプロットがない条件では、安定した火炎が形成されなかった。

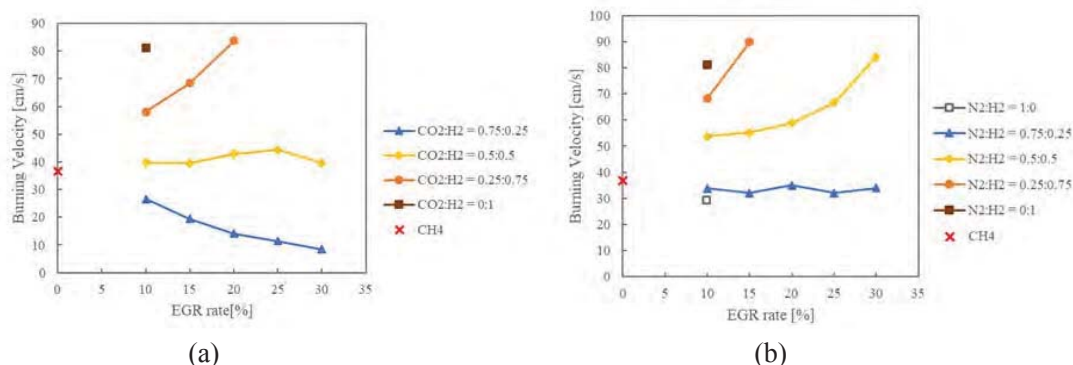


Fig. 2 Burning velocity of CH<sub>4</sub>-CO<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>/Air mixture (a) and CH<sub>4</sub>-N<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>/Air mixture (b)

本図より、CO<sub>2</sub> : H<sub>2</sub> = 0.75 : 0.25 を除き、いずれの場合においても添加率の増加に伴い燃焼速度は同程度もしくは向上する傾向を示した。このことから、H<sub>2</sub>を加えることで燃焼速度が増加し可燃範囲がより高希釈領域まで拡大させることが可能であることが示された。また、CO<sub>2</sub> : H<sub>2</sub> = 0.5 : 0.5 および N<sub>2</sub> : H<sub>2</sub> = 0.75 : 0.25 に着目すると、添加率を増加させても燃焼速度が殆ど変化せず横ばいとなった。一般に CO<sub>2</sub> や N<sub>2</sub> などの不活性な希釈ガスの添加率を上げると、酸素濃度の低下や熱容量の増加に伴う燃焼温度低下により燃焼速度は低下する傾向を示すが、本結果から微量の H<sub>2</sub> であっても希釈ガスに混合することで燃焼速度を高める効果が大きいことが確認された。これにより内燃機関の燃料に H<sub>2</sub> を混合すると希釈限界が拡大することが期待される。さらに、CO<sub>2</sub> : H<sub>2</sub> = 0.5 : 0.5 および N<sub>2</sub> : H<sub>2</sub> = 0.75 : 0.25 の結果から、添加率の増加に対して燃焼速度は変化せず概ね一定で推移することが示されているが、この傾向は内燃機関の制御上好ましく、このような傾向を示す希釈ガス組成についてさらに検討する必要があると考える。

### 【研究成果の公表状況】

<原著論文>

・特になし

<国際・国内会議>

・千野みつき, 小林潤, 勝間田裕之, 久保直紀, 燃焼排ガス及び改質ガスを含む予混合気の層流燃焼速度評価, 日本機械学会 関東学生会 学生員卒業研究発表講演会, 電気通信大学, 2018年3月16日.

<産業財産権>

・特になし



## 高効率水素製造のための CLP 酸素キャリアーの開発 Development of CLP Oxygen Carrier for an Effective Hydrogen Production

小林 信介・岐阜大学・大学院工学研究科・准教授

### 1. 研究目的

水素は多種多様な資源から生産可能なクリーンなエネルギー資源であることから、我が国をはじめ、世界各国において水素社会の構築に向けた研究開発が進められている。特に高効率で水素を製造可能な装置の早期開発が望まれており、その一つとしてケミカルルーピングプロセス (CLP) が注目されている。CLP は、酸素担体の酸化・還元反応を利用した水素製造技術であり、従来の水蒸気改質法に比べて高い理論効率で水素製造が可能であることが知られている。高効率水素製造のためには、反応性に優れた酸素担体の開発が必要であることから、昨年度は従来の酸素担体よりも速い酸化・還元速度および高い還元率を達成可能で、さらに低コスト化が可能な酸素担体の開発に従事し、カルシウムフェライトを原料とする酸素担体の製造を行った。本年度は CLP 水素製造装置の作製を行うとともに、開発したカルシウムフェライト酸素担体を用いて還元実験を行い、最適な還元条件を明らかにすることを目的とした。

### 2. 研究内容と成果

本年度の実験では、メタンガスとカルシウムフェライトとの反応挙動を把握するため、熱重量分析装置を用いた還元実験およびガス切替式水素製造装置を用いた還元実験を実施した。熱重量分析実験では、反応温度による速度の比較や炭素析出の有無を確認し、ガス切替式水素製造装置を用いた還元実験では、還元反応における生成ガス分析および生成量測定を行った。

#### メタン還元熱重量分析実験

当該実験では、酸素キャリアーとして粒径 75-100 $\mu\text{m}$  に粉砕したカルシウムフェライト粒子 ( $\text{Fe}_2\text{O}_3$  80 wt%,  $\text{CaO}$  20 wt%) 20 mg を用いた。TG による還元実験では、温度による還元速度の比較を行った。図 1 にカルシウムフェライトとメタンを反応させた際の熱重量分析結果を示す。反応温度やメタン濃度にかかわらず、カルシウムフェライト中の酸素がメタンと反応するため、カルシウムフェライトの重量は時間とともに減少する。また、反応温度が高いほど大幅に反応速度が速くなっていた。ただし、いずれの反応条件においても重量減少が最下限に達した後、急激な重量上昇が見られた。これはカルシウムフェライトの還元による還元鉄がメタンと反応し、炭素が

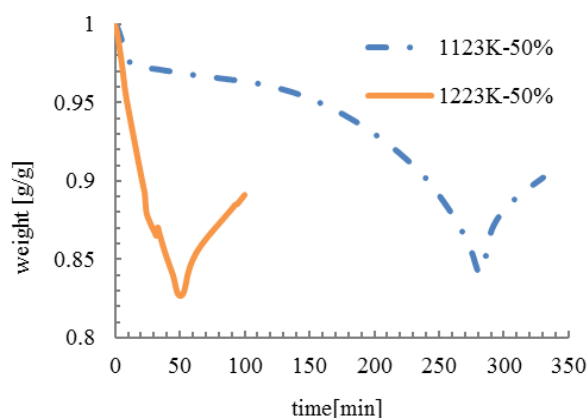


図 1 TG 還元実験におけるカルシウムフェライトの重量変化

析出したためだと考えられた。そのため、還元後のカルシウムフェライト表面観察を行った。図2に未反応カルシウムフェライトおよび還元実験後のカルシウムフェライト表面の

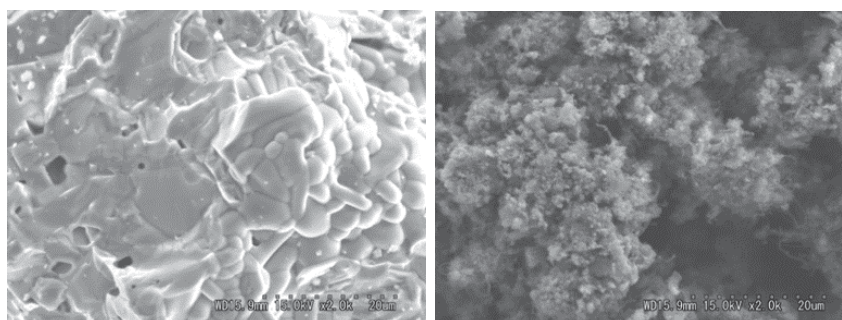


図2 還元実験前後のカルシウムフェライト表面 左：未反応、右：還元実験後

SEM画像（2000倍）を示す。画像から明らかなように実験後、カルシウムフェライトの体積は大きく増加し、炭素が析出していた。

### ガス切替式水素製造装置を用いた還元実験

図3に本年度製作したガス切替式水素装置概略図を示す。装置はマスフローコントローラー、水蒸気発生用シリンジポンプ、石英管（内径=14 mm、全長60 cm）、管状電気炉、リービッヒ冷却器および流量計により構成されている。実験ではペレット状のカルシウムフェライトを40 g使用し、反応温度1223 K、50 mL/minのメタンガス流通下で40 min反応させた。出口ガスはガスパックにより全量採取し、生成ガス量の計測を行った。

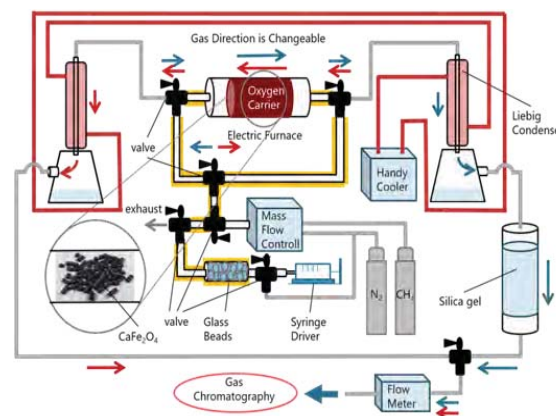


図3 ガス切替式水素製造装置概略図

カルシウムフェライト還元時の出口ガス濃度を図4に示す。メタンガス流入直後からカルシウムフェライトはメタンガスと反応するため、二酸化炭素の生成が確認された。ただし、反応が進むとともにカルシウムフェライトが含有している酸素が減少したこと、および反応速度の低下により二酸化炭素濃度の減少とともに一酸化炭素が増加した。還元反応時における一酸化炭素の生成は好ましくないことから、還元速度を向上するためのペレット径調整および反応滞留時間の確保を目的とした充填量の増大が必要であることが分かった。その一方で、ガス切替式水素製造装置による還元実験においては、TG実験において観察された炭素析出は全く見られず、メタンガスによるカルシウムフェライトの還元が可能であることが明らかとなった。

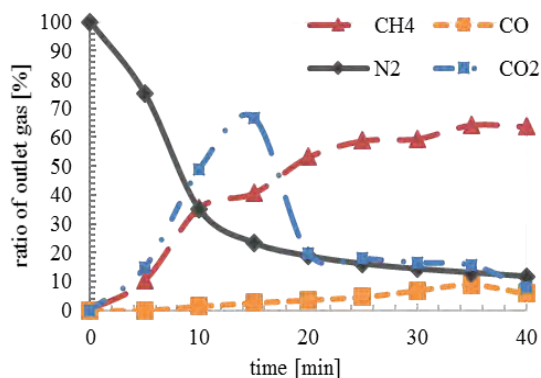


図4 水素製造装置における還元時生成ガス

### <国内会議>

野口航希、小林信介、板谷義紀、カルシウムフェライトを用いたケミカル・ルーピング水素製造に関する研究、第27回環境工学総合シンポジウム、浜松、2017.7.10-12

## ピコ水力発電に対する官学民の意識調査研究

Questionnaire survey of multi-stakeholder on pico-hydraulic power generation

岡山朋子・大正大学・人間学部・准教授

池田敏彦・信州大学・工学部・特任教授

谷田林士・大正大学・心理社会学部・准教授

内山知実・名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授

### 1. 研究目的

2011 年の福島第一原発事故以降、日本においては再生可能エネルギー利活用の重要性が高まっている。しかし水力発電については、2013 年度の全発電量に占める割合は 8.5%（資源エネルギー庁，2014）であるものの、1000kW 未満の小規模水力発電については導入が必ずしも進んでいない。この 1000kW 未満の水力発電出力を、さらに①ピコレベル（～1000W）②ナノレベル（～10kW）③マイクロレベル（～100kW）④小レベル（100kW～）の 4 つに便宜的に分類した場合、固定買取制度（FIT）による事業化が見込める③④は、各地において事業化が試みられているが、①②の極小規模水力発電は、おそらく発電出力としてほとんど計上もされていない状況にある。

特に、①のピコ水力発電（数 10～数百 W）については、実証実験としての導入事例が大半で、全く普及しているとは言えない。その理由としては、前述したように、売電に適さず費用対効果が極めて悪いこと、発電した電気の使い道が極めて限定されること、継続的な運転のためには水車の除塵といった人の手間が不可欠であること、設置しようとしてもコミュニティならびにステークホルダー（官学民）から受け入れられないといったこと等が考えられる。一方で、どこにでも広く賦存するピコ水力に着目し、ピコ水力発電を実施する事例も少しずつではあるが増えている。

そこで、平成 28 年度は、水力発電事業において重要なステークホルダーである行政（自治体）が、特に①②のような極小規模水力発電事業について、どのように捉えているかを明らかにすることを目的に、全国の地方公共団体を対象にアンケート調査を実施した。さらに平成 29 年度は、この地方公共団体を対象とする意識調査結果より、その他のステークホルダー（関係者）がどのような意識を持ち、かつ極小規模水力発電事業の普及について情報共有の可能性を検討することを研究の目的とした。

### 2. 研究内容と成果

1.の目的を達成するために、平成 30 年 3 月 3 日に、「ピコ水力発電シンポジウム in 長井 水のまち・長井発 水路を使ってトコトン発電！」を実施した。15 名の行政・事業者・研究者の発表及び長井市長の参加を得て、ピコ水力発電におけるステークホルダ

一の情報交換・連携協定のつながりを構築した。これは極めて貴重な成果である。

なお、ICMaSS2017において、研究発表を行った。次に、科学技術社会論学会において研究発表を行った。

その他、平成29年12月1日(金)、新潟工科大学で開催の第50回水車・風車のに関する研究会において発表した。また、平成30年3月3日(土)のピコ水力発電シンポジウム in 長井において発表、シンポジウムの取りまとめを行った。

平成30年5月18日(金)、名古屋大学で開催の第51回水車・風車のに関する研究会において発表予定である。



図1 長井市シンポジウム

### 【研究成果の公表状況】

<原著論文>

・岡山朋子、ピコ水力発電に関する研究, 大正大学人間環境論集第3号, pp.63-84, 2016

<国際・国内会議>

・岡山朋子、内山知実：地方公共団体における極小規模(ピコ・ナノ)水力発電事業に対する意識調査, 科学技術社会論学会第16回年次研究大会, 九州大学, 2017年11月25日・26日

・Tomoko Okayama, Tomomi Uchiyama, Toshihiko Ikeda: Conscious Survey of Local Governments in Japan about Introduction of Small Hydroelectric Project, the International Conference on Materials and Systems for Sustainability 2017 (ICMaSS2017), Nagoya University, 29 Sep.-1 Oct 2017

<産業財産権>

・なし



図2 長井シンポジウムで発表する市長



## 雪氷に強いエコ水車の開発

### Development of Eco-Hydraulic Turbine Resistant to Snow and Ice

研究代表者：池田敏彦・信州大学・工学部・特任教授

研究分担者：岡山朋子・大正大学・人間学部・准教授

佐藤栄一・新潟工科大学・工学部・教授

研究所担当教員：内山知実・名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授

出川智啓・名古屋大学・未来材料・システム研究所・助教

#### 1. 研究目的

エネルギーの安定した確保は最重要課題である。特に 3.11 以来、水力など再生可能なエネルギーの利用を拡大することが望まれている。このような背景のもと、本研究は農業用水路など各地のいたるところで分散して存在する極小規模である水力エネルギーを有効利用することである。

日本における農業用水路の長さは 40 万 km（地球 10 周相当）であり、申請者らはこれまで河川工事をほとんど必要とせず、流れに置くだけで発電する小型水車（エコ水車）を開発して、実用化してきている。しかしながら、北陸、東北、北海道など冬期間の農業用水路は堆積した雪や氷によりしばしば閉塞されなどの障害が生じる。このような環境下でも、安定して稼働する水車が望まれる。

雪氷に強いエコ水車の開発、すなわち、雪氷まじりの水流に対して発電可能な水車発電システムの開発を行うことを目的にする。そのために、本研究では、積雪も多くこのような水車の開発に適した開水路を特定して、雪の状況変化などから実装を予定している「下掛け水車の基礎設計」を行った。

#### 2. 研究内容と成果

特定した開水路は幅 700mm、深さ 700mm である。平成 28 年度のグリーンシーズンにおける平均水深は 100mm、平均流速は 1m/s であり、流量は 0.07m<sup>3</sup>/s 程度であった。冬期間は若干の流量減少が予想される。そこで、水深 80mm、平均流速 0.9m/s とすると、流量は 0.05m<sup>3</sup>/s である。これらの値をベースに下掛け水車の基礎設計を行った。

設計にあたって当面、以下の項目を検討とした。水車の大きさ（直径、幅）とブレード形状と枚数、出力、無負荷時の水車回転数、集水などである。

##### 1) 水車の大きさ（直径、幅）とブレード形状と枚数

直径は開水路の深さ程度の 600mm とした。幅は開水路の幅の半分程度の 300mm とした。また、ランナ枚数は 12 枚とした。平成 28 年度における冬期間の観測により、開水路上部にアーチ形に堆積した雪が崩落して水流中に落下を繰り返すことがわかった。しかしながら、水中落下後の雪の挙動は不明である。この挙動を把握（平成 30 年度調



査) した後、ランナ枚数の検討を行う予定である。

## 2) 水車の出力

下掛け水車の上流と下流の水位差（有効落差）を 300mm と仮定する。また、水車効率を 30%、発電機効率を 85%、インバータ効率を 65% と見積もると、出力は 24W 程度になる。

## 3) 無負荷時の水車回転数と最大負荷時の回転数

有効落差 300mm とすると、無負荷時の水車先端における速度は、2.4m/s である。角速度と水車半径の関係式から、無負荷時の水車回転数は 76rpm となる。水車が水中で回転することや水車軸の摩擦などを考慮して、実際の回転数を 60rpm 程度と見込んだ。最大負荷時の回転数は 30rpm となる。

## 4) 発電機の仕様

従来から低速回転用として開発し、使用している発電機を用いる。40 極、永久磁石式同期発電機とした。

## 5) 下掛け水車の概要図

概要図を図 1 に示す。水車の大きさ（直径、幅）とブレード形状と枚数は前述の通りである。

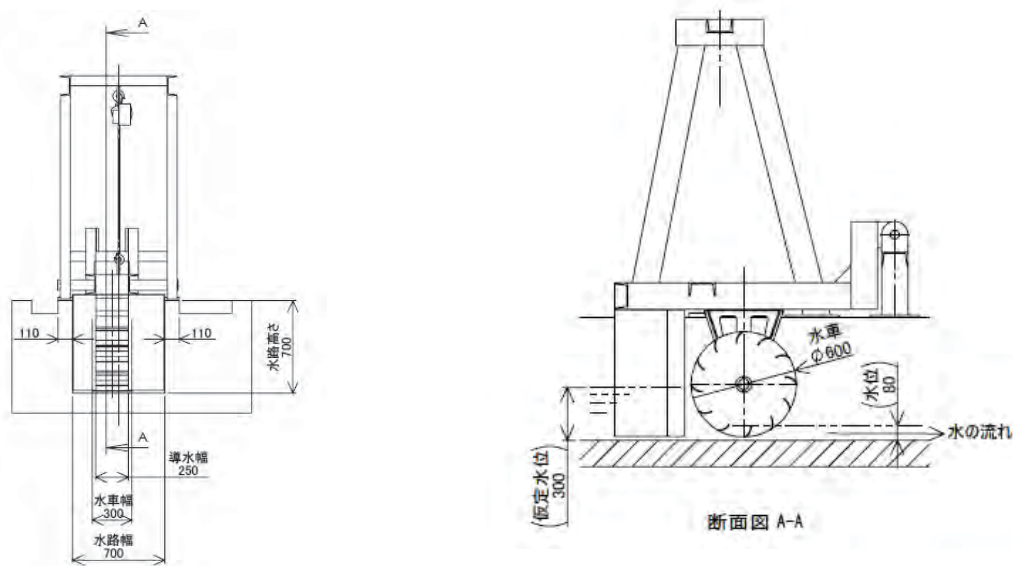


図 1 下掛け水車概要図

実装するにあたっては、集水装置、除塵対策、騒音対策、洪水時等の対策として水車の昇降機構などであるが、次年度以降の課題とした。

<原著論文>なし

<国際・国内会議>

平成 30 年 5 月 18 日（金）、名古屋大学で開催の第 51 回水車・風車のに関する研究会において発表予定

<産業財産権>なし

## 電気化学的微生物による新規メタルバイオテクノロジー技術に関する基盤的研究

Application of microbial extracellular electron transfer on metal-biotechnology

濱村奈津子・九州大学大学院・理学研究院・准教授  
山下葉里子・九州大学大学院・システム生命学府・大学院生  
片山新太・名古屋大学・未来材料システム研究所・教授  
栗田貴宣・名古屋大学・未来材料システム研究所・助教

### 1. 研究目的

産業の発達や電気製品廃棄物などにより環境に放出される重金属排水は、環境への汚染影響が懸念される一方で、特に資源の乏しい日本においては希少金属類を含む有用金属回収への利用が望まれている。しかし、排水中には多様な金属類が混在しているため、有害元素を固定化などにより無害化するとともに、有用元素のみを選択的に回収する省エネルギー技術の開発が必要である。そこで本研究では、鉱物化による毒性元素の固定化と結晶化による有用メタルの回収を行う省エネルギー技術として、電気化学的微生物に着目した新規メタルバイオテクノロジーシステムの構築を目的とする。

### 2. 研究内容と成果

本研究では、実際の汚染環境で行われているであろう固体ミネラル（鉱物）を利用する新規微生物群を同定し、天然の細胞外電子伝達物質である腐植物質（ヒューミン）を介した電気合成微生物による有毒元素の固定化と有用元素の回収を可能とする省エネルギーシステムの構築を目指している。本年度は、各種有害金属の無害化に関わる微生物を汚染環境中から分離同定するとともに、金属の酸化還元反応に対して腐植物質がどのように影響するかを調べた。

有害金属として、特に環境中に広く分布しており汚染が懸念されている猛毒元素のヒ素(As)等を代謝する微生物群に着目した。ヒ素の微生物代謝機構として、好氣的環境では主にヒ素酸化酵素(Aio)を有する細菌群により亜ヒ酸からヒ酸が生成され、嫌氣的環境ではヒ素還元酵素(Arr)を有する細菌群によりヒ酸の亜ヒ酸への還元が起これらと考えられてきた。また近年の報告では、嫌氣的に亜ヒ酸を酸化する酵素 (Arx, Aio)の存在も明らかになっており、ヒ素毒性や環境挙動に影響を及ぼす微生物機構の多様性が示されている。一般的に、亜ヒ酸はヒ酸よりも生体毒性が高く、水環境に溶出し易い性質を示すことから、微生物による酸化還元反応のヒ素挙動への寄与を明らかにすることはヒ素の無毒化における重要な課題である。そこで本研究では、固体腐植物質存在下の嫌氣

的環境におけるヒ素挙動を明らかにするとともに、酸化還元反応に関与する微生物機構を調べた。

嫌気条件において、固体腐植物質存在下で土壌細菌群および滅菌後のヒ素形態変化を測定したところ、土壌細菌群の培養系でのみ、亜ヒ酸からヒ酸への酸化活性が確認された。しかし、その後の継代過程で固体腐植物質を取り除いた所、亜ヒ酸酸化活性が喪失したことから、ヒ素の嫌氣的酸化反応に腐植物質が関与している可能性が示唆された。また、微生物ヒ素代謝機構に関与している酵素遺伝子を標的にした解析により、検出された亜ヒ酸酸化活性に寄与している土壌微生物の Aio 型ヒ素酸化酵素遺伝子を同定している。これまでに、細胞外電子伝達物質を介した微生物ヒ素機構については報告も少なく不明な点も多いため、今後引き続き固体腐植物質の微生物ヒ素代謝に及ぼす効果を明らかにする予定である。さらに本研究では、嫌氣的に金属の還元反応を触媒し結晶化する微生物複合系の継続培養も実施した。金属の還元反応に対して還元型ヒューミンの還元活性が確認されており、有害金属の還元反応を利用した結晶化・固定化による無毒化および回収技術に繋がる系として期待できる。今後、これら複合微生物系の金属代謝機構や微生物間相互作用を遺伝子レベルで解析するとともに、細胞外電子伝達物質を介した鉱物化による毒性元素の固定化や結晶化反応の解明を試みる計画である。

## 【研究成果の公表状況】

<国際・国内会議>

- Natsuko Hamamura, Takafumi Kataoka, Microbial community function and response associated with metalloid redox transformations in the contaminated environment, JpGU-AGU Joint Meeting 2017, Makuhari, 2017年5月20日～25日.
- Natsuko Hamamura, Satoshi Mitsunobu, Microbial biotransformation of toxic metalloids and its bioremediation implications, The 14<sup>th</sup> International Symposium on Persistent Toxic Substances, Nagoya University, 2017年9月24日～28日.
- 濱村奈津子, 微生物の有害元素利用戦略：耐性、代謝、進化適応, 環境微生物学最前線 2017, 北海道大学低温科学研究所, 2018年2月16日.

## 微生物電気デバイス電極の解析

Analysis of a electrodes in the microbial electrochemical-device

研究代表者

宮田 康史 名古屋市工業研究所 プロジェクト推進室 主任研究員

研究所担当教員

片山 新太 名古屋大学未来材料システム研究所システム創成部門 教授

粟田 貴宣 名古屋大学未来材料システム研究所システム創成部門 助教

### 1. 研究目的 (12pt ゴシック体)

一部の微生物は、細胞外の導電体と直接電子の授受が可能であり、電気化学デバイスに組み込むことで有害有機物の分解や脱塩素化などの反応を省エネルギーに連続して行う進めることができる。これを応用することで省エネルギー型環境浄化デバイスが実現できるため、この技術は大いに期待されている。これまで片山研究室での先駆的研究により、微生物が生息する土壌から採取した腐植材腐植物質などを化学処理して電極化することで高効率に電子授受ができることがわかっている。腐植物質には有機、無機の様々な物質が含まれており、電気化学測定では数種類の物質が電子授受に関与していることが示唆されている。これまでのシンクロトロン光を用いた X 線分析により鉄化合物がひとつの物質であることが明らかとなった。本研究では鉄化合物以外の電子授受関連化合物の探索として有機物に注目し、X 線光電子分光 (XPS) 測定を行った。さらに有機物を構成する炭素原子に注目し、計算化学を用いて内核エネルギー準位を算出し、測定結果の解析に援用した。

### 2. 研究内容と成果 (12pt ゴシック体)

#### 2. 1. 腐植物質の XPS 分光測定

片山研究室では有害有機物の分解を目的として、土壌から採取した微生物が有効であることを明らかにし、電極との相互作用の解明から工学応用を目指している。電極には微生物が生息する土壌を化学処理 (アルカリ (NaOH) およびフッ酸にて洗浄) して得た腐植物質を用いている。これは構造が未知の有機化合物群であり、化学組成も不明であり分子量分布も明らかになっていないとされる。しかし、電極として作用していることから伝導性は有しており関与する化学種の同定が望まれている。

そこで、十分に乾燥した電極原料としての腐植物質に対し、あいちシンクロトロン光センターの XPS スペクトル測定を行った。測定では絶縁性を示す有機物のチャージアップを防ぐために腐植物質粉末と銅粉末を混合させた。腐食物質は電極上で酸化還元作用を受けることを想定し、酸化体と還元体を調整し測定した。

## 2. 2. 計算化学による炭素の内核エネルギー計算

XPS スペクトル測定結果を解析するために、計算化学を用いた。光電子機構は複雑で量子化学計算で基底状態と励起状態を求め、遷移確率を考慮して XPS スペクトルを求めるには Koopmans の定理を用いることになるが大規模な計算機資源が必要となる。そこで今回は注目する有機物の炭素 1s 軌道のエネルギー（内核エネルギー）のみを求め、実測値との相関を把握し、XPS 測定結果の解析に援用することとし、gaussian09(機能制限版)にて計算を行った。

腐植物質中の有機物として、代表的な飽和炭化水素、不飽和炭化水素および芳香族炭化水素に酸化を示す官能基(-OH、-CHO、-COOH)を付加し、構成する炭素全ての 1s 軌道のエネルギーを量子化学計算で求め、XPS スペクトルに読み換えた。結果を図 1 に示した。COOH 基の炭素 1s は酸化により高エネルギーにシフトしていることがわかる。実際の XPS 測定ではそれぞれの炭素エネルギースペクトルの加算となるため図中の「合計」と記したスペクトルが観測される。また、 $\text{CH}_3\text{CH}_2\text{CH}_3$  と  $\text{CH}_3\text{CH}_2\text{COOH}$  の計算結果を図 2 に示す。分子全体のスペクトルも高エネルギー側にシフトしていることがわかる。同様にして飽和炭化水素 ( $\text{CH}_3\text{CH}_2\text{CH}_3$ ) および酸化物、不飽和炭化水素 ( $\text{CH}_2=\text{CHCH}_3$ ) および酸化物、芳香族炭化水素 ( $\text{C}_6\text{H}_5\text{CH}_3$ ) および酸化物の検討も行った。計算結果から飽和炭化水素、不飽和炭化水素、芳香族炭化水素で若干異なるもの-OH 基が結合する炭素は 286.3 - 287.3 eV、-CHO 基では 288.6 - 289.0 eV、-COOH 基では 288.6 - 289.0 eV となることがわかった。加えてフッ化炭素化合物 ( $\text{CH}_x\text{F}_{4-x}$ )、塩化炭素化合物 ( $\text{CH}_x\text{Cl}_{4-x}$ ) についてもデータをそろえた。

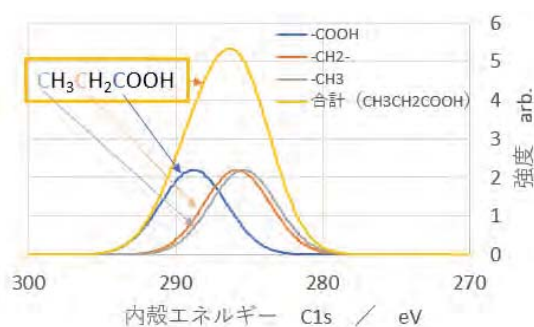


図 1 プロピオン酸の炭素 1s 各炭素原子の内殻エネルギー

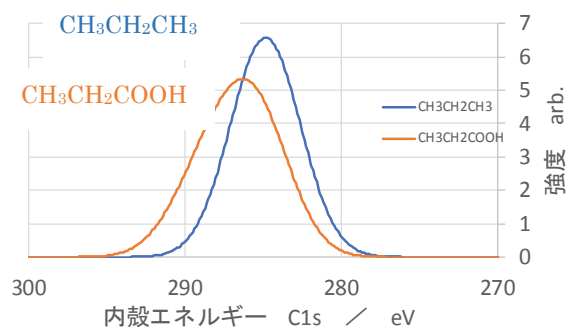


図 2 プロピオン酸およびプロパンの炭素 1s 内殻エネルギー

製法を変えた 5 種類の腐植物質に対し測定した XPS スペクトルの解析を行った。フッ酸と塩酸処理をした場合、フッ化物や塩化物の存在が示唆される結果であった。また、いずれの試料においても COOH 基といった酸性を示す官能基に由来すると思われるピークが認められ、電極中の電荷移動に関与していると思われる。

今後は計算精度を上げるとともに、処理した腐植物質の伝導性評価から電荷移動性を把握し、XPS 測定結果と合わせて組成の検討を進めていく予定である。

以上



# 大規模ビル内における電力線通信の品質に及ぼす

## 人工雑音・伝搬損失・線路インピーダンスの総合的影響

Influence of propagation loss, man-made noise, and line impedance of power line channels to the communication performance

研究代表者 大平 孝

豊橋技術科学大学 未来ビークルシティリサーチセンター センター長／教授

研究分担者 池田健矢

名古屋大学大学院工学研究科情報通信工学専攻 博士前期課程

研究所担当教員 片山 正昭

名古屋大学 未来材料・システム研究所システム創成部門 教授

### 1. 研究目的

電力線通信(PLC)は、電力線に接続された機器間の通信が不可欠なスマートグリッドの有望な通信手段である。しかし、大規模ビル内のコンセント間のような多数機器が接続され、かつ回路分岐数の多い環境では PLC の伝送品質は回線によって異なり、PLC の性能向上のためには、通信路としての電力線の特性を明確にすることが必要である。平成 28 年度において申請者らは、電力線路インピーダンスに関し測定実験を行い、大規模ビル内の電力線路インピーダンスは通常無線機器設計で仮定する値よりも小さいことを確認した。しかし、その周波数、時間特性と通信品質やその他の品質に影響を及ぼす要素（雑音・伝搬損失）との関係は不明瞭である。

そこで、研究代表者が有する有線通信路における高周波の振る舞いに関する知見と、研究所担当教員が有する PLC 技術や信号処理技術と融合し、大規模ビル内 PLC の品質に回線選択が及ぼす影響を、雑音、伝搬損失、線路インピーダンスの総合的な観点で明らかにする。

### 2. 研究内容と成果

名古屋大学片山研究室のコンセントを用いて電力線通信路の通信品質特性測定を行った。コンセントには番号がそれぞれ割り振られており、今回の測定は 4, 5, 8, 9, 13, 18, 19, 49, 58 の 9 箇所を用いた。結果を表 1 に示す。表から、大規模ビル内の電力線通信路の通信品質が回線ごとに異なっていることがわかる。特に、8, 9 を含む通信路で品質劣化が大きいことがわかる。この回線ごとの通信品質の違いについて原因を明らかにするために、平均雑音電力、平均伝搬損失、線路インピーダンスを同日に測定した。

平均雑音電力の測定には PC 制御のオシロスコープを用いた。AC100V の電圧から測定機器を保護するための結合回路を介して測定装置を実験に使用した各コンセントに接続し、雑音波形の振幅値を保存した。そして、雑音電力（振幅二乗平均）を算出した。各コンセントで発生していた平均雑音電力を表 2 に示す。表から、通信品質の劣化が起きていた通信路に含まれていたコンセント 8, 9 で発生していた

表 1 通信品質特性測定結果

TFR [%]	Base						
	5	9	19	4	8	18	
Terminal	5	0.05	0.10	0.04	0.02	95.78	0.02
	9	0.01	0.05	0.01	100	100	100
	19	0.04	0.06	0.04	0.49	100	0.04
	4	0.16	100	72.31	0.02	1.35	0.02
	8	100	100	100	0.10	0.04	0.09
	18	0.04	100	0.04	0.04	0.37	0.08

表 2 平均雑音電力測定結果

Outlet Number	Noise Power [ $\mu\text{W}$ ]
4	5.81
5	1.84
8	13.10
9	76.80
18	1.82
19	6.42

平均雑音電力がほかのコンセントに比べて大きいことがわかる。これにより、コンセント 8, 9 を含む通信路で SNR (信号対雑音比) の低下が起きていたと考えられる。しかし、コンセント 8, 9 を含みながらも品質が保たれている通信路も存在していることから、雑音以外の品質劣化要因を検討する必要がある。

次に、通信品質劣化要因として挙げられる伝搬損失の測定結果を示す。伝搬損失の測定は、任意信号発生器から正弦波を電力線に印加し、その受信信号強度をスペクトルアナライザで記録して行った。そして、結合回路を介して測定装置を直結した場合を損失 0 dB とし、各通信路の伝搬損失の大きさを dB で算出した。各通信路の伝搬損失測定結果を表 3 に示す。測定は通信に用いている帯域の 150 – 400 kHz の中で 50 kHz 刻みで行ったが、表には中心周波数に近い 300 kHz での測定値を示している。表から、奇数同士、偶数同士の組み合わせの通信路に比べて偶数奇数の両方を含む通信路の伝搬損失が大きいことがわかる。これは、奇数同士、偶数同士の通信路には直流的結合があるのに対し、そうでない通信路は高周波信号が容量性、誘導性の結合で電力線中を伝送されるためであると考えられる。ここで、受信側の雑音環境が同じで通信品質が異なる通信路の代表として、4→9 と 19→9 に着目する。すると、4→9 のほうが伝搬損失は小さいが通信品質の劣化が大きいことがわかる。このことは、通信品質を決定する要因が雑音、伝搬損失以外に存在することを示唆している。

次に、線路インピーダンスの測定結果を示す。各コンセントで測定した線路インピーダンスが大きく異なっていた場合、モデムとのインピーダンス不整合が通信品質の劣化を招いていることが考えられる。線路インピーダンスの測定は任意信号発生器、PC 制御のオシロスコープ、インピーダンス測定用回路を用いて行った。測定回路は入力端に信号発生器、出力端にコンセントが接続されている。インピーダンス測定は、測定回路の入出力電圧の振幅比および異相差を用いてメビウス変換[1][2]によって算出される。表 4 に各コンセントでの線路インピーダンス測定結果を示す。表には、伝搬損失の時と同様の理由で 300 kHz での値を出している。表から、各コンセントの線路インピーダンスは通信機器設計で通常設計されている値よりも低い値となっていることがわかる。また、雑音、伝搬損失で説明ができなかった 4→9 と 19→9 に着目をすると、線路インピーダンスが約 8Ω 異なっており、このことから、送信側のモデムと線路インピーダンスの不整合が通信品質に影響を及ぼしていることが考えられる。

以上、今年度の研究成果をまとめると、大規模ビル内電力線通信の回線ごとの通信品質の差異の原因として、雑音電力、伝搬損失、線路インピーダンスの影響を総合的な観点で明らかにすることができた。一方で、通信品質を決定する要因を完全に明らかにできておらず、通信路特性の時間変動についても考えていく必要がある。

### 【研究成果の公表状況】

1. K. Ikeda, K. Kobayashi, H. Okada, M. Katayama, “Measurement of channel characteristics and communication quality of narrow-band PLC in a large-scale building,” International Conference on Materials and Systems for Sustainability 2017, Oct. 2017.
2. 池田健矢, 小林健太郎, 岡田啓, 片山正昭, “大規模ビル内狭帯域電力線通信の通信品質と信号伝搬特性に電気機器接続が与える影響,” WBS2017-33, 2017 年 10 月.

### 参考文献

- [1] 大平 孝, “メビウス変換によるアナログ回路解析,” 電子情報通信学会誌, vol.99, no.10, pp.1012-1014, Oct. 2016.
- [2] S. Sakihara, M. Tanaka, N. Sakai, and T. Ohira, “Power dependent impedance measurement exploiting an oscilloscope and Möbius transformation,” IEICE Trans. Electron., vol.E100-C, no.10, pp.918-923, Oct. 2017.

## 生態系・健康影響を取り入れた持続的可能な再生エネルギー資源 の評価手法の開発

Development of Evaluation Method for Sustainable and Renewable Energy Resources  
Considering with Ecology and Human Health

岡澤 宏・東京農業大学・地域環境科学部・教授

藤井 実・国立環境研究所・社会環境システム研究センター・主任研究員

大場 真・国立環境研究所・福島支部・主任研究員

(名古屋大学・名古屋大学未来材料・システム研究所・客員准教授)

佐藤ゆき・東北大学・大学院医学研究科・助教

林 希一郎・名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授

### 1. 研究目的

2011年の東日本大震災以降、国内では原子力からクリーンで持続的可能な太陽光、風力、水力、バイオマスエネルギーといった自然エネルギーへの転換が求められている。気象や地形に左右されるこれらのエネルギーを効率よく利用するには、精度の高い評価モデルの構築が必要になる。さらにエネルギー利用のためには付帯施設の建設が必要不可欠であり、付帯施設の設置は周辺の生態環境や水環境にも影響を及ぼすため、これらの影響評価技術についても確立する必要がある。本研究では、水力発電に必要な流域規模の水移動を評価できる水文モデルの構築を目指すとともに、関連する環境改変が生態系サービスや人の健康に及ぼす影響を評価するための手法について検討した。

### 2. 研究内容と成果

Soil and Water Assessment Tool (SWAT) による大規模流域を対象とした水力発電ポテンシャルマップの作成を試みた。SWAT は米国農務省が中心となって開発した流域スケールの水循環評価モデルである。解析ソフトウェアが無料で公開されている。SWAT の解析機能を用いて、愛知県矢作川上流域を対象に水力発電量のポテンシャルマップを作成した。一般的に水力発電量は次式によって求められる。

$$P = \rho g \eta H Q$$

ここで、 $P$  は発電量 (kW)、 $g$  は重力加速度 ( $9.8\text{m/s}^2$ )、 $\eta$  は発電効率 (-)、 $H$  は有効落差 (m)、 $Q$  は流量 ( $\text{m}^3/\text{s}$ ) である。今回は矢作川支流域における発電量を上式から単純に算出した。解析には 10m メッシュの DEM データ、土地利用データを使用し、これらのデータから有効落差を、合理式を使用して流量を算出した。その成果を図 1 に示す。水力発電ポテンシャルは支流域で大きく異なり、支流 No.3, 18 といった小流域で最も

ポテンシャルが大きいことがわかった。小流域では発電に利用できる河川流量が少ないと思われがちだが、発電量は流量に加えて落差が関係することから、この様な小規模流域でも落差によってポテンシャルは大きくなると考えられる。

また、水文流出モデル (TOPMODEL) による生態系サービスの評価手法の構築を試みた。その結果、TOPMODELを使用することで、人々の生活に影響を及ぼす生態系サービスのなかの調整サービス機能をモデル解析によって定量的に評価できる可能性が示唆された (Mukae et al., 2017)。

更に、主な地方都市における緑地 (公園や農地、森林など) に関する指標について、環境要因を考慮しながら幼児の健康へ与える影響を予備的に評価した。先行して行った仙台と名古屋における結果では、対象となった保育所からの最近接緑地と緑地連続性の指標について、有病率との傾向が確認された。

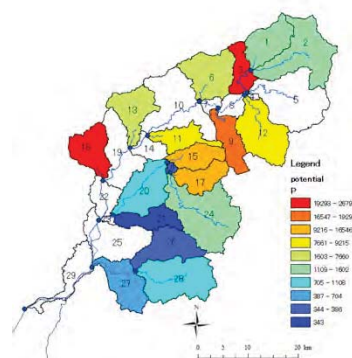


図1 水力発電ポテンシャルマップ

### 【研究成果の公表状況】

#### <原著論文>

- Kosuke Mukae, Koji Miwa, Hiromu Okazawa, Tomonori Fujikawa, Ecosystem Service Assessment in Agricultural Watershed by Using TOPMODEL, AGROFOR International journal, 2・3, 27-36(2017. October).

#### <国際・国内会議>

- Kosuke Mukae, Koji Miwa, Hiromu Okazawa, Tomonori Fujikawa, Ecosystem Service Assessment in Agricultural Watershed by Using TOPMODEL, Agrosym 2017, Jahorina in Bosnia Herzegovina, 05-08 October 2017.
- Kosuke Mukae, Koji Miwa, Hiromu Okazawa, Tomonori Fujikawa, Development of TOPMODEL for Ecosystem Service Assessment in Forest Stream, ICMaSS 2017, Nagoya, September 29 - October 1, 2017.
- Kiichiro Hayashi, Nobuko Kawaguchi, Minoru Fujii, Wataru Kobayashi, Resource occupancy to capacity ratio indicator assessment as a case in Nagoya green management for low carbon society, ICMaSS 2017, Nagoya, September 29 - October 1, 2017.
- Makoto Ooba, Togawa Takuya, Minoru Fujii, Shogo Nakamura, A feasibility study about minimum woody-energy system considering local carbon emission in Aizu region, ICMaSS 2017, Nagoya, September 29 - October 1, 2017.

#### <産業財産権>

- 出願状況、取得状況 なし



## 先進的森林バイオマスエネルギー資源量推計手法の開発

Development of advanced method for forest biomass energy resource assessment

町村 尚・大阪大学・大学院工学研究科・准教授

松井孝典・大阪大学・大学院工学研究科・助教

藤本彩菜・大阪大学・大学院工学研究科・博士前期課程学生

大場 真・国立環境研究所・社会環境システム研究センター・室長

野呂達也・金城学院大学・非常勤講師

林 希一郎・名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授

### 1. 研究目的

森林バイオマスは我が国の気候に適した再生可能エネルギー資源であり、森林の持つ多様な生態系サービスに配慮した持続可能な資源利用が求められる。森林バイオマス資源量は、樹種・林種による生理・生態的特徴、気候・土壌・地形など生育環境、造林・間伐・主伐など施業管理に依存するため、その利用戦略の策定には、広域適用性と汎用性を有する資源量推計手法の開発が求められる。本研究は森林バイオマスエネルギー資源量推計の高度化を目的とし、地理情報、植生情報、リモートセンシング、生態系モデルの統合的利用による手法を開発する。

### 2. 研究内容と成果

目的達成のため、本研究は UAV (unmanned aerial vehicle) を利用した空中写真の解析により、森林バイオマス資源を推定する解析法の開発と推定モデルの構築をおこなった。岐阜県中津川のスギ人工林を対象林分とし、2017年10月に UAV によってデジタル空中写真を撮影した。同時に対象林分の毎木調査をおこない、樹高と胸高直径を測定した。空中写真を SfM (structure from motion) 処理して 3D 点群データを作成し、さらに 0.1 m メッシュの DEM (digital elevation model) と DCM (digital canopy model) を作成した。LidAR による樹冠解析手法を応用して DCM から立木個体を識別し、また樹高を計測した。また DCM から、樹冠の形状パラメータである樹冠長、樹冠直径、樹冠曲率を抽出し、これより樹冠表面積を計算した。次に樹高と樹幹表面積を変数とする伊藤と松英(2008)の式によって、幹材積の推定モデルを作成した。中津川のスギ林と前年に実施した高山のヒノキ林の林分調査から井上と黒川(2001)の材積推定式で求めた幹材積を実測値とし、最尤推定により求めた。

幹材積の実測値と推定値を、図 1 に示す。調整済み  $R^2$  値は、スギが 0.55、ヒノキが 0.74 で、ヒノキの推定精度は LidAR を用いた既往研究より高かった。以上のように UAV を用いた簡便な測定により、森林バイオマスを推定する方法論が確立でき、これを用い



て持続可能なエネルギー資源供給炭素隔離に資する統合的評価・管理の道筋ができた。

### 【研究成果の公表状況】

<原著論文>

なし

<国際・国内会議>

- Katada, Y., Hayashi, K., Sugita, S., Machimura, T., Fujimoto, A., Assessment of forest ecosystem services using unmanned aerial vehicles. —Case study of *Chamaecyparis obtusa* forest in Takayama, Japa—. IAIA17 Conference Proceedings, Montreal, Canada, 4-7 Apr. 2017.
- Fujimoto, A., Machimura, T., Matsui, T., Hayashi, K., Sugita, S. and Katada, Y., Application of UAV-SfM technique to estimate forest stand structure and biomass in Takayama, Japan, International Symposium on Remote Sensing 2017, Nagoya, 17–19 May 2017.
- Machimura, T., Fujimoto, A., Matsui, T., Hayashi, K., Sugita, S., Katada, Y., Application of UAV-SfM Technique to Forest Biomass Assessment Supported by an Empirical Crown Shape to Tree Growth Conversion, International Conference on Materials and Systems for Sustainability 2017, Nagoya, 29 Sep.–1 Oct. 2017.
- Hayashi, K., Sugita, S., Machimura, T., Fujimoto, A. and Takagi, H., Forest carbon stock assessment by a UAV technique: Case study in Japanese forest. WRF2017, Geneva, Switzerland, 24-25 Oc. 2017.

<産業財産権>

なし

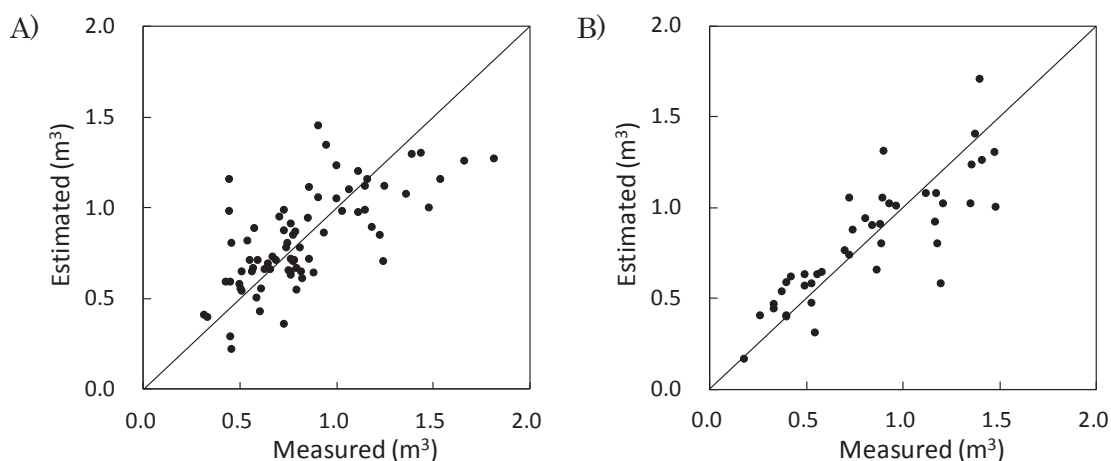


図1 幹材積測定値と UAV-SfM による推定値の比較。A) スギ、B) ヒノキ。

## 将来の都市交通とその交通環境への影響に関する研究

Future urban mobility and its effect on traffic environment

Li Dawei · 中国東南大学 · 都市交通工学研究所 · 准教授  
 三輪富生 · 名古屋大学 · 未来材料 · システム研究所 · 准教授

### 1. 研究目的

自動運転車や電気自動車, さらにはそれらを使ったカーシェアリングやライドシェアリングのような新たな交通システムは, 都市交通を大きく変化させつつある. 一般には, これらは都市交通に関わるエネルギー需要を削減したり, 交通システムを効率化させることで, 環境負荷を削減できると考えられている. しかし, 今後これらの新たな交通手段の利用が広く普及した場合には, 都市内の交通需要の構造が大きく変化すると考えられる. 特に, ライドシェアリングやバイクシェアリングは世界中で普及が進んでおり, 既に数年前の交通状況から変化しつつあるといえる.

そこで, 本研究では, ライドシェアリングシステムの利用データを分析することとした. 中国南京市のガソリンスタンドに立ち寄ったドライバーに対してアンケート調査を行い, ライドシェアドライバーがどのように乗客を選んでいるかを分析する. 既往研究では, ライドシェアシステムのプラットフォーム設計や市民の利用意向に関する研究は多いが, 供給側であるドライバーの乗客選択行動については知見が非常に少ない. したがって, 本研究によって, ライドシェアシステムが提供する交通容量に関する知見を得ることが可能となる.

### 2. 研究内容と成果

DiDi 社のドライバーに回答を求めたアンケート調査は, ドライバーの属性 (性別, 年齢, 職業, 年収など) と乗客に関する仮想質問 (SP 調査) である. SP 調査では, 迂回距離の程度, 乗客までの距離, 料金, 乗客の容姿レベル,

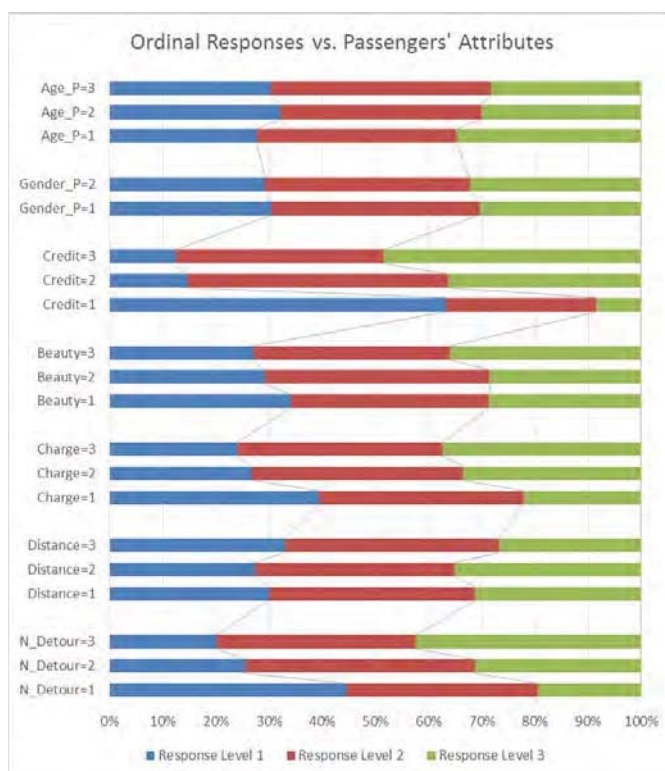


図 乗客情報と乗客選択の傾向

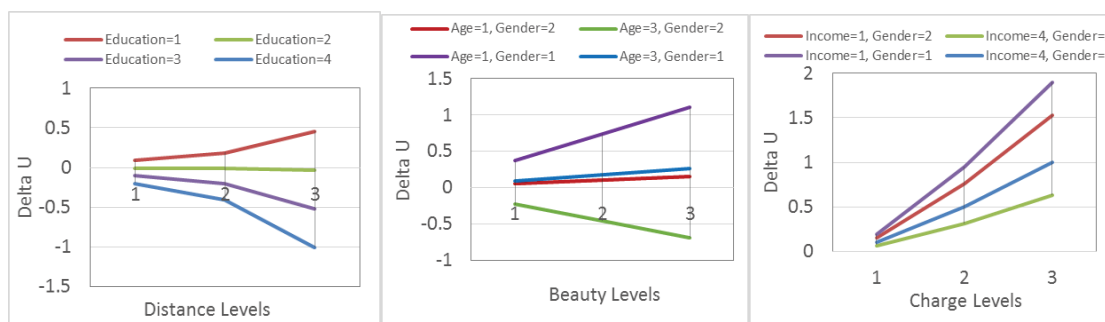
乗客の安全性（過去のドライバーの評価）、乗客の性別と年齢などである。調査は2017年5月に実施した。

得られたデータの基礎集計結果より、ドライバーによる乗客選択には乗客の安全性と迂回距離が強く影響すること（図-1）、ドライバーの年収が低いほど、乗客の特徴に関係なく、乗客を受け入れる傾向が強いことなどが示された。

さらに、多くの影響要因を考慮した多変量解析を行うことを目的として、ドライバーの乗客選択の程度を順序選択モデル（オーダードロジットモデル）によってモデル化した。ここでは、各ドライバーに27回の質問を行っているため、データ内で誤差相関が生じてしまう。このため、誤差相関を考慮したモデルとなっている。

推定結果より、ドライバーの年齢が高いほど、また高学歴であるほど、乗客の特徴に左右されず、受け入れやすい傾向が示された。乗客の属性については、容姿が優れた女性であることや報告された乗客の安全性が、乗客として受け入れられるために比較的強い影響があることが示された。ただし、ドライバーの年齢が高まるほど、その傾向が低下することも示された。

さらに、ドライバー属性と乗客属性の相互影響を考慮した分析結果から、高学歴のドライバーほど効率性を重視しできるだけ近くの乗客を選ぼうとすること、45歳以上の女性ドライバーは、容姿の優れた乗客を受け入れない傾向が示された（図-2）。



(a) 乗車場所までの距離とドライバーの教育レベルの関係  
(b) 乗客の容姿とドライバー属性の関係  
(c) 支払金額とドライバーの年収の館恵瓊

図-2 ドライバー属性と乗客属性が乗客受入意識に与える影響

以上より、ドライバーと乗客の相互影響が強いライドシェアリングシステムにおいては、受容と供給の関係が複雑であることが示された。このことは、道路環境の改善のために交通市場に投入されるライドシェア供給量が、必ずしも期待した効果を発揮できるとは限らないことを意味している。今後は、より現実的な変数設定によりデータ収集を行い、より詳細な分析を行う予定である。

### 【研究成果の公表状況】

現在のところ無し

## 可視光イメージセンサ通信システムの研究開発

### Research and Development of Visible Light Image-Sensor Communication Systems

和田忠浩・静岡大学・工学部・准教授

坪田章宏・静岡大学・総合科学技術研究科・修士 2 年

林毓鋒・静岡大学・総合科学技術研究科・修士 2 年

宮崎雅也・静岡大学・総合科学技術研究科・修士 1 年

岡田啓・名古屋大学・未来材料・システム研究所・准教授

#### 1. 研究目的

本研究では、デジタルサイネージ（電子看板）に用いられている液晶ディスプレイとスマートフォンなどの携帯端末に通常装備されているカメラ（イメージセンサ）を用いて情報を無線伝送する可視光イメージセンサ通信システムについて検討する。この可視光イメージセンサ通信では、電子広告などの視覚情報が表示されている液晶ディスプレイに、人に視認されないようにデータ情報を重畳して通信を行う。通信のための専用の送信機を用いるのではなく、他の機能に付随して情報伝送を行うため、通信のためだけに電力の消費をすることなく、省エネルギーなシステムであると言える。本システムを実現するためには、本来の機能である視覚情報を阻害せずに伝送誤りを低く抑えつつ伝送容量が大きい情報重畳伝送方式が必要である。本研究では、これを実現する伝送方式の検討、およびその実装実験を行うことで、可視光イメージセンサ通信システムの実現を目指す。

#### 2. 研究内容と成果

平成 29 年度は、時刻同期ずれの影響軽減策について主に検討した。イメージセンサ可視光通信システムでは、送信機である LCD と受信機であるイメージセンサは互いに独立したクロックにより動作しているため、送信機における動画像の更新タイミングと受信機の撮影タイミングに時刻ずれが発生することがある。つまり、受信機のイメージセンサの露光中に LCD 上に表示されている画像が切り替わることがある。このとき、受信機では切り替わりの前後に表示されていた画像の混合画像を取得することになる。さらに、携帯端末のカメラで用いられている CMOS (Complementary Metal Oxide Semiconductor) イメージセンサでは、ローリングシャッター方式と呼ばれる読み出し方式を主に採用している。ローリングシャッター方式では蓄積された電荷は各画素内の増幅器にて電圧に変換され、行（走査線）ごとに順次読み出される。したがって、各走査線の読み出し時間が重なることがなく、それに伴い各走査線の露光時間の開始が少しずつずれる。もし、各走査線の露光中に送信機の表示するフレームが切り替わると、受信機は各走査線において連続する二つの送信フレームの混合割合が異なる混合画像を取得することとなる。このように、各走査線で連続する送信フレームの混合割合が異なる現象をローリングシャッター現象と呼ぶ。イメージセンサ可視光通信システムでは、受信機が取得した画像から画像処理を用いて送信されたデータ情報を復調する。混合画像を取得した場合、元の送信された画像とは異なる

る混合画像からデータ情報の復調を行うこととなり、通信性能が劣化する要因となる。

そこで本研究では、まず始めに送受信機の時刻非同期動作とローリングシャッター現象が受信機で取得する画像に与える影響についてシミュレーションにて評価を行った。その結果、露光時間の短縮により撮影された画像における混合画像が発生している面積が減少していることが分かった。また、送受信機の同期ずれが生じている場合、取得画像の上端と下端で異なる色になっていることが分かった。

そこで、露光時間を短くすること、送信画像の上部と下部にパイロットを挿入することで同期状態を検出する手法を提案した。提案システムを実機実装し、その性能を実験により評価した。まず始めに予備実験を行い、露光時間が 6ms 程度までは通信性能に影響を与えないことを確認した。そして、データ伝送実験を行い、提案方式により再撮影率を低く抑えつつ、ビット誤りを減らすことができるのを示した。

### 【研究成果の公表状況】

<国際・国内会議>

- Y. Lin, T. Wada, K. Mukumoto, H. Okada, "Performance Evaluation of Information Embedding Schemes Based on Wavelet Transform for Parallel Transmission Visible Light Communication Systems," IEEE Global Conference on Consumer Electronics, Nagoya, 2017年10月24日～27日.
- H. Ichikawa, S. Sato, H. Okada, T. Wada, K. Kobayashi, M. Katayama, "A Synchronization Method between Transmitter and Receiver for Image Sensor Visible Light Communications," IEICE Indonesia-Japan Joint Workshop on Ambient Intelligence and Sensor Networks, Yogyakarta, Indonesia, 2017年11月29日～12月1日.
- 市川寿, 佐藤翔, 岡田啓, 和田忠浩, 小林健太郎, 片山正昭, "イメージセンサ可視光通信における送受信機間同期手法の一検討," IEICE RCS 研究会, 琴平, 2017年4月24日～25日.
- 宮崎雅也, 林毓鋒, 和田忠浩, 椋本介士, 岡田啓, "ウェーブレット変換に基づく情報埋め込み手法を適用した並列伝送型可視光通信システムの画質評価," IEICE WBS 研究会, 2017年7月13日～14日.



## 協調型高度道路交通システムによる交通流および無線通信の 過集中緩和に関する研究開発

Research and development of cooperative intelligent transport systems for  
mitigation of excessive concentration of transport and wireless communication traffic

岡本英二・名古屋工業大学・大学院工学研究科・准教授  
堀池直登・名古屋工業大学・大学院工学研究科・修士2年  
伊藤啓太・名古屋工業大学・大学院工学研究科・修士1年  
宮地明孝・名古屋工業大学・大学院工学研究科・修士1年  
佐々木健吾・名古屋工業大学・大学院工学研究科・修士1年  
板東芳幸・名古屋工業大学・大学院工学研究科・修士1年  
岡本頌平・名古屋大学・大学院工学研究科・修士1年  
岡田啓・名古屋大学・未来材料・システム研究所・准教授

### 1. 研究目的

高度運転支援システムではこれまで自車両のセンサ情報をもとにした制御が主に検討されてきたが、さらに無線通信を活用する協調型高度道路交通システムを導入することで、より高度な制御や交通集中の回避を実現することができる。この実現のために、ローカルダイナミックマップ (LDM) と呼ばれる動的な交通データが活用されることが期待される。しかし、フィールド上に多数の車両が存在する場合、無線トラフィックに爆発的な増加が起これ、LDM 情報処理ができなくなることが問題となる。そこで、モバイルエッジコンピューティング (MEC) 技術を用いてこれを緩和し、電波の有効利用と伝送の低遅延化を両立した革新的なシステムを創出することを目標とする。

### 2. 研究内容と成果

図1にLDMとMECの組み合わせの概念を示す。図の右側がMECを導入したネットワーク図である。ユーザとの距離が近い順に上から層になっており、各層のデータ中継装置(eNodeBやGW)にMECサーバが設置されている。LDM第4層データは更新頻度が高いため揮発性が高く、またその情報が利用されるのは近隣の車両となるため、

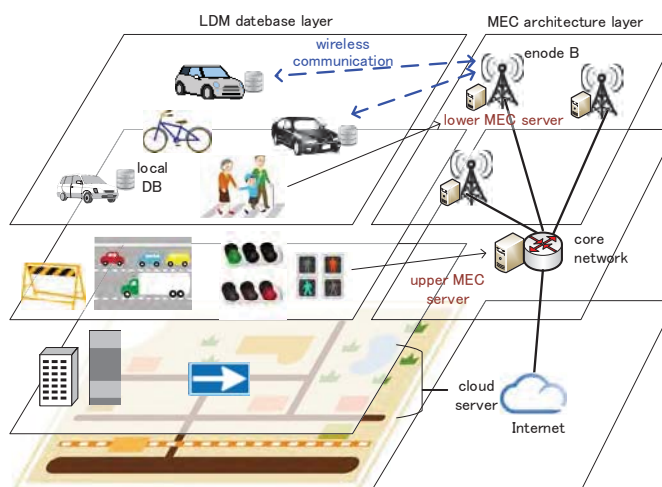


図1 LDM (左側) と MEC (右側) の組み合わせの概念

共有範囲を eNodeB や GW などユーザに近い範囲に留めることができる。これによりローカルな情報処理を eNodeB や GW 周辺で完結させることができ、CN への伝送を必要最低限に抑えることで低遅延情報処理を実現させることができる。

交通過集中時の LDM 構築を目的とするデータ伝送において、このシステムにより MEC を用いることの伝送遅延軽減効果を確認するために、交通流シミュレータおよびネットワークシミュレータを用いたシミュレーションを行った。交通流シミュレータでは国道 23 号線の交通量を模擬した交通流を再現した。また得られた車両位置データをネットワークシミュレータにインポートし、ネットワークシミュレーションを行った。本研究では初期検討として直線道路とし、MEC サーバを S-GW のみに設置した場合を考えた。シミュレーション結果を図 2 に示す。想定環境において MEC を設置した場合に設置しない場合と比較して平均伝送遅延が 23.1ms 短縮することが明らかになった。また 5G では想定環境において目標値を達成できる可能性が十分に考えられることがわかった。

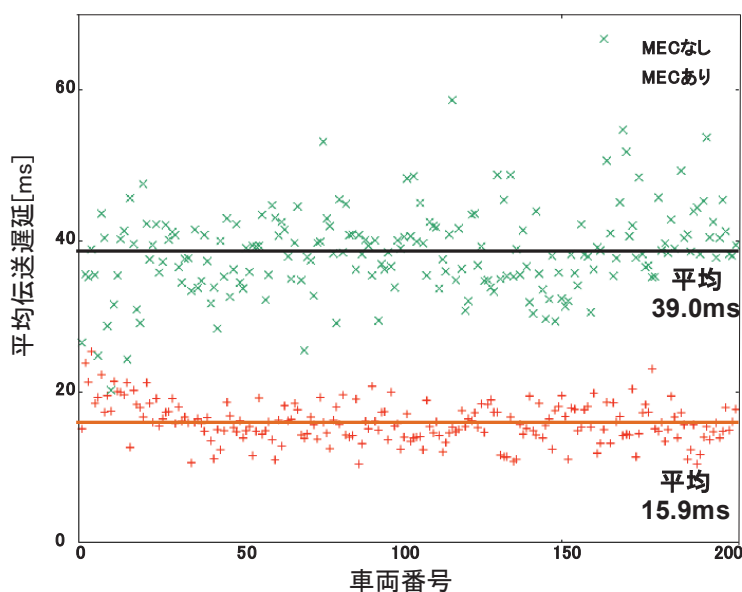


図 2 各車両の平均伝送遅延の散布図

## 【研究成果の公表状況】

<国際・国内会議>

- E. Okamoto, H. Okada, Y. Ishi, S. Makido, "Performance Improvement of Low-latency V2I Uplink Using Superposed Cooperative V2V Transmission," IEEE Vehicular Technology Conference, Toronto, Canada, 2017年9月24日～27日.
- S. Okamoto, H. Okada, Y. Ishii, S. Makido, E. Okamoto, M. Katayama, "Transmission Delay Reduction of Dynamic Map Data by Using MEC," International Conference on Materials and Systems for Sustainability, Nagoya, 2017年9月29日～10月1日.
- E. Okamoto, H. Okada, Y. Ishi, S. Makido, "Low-latency V2I Uplink LDM Transmission Scheme using Superposed Cooperative V2V Transmission," International Conference on Materials and Systems for Sustainability, Nagoya, 2017年9月29日～10月1日.
- 岡本頌平, 岡田啓, 石井良尚, 牧戸知史, 岡本英二, 片山正昭, "ダイナミックマップデータ伝送における MEC を用いた伝送遅延軽減の初期検討," 電子情報通信学会 RCS 研究会, 石垣, 2017年6月21日～23日.

## 水噴霧冷却システムの性能評価に関する研究 Study on Performance Evaluation for Evaporative Cooling System

長谷川 豊・名古屋工業大学・工学研究科・教授  
牛島 達夫・名古屋工業大学・工学研究科・准教授  
加藤 義貴・名古屋工業大学・工学研究科・博士前期課程 2 年  
西山 和輝・名古屋工業大学・工学研究科・博士前期課程 1 年  
小島 義弘・名古屋大学・未来材料・システム研究所・准教授

### 1. 研究目的

マイクロガスタービンシステムの高効率化を図る一つ的手段として、小型圧縮機の吸込み流れに微細水噴霧質を導入し、吸込み流れならびに圧縮機内部流れを冷却（水噴霧冷却）することにより、圧縮機仕事を低減する方法がある。

本研究は、超音波振動子を用いた水噴霧質の導入条件の最適化と、これに伴う圧縮仕事低減効果の改善を図ることを目的の一つとする。また、圧縮機入口冷却に関する数値解析モデルの妥当性を詳細に検討し改良することを目指す。

### 2. 研究内容と成果（12pt ゴシック体）

平成 29 年度には以下に挙げる研究内容を実施し、要素技術の確立を目指した。

- ① 水噴霧質導入部流路における空気流れの特性と水温及び水深が、水噴霧冷却に及ぼす影響を実験的に解した。実験においては、オーバーフロー流路を作成し水深及び水温が一定となるようにし、また流路入口に金属メッシュを設置して乱れの影響を取り除いた。流路内の水噴霧質を伴う空気流における温度・湿度分布を計測し、装置の改良が冷却性能に及ぼす影響を調査した。
- ② 水噴霧冷却システムにおいて、水温、空気流中の水噴霧質の拡散・移流・蒸発とそれに伴う空気冷却に関する数値解析モデルを構築し、実験結果との比較によりモデルの妥当性を検証した。

以下には、内容②で構築した数値解析モデルと、内容①で行った改良した実験装置から得られた結果との比較検証結果を報告する。

**2.1 解析方法** 解析対象とした導入流路は鉛直方向高さ  $H=118\text{mm}$ 、スパン方向幅  $W=110\text{mm}$ 、流れ方向高さ  $L=750\text{mm}$  である。流路下部には水が貯められ、底部に設置した超音波振動子を作動させることで水柱が生じ、その表面から水噴霧質が導入される。水噴霧質は蒸発しながら下流へと運ばれ、吸込み空気温度を低下させる。解析の流れを Fig.1 のフローチャートに示す。水噴霧質の粒子径は、抜山・棚沢の式を使用して不均一性を考慮した。導入した水噴霧質、熱、蒸気の拡散には、二次元拡散方程式を使用し、流れ方向の拡散、断面内の移流による影響は無視できるもの

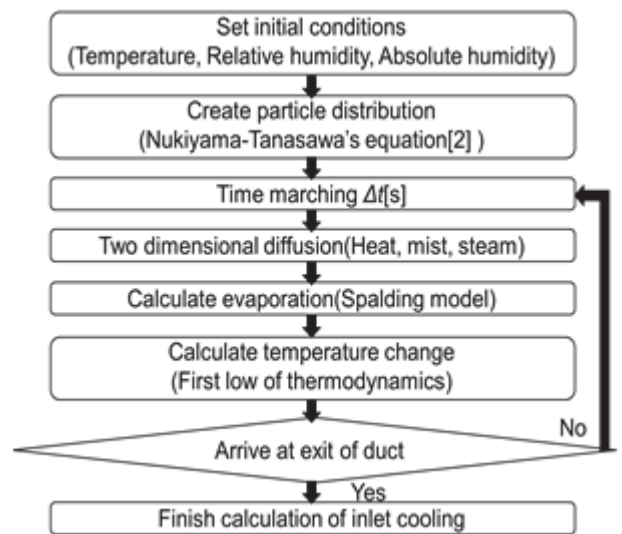


Fig. 1 Flow-chart of analysis for mist evaporation

と仮定した。拡散係数は乱流拡散係数として与え流路内の乱流特性の影響を考慮したが、水噴霧質、熱、蒸気の拡散に対して同一の値と仮定した。導入した水噴霧質の蒸発計算には Spalding モデルを使用し、水噴霧質の蒸発により変化する周囲空気温度は、熱力学第一法則に水噴霧質の蒸発、液滴温度上昇などの影響を加えることにより予測できる。

## 2.2 解析結果と妥当性評価

解析における水噴霧質導入部の概略図を Fig.2 に示す。流れ方向の断面  $z/H=5.25$ 、流路幅の中央  $x/W=0$  において  $y$  方向に空気流の温度低下量、相対湿度を測定した実験結果と解析結果を比較して Fig.3 に示す。図中には複数回の実験値の標準偏差をエラーバーで示す。

実験結果と解析結果は、いずれも流路下部に向かうにつれて相対湿度・温度低下量の増加の傾向を示している。オーバーフロー流路あり、メッシュなしの実験結果は解析結果と概ね一致しているが、オーバーフロー流路あり、メッシュありの実験結果は解析結果から大きく外れ、温度低下量が低くなっており水噴霧冷却装置としての性能は落ちた。メッシュの設置により流路内の乱れ強さが低減し、水噴霧質が流路全体に拡散しなかったことが一因と考えられる。そこで、乱流拡散係数を従来と比べて 25% 程度の小さな値にした場合、解析結果と実験結果は良く一致した。実験と解析のずれを生じる原因として、導入する水噴霧質の温度の影響を調査したが、ずれの大きさを改善する結果に至らなかった。今後、CFD 解析を用いて流路内の移流・拡散・乱れ強さを調査すると共に、乱流格子を用いた乱れの制御、また粒子径分布・密度分布の計測を行うことにより、解析モデルの改善を図る予定である。

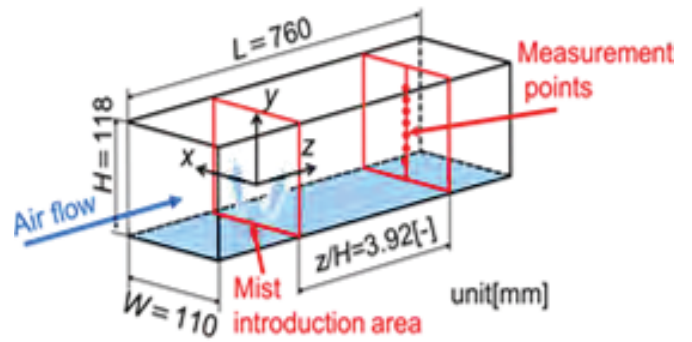


Fig. 2 Introduced area of mist in duct

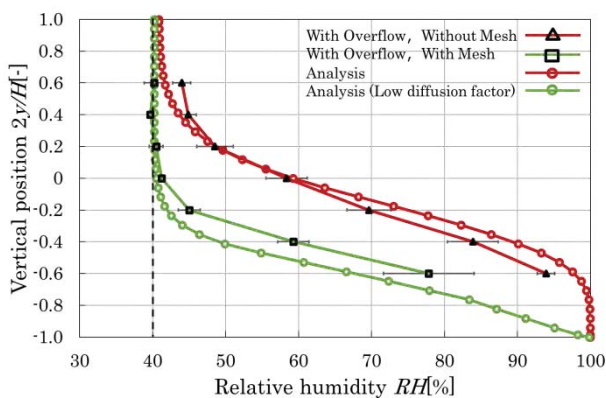
### 【研究成果の公表状況】

<原著論文> 該当なし

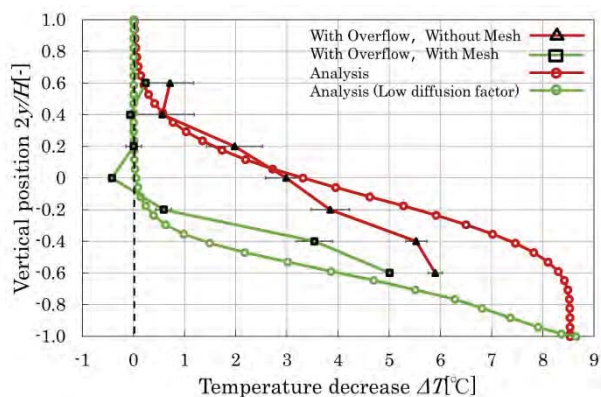
<国際・国内会議> 以下の 1 件

- K. Nishiyama, Y. Hasegawa, Y. Kojima, T. Ushijima, Study on compression work reduction of centrifugal compressor for Micro Gas Turbine system using evaporative cooling method, International Conference on Materials and System for Sustainability 2017 (2017.9.29~10.1, Nagoya Univ.). アブストラクトを添付

<産業財産権> 該当なし



(a) Distributions of relative humidity



(b) Distributions of temperature decrease

Fig. 3 Comparison of analysis and experimental results obtained for air flow in mist introducing duct



## 液中に分散した微粒子群から形成される塗布膜の実測に基づく解析

### Direct Measurement of Painted Film from Particle Dispersion

花崎逸雄 東京農工大学・先端機械システム部門・特任准教授  
松田佑 名古屋大学・未来材料・システム研究所・准教授

#### 1. 研究目的

簡便で省エネルギーなプロセス技術であるプリンティングによって電子デバイスの回路配線などを形成する技術の開発は、いわゆるプリンティッド・エレクトロニクスの可能性が拓けるにつれて本格化してきている。産業界でも既に多くの企業が、導電性インクの開発・販売に進出している。個々の企業は独自の物質組成・配合比率に基づいて定まるプロセス条件を経験的に持っているが、多数の因子が複雑に関係するインクの塗布膜形成現象の法則性について、普遍的な観点に基づく知見は乏しい。本研究では、典型的な物質構成に基づいて塗布膜形成現象の支配因子を「力学的な」観点から整理する。これにより、これまで化学組成の工夫に依存してきた塗布膜形成技術に力学的な設計指針を与えることができ、関係する産業界全体の経済的損失や環境負荷を軽減できる革新的省エネルギーとなる。

#### 2. 研究内容と成果

微粒子群が漂う分散液を乾燥して作製する塗布膜の微細組織は、乾燥過程におけるブラウン運動の特性に大きく影響を受けると考えられるが、乾燥が進んで高濃度になるほど顕微鏡動画データにおける微粒子群の追跡は困難になる。流体中の微粒子の追跡は、これまでにマイクロ流路やナノ流路に対する Particle Tracking Velocimetry (PTV)の盛んな研究事例があるが、これらの研究において微粒子は流体を代表するためのトレーサーであり、濃度や粒径を計測し易い条件に設定するのが前提である。すなわち、微粒子の追跡が困難になるほど濃度を高くすることはない。これに対して微粒子分散液の乾燥過程の研究では、乾燥過程で微粒子が高濃度になる。ここで、従来の一般的な粒子追跡の手順を適用して得られた軌跡群をそのまま用いて、平均二乗変位から拡散係数を評価すると、望む精度が得られない場合が少なくない。この問題の一因として、微粒子の追跡時における他粒子との誤認がある。これに対して我々は、誤認した粒子軌跡を多く含む軌跡群データに対して、事前の知識や入力パラメータ無しに統計的に識別する簡便な手法を開発した[1]。そして、本研究では、この提案手法が高濃度条件下でも粒子追跡に基づく拡散係数の評価を可能にすることを検証して示した。具体的には、一般的な粒子追跡のアルゴリズム[2]を用いて粒子追跡を行う際のあり得る変位の閾値を示す追



跡用入力パラメータを変えて、水中に漂う直径  $1.4 \mu\text{m}$  のポリスチレン微粒子群の追跡を行った。そして、その軌跡群データに対して、従来法と新規手法の2種類の手順により拡散係数を評価した。その結果、Fig.1 に示すように、従来法(a)では高濃度になるにつれて、また、変位閾値を大きくするにつれて、異なる粒子を同一だと誤認した軌跡のデータが増えることにより拡散係数の評価は大きな誤差を含むようになったことが、Stokes-Einstein の関係に基づく解析解  $D_{SE}$  との比較からわかる。これに対して新規提案手法では、(b)に示すように濃度を高くしても、誤認した軌跡群を統計的に識別できるため拡散係数の評価が成立していることがわかる。このように、微粒子分散液の塗布膜形成の研究に必要な、高濃度条件における微粒子分散系の拡散係数評価手法を示した。

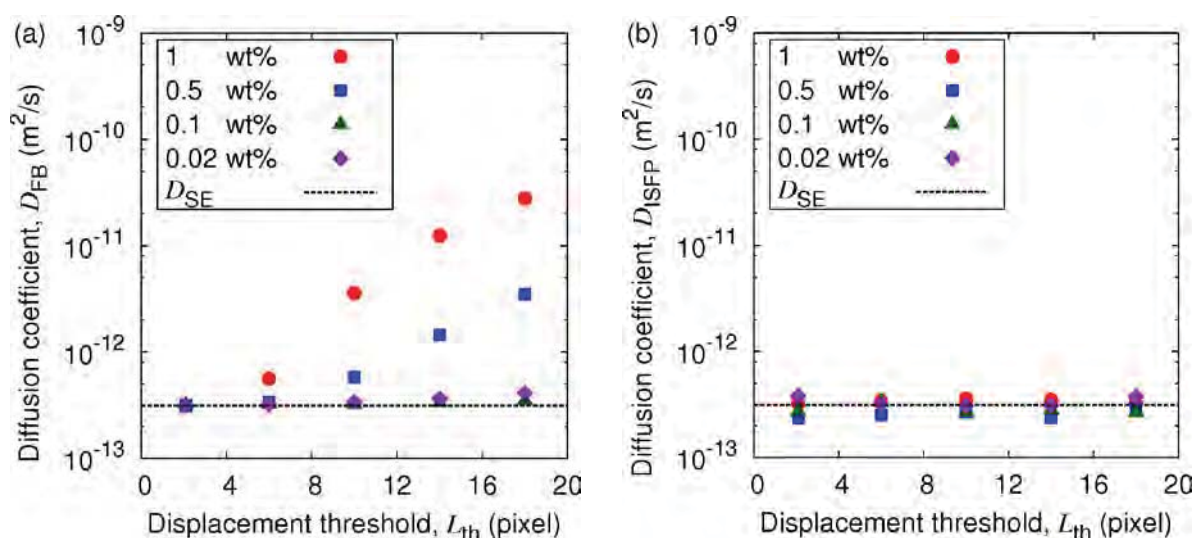


Fig.1: Sensitivity of evaluated diffusion coefficient on the displacement threshold parameter for (a) the naive implementation of Ref. [2] and (b) the logarithmic scale technique [1] applied to Ref. [2].

#### References

- [1] R. Motohashi, I. Hanasaki, Y. Ooi, and Y. Matsuda, *Micro Nano Lett.*, 12, 506-510 (2017).
- [2] I. Sbalzarini, and P. Koumoutsakos, *J. Struct. Biol.*, 151, 182-195 (2005).

#### 【研究成果の公表状況】

<国際会議>

- Reiji Motohashi, Itsuo Hanasaki, Yuto Ooi, and Yu Matsuda, “Influence of particle concentration on the difficulty in the evaluation of diffusion coefficient from particle tracking data: robustness of the logarithmic scale technique”, International Conference on Materials and Systems for Sustainability (ICMaSS2017), Nagoya, Japan, 30th September 2017.

## 新しい温度計測技術を用いた高効率沸騰熱伝達冷却機構の研究 Study on boiling heat transfer mechanism of high efficiency coiling system by innovative temperature measurement technique

研究代表者 河南治・兵庫県立大学大学院・工学研究科・准教授  
研究所担当教員 松田佑・名古屋大学・未来材料システム研究所・准教授

### 1. 研究目的

低損失・高耐熱型の半導体の導入によっても、適切な温度での作動によって ON 損失が著しく低減されるため、冷却能力の飛躍的増大なくして将来の省エネは実現不可能である。このため、潜熱輸送を利用した沸騰・二相流体冷却ループが検討されているが、より一層の冷却効率の向上が強く求められており、沸騰熱伝達機構の十分な理解に基づいた冷却システム構築が必要不可欠である。本提案では、沸騰熱伝達機構の理解に不可欠な伝熱面近傍の温度分布と気液分布を把握するため、申請者らが開発している感温塗料を用いた新規な沸騰伝熱面温度計測法によって、沸騰熱伝達に関する新たな知見を獲得する。具体的には、沸騰熱伝達の熱輸送に重要な、核沸騰から膜沸騰に遷移する際のドライアウト現象に着目し、伝熱面温度分布を把握することで、ドライアウト現象の素過程を理解することを目指す。

### 2. 研究内容と成果

申請者らは「感温塗料を用いた気液二相場の伝熱面温度分布計測」を試みており、これまでに、世界で初めて伝熱面側からの気液挙動と温度分布計測の同方向・同時観測を実現し、単一気泡流における気泡後流部の温度低下などを明らかにしてきた。本研究では、これまで構築してきた沸騰・二相流体ループを用いて、高熱流束を試験流体に印加し、ドライアウトの直前・直後における伝熱面温度分布を、感温塗料を用いて実現する。試験流体として、低沸点・低潜熱媒体の FC-72、高温源として水を用い、ループ内圧力・加熱試験部入口流体温度および流量・水温度の各項目を適切に設定し、ステレオビューワーにて、高感度カメラ 1 台で感温塗料の発光強度の計測と気液挙動観測を行った。結果の一例を図 1 に示す。沸騰により生じる気泡内部では液体

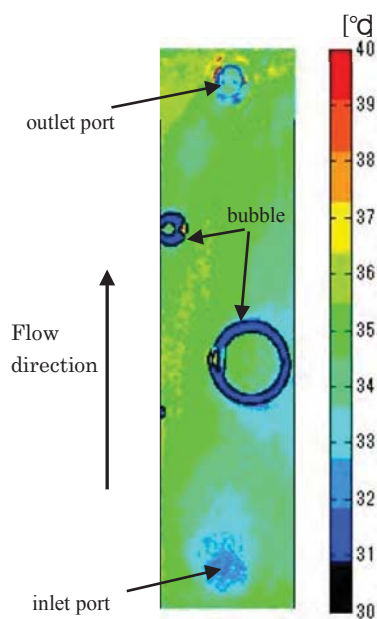


Figure 1 Typical result of temperature distribution measured by TSP. Double circles show bubbles. The area between the double line is gas-liquid interface.

部に比べ伝熱面温度が低下している様子が確認できた。また沸騰気泡後方での温度低下も確認された。今後はドライアウト前後での温度分布の取得に向けて研究を実施していく。

### 【研究成果の公表状況】

<国際・国内会議>

- K. Ogawa, Y. Matsuda, O. Kawanami, Y. Egami, H. Yamaguchi, T. Niimi, “Development of Optical Temperature Distribution Technique for Gas-Liquid Two-Phase Flows”, International Conference on Materials and Systems for Sustainability (ICMaSS2017), Paper No. 1050, 2017, 9.
- Kawanami, Y. Matsuda, Y. Egami, I. Honda, H. Yamaguchi, T. Niimi, “Distributions of Temperature and Heat Flux around Bubbles of Flow Boiling in Narrow Channel”, Proc. 16<sup>th</sup> Int. Conf. Heat Transf. Paper No. IHTC-16-21918, (2018) (accepted).

## 凸面に発生する渦構造に関する研究

### Study on Vortex Structure on Convex Surface

飯尾昭一郎・信州大学・工学部機械システム工学科・准教授  
出川 智啓・名古屋大学・未来材料・システム研究所・助教  
内山 知実・名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授

#### 1. 研究目的

2030 年のエネルギーベストミックスの実現に向けて再生可能エネルギーの利用拡大が進められる中で、水力発電はベースロード電源として必要な役割を期待されており、小水力発電の開発と普及が急務となっている。本研究はその小水力発電に用いる水車の性能向上に関するものである。滝用水車の導水路には、流量変化時でも水流のランナへの作用位置を一定とするために曲面流路が用いられている。曲面流路は上部が開放された開水路であり、落差工上流からの水流を鉛直下向きに偏向するために使用する。水平から鉛直方向へと水流の向きを変化させるために、四分円で構成された凸面を有しており、この凸面部を重力の作用によって流下する水流の自由表面には流れ方向に筋をなす波状の変形（定在波）が発生する。本研究では、水車性能の低下を招く定在波について、その成長条件を調べることに注力した。

#### 2. 研究内容と成果（12pt ゴシック体）

測定部の概略を図 1 に示す。曲面流路は、室内に設置した開水路の出口端から始まり、四分円とそれに正接した鉛直下向きの平板から成り、透明アクリル製である。四分円の曲率半径は  $R_c=60\text{mm}$ 、平板部の長さは  $H_{pl}=300\text{mm}$ 、流路幅は  $250\text{mm}$  である。定在波を人工的に発生させるために、長さ  $20\text{mm}$ 、厚み  $2\text{mm}$  の平板を流路幅方向中央に設置した。平板の下流端は開水路端と一致させた。この平板により水流の自由表面には平板を挟んで一對の山部が生じる。この山部を定在波発生起点とした。レーザーシート光とハイスピードカメラを用いて水流断面形状を観察するとともに、レーザドップラ流速計（LDV）により水流速度を測定した。観察した水流断面位置および流速測定位置は、四分円部を  $\theta_m=50\sim 90\text{deg}$  まで  $10\text{deg}$  刻みとした。ハイスピードカメラのフレームレートを  $60\text{fps}$  とし、5 秒間の時系列画像データを画像処理により平均化し、自由表面形状を抽出した。水流の自由表面側は LDV のレーザ光が乱反射するため、LDV のプローブは曲面流路裏側に設置した。測定角度位置は  $\theta_m=50\sim 80\text{deg}$  の範囲を  $10\text{deg}$  刻みとした。流量は、 $Q=2, 4, 6, 8\times 10^{-3}\text{m}^3/\text{s}$  とした。

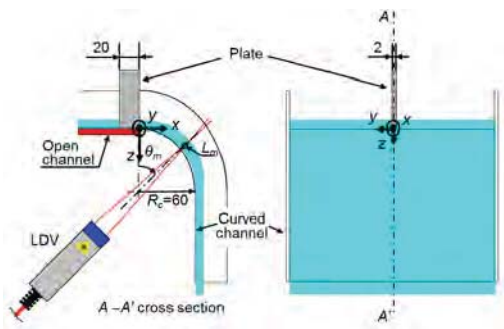


図1 測定部概略

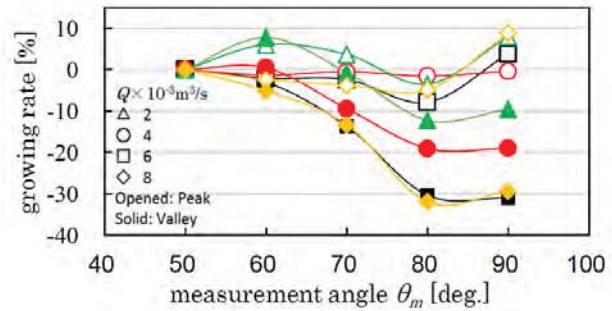


図2 水流厚みの成長率

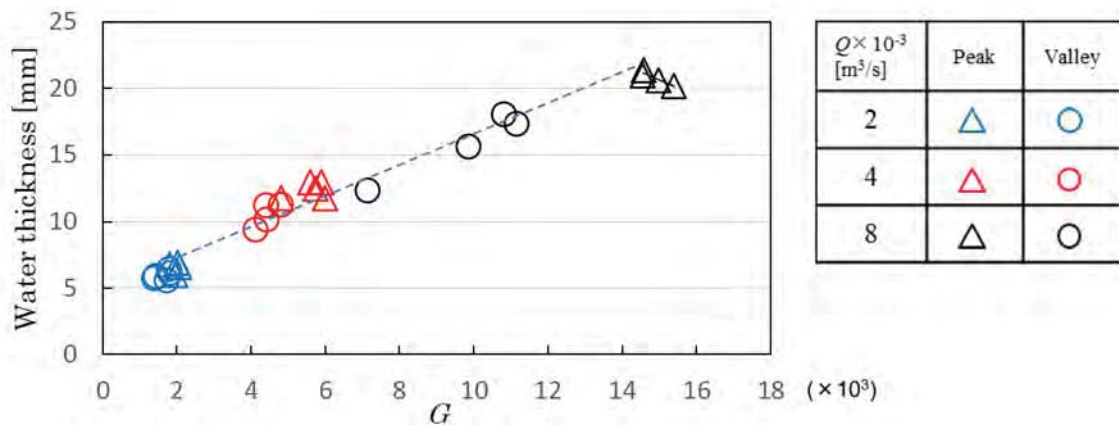


図3 ゲルトラー数と水流厚みとの関係

定在波の成長具合と流量条件との関係の評価するために、 $\theta_m=50\text{deg}$ .における水流厚みを基準として、山部と谷部の厚みの変化率を算出した。結果を図2に示す。白抜きが山部、塗りつぶしが谷部の結果である。定在波の谷部は $\theta_m$ の増加とともに減少、つまり水流厚みが薄くなり、その傾向は流量が大きくなると顕在化している。一方、定在波の山部における水流厚みについては流量との明確な相関はなく、 $\theta_m$ の増加による厚みの変化は谷部よりも小さいことがわかる。

図3にゲルトラー数と水流厚みとの関係を示す。ゲルトラー数は一般的に凹面に沿う流れに関する無次元数であり、本研究では、次式で定義した。

$$G = \frac{U_{m,ave}}{\nu} \sqrt{\frac{t_m^3}{R_c}} \quad (1)$$

$U_{m,ave}$ は水流厚み方向の平均速度、 $t_m$ は水流厚み、 $\nu$ は動粘度である。図3において、ゲルトラー数の増大に伴って定在波が発達することがわかる。この傾向は、定在波の山部と谷部のいずれにおいても同一であり、流量条件によらず一定勾配を持つ直線状に分布することがわかった。今後、定在波の発生機構に関与しているであろう渦構造の特定を進めていく。



## ICT 活用農業のためのセンサネットワークの研究開発

Research and development of sensor networks for ICT agriculture

内藤 克浩・愛知工業大学・情報科学部・准教授

小林 健太郎・名古屋大学・未来材料・システム研究所・助教

### 1. 研究目的 (12pt ゴシック体)

本研究では、ICT 活用農業の実現を目指し、圃場環境で使用するセンサネットワークの研究開発を行う。圃場環境は電波を吸収する植物が多数ある環境のため、本来は適切な場所は無線機器用のアンテナを設置するなどの配慮が必要であるが、これらのアンテナは農作業の妨げとなることが多く、実際には、植物に隣接して機器を設置する必要がある。また、植物の生育管理で利用するセンサは、汎用的に利用される温度センサなどと比較して、大電流を必要とすることが多い。既存マイコンを利用したセンサネットワーク機器では、特別なセンサを利用することを想定しているものは少なく、大電流を必要とするセンサの突入電流を担保することが困難なことも多く、マイコンの動作不良が発生する場合も確認されている。そのため、農業用途を想定した場合には、接続する機器を見据えたマイコン回路の設計が必須である。本研究では、放射温度測定のためのセンサネットワークを作成する。このセンサーデバイス専用のマイコンボードを新規に開発するとともに、既存の標準化プロトコルを拡張することにより、圃場環境での信頼性ある無線通信を実現可能な放射温度測定のためのセンサネットワークを構築する。

### 2. 研究内容と成果 (12pt ゴシック体)

#### 2.1 デバイスの設計と開発

本研究では、ニッケル水素電池による長時間動作が可能なセンサデバイスおよび、パケット中継を行うリレーデバイスを新たに開発した。また、新たに採用するマイコンとクラウドを接続するためのゲートウェイデバイスも開発した。図 1 に開発したデバイスを示す。新たに開発したセンサネットワークシステムでは、System on Chip を利用している TWE-LITE を利用することにより、低消費電力の動作を実現した。また、TWE-LITE は独自の開発環境を用いて提案方式を実装する必要があるため、新たにプログラムの開発を行うことにより、放射温度・室温・湿度・土壌温度・土壌水分・気圧の各種センサから適切に観測値を取得するとともに、2.2 に記載するアクセス制御技術・経路制御技術を実装した。

#### 2.2 通信機能とプロトコルの設計と実装

開発したデバイスにはマルチホップネットワークを構築可能なアクセス制御技術と経路制御技術を新たに実装した。開発した通信機能を用いることにより、情報収集を行うゲートウェイデバイスから木構造のマルチホップ通信経路を確立可能であることを



図 1 a) ゲートウェイデバイス

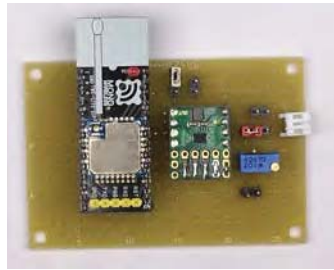


図 1 b) リレーデバイス

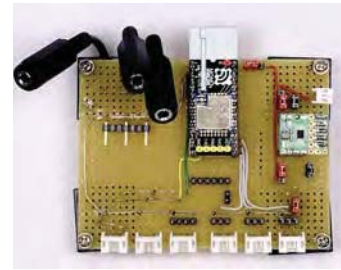


図 1 c) センサデバイス

確認した。また。隣接デバイスが起動している時間帯のみ動作することにより、省電力動作が可能であることも確認した。提案技術を利用することにより、TWE-LITEの省電力性能を有効に活用可能であるため、電池動作により数ヶ月の稼働の見込みがつつある。

### 2.3 圃場実験

本研究では、開発したセンシングシステムを名古屋大学東郷フィールドの圃場に設置することにより、開発機器を用いた基礎的な通信性能の評価を実施した。評価結果より、アンテナ特性から斜面などでの通信距離の減少が確認されたが、リレーデバイスの適切な設置により解決可能であることを確認した。

### 【研究成果の公表状況】 (12pt ゴシック体)

<国際・国内会議> (11pt 明朝体, Times)

- Katsuhiko Naito, Kengo Yamada, “Proposal of Automated Data Collection Scheme for a Field Sensing System,” WMSCI 2017, USA, July 8 - 11, 2017.
- Tomoya Ogawa, Masatoshi Tamura, Takuya Wada, Katsuhiko Naito, “Prototype Implementation of 920MHz based multi-hop wireless sensor networks for agricultural use,” ICMaSS2017, JAPAN, September 29 - October 1, 2017.
- Masatoshi Tamura, Mizuki Murase, Tomoya Ogawa, Takuya Wada, Katsuhiko Naito, “Prototype development of field sensor network system with infrared radiation sensors,” ICMaSS2017, JAPAN, September 29 - October 1, 2017.
- Takuya Wada, Masatoshi Tamura, Tomoya Ogawa and Katsuhiko Naito, “Basic design of the combined field sensing system in IT Agriculture,” ICMaSS2017, JAPAN, September 29 - October 1, 2017.
- Yuya Miyazaki, Katsuhiko Naito, Hidekazu Suzuki and Akira Watanabe, “Development of certificate based secure communication for Mobility and Connectivity protocol,” CCNC 2018, USA, 12-15, January 2018.

## 低撮影速度のカメラを用いた省エネルギー可視光通信の 実現のためのデータ復調手法の開発

Development of Data Demodulation Method for Energy Saving  
Visible Light Communication Using Low-Frame Rate Camera

(代表) 荒井 伸太郎・岡山理科大学・工学部 電気電子システム学科・講師  
(分担・研究所担当教員) 小林 健太郎・名古屋大学 未来材料・システム研究所  
システム創成部門・助教  
(分担) 唐 正強・岡山理科大学 工学部 電気電子システム学科, 学部 4 年

### 1. 研究目的

本研究では、LED 光の点滅を利用したデジタル情報通信技術である「LED 可視光通信」に注目する。LED は白熱灯に比べ低価格であり、高輝度で省電力・長寿命といった利点を持つため、LED 可視光通信は省エネルギーでエコな次世代通信技術であると言える。また、LED 光は人間の目にも識別可能であることから、カメラのようなイメージセンサを受信機として利用できることも大きな特徴である。本技術が実現すれば、スマートフォン等が搭載する低撮影速度カメラを用いて、街中にある LED 照明からデータを受信できるようになると期待している。しかしながら、低撮影速度カメラを用いた場合、レンズのピントずれ等により、LED の認識が困難になり、データの復調に影響を及ぼしてしまう。そこで本研究課題では、平成 28 年度に引き続き、平成 29 年度も継続して低撮影速度カメラの状態に依存しない新たなデータ復調手法の開発を行う。

### 2. 研究内容と成果

平成 28 年度は上述した問題に対し、受信機が撮影する画像を模した擬似撮影画像を用いた信号復調法を提案し、本手法が画像劣化に対する強い耐性を有し、なおかつ優れた信号復調性能を持つことを確認した。さらに、本手法の欠点である送信機の LED 数の増加に伴う計算コストの増加に対しても、郡知能の 1 つであるバイナリー差分進化 (BDE) を組み合わせた信号復調法を提案することで、計算コストの削減を実現した。本年度は当初、BDE を組み合わせた擬似撮影画像を用いた信号復調法の実機による実験を試みることを目的としていた。しかしながら、研究を進めていく段階で、画像の劣化が著しい状態で BDE を用いた場合、局所解と呼ばれる誤った結果を多く導くことが判明した。そこで、本年度は当初の計画を変更し、擬似撮影画像を用いた信号復調法のための BDE に代わる新たな計算コスト削減方法の開発に注視することにした。

新たに開発したコスト削減方法は、受信機で撮影された画像上の LED を 2 つ以上のグループに分割し、そのグループごとに擬似撮影画像を用いた信号復調を行う「画像分割型復調法」である。今、図 1 のような 4×4LED アレー送信機を考える。各 LED は On-Off-Keying によって変調されたデータ

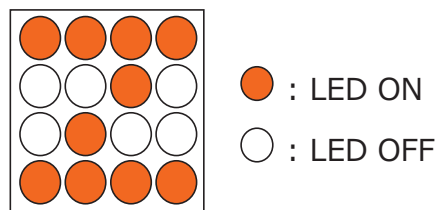


図 1: 4×4LED アレー送信機.

に従って点滅する。受信機ではこの点滅を元に、図2に示す分割型復調を行う。まず、図2(a)のように、Step 1では4×4LEDの内、上側4×3LEDだけに注目した擬似撮影画像を作成し、受信画像の上側4×3LEDとのユークリッド距離 $D_p$ を計算する。この時、計算に用いるのは上側4×3LEDの内、上側4×2LEDのみである。そして、全ての $D_p$ の中で、最小の $D_p$ を選び、その最小 $D_p$ を導いた擬似撮影画像の点滅パターンを上側4×2LEDの復調データとして用いる。次に、図2(b)に示すStep 2において、Step 1で求めた上側4×2LEDの結果を用いて、下側4×2LEDだけに注目した擬似撮影画像を作成し、同様に $D_p$ を計算し、下側4×2LEDの復調データを決める。このように画像を分割して復調した場合、作成される擬似撮影画像の枚数はStep 1で $2^{12}=4,096$ 、Step 2で $2^8=256$ となり、作成される総枚数は4,352となる。4×4LED全てを用いて擬似撮影画像を作成した場合、作成される総枚数は65,536枚であるため、作成画像の削減率は約93%となる。さらに、Step 1での復調において、計算される $D_p$ の信頼性を判断した手法を提案することで復調性能の向上を行ったが、ページ数の関係で詳細は省略する。

これら2つの手法を用いてシミュレーションを行った結果を図3に示す。図3の横軸は $E_b/N_0$  [dB]、縦軸はビット誤り率(BER)を示している。本シミュレーションでは画像を劣化させるためにガウシアンフィルタを用いており、その分散値を0.7一定としている。この図から分かるように、擬似撮影画像を用いた復調法と画像分割型復調法との差は約3dB、信頼性判断を取り入れた画像分割型復調法との差は約2dBとなった。本研究で提案した手法は擬似撮影画像を用いた復調法の復調性能にはまだ及ばないが、計算コストを大幅に削減できたことに加え、分割方法の最適化や信頼性判断の基準を見直すことで、さらなる性能向上が期待できる結果が得られたと言える。本研究プロジェクトは今年度で継続2年目のため、研究課題としては再度継続申請はできないが、引き続き本研究に取り組み、提案手法の性能向上を目指す。

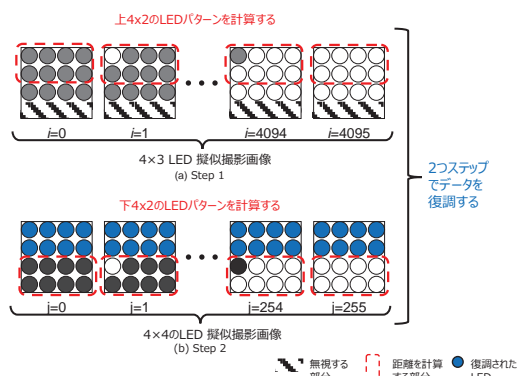


図2: 分割型復調法。

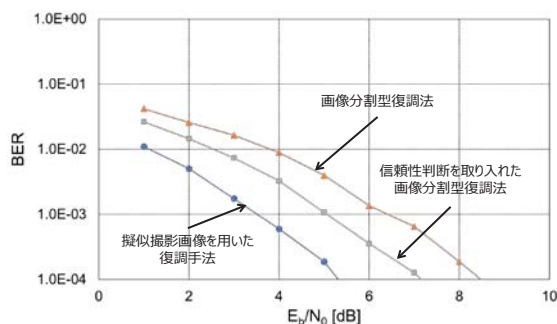


図3: シミュレーション結果。

## 【研究成果の公表状況】

<国際・国内会議>

- Z. Tang, **S. Arai**, T. Yendo, “A Study on Computational Cost Reduction Using Image Division Approach for Data Demodulation Method in Image-Sensor-Based Visible Light Communication,” ICMaSS 2017, Nagoya (JAPAN), September 29 - October 1, 2017.
- Z. Tang, **S. Arai**, T. Yendo, “A Study on Image Division Approach for Signal Demodulation Method Incorporating Reliability Determination in Image-Sensor-Based Visible Light Communication,” NCSP'18, Hawaii (U.S.A), March 4 - 7, 2018. (他1件)



## 太陽光駆動光触媒による二酸化炭素の燃料としての再利用 Reutilization of Carbon Dioxide as Fuel by Photocatalyst Driven by Sunlight

西村 顕・三重大学大学院・工学研究科・准教授  
立松 大智・三重大学大学院・工学研究科・大学院生  
植木 保昭・名古屋大学・未来材料システム研究所・助教

### 1. 研究目的

CO<sub>2</sub>の削減・有効利用を図るべく、CO<sub>2</sub>の還元剤としてH<sub>2</sub>Oといった安価で豊富なプロトンキャリアを少量のH<sub>2</sub>と共に反応させて炭化水素化し、燃料として活用する新型光触媒の開発を研究目的とする。

### 2. 研究内容と成果

ゾルゲル・ディップコーティング法で網目状ガラス繊維にTiO<sub>2</sub>薄膜をコーティングし、その後パルスアークプラズマガン法でCuを担持させることでCu/TiO<sub>2</sub>を作製した。本研究グループの調査した限りにおいて、Cu/TiO<sub>2</sub>をゾルゲル・ディップコーティング法およびパルスアークプラズマガン法にて網目状ガラス繊維に薄膜コーティングした報告例はなく、そこでまずは貴所が所有するJXA-8530Fを用いてCu/TiO<sub>2</sub>の構造分析をTEM, EDXにて行った。Cuを担持する際のパルス数は100とした。

図1にTEMデータ、図2~4にEDXデータ(図2:Ti, 図3:O, 図4:Cu)をそれぞれ示す。なお、いずれも倍率は150k倍である。図2から、白い部分がCu/TiO<sub>2</sub>であり、光触媒表面が滑らかであることが分かる。また、図2と図3から、Tiの分布とOの分布が重なることからTiはTiO<sub>2</sub>として薄膜形成されていることが推察される。次に図4から、Cuは上方に多く分布しているが、層は形成されていなかった。また、全体的にCuが分布していることが観察でき、TiO<sub>2</sub>の表面だけでなく、内部にもCuが担持されていることが伺える。

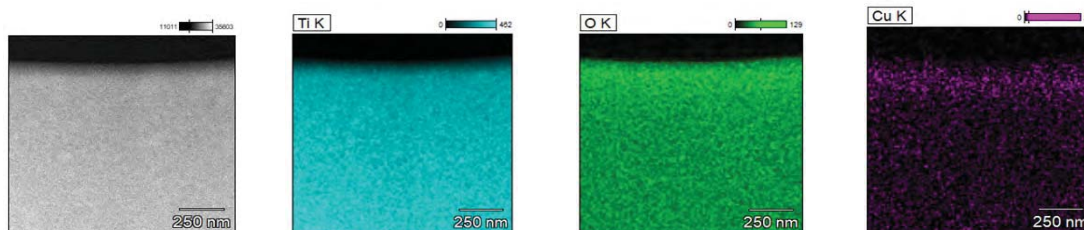


図1 TEM データ 図2 EDX データ (Ti) 図3 EDX データ (O) 図4 EDX データ (Cu)



次に EELS の分析結果を示す。図 5 に Cu/TiO<sub>2</sub> の損失スペクトルを、図 6 に Cu 参照材料の CuL<sub>2,3</sub> エッジスペクトル (Yang *et al.*, *Journal of Applied Physics*, 116, 223707 (2014)) を示す。ここでは、0.5eV/ch で 2048ch の GIF Quantum を用いて Cu/TiO<sub>2</sub> 中の Cu のイオン価数を調査した。図 5 と図 6 を比較すると、分析結果の分布形状は Cu<sub>2</sub>O と読み取れる。これより、本研究で作製した Cu/TiO<sub>2</sub> 中の Cu のイオン価数は +1 と判明した。

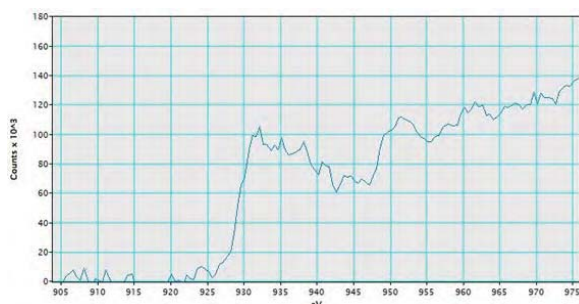


図 5 EELS による分析結果

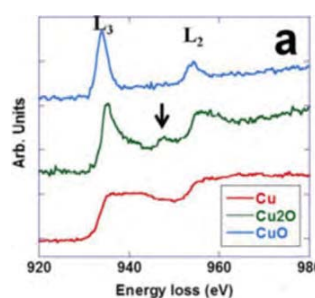


図 6 Cu 参照材料の  
CuL<sub>2,3</sub> エッジスペクトル

## 【研究成果の公表状況】

### <原著論文>

- Akira Nishimura, Noriaki Ishida, Daichi Tatematsu, Masafumi Hirota, Akira Koshio, Fumio Kokai and Eric Hu, Effect of Fe Loading Condition and Reductants on CO<sub>2</sub> Reduction Performance with Fe/TiO<sub>2</sub> Photocatalyst, *International Journal of Photoenergy*, DOI: 10.1155/2017/1625274, Vol.2017, Article ID 1625274, 11 pages (2017).

### <国際・国内会議>

- 立松大智, 西村顕, 豊田隆葵, 廣田真史, 小塩明, 小海文夫, 還元剤が可視光照射条件における金属担持光触媒の CO<sub>2</sub>還元特性に及ぼす影響評価, 化学工学会第 49 回秋季大会, 名古屋大学, 2017 年 9 月 20 日~22 日.
- 西村顕, 豊田隆葵, 立松大智, 廣田真史, 小塩明, 小海文夫, Cu/TiO<sub>2</sub> 光触媒の CO<sub>2</sub>還元性能向上のための還元剤および重ね合わせ配置の検討, 化学工学会第 83 年会, 関西大学, 2018 年 3 月 13 日~15 日 (予定).

### <産業財産権>

- 特になし.

## グロー放電プラズマを利用した揮発性有機化合物の 分解メカニズムの解明

Degradation mechanisms of volatile organic compounds by glow discharge plasma

布目 陽子・広島大学・大学院総合科学研究科・助教  
植木 保昭・名古屋大学・システム創成部門・助教

### 1. 研究目的

浮遊粒子状物質 (SPM) や光化学オキシダントのような大気汚染物質は様々な要因によって引き起こされるが、その主な要因として揮発性有機化合物 (VOCs) があげられている。多くの VOCs には毒性があり、健康に悪影響を及ぼすため、その排出規制が必要である。

グロー放電プラズマ (GDP) は、プラズマ化学気相蒸着プロセスにおいてシランガスなど原料ガスの分解に用いられていることから、VOCs の分解に期待されるだけでなく、質量分析計 (MS) と接続することで VOCs の分解物も観察できると期待される。

昨年度は GDP を利用したソフトプラズマイオン (SPI) 源と MS を接続するサンプリングコーンインターフェースを新規に作製し、GDP の放電パラメータを振りながら、サンプル導入方法を検討したところ、試料のマススペクトルの強度がこれまでより 10 倍程度増大することを確認し、分解生成物の直接質量分析に目処を立てることができた。そこで、本年度は、分光器を用いて、GDP の分光分析を行うことで、試料成分の分解過程における過渡現象を発光スペクトル解析により明らかにする。

### 2. 研究内容と成果

SPI 源は銅製のホローアノードとホローメッシュカソードを同軸上に配置しており、電圧を印加すると、GDP が電極間に生成する。SPI 源に DC パルス電源を接続し、質量分析計 (ZQ-2000, Waters, USA) と組み合わせ、SPI-MS として用い、質量分析を行った (図 1)。実用性を考慮し、放電ガス (キャリアガス) には室内大気を用いた。基礎的

知見を得るため、測定対象化合物は、排出削減対象の VOCs の中からアセトン (MW = 58) を選択した。

発光分光分析は、SPI 源の試料導入口側を石英窓に交換し、石英窓を介して GDP の発光を分光器 (USB2000+XR1-ES, Ocean Optics, Inc., USA) で測定した。

VOCs の分解過程を質量分析と発光分析を

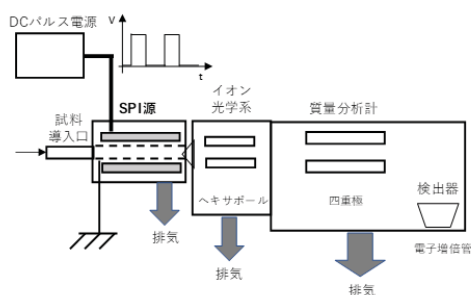


図 1 DC パルス電源-SPI-MS 装置概略図

組み合わせて測定し、分解プロセスの詳細検討を行った。

放電ガス圧を変化させ、マススペクトルを得た。800–1000 Pa の放電ガス圧では、 $m/z = 58$  にはアセトンの分子イオンピークである  $[M]^+$  がベースピークとして、 $m/z = 43$  にはアセトンからメチル基が脱離したフラグメントイオンピーク  $[M-CH_3]^+$  が検出された。これにより、導入したアセトンが GDP によって分解されたことが示唆された。また、 $m/z = 88$  にはアセトン分子に  $NO^+$  が付加した付加分子イオン  $[M+NO]^+$  が検出された。

図 2 に 800 Pa のときの GDP の発光スペクトルを示す。放電プラズマ内には NO ( $\gamma$  system) や  $OH \cdot$  (3064 Å system)、 $N_2$  (2nd positive system)、 $N_2^+$  (1st negative system) が存在することが確認された。800–1000 Pa のマススペクトルで、アセトンの分子イオンピーク  $[M]^+$  が  $m/z = 58$  に得られたのは、励起窒素分子 ( $N_2^*$ ) の衝突によるペニング型のイオン化によって生成したからである[1]。また、 $m/z = 43$  にアセトン分子のフラグメントイオンが検出されていることから、 $OH \cdot$  がアセトン分子の分解に寄与していると示唆された。さらに付加分子イオン  $[M+NO]^+$  ( $m/z = 88$ ) が検出されたのは、プラズマ内で生成した NO 種がアセトン分子のイオン化に寄与していると考えられる。

圧力を上昇させると、図 2 で観測された各化学種の発光強度は減少傾向を示した (図 3)。これは圧力が上昇する程、各化学種の数密度が減少することで、マススペクトル中の  $[M]^+$  や  $[M-CH_3]^+$ 、 $[M+NO]^+$  がほとんど検出されなくなったためと考えられる。

GDP 中で生成した VOCs 分解物を SPI-MS により直接検出することに成功し、また  $OH \cdot$  が VOCs の分解源であることが発光分析により示唆された。

#### 参考文献

[1] Y. Nunome et. al., Spectrosc. Lett. 48 (2015) 436–440.

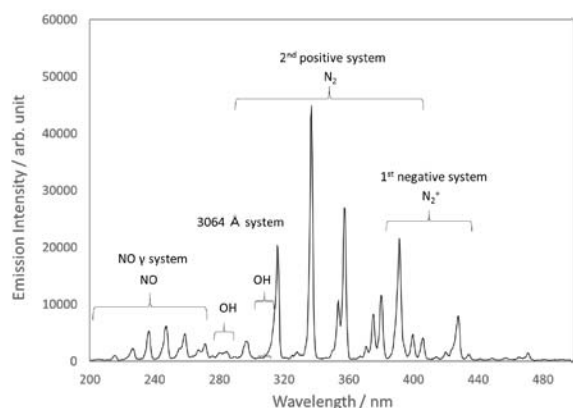


図 2 GDP の発光スペクトル (30mA, 2500 Hz, Duty ratio 50%)

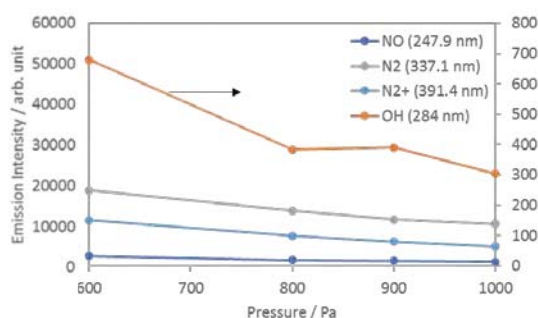


図 3 放電圧力による発光強度の変化 (30mA, 2500 Hz, Duty ratio 50%)

#### 【研究成果の公表状況】

<原著論文>なし

<国際・国内会議>なし

<産業財産権>・出願状況、取得状況なし

## 磁気光学イメージングプレートの開発

### Development of magneto-optical imaging plates

石橋隆幸・長岡技術科学大学大学院・工学研究科・教授  
婁 庚健・長岡技術科学大学大学院・工学研究科・博士学生  
長久保洋介・長岡技術科学大学大学院・工学研究科・修士学生  
馬場勇至・長岡技術科学大学大学院・工学研究科・修士学生  
高野魁人・長岡技術科学大学大学院・工学研究科・修士学生  
岩田聡・名古屋大学・エコトピア科学研究所・教授

#### 1. 研究目的 (12pt ゴシック体)

電流または磁場分布を可視化する技術は、電気機器の検査技術として重要な技術であり、電力利用の高効率化のためには必要不可欠な計測技術である。しかし、10センチを超える領域をリアルタイムで測定可能なイメージング技術は存在していない。磁場分布および電流分布をリアルタイムで可視化可能な技術として、直流からマイクロ波応用に渡る広範囲な周波数領域における計測が可能な磁気光学イメージング技術が存在するが、これまで単結晶基板上にしか作製することができなかつたため作製できる大きさに限界があった。そこで本研究では、大面積（直径 20 センチ）かつ直流からマイクロ波領域までの周波数を計測可能な磁気光学イメージングプレートを開発することを目的とする。

#### 2. 研究内容と成果 (12pt ゴシック体)

大面積の磁気光学イメージングを実現するために我々は、ガーネット膜にバックライトを一体化させた磁気光学イメージングプレートを開発した。図 1 にバックライト磁気光学イメージングプレートを用いた磁場計測の概略を示す。磁気光学イメージングプレートは、バックライトとして白色光の無機 EL シートを用い、偏光板とガーネット膜を貼り合わせた構造とした。イメージングプレートの大きさは、15 cm × 11 cm とした。磁気光学像の計測は、検光子を通して CCD カメラによって行った。ここで、偏光子と検光子の角度差は 45° とした。磁場の値は、光強度と電磁石を用いて発生させた磁場強度の関係を用いて校正した。

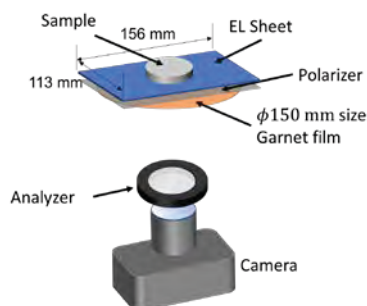


Fig.1 MO imaging using the MO imaging plate with the backlight.

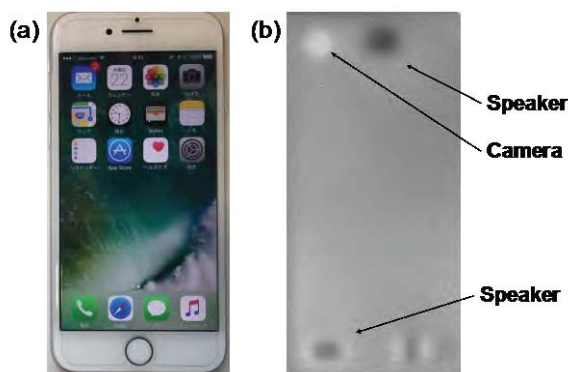


Fig.2 (a) A photo and (b) MO image of a smartphone.

Fig.2 にスマートフォン全体の漏洩磁場分布測定結果を示す。スマートフォンの上部中央と下部左側にスピーカーに使用されている磁石からの漏洩磁場が明瞭に観察される。その他、カメラや振動を発生させる素子からの漏洩磁場も観察できる。この技術の開発によって、大面積の磁場分布をリアルタイムで計測することが実現された。

### 【研究成果の公表状況】 (12pt ゴシック体)

<原著論文> (11pt 明朝体, Times)

- Gengjian Lou, Takeshi Kato, Satoshi Iwata, Takayuki Ishibashi, Magneto-optical property and Magnetic anisotropy in Nd<sub>0.5</sub>Bi<sub>2.5</sub>Fe<sub>5-y</sub>Ga<sub>y</sub>O<sub>12</sub> thin films on glass substrates, Optical Materials Express Vol.7, No.7 (2017) pp.2248-2259.
- Yosuke Nagakubo, Yuji Baba, Qi Liu, Gengjian Lou, Takayuki Ishibashi, Development of MO imaging plate for MO color imaging, J. Mag. Soc. Jpn, Vol. 41 (2017) No. 2 p. 29-33.
- Yosuke Nagakubo, Qi Liu, Gengjian Lou, Takayuki Ishibashi, Magneto-optical Color Imaging of Magnetic Field Distribution, Proc. MMM2016, New Orleans, AIP Advances, Vol.7, Issue 5 10.1063/1.49740242017, 2017.

<国際・国内会議> (11pt 明朝体, Times)

- ○ 長久保洋介 1, 佐々木教真 2, 目黒 栄 3, 西川雅美 1, 石橋隆幸 1 (1 長岡技科大, 2 オフダイアゴナル, 3 ネオアーク) バックライト一体型 MO イメージングプレートを用いた円偏光変調法による大面積の磁場分布の定量測定法の開発、第 4 1 回日本磁気学会学術講演会、2017 年 9 月 19 日(火)~9 月 22 日(金)、九州大学伊都キャンパス
- 婁 庚健, 山北 慈音, 西川 雅美, 石橋 隆幸, 松本 悠人, 栢 修一郎, 石山 和志, 安達 信泰, 加藤 剛志, 岩田 聡, 有機金属分解法によってガラス基板上に作製した高濃度 Bi 置換 Nd 鉄ガーネット薄膜の高周波特性の評価、電気学会マグネティックス研究会、2017 年 11 月 16,17 日、東北大学

<産業財産権>

なし



## 強磁性ナノワイヤーにおける磁壁電流駆動の観測

Observation of current-driven domain wall motion in ferromagnetic nanowires

山田啓介・岐阜大学・工学部・助教

林 兼輔・岐阜大学・工学部・修士課程 2 年

加藤 暢高・岐阜大学・工学部・修士課程 1 年

Anissa Binti Azizan・岐阜大学・工学部・修士課程 1 年

嶋 睦宏・岐阜大学・工学部・教授

大島 大輝・名古屋大学・未来材料・システム研究所・助教

岩田 聡・名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授

### 1. 研究目的

エレクトロニクスデバイスの消費電力の低減は、エコロジーを目指す社会へ貢献できることから、必須の研究課題である。現行の PC のメインメモリ(DRAM)より消費電力を約三分の一に抑えることができる次世代メモリとして、不揮発性の性質を持つ“磁壁”を活かした磁気メモリが研究されている。磁壁は、磁性細線中の磁区と磁区の境界に存在する“磁化が連続的に変化している領域”で、幅が数十 nm と狭く、電流を用いて動作が可能なることから小型化、低電力の特性を兼ね備えた新規磁気メモリとして活用が期待されている。本研究では、電気化学合成方法である水溶液電着法とアルミナ細孔テンプレートを用いて作製したナノスケールの直径を持つ強磁性ナノワイヤー中の磁壁を活用し、その磁壁の電流駆動の観測を目的とする。

### 2. 研究内容と成果

研究成果としては、目標である磁壁移動は観測できなかった。今年度実施した研究内容は、以下の①～③である。①名古屋大学のスパッタ装置(3 元マグネトロンスパッタ装置)をお借りし、磁性ナノワイヤーを作製するための下地である電極作製を行った。②岐阜大学で磁性ナノワイヤー(Ni ワイヤー)の電着を行った。③作製した磁性ワイヤーを用いて異方性磁気抵抗(AMR)を観測した。①の内容は、電着法で磁性ナノワイヤーを作製するために必要な作製工程であり、アルミナ細孔テンプレートの片側を電極金属でスパッタし、アルミナ細孔を金属で埋めることで電着用電極になる。アルミナ細孔伝プレートに金(Au)を膜厚 200 nm スパッタし、SEM を用いて観察した結果を図 1(a)に示す。図 1(a)より、金属によりテンプレートの細孔は完全には埋まっていないことがわかった。この理由は、スパッタ時に基板ホルダーを回転しなかったためで、今後は基板ホルダーの回転を行いながらスパッタを行う必要がある。岐阜大が有するスパッタ装置において、Pt を約 200 nm をスパッタし、表面観察を行った結果を図 1(b)に示す。図 1(b)の観察結

果より、試料は、電極として電着を行うことができることを確認した。

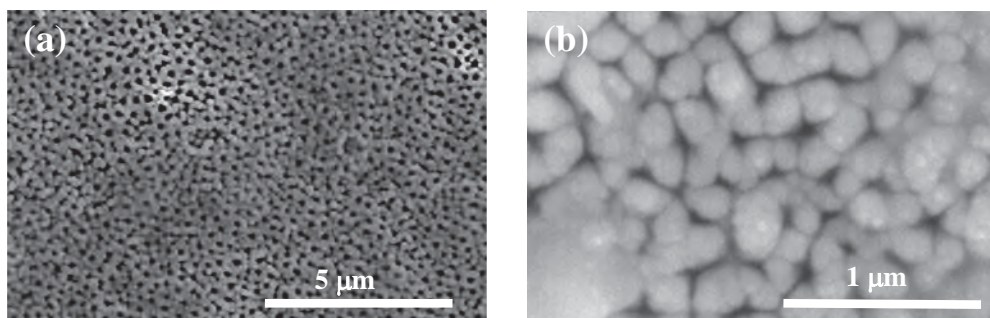


Fig.1 アルミナ細孔テンプレートのSEM観察結果:(a) Au ~ 200 nm スパッタ後、  
(b) Pt ~200 nm スパッタ後

次に②と③の結果について示す。電着用に作製した試料の概略図を図2(a)に示す。アルミナ細孔テンプレートにスパッタした Pt は、電気的接触を取るために Cu テープを Ag ペイストで付着させた。試料では、初めに下地として Cu を 0.5 μm 電着し、次に Ni を 40 μm 電着した。また、コンタクトプローブを用いて Ni の磁気抵抗を測定するために、Ni ワイヤーの上部に Cu を電着した。

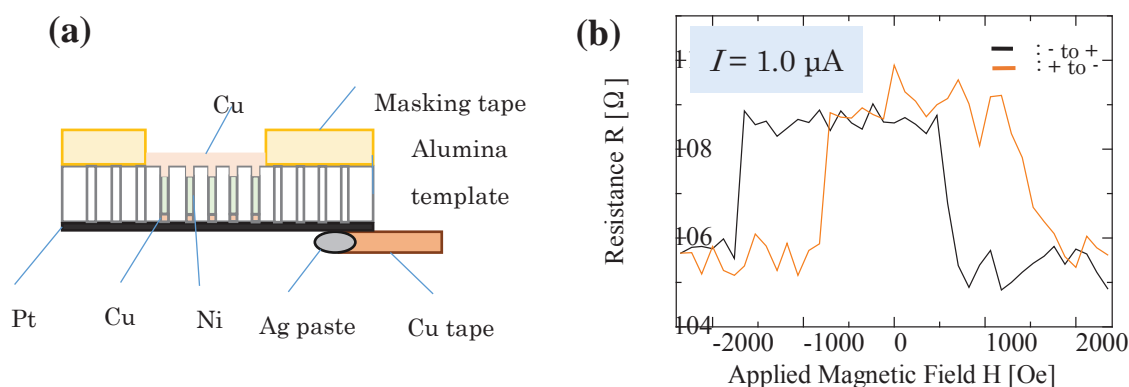


Fig.2 (a) Ni ナノワイヤーの試料概念図、

(b) AMR 測定(電流  $I = 1.0 \mu\text{A}$ )

図2(b)に外部磁場±2.5 kOeを印加した際の試料のMR測定の結果を示す。MR比は、約4.0%を得ることができた。これはNiワイヤーのAMRに由来したMR比であると考えられる。しかしながら、MR曲線における抵抗変化は、今までに報告されているAMRの抵抗変化とは異なっている。この原因は、Niワイヤーをアレイで測定したためにワイヤー間の漏れ磁場により起こった、Niワイヤーが途中で断線しているなどの原因が考えられ、更なる調査が必要である。今後とも試料の作製評価とMR測定や磁化測定を中心に研究を継続して行き、磁化反転挙動について明らかにする必要がある。また、本研究の目的である磁壁移動観測に関しては、一本のNiワイヤーを取り出し、電極をNiワイヤーに付着させ磁気抵抗変化を観測するなど、試料作製と測定方法を確立していく必要があり、今後もプロセス確立へ向けて研究を継続して行っていく。

# ハイパボリック・メタマテリアルによる高効率有機発光デバイスの開発

## Development of efficient organic luminescent devices based on hyperbolic metamaterials

松井 龍之介・三重大学・大学院工学研究科 電気電子工学専攻・准教授  
 須賀 俊輝・三重大学・大学院工学研究科電気電子工学専攻・博士前期課程 2 年  
 岩田 聡・名古屋大学未来材料・システム研究所・高度計測技術実践センター・  
 教授

### 1. 研究目的

誘電体と金属のナノ薄膜の交互積層により得られるハイパボリック・メタマテリアル (hyperbolic metamaterial: HMM) は、見る方向に応じて金属あるいは誘電体的に振る舞う極端な光学異方性を示し、量子ドットや蛍光色素の発光増強なども報告されている。一方で、有機半導体を用いた有機エレクトロニクスは、軽量、フレキシブル、低消費電力といった、従来には無いエレクトロニクスデバイスの創製を可能とするものとして期待されている。研究代表者等はこれまでに、銀と二酸化チタンの交互積層によるハイパボリック・メタマテリアルを基板として用い、有機半導体 Alq3 薄膜において約 2.6 倍の蛍光増強を得ている (松井他、電学論、(2015))。本研究では、ハイパボリック・メタマテリアルを有機発光トランジスタへ組み込み、発光効率の向上および駆動電流の低減を図り、高効率な発光デバイスの開発によって、省エネルギーに貢献する。

### 2. 研究内容と成果

本研究では、ハイパボリック・メタマテリアルを組み込むことによる有機発光トランジスタの高効率化を検討する。図 1 に素子構造の概略図を示す。基板としては熱酸化膜付きのドーパドシリコンを用い、ゲート電極を兼ねる。ハイパボリック・メタマテリアルの作製には先端研の 3 元マグネトロンスパッタ装置を利用した。電荷注入のためのソースおよびドレイン電極の間隔 (チャンネル長) は 5 ミクロンとし楕円形状を採用する。その形成には VBL のマ

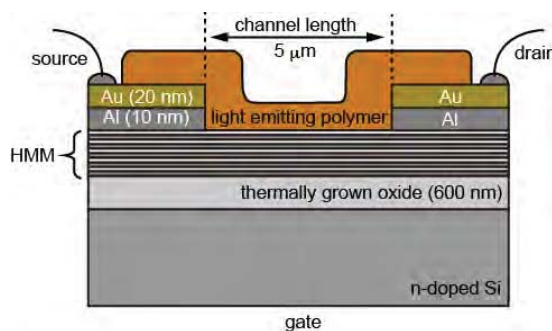


図 1 : ハイパボリック・メタマテリアルを組み込んだ有機発光トランジスタ素子の概略図

スクアライナ、露光装置や電子ビーム蒸着装置等を利用し、フォトリソグラフィおよびリフトオフプロセスにて形成した。楕形電極作製のフォトマスクは前年度に作製したものを使用した。電極材料としては有機発光層への電荷注入の効率を考慮してアルミと金を採用することとした。

ハイパボリック・メタマテリアル構造のための材料の選択としては従前の検討を踏まえ銀と二酸化チタンとしたが、楕形電極を形成した素子において短絡が見られた。表面を SEM 観察したところ、原因不明の斑点状の穴のようなものが見られ

(図2)、今年度からは金とアルミナを選択することとした。高発光性の導電性高分子 MEH-PPV 薄膜の蛍光を測定したところ、ハイパボリック・メタマテリアル上ではガラス上に比べて最大約 2.8 倍の蛍光増強が得られた (図3)。次に有機トランジスタ素子を試作し、真空中において電流-電圧特性を評価したところ、ハイパボリック・メタマテリアルを形成していない素子においてはトランジスタ動作を確認できた (図4)。今後、膜厚などの条件を最適化し、電流-電圧、発光強度-電流特性、発光スペクトルなどの素子特性を評価していく。

### 【研究成果の公表状況】

<原著論文>

なし

<国際・国内会議>

なし

<産業財産権>

なし

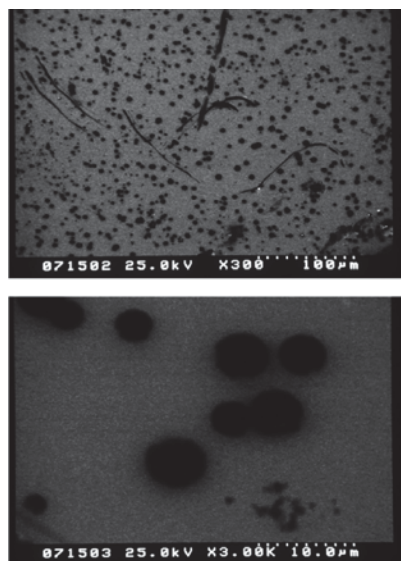


図2：作製した銀と二酸化チタンによるハイパボリック・メタマテリアル表面の SEM 像

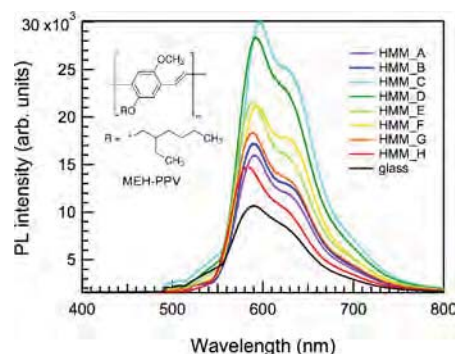


図3：ハイパボリック・メタマテリアルあるいはガラス基板上の MEH-PPV 薄膜の蛍光スペクトル

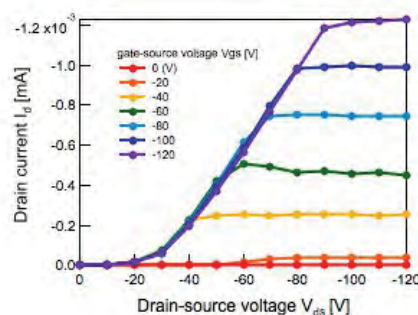


図4：MEH-PPV 薄膜による有機トランジスタの電流-電圧特性



精密  $\mu$  粒子ラジオグラフィーのための宇宙線の運動量分布測定  
Measurement of momentum spectrum of cosmic rays for precise Muon Radiography

渋谷 寛・東邦大学・理学部・教授  
小川 了・東邦大学・理学部・教授  
松尾友和・東邦大学・理学部・科研費臨時研究員  
森元祐介・東邦大学・理学部・科研費臨時研究員  
大島 仁・東邦大学大学院・理学研究科・博士後期課程 2 年  
河野歩実・東邦大学大学院・理学研究科・博士前期課程 1 年  
三角尚治・日本大学・生産工学部・准教授  
花岡佑哉・日本大学・生産工学部・3 年  
中村光廣・名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授  
佐藤 修・名古屋大学・未来材料・システム研究所・助教

## 1. 研究目的

宇宙線  $\mu$  粒子ラジオグラフィーは宇宙線  $\mu$  粒子の透過性を活用して、X 線や中性子など透過力の弱い放射線では透視できない大型構造物の内部を透視する技術である。 $\mu$  粒子検出器として原子核乾板を利用する手法は、電源が不要であるなどそのコンパクトさとその高い角度分解能において他の放射線飛跡検出器の追従を許さないものであり、これを用いた福島第一原発事故炉内部の燃料デブリ位置の同定などを目指した研究が名古屋大学で進展している。

本研究では物質分布を求めるのに不可欠な宇宙線の運動量分布を実測する。特にほぼ水平方向から飛来する宇宙線については、最近様々な測定によりモデルと差があることが分かってきており、実測によりその粒子種、運動量分布を求めることは重要である。

## 2. 研究内容と成果

我々は原子核乾板と 0.5mm 厚の鉄板を交互積層した検出器を J-PARC・ニュートリノ実験施設（地下 29 メートル）に設置した。検出器は 4 個の ECC(Emulsion Cloud Chamber)からなり、各 ECC は 3 つの上流、中流、下流のスタックから構成される。各スタックは 25cm x 25cm の断面積をもつ 23 枚の新型原子核乾板と 0.5mm 厚の鉄板 22 枚の交互積層構造である。一般に荷電粒子がこの検出器を貫通するとき、多重電磁散乱により、その軌道は直線からずれる。そのずれの大きさは荷電粒子の運動量  $p\beta$  に反比例する。このことを利用して、荷電粒子飛跡の角度（フィルム垂線からの傾き）を各フィルム上で測定することにより、荷電粒子の入射角度（傾き）と運動量を見積もることができる。4 ヶ月間の照射期間の後、検出器を取り出してフィルムを日本大学にて現像し、名古屋大学の超高速全自動飛跡読取装置 HTS を用いてフィルム内に記録された角度（傾き  $(\tan \theta_x, \tan \theta_y)$ ）の絶対値が 1.5 以下の荷電粒子飛跡を読み取った。そのデータに基づき、検出器を貫通する荷電粒子の角度（傾き）分布と運動量分布を実測した結果をそれぞれ図 1 と図 2 に示す。スキャンに用いた各フィルムはほぼ水平方向に入射するニュートリノビームにほぼ垂直に設置されているので上流側からのビームに付随する  $\mu$  粒子の集団は図 1 の角度（傾き）分布において中央部分に分布しているが、その量はごくわずかである。したがって、これらの飛跡の主な成分は宇宙線であることがわかる。図 2 を見るとその運動量は 1~2 GeV/c 付近にピークを持つ分布である。図 3 はこれらの飛跡の単位長さ当たりの電離損失の平均（縦軸）・運動量  $p\beta$ （横軸）の散布図で、2 つの曲線は  $\mu$  粒子と陽



子の場合に予想されるものである。これらの貫通飛跡のほとんどは $\mu$ 粒子で、少量の陽子が混じっていることがわかる。こうした解析法とデータは精密 $\mu$ 粒子ラジオグラフィーに応用可能で有用である。多重電磁散乱の測定は低運動量飛跡の除去を可能にして対象物透視の分解能を向上させる可能性がある。さらに、対象物の密度情報だけでなく、成分情報が得られる可能性も提供する。今回は水平に近い方向からの宇宙線のデータ取得を目標としており、実際にこれを測定することができた。一般に宇宙線のデータという意味では、フィルムを水平に設置して天頂方向からの宇宙線の観測も同時に可能なら、両方のデータを共に活用できることが望ましい。

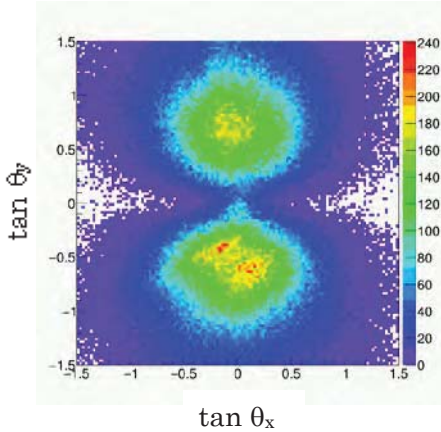


図 1 : 角度 (傾き) の分布

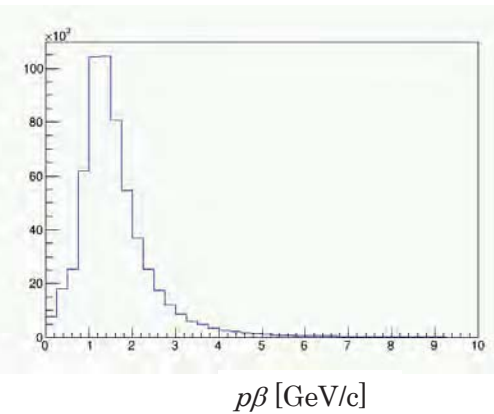


図 2 : 運動量  $p\beta$  の分布

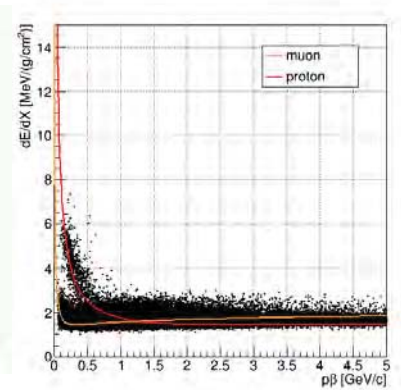


図 3 : 電離損失 vs. 運動量

### 【研究成果の公表状況】

#### <国際会議>

- Y. Morimoto *et al.*, Study of neutrino-nucleus interactions with nuclear emulsion at J-PARC, 13th Rencontres du Vietnam 2017: Neutrinos, ICISE (Quy Nhon, Vietnam), Jul. 16-22, 2017.
- H. Shibuya *et al.*, Measurement of Momentum Spectrum of Cosmic Rays for Precise Muon Radiography, ICMass2017, Nagoya University, Sep. 29 - Oct. 1, 2017.

#### <国内会議>

- 森元祐介 他, NINJA 実験におけるニュートリノ-鉄反応の詳細解析, 日本物理学会 2017 年秋季大会, 宇都宮大学, 2017 年 9 月 12 日~9 月 15 日.
- 大島仁 他, NINJA 実験における反ミューニュートリノ荷電カレント反応のハイブリッド解析, 日本物理学会 2017 年秋季大会, 宇都宮大学, 2017 年 9 月 12 日~9 月 15 日.
- 松尾友和 他, NINJA 実験における鉄 ECC 中におけるニュートリノ反応二次粒子の運動量測定, 日本物理学会 2017 年秋季大会, 宇都宮大学, 2017 年 9 月 12 日~9 月 15 日.
- 森元祐介 他, NINJA 実験におけるニュートリノ-鉄 荷電カレント反応の解析, 日本物理学会 第 73 回年次大会, 東京理科大学, 2018 年 3 月 22 日~3 月 25 日.
- 大島仁 他, NINJA 実験: 鉄 ECC 中の飛跡によるニュートリノ反応の研究, 日本物理学会 第 73 回年次大会, 東京理科大学, 2018 年 3 月 22 日~3 月 25 日.

原子核乾板超高速読み取り装置 HTS による  
ミュオン粒子トモグラフィーのバックグラウンドとなる  
低エネルギー粒子解析と重原子核同定への応用

Analyses of low energy charged particles as background components against muon radiography and their application for heavy nuclei identification

伊代野 淳・岡山理科大学・理学部・教授  
山本紗矢・岡山理科大学・大学院・博士課程 1 年  
清水孝・岡山理科大学・大学院・修士課程 1 年  
松川秋音・岡山理科大学・理学部・学部 4 年  
中村光廣・付属高度計測技術実践センター素粒子計測部・教授  
森島邦博・付属高度計測技術実践センター素粒子計測部・特任助教  
六條宏紀・付属未来材料・システム研究所, 研究機関研究員

## 1. 研究目的

ミュオン粒子トモグラフィーでバックグラウンド飛跡として除去しなければならない gray/black 飛跡や更に重原子核を飛跡データから分離し, 更にその荷電 ( $Z/\beta$ ) 同定法を確立する為に, GRAINE2015 年フライト原子核乾板中の低エネルギー陽子やヘリウム, 更に高エネルギーの宇宙線原子核成分の解析を行う。

## 2. 研究内容と成果

高速度飛跡読み取り装置 HTS を用いた原子核乾板解析は, 主に最小電離粒子用いたミュオン粒子ラジオグラフィや宇宙ガンマ線観測計画 GRAINE 実験において進んでおり, 成果を上げている。一方で, 原子核乾板中での荷電粒子電離損失量から粒子の荷電 ( $Z/\beta$ ) を同定し, 解析対象から除外する方法や逆に宇宙線原子核成分の同定を行う方法として利用することも進められている。我々は GRAINE2015 気球実験で使用した原子核乾板を用いて, 原子核の同定方法を研究してきた。これまでの成果として, HTS から得られる電離量に相当する PHV 量に天頂角依存性があり, 角度範囲を絞った解析が必要であることを示してきた。また HTS 画像解析時の閾値パラメータの補正を検討した。今回は, GRAINE 実験で使用した原子核乾板中に記録された飛跡の運動量と電離損失量相当の PHV の分散図を用いることで, black 飛跡, 原子核飛跡を分離することを行った。運動量の絶対値を求めるには至っていないが, 接続できた飛跡の各層での直線からのずれ displacement の逆数が運動量に相当することから, PHV との散布図を作成し, データ中の black 飛跡, 原子核飛跡の検出を図 1 に示すように分離することができた。宇宙線中の高エネルギーヘリウム, Li, Be などの分離・電荷の同定は, ミュオン粒子トモグラフィーのノイズ除去方法として実現でき, 一方で宇宙線原子核の電荷同定の方法を HTS データに対して確立できた。

PHV と電離の関係を更に明らかにする必要があり、今年度は更に放射線医学研究所 HJIMAC で重粒子線ビームを照射した原子核乾板の解析を行った。400MeV/AMU 程度の Li, Be, B, C のビームを 0 度, 20 度, 40 度の入射角で照射した。原子核乾板には、低感度化した乳剤を使用し、高電離による画像的黑化度の飽和の軽減を図った。また、HTS による解析においても光源光度を高く設定し解析を行うことで、重粒子同定の方法を探索し実行した。入射角度毎の核種別の PHV 分布とその平均値の理論値との比較を図 2 に示した。測定された PHV 平均値と理論値のグラフでは、ほぼ線形な関係があらわれ、核の  $Z/\beta$  決定が可能であることを示すことができた。高  $Z$  側で飽和する傾向もみられることから、今後解析でさらに改善することも必要である。

以上、低エネルギー飛跡や重粒子飛跡を PHV 値で弁別することが可能となった。ミュオン粒子トモグラフィーのバックグラウンド飛跡除去の R&D として、PHV 閾値設定に寄与するものとして結果を示した。また、宇宙線ミュオン粒子の深さ強度関数の理論計算も一部着手し、バックグラウンド粒子評価法についても取り組みを始めた。

### 【研究成果の公表状況】

#### <原著論文>

- A.Iyono et al., "Cosmic ray nuclei detection in the balloon borne nuclear emulsion gamma-ray telescope flight in Australia (GRINE2015)", EPJ Web Conference **145**, 06003 (2017)
- A.Iyono et al., "Measurement of Cosmic Ray Nuclei with GRAINE2015", ICRC2017, Proceedings of Science, 171-174 (2017).
- S.Yamamoto et al., "Survival probability of charged particles dissipating their energies by radiation and ionization", ICRC2017, 565-569 (2017)

#### <国際・国内会議>

- A. Iyono et al., "Measurement of Cosmic Ray Nuclei with GRAINE2015", ICRC2017, Busan Korea, 10-20 July 2017
- S.Yamamoto et al., "Survival probability of charged particles dissipating their energies by radiation and ionization", ICRC2017, Busan Korea, 10-20 July 2017

#### <産業財産権>

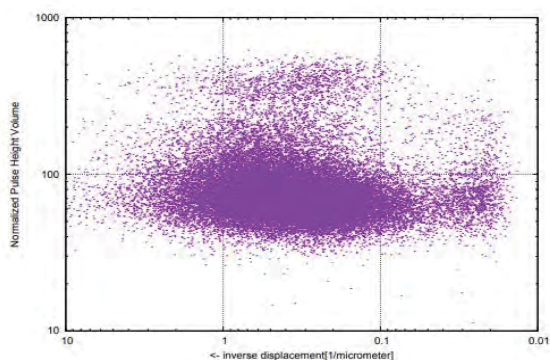


図 1 Displacement と PHV の散布図

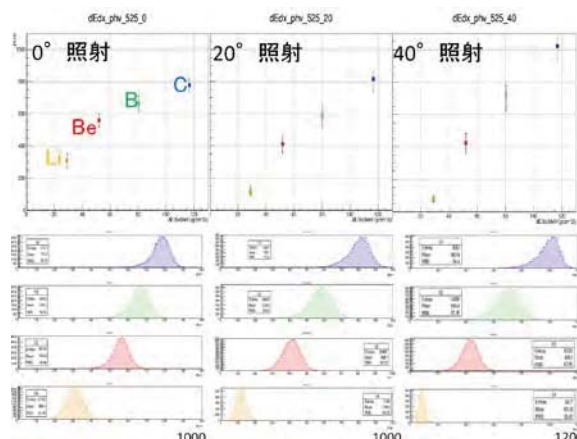


図 2 HIMAC 重粒子ビームによる PHV の較正実験結果

## 原子核乾板技術の陽子線治療への応用 Application of nuclear emulsion technology for proton therapy

研究代表者 歳藤利行・名古屋市立西部医療センター名古屋陽子線治療センター・陽子線治療物理科・技師(医学物理)

研究分担者 木村充宏・名古屋市立西部医療センター名古屋陽子線治療センター・陽子線治療物理科・技師(医学物理)

研究所担当教員 中村光廣・名古屋大学・未来材料・システム研究所・高度計測技術実践センター 素粒子計測部・教授

研究所担当教員 佐藤修・名古屋大学・未来材料・システム研究所・高度計測技術実践センター 素粒子計測部・助教

### 1. 研究目的

陽子線を用いた放射線治療は陽子線治療と呼ばれ、ブラッグピークの特性による高い線量集中性を活かした治療が先進医療として実施され、2016年4月からは小児がん、さらに2018年4月からは前立腺がん、頭頸部がんが保険適用になることで、さらなる普及が期待されている。本研究では究極の省エネ放射線検出器である原子核乾板技術、中でもガンマ線と中性子の計測技術を陽子線治療に応用し、照射精度の向上や二次発がんのリスクを効率的に評価するための開発研究を行う。

### 2. 研究内容と成果

- ・ ガンマ線発生事象候補の検出

右図のようなセットアップで名古屋陽子線治療センターにおいて 200MeV 陽子線ビームを水ファントムに照射、ファントム側面に原子核乾板を用いたガンマカメラシステムを固定し、ガンマ線の検出を試験した。その結果ガンマ線事象候補を1例検出した。

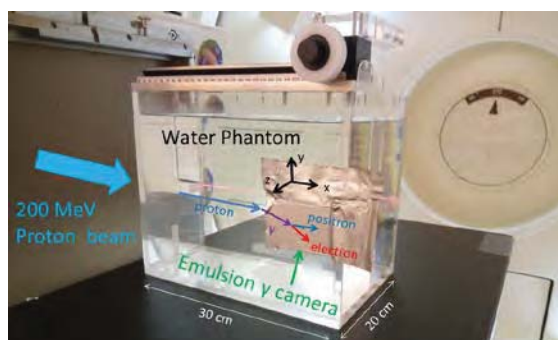


図 1. 実験セットアップ

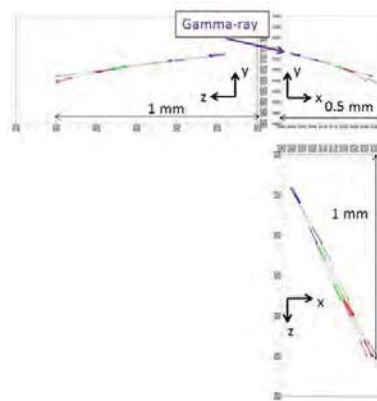


図 2. ガンマ線事象候補



- ・ 検出器の大型化  
水ファントム全体のガンマ線発生率の空間分布を測定するためにガンマカメラを大型化(20cm×10cm)し 2017年8月に陽子線照射実験を行った。現在解析をすすめている。



図 3. 大型検出器を使った実験セットアップ

### 【研究成果の公表状況】

<原著論文>

該当なし

<国際・国内会議>

- ・ Toshiyuki Toshito, Mitsuhiro Kimura, Hiroyuki Ogino, Yuta Shibamoto, Mitsuhiro Nakamura, Osamu Sato, Prompt gamma imaging with a nuclear emulsion for in vivo dose verification in proton therapy, Particle Therapy Co-Operative Group (PTCOG) 56 Scientific Meeting, Yokohama, May 11-13, 2017.
- ・ Toshiyuki Toshito, Mitsuhiro Kimura, Hiroyuki Ogino, Yuta Shibamoto, Mitsuhiro Nakamura, Osamu Sato, Prompt gamma-ray imaging with a nuclear emulsion for in vivo dose verification in proton therapy, International Conference on Materials and Systems for Sustainability 2017, Nagoya, Sep 29 – Oct. 1, 2017.
- ・ Mitsuhiro Kimura, Toshiyuki Toshito, Hiroyuki Ogino, Yuta Shibamoto, Mitsuhiro Nakamura, Osamu Sato, Fast and ultrafast secondary neutron measurements in proton therapy, International Conference on Materials and Systems for Sustainability 2017, Nagoya, Sep 29 – Oct. 1, 2017.
- ・ Toshiyuki Toshito, Mitsuhiro Kimura, Hiroyuki Ogino, Yuta Shibamoto, Mitsuhiro Nakamura, Osamu Sato, Prompt gamma-ray imaging with a nuclear emulsion for in vivo dose verification in proton therapy, 2017 IEEE Nuclear Science Symposium and Medical Imaging Conference, Atlanta, Oct 21-28, 2017.
- ・ 歳藤利行, 高精度粒子線治療に向けた原子核乾板技術, 2017 年度日本写真学会年次大会, 東京, 2017 年 6 月 20-21 日
- ・ 木村充宏, 歳藤利行, 原子核乾板技術を用いた陽子線がん治療中に生じる即発ガンマ線, 二次中性子の測定, 2017 年度日本写真学会年次大会, 東京, 2017 年 6 月 20-21 日

<産業財産権>

該当なし

(注) 別紙様式 2-1 は A 4 サイズ 1 頁に、別紙様式 2-2 は図表等を含めて A 4 サイズ 2 頁になるようにしてください。



# 超高速原子核乾板読出し装置 HTS を用いた高精度原子核フィルムの解析手法の確立 Establishment of the read-out method and analysis method of the high precision nuclear emulsion films by using ultra-fast emulsion read-out system HTS.

青木茂樹・神戸大学・大学院 人間発達環境学研究科・教授  
高橋寛・神戸大学・大学院 人間発達環境学研究科・特命助教 他

## 1. 研究目的

これまで開発を行ってきた高感度・高精度原子核乾板に対して、最新鋭の原子核乾板読み取り装置 HTS を用いた読み出し・解析手法の確立を行う。読み取りによりはき出されてくる毎秒 100 万本の飛跡情報（～20Mbyte/秒）の処理，多数のフィルムを貫通する飛跡の再構築方法およびその中から目的とする物理データを抽出する手法を確立するとともに，得られたデータの妥当性・信頼性を実データに基づき検証することを目的とする。

## 2. 研究内容と成果

平成 27 年 5 月，豪州にて原子核乾板からなる高角度分解能  $\gamma$  線望遠鏡を気球に搭載し宇宙ガンマ線観測実験を実施した。名古屋大学で開発してきた超高速飛跡読取装置 HTS(写真 1)を実戦投入し，原子核乾板約 42 平米に記録された飛跡データの読取を平成 27 年度に遂行し，平成 28 年度から 29 年度にかけて飛跡データの解析を進めてきた。

取得した飛跡データから，ガンマ線反応 ( $\gamma \rightarrow e^+ + e^-$ ) の選出を行うスキームを確立した。コンバーター部 13cm×8cm×100 枚のデータについて選出処理を行った結果を図 1 に示す。(A) 1 枚の原子核乾板には，約  $3 \times 10^6$  本の飛跡が記録されている。連続する 8 枚のフィルムを 1 セットとし，(B) その 8 枚を貫通する荷電粒子飛跡を除去した後，8 枚中の上流から 4 枚目のフィルムから始まり，8 枚目まで貫通する飛跡のみを抽出する。加えて，(C) 近傍に独立した飛跡が並走する特徴を要求することで， $\gamma \rightarrow e^+ + e^-$  反応のコンバージョン点を選び出した。ここまでの処理で飛跡数は約 2000 分の 1 にまで濃縮される。さらに，(D) 反応点からの電子・陽電子飛跡を下流へと順に追い下げ，最下流フィルムにまで到達したものがタイムスタンプ部へ接続可能となる有効イベントとなる。

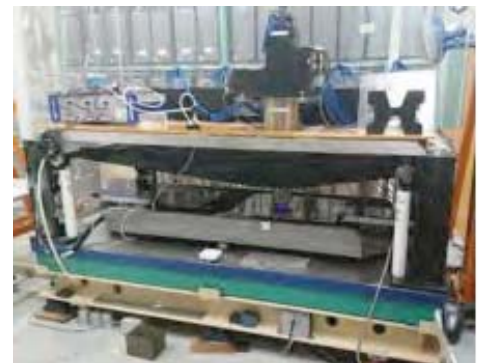


写真 1: 超高速飛跡読取装置 HTS

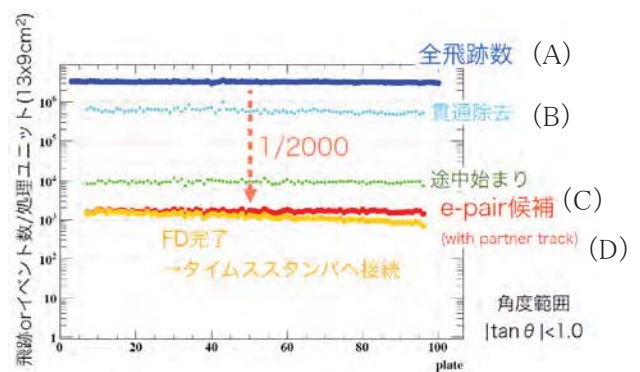


図 1: コンバーター部でのガンマ線反応選出結果

水平浮遊高度では，高エネルギーの 1 次宇宙線(陽子)が高頻度で望遠鏡内に入射するため，原子核乾板中の原子核と反応し， $\pi^0$ 中間子生成を経てガンマ線を発生する。この検出器内ガンマ線の到来方向が反応の発生点をさすことを利用し，望遠鏡の角度分解能を検証する事が出来る。(図 2)

5本以上の飛跡がコンバーター内で1点に収束する反応事象を選び出し、発生点を決め、2次飛跡を多段シフターへ接続して入射タイミングを決定した。また e-pair 事象についてもエネルギー150MeV 以上のものを同様にタイムスタンプした。反応事象と e-pair のタイミングが一致し、陽子反応点  $V_p$  と e-pair 反応点  $V_{ep}$  とを結んだ角度と、e-pair 飛跡から決まるガンマ線角度との角度差が 0.2 rad 以内で一致するものを選び出した。

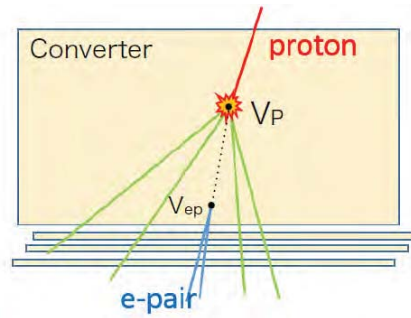


図2: 宇宙線陽子反応とそれに起因する e-pair

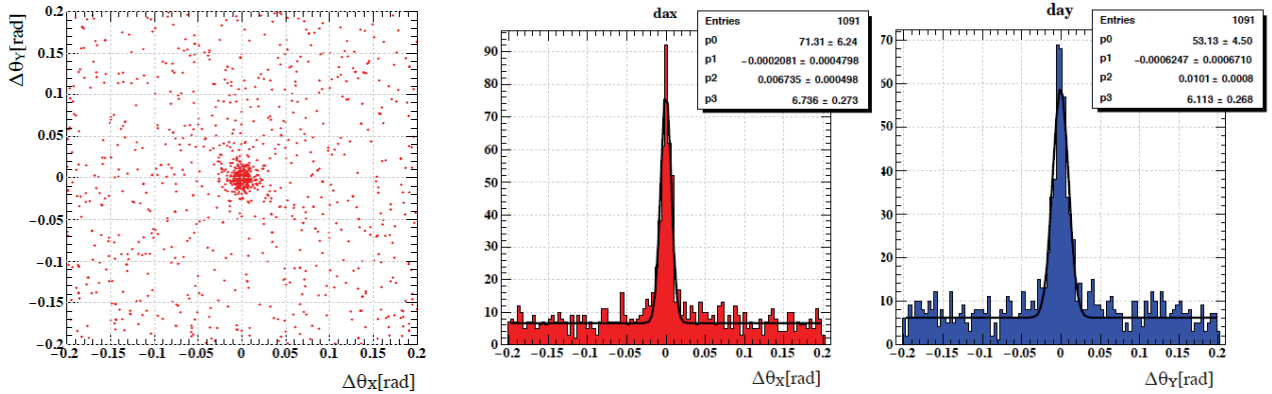


図3: (左) 陽子反応点( $V_p$ )と e-pair 反応点( $V_{ep}$ )とを結んだ角度と、e-pair 飛跡から決まるガンマ線角度との角度差 (中, 右) ピーク付近を X,Y projection に投影したヒストグラム

図3(左)に角度差の散布図を示す。一様に分布するチャンスコインシデンス成分の中に角度差(0,0)を中心としたシグナル成分が確認出来た。各 projection のヒストグラムを図3(中, 右)に示す。一様分布+ガウス分布でシグナルの広がり进行评估した結果,  $\sigma$  (図中の P2)は 6.7-10.1[mrad](=0.38-0.58[°])となり, 150 MeV ガンマ線から期待される分解能( $\sigma \sim 8.7$ [mrad])とコンシステントな結果が得られ, 本実験で目標としている 100 MeV 領域での点源検出をするために必要な角度分解能を気球観測中に実現できていることを確認した。

さらに, 検出器外から入射するガンマ線に対するイメージング性能を確認するため, 検出器の上方 4m の高さに位置するアルミ製 4.6kg の放球プレートと宇宙線粒子との反応で生成するガンマ線のイメージングを試みた。検出器内で捉えられたガンマ線事象を上流に向かって放球プレートと同じ高さまで外挿し, その水平面上での通過位置の分布を調べたところ, 放球プレートの位置に対応する場所に期待通りの広がりサイズのアクセスが認められることを確認し, 検出器のイメージング性能を確認した。

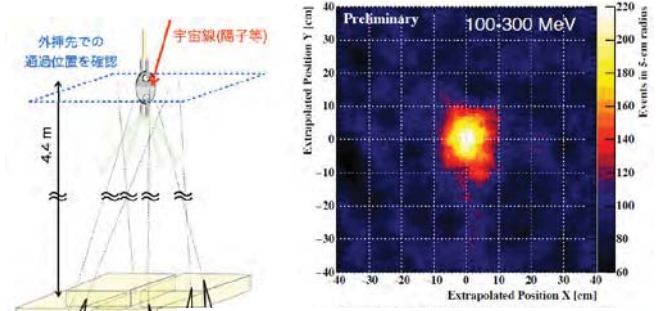


図4: 放球プレートのイメージング

GRAINE 実験の主たる観測対象は電子・陽電子を対生成した親ガンマ線であるため, ガンマ線に対する角度分解能や検出効率を検証することで検出器の総合的な性能評価を行ったが, 直接測定しているのは生成された電子および陽電子という荷電粒子の飛跡であり, これらの検出・測定で確立された手法は, 同じ原理で検出・測定される宇宙線ミュー粒子の飛跡にも応用できる。角度分解能が生命線となることはガンマ線イメージングもミューオンラジオグラフィも共通しており, HTS を利用した飛跡解析において普遍的活用が期待される。

## 【研究成果の公表状況】

### <原著論文>

- 1) H. Rokujo et al., First demonstration of gamma-ray imaging using balloon-borne emulsion telescope, arXiv:1711.01544v1 (2017)

### <国際会議>

- 1) F. Mizutani et al., GRAINE Project: Analysis Status of Balloon Experiment in 2015, The 31st International Symposium on Space Technology and Science, Matsuyama, Japan, 2017/06/03-09, oral
- 2) S. Takahashi et al., GRAINE,  $\gamma$ -ray observations with a high angular resolving and polarization sensitive large-aperture emulsion telescope, The 35th International Cosmic Ray Conference 2017 (ICRC2017), Busan, Korea, 2017/07/12-20, oral
- 3) H. Rokujo et al., GRAINE balloon-borne experiment in 2015: Observations with a high angular resolution gamma-ray telescope, The 35th International Cosmic Ray Conference 2017 (ICRC2017), Busan, Korea, 2017/07/12-20, poster
- 4) H. Kawahara et al., GRAINE Analysis of cosmic ray interactions in emulsion chamber and identification of inside-detector gamma rays, The 35th International Cosmic Ray Conference 2017 (ICRC2017), Busan, Korea, 2017/07/12-20, poster
- 5) H. Rokujo et al., GRAINE project: Measurements of Hadronic Interactions using Nuclear Emulsion, Workshop on forward physics and high-energy scattering at zero degrees 2017, Nagoya, Japan, 2017/09/26-29, oral

### <国内会議>

- 1) 中村悠哉 他, 高速自動飛跡読み取り装置 HTS の角度精度測定及び改善, 日本写真学会 2017 年度年次大会, 東京工業大学, 2016 年 6 月 20,21 日, 口頭
- 2) 河原宏晃 他, 気球実験 GRAINE におけるエマルジョン検出器中の宇宙線-原子核反応の解析, 日本写真学会 2017 年度年次大会, 東京工業大学, 2016 年 6 月 20,21 日, 口頭
- 3) 丸嶋利嗣 他, J-PARC ニュートリノ実験 NINJA : 原子核乾板を用いた時間分解型大面積多段シフターの検出器性能評価, 日本物理学会 2017 年秋季大会, 宇都宮大学, 2017 年 9 月 12~15 日, 口頭
- 4) 水谷深志 他, 時間情報を用いたエマルジョン望遠鏡のフライトデータ解析, 日本物理学会 2017 年秋季大会, 宇都宮大学, 2017 年 9 月 12~15 日, 口頭
- 5) 高橋覚 他, GRAINE 計画: 全体報告, 日本物理学会 2017 年秋季大会, 宇都宮大学, 2017 年 9 月 12~15 日, 口頭
- 6) 中村悠哉 他, GRAINE 計画: 2018 年実験に向けた原子核乾板準備状況報告, 日本物理学会 2017 年秋季大会, 宇都宮大学, 2017 年 9 月 12~15 日, 口頭
- 7) 呉坪健司 他, GRAINE 計画: 2018 年気球実験に向けた多段シフターの準備状況, 日本物理学会 2017 年秋季大会, 宇都宮大学, 2017 年 9 月 12~15 日, 口頭
- 8) 青木茂樹 他, GRAINE 計画: 全体計画, 大気球シンポジウム, JAXA 宇宙科学研究所, 2017 年 11 月 9,10 日, 口頭
- 9) 高橋覚 他, GRAINE 計画: 2018 年豪州気球実験に向けて, 大気球シンポジウム, JAXA 宇宙科学研究所, 2017 年 11 月 9,10 日, 口頭

- 10) 中村悠哉 他, GRAINE 計画: 2018 年豪州気球実験に向けたエマルジョンフィルム準備状況報告, 大気球シンポジウム, JAXA 宇宙科学研究所, 2017 年 11 月 9,10 日, 口頭
- 11) 呉坪健司 他, GRAINE 計画: 2018 年豪州気球実験に向けたタイムスタンプの準備状況, 大気球シンポジウム, JAXA 宇宙科学研究所, 2017 年 11 月 9,10 日, 口頭
- 12) 小宮山将広 他, GRAINE 計画: 2018 年豪州気球実験に向けた与圧容器ゴンドラ準備状況, 大気球シンポジウム, JAXA 宇宙科学研究所, 2017 年 11 月 9,10 日, 口頭
- 13) 六條宏紀 他, 気球搭載エマルジョン望遠鏡によるガンマ線イメージングの実証, 画像関連学会連合会第 4 回秋季大会, 京都工芸繊維大学, 2017 年 11 月 30-12 月 2 日, 口頭
- 14) 高橋覚 他, GRAINE 計画: 全体報告, 画像関連学会連合会第 4 回秋季大会, 京都工芸繊維大学, 2017 年 11 月 30-12 月 2 日, 口頭
- 15) 呉坪健司 他, 2018 年豪州気球実験へ向けた原子核乾板多段シフターの準備状況, 画像関連学会連合会第 4 回秋季大会, 京都工芸繊維大学, 2017 年 11 月 30-12 月 2 日, ポスター
- 16) 六條宏紀 他, GRAINE Demonstration of  $\gamma$ -ray imaging using balloon-borne emulsion telescope, 「ニュートリノフロンティアの融合と進化」研究会 (2017), 琵琶湖グランドホテル, 2017 年 12 月 11,12 日, ポスター
- 17) 森下美沙希 他, GRAINE 2015 Flight Data Analysis to Measure East-West Effect of Cosmic Rays, 「ニュートリノフロンティアの融合と進化」研究会 (2017), 琵琶湖グランドホテル, 2017 年 12 月 11,12 日, ポスター
- 18) 六條宏紀 他, GRAINE project: sub-GeV/GeV gamma-ray observation with balloon-borne emulsion telescope, CTA-Japan 研究会, 東大柏キャンパス, 2017 年 12 月 18,19 日, 口頭
- 19) 高橋覚 他, GRAINE 計画: 全体報告, 第 18 回宇宙科学シンポジウム, JAXA 宇宙科学研究所, 2018 年 1 月 9,10 日, ポスター
- 20) 丸嶋利嗣 他, GRAINE 計画における姿勢モニターの開発, 第 18 回宇宙科学シンポジウム, JAXA 宇宙科学研究所, 2018 年 1 月 9,10 日, ポスター
- 21) 森下美沙希 他, GRAINE 計画: 2015 年豪州気球実験フライトデータによる東西効果の測定, 日本物理学会 第 73 回年次大会, 東京理科大学, 2018 年 3 月 22~25 日, 口頭

<産業財産権>

- ・該当なし



## 原子核乾板による生体中の放射性核種オートラジオグラフィー Radioactive autoradiography in vivo with the nuclear emulsion

中村 琢・岐阜大学・教育学部・准教授  
長縄直崇・名古屋大学大学院・理学研究科・研究員  
中村光廣・名古屋大学大学院・理学研究科・教授

### 1. 研究目的

人体および小動物、植物等に沈着、蓄積している可能性のある極微量の放射性核種の存在を、超高感度放射線飛跡検出器である、原子核乾板の写真技術で捉える。福島第一原子力発電所事故による放射性物質の飛散と大地の汚染がもたらした問題は深刻で人々の不安は拭い去れていない。本研究のオートラジオグラフィーは、電源不要の革新的省エネルギーでかつ積分型放射線検出器である原子核乾板の特性を最大限利活用し、生体に含まれる放射性核種の挙動を  $1\mu\text{m}$  の高位置分解能で可視化するものである。既存の放射線検出器では難しい数 mBq 程度の極低頻度の放射線の非破壊で検出する手法を確立し、生体の歯等に蓄積する放射性ストロンチウムや放射性セシウムの移行と存在部位を 2 次元画像で得ることを目的とする。

### 2. 研究内容と成果

本研究では、福島第一原発事故後に数日間福島県に住んでいた人を含む 30 名から調査依頼を受け、集められた子どもの脱落乳歯 90 個を調査対象とした。測定後の乳歯は提供者に返却することになっているため、本研究では乳歯を非破壊で取り扱う。以下の 5 段階の方法 (1) ゲルマニウム半導体検出器、(2)  $2\pi$  ガスフローカウンター、(3) 高感度霧箱、(4) イメージングプレート、(5) 原子核乾板、で実施している。(4) (5) がオートラジオグラフィーである。

乳歯から出る  $\gamma$  線の有無をゲルマニウム半導体検出器で測定した。6 時間の測定において背景事象と比べて有意な  $\gamma$  線のエネルギーピークは検出されなかった。また、2016 年までに明らかとなった治療痕を有する乳歯試料から、放射線が比較的多く出ていることが明らかとなったため、齲蝕の治療に使用される典型的な薬剤 2 種類および接着剤材料 8 種類(カップパーシールセメント、アイオノマーセメント、パナビアペースト、ベースセメント、ネオダイシー等)について  $\gamma$  線放出の有無を測定した。3 時間の測定において、いずれの薬剤、材料からも  $\gamma$  線の放出は見られなかった。

乳歯から出る  $\alpha$  線、 $\beta$  線の有無を  $2\pi$  ガスフローカウンター(Aloka, LBC-471-P)で測定した。2016 年度に測定した 30 試料に加えて、全 90 試料を個別に 1 時間測定した。いずれの乳歯試料の結果も検出限界以下であった。同じく齲蝕治療に使用する薬剤、接着剤材料も検出限界以下であった。

低頻度の  $\beta$  線検出のために、高感度霧箱を使用した。林らによって開発されているアルコール循環型の高感度霧箱は、荷電粒子の飛跡の形状から  $\alpha$  線、 $\beta$  線の弁別が可能である。本研究では、過飽和層の深さが 5cm ほどになるようにドライアイスと霧箱筐体の密着性を向上させたものを使



用した。環境中の放射線と乳歯から出るβ線を区別するために、10mmの鉄板で霧箱側面を覆い遮蔽した。乳歯の大きさは最大でも10mm程度であり、遮蔽により霧箱内に入れた乳歯の近傍1cm<sup>3</sup>に入る環境中のβ線およびコンプトン電子の出現頻度は、2.1mBqに低減された。

測定では乳歯を霧箱の中央部にある過飽和層の中に吊り下げて固定し、霧箱を飛跡認識可能な状態に保ち、8-10時間映像を記録した。得られた映像を見ながら乳歯の近傍から出るβ線の飛跡数を数えた。背景事象を減じて、乳歯から出現するβ線数の最大頻度は治療痕のある試料で1.2±0.50mBq、治療痕のない試料で0.96±0.46mBqを得た。

並行して、乳歯から出るβ線の2次元画像を得るために、イメージングプレート（富士写真フイルム、BAS IP MS 2040 E）を使用した。50個の乳歯を密着させ42日間遮蔽箱に保管し、発光強度に応じた白黒濃淡からなる2次元画像データを読み出した。複数の乳歯試料と接した箇所からβ線の痕跡を確認した。β線の当たった場所が黒くなり、頻度は黒化度の濃淡によって可視化される。濃淡の情報から放射能への換算のために、90Srの標準線源を用いて校正実験を行い、校正係数を求めた。乳歯試料と非接触の面の、同一面積の黒化度を減じて放射能を見積もると、β線を最も多く出していると思われる乳歯試料で約4.0mBqであった。上記(3)の霧箱は立体角4πで測定しているのに対し、イメージングプレートは乳歯と密着している面でおおよそ立体角2πとなっていることや、検出限界の違いを考慮する必要がある。

乳歯から出るβ線飛跡の詳細な2次元情報を得るために、原子核乾板を使用した。2016年に作成し、乳歯と密着させた試料を136日間鉛で環境放射線を遮蔽して保管ののち、現像した。3試料について原子核乾板の1mm<sup>2</sup>に記録されたβ線の飛跡数を顕微鏡観察下で測定した。飛跡数は38.6~112/mm<sup>2</sup>となり、放射能は0.33~1.0mBq/cm<sup>2</sup>であった。個体差や治療痕の有無の差は現状では不明確であり、継続調査が必要である。

上記(1)から(5)の方法のうち、(1)(2)は得られた乳歯試料の全数を測定した。(3)は4試料、(4)は85試料、(5)は4試料を測定した。霧箱およびイメージングプレートの結果から、乳歯から何らかのβ線が出ていることが確認された。詳細な部位の特定や濃度等の特徴を調べるために、引き続き原子核乾板における解析を行う。本研究は、乳歯から出ているβ線の有無と強度の測定をねらうものであるが、放射性核種を同定することはできない。したがって直ちに90Srの崩壊によるものと特定するものではない。

## 【研究成果の公表状況】

<国際・国内会議>

- Taku Nakamura, Yuhi Michiue, Naotaka Naganawa, Radioactivity measurement of the deciduous teeth, ICMaSS2017, Nagoya University, Sep.29 – Oct. 1.
- 深瀬未紗樹, 中村琢, 理科における原発事故後の放射線教育—人歯の放射能測定—, 日本理科教育学会東海支部大会, 三重大学, 2017年12月2日.

## ミュオンラジオグラフィーのための原子核乾板の

### 長期利用可能化研究

R&D for expiry date of nuclear emulsion used in muonradiography

研究代表者 西藤清秀・奈良県立橿原考古学研究所・技術アドバイザー

研究分担者 石黒勝己・奈良県立橿原考古学研究所・特別研究員

西尾晃・名古屋大学理学研究科・DC

豊岡卓之・奈良県立橿原考古学研究所・副所長

菅谷文則・奈良県立橿原考古学研究所・所長

#### ・研究の目的:

ミュオンラジオグラフィーとは宇宙線ミュオンを用いて数メートルから 1km 程度の厚さの構造物の内部透視画像を得る手法である。原理はレントゲン写真に似ているがレントゲンでは X 線点光源を用いるのに対し、ミュオンラジオグラフィーでは空から降り注ぐ宇宙線ミュオンを光源として用いる。検出器を数週間から数ヶ月間宇宙線ミュオンにさらすことで、ミュオンの角度異方性を検出して画像を得るものである。この際に検出器の露光時間が長いほど統計精度がよくなるため分解能の高い画像を得られるが、我々の検出器である原子核乾板を長期間放置するとランダムノイズとして銀粒子の点群(フォグ)があらわれ、高密度になるにつれ解析不能になるという問題がある。この現象は温度が高いほど(18 度程度以上)顕著であることが解っている。本研究ではこれを解決して 原子核乾板の長期利用可能化を目指し高品質な画像化を目指す。我々は特に日本の古墳で実施をしたいので屋外、非電化といった条件でこれを達成したい。

#### ・研究内容と成果

まずフィルムの温度上昇を防ぐための治具についての改善をした。史跡古墳への設置においては特別な制限が多い。我々は図 1 のような制限を満たす治具を設計して安定したフィルムの固定を達成しつつ、保冷効果のある箱で周囲と遮断をした。温度をログしながら実際に奈良県の古墳で試すことで 10 月の条件下(最高気温 23 度で地表はその約 4 度上)では一週間に一度だけ氷を交換すれば箱内の温度は平均約 7 度、最高 15 度で、観測に十分耐えられる温度に保つことが出来た(図 2)。さらに非電化で箱内温度を自動的に冷却するシステムを考案した。化学的に箱内を冷却することにし、化学肥料を定期的に箱内に置いた水槽に投下することで最高気温を低下させる方法を実験室でテストした。パックしたフィルムの温度をシール温度計で測りながら試験を行うことで水槽に一部を浸したフィルムパックの温度を 16 度から、直後に 4 度まで低下さ

せ、60分後でも6度に温度を保てていることを確かめた(図3)。

さらにフィルムのパッキング材を変更して発生水素ガスを軽減することでフォグ量の改善をテストしている。また、パッキング材中に水素吸着性のヤシ殻炭素シートを封入し、湿度変化の効果も考えて効果の評価を継続して行っている。

以上のうちの技術を複数組み合わせることで実際に奈良の古墳にて観測を行っている。斑鳩町春日古墳では墳丘内に石室の可能性のある空洞を検出(図4)して春日古墳調査検討委員会で発表し、会後に報道発表した。

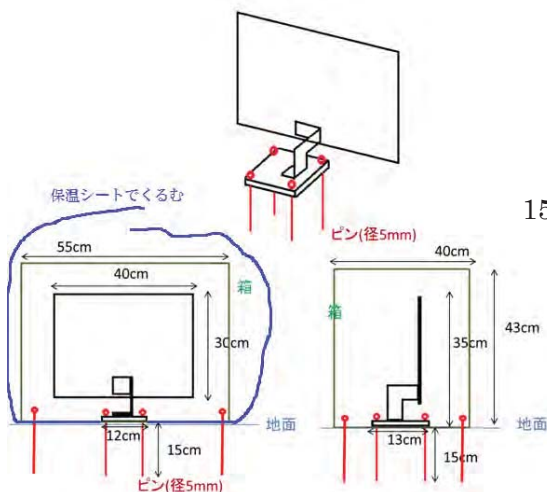


図1:治具のデザイン

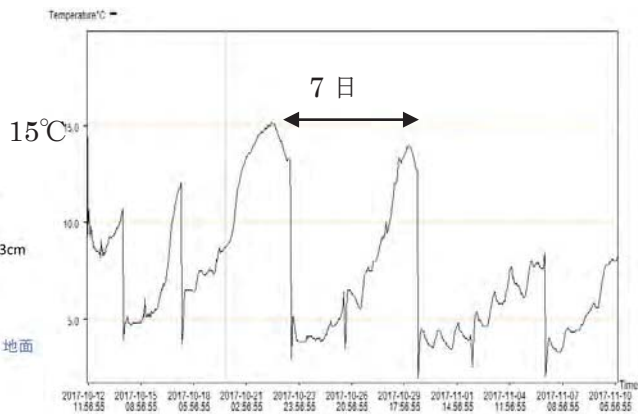


図2:治具内温度の変化

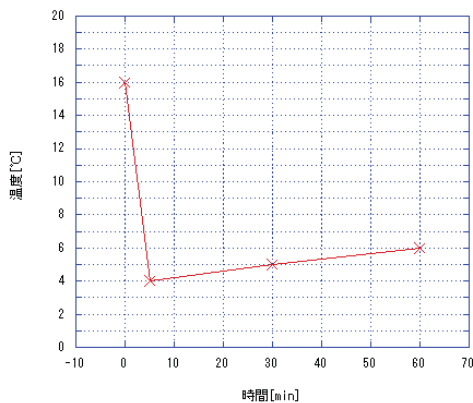


図3:化学的冷却による温度変化

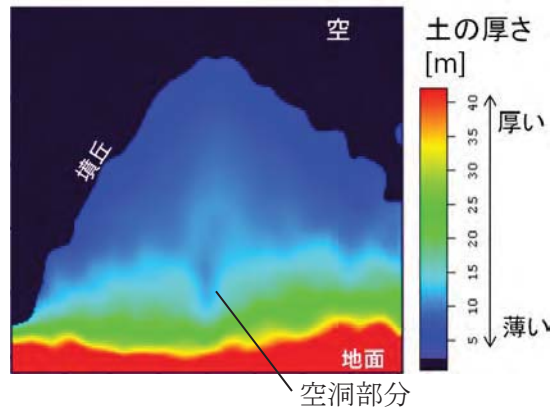


図4:春日古墳でのミュオンラジオグラフィ結果

### 【研究成果の公表状況】

<原著論文>

Katsumi Ishiguro, Kiyohide Saito, Mitsuhiro Nakamura 「Recent study of muonradiography for Japanese tumulus」 『 ICMASS2017 abstract 』 (sep 2017)

<国際・国内会議>

Katsumi Ishiguro, Kiyohide Saito, Mitsuhiro Nakamura , Recent study of muonradiography for Japanese tumulus , ICMASS2017 (sep 2017)

<産業財産権> ・出願状況、取得状況 なし

## 銀担持酸化ガリウム光触媒の二酸化炭素還元反応メカニズム解明

CO<sub>2</sub> reduction mechanism over Ag loaded Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> photocatalyst

吉田朋子・大阪市立大学・複合先端研究機構・教授

山本宗昭・名古屋大学大学院・工学研究科・D3

小澤晃代・大阪市立大学大学院・工学研究科・D1

八木伸也・名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授

### 1. 研究目的

酸化ガリウム光触媒 (Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) は二酸化炭素分解反応に有効な光触媒であり、無尽蔵に存在する太陽光エネルギーを利用して、水と二酸化炭素から一酸化炭素、水素、酸素を生成することから、化学エネルギーの創製・省エネルギーの観点から優れた機能性材料といえる。最近、酸化ガリウムに銀助触媒を添加すると、CO<sub>2</sub>の光触媒的還元反応が促進されることが報告されている。しかし、銀粒子の担持によるCO<sub>2</sub>の吸着及び反応メカニズムへの影響や、担持した銀粒子の電子状態は明らかとなっていない。本研究では、銀担持量を変えた2種類の銀担持酸化ガリウム触媒について *in-situ* FT-IR 法を用い、触媒表面に吸着した反応分子の化学状態を調べ、反応のメカニズムを解明することを目的とした。また反応に有効な Ag 活性成分の電子状態・局所構造を XAFS 測定から考察した。

### 2. 研究内容と成果

銀担持酸化ガリウム触媒 (Ag/Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) は、硝酸銀水溶液を用いて含浸法 (673 K, 2h 焼成) で調製した。銀の担持量は仕込み量で 0.1 wt%, 1.0 wt% とした。各触媒の赤外吸収スペクトルは、*in-situ* セルを用いて測定した。前処理として 673 K で 1h の加熱真空排気処理を行った後、室温で CO<sub>2</sub> (45 Torr), H<sub>2</sub>O (20 Torr) を導入した。更に 300 W Xe ランプを用いて 1 時間光照射を行った。Ag L<sub>3</sub>-edge XANES スペクトルは、あいち SR BL6N1 にて He 雰囲気下、室温、部分蛍光法で測定した。

0.1 wt% Ag/Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 触媒に CO<sub>2</sub> を導入し、触媒表面に十分吸着させてから室温で真空排気した後の FT-IR スペクトル (図 1(a)) には、1635 cm<sup>-1</sup> と 1419 cm<sup>-1</sup> に monodentate bicarbonate に帰属される吸収と、1580 cm<sup>-1</sup> と 1344 cm<sup>-1</sup> に bidentate carbonate に帰属される吸収が現れた。CO<sub>2</sub> は触媒表面の OH 基と反応し carbonate や bicarbonate として安定化されていると考えられる。次に光照射を行うと、bicarbonate や carbonate に由来する吸収が減少し、1577 cm<sup>-1</sup>, 1388 cm<sup>-1</sup>, 1353 cm<sup>-1</sup> に新たな吸収が現れた (図 1(b))。これらの吸収は bidentate formate に帰属され、bicarbonate や carbonate は光照射によって、反応中間体の bidentate formate へ変化することが分かった。この bidentate formate 由来の吸収は、H<sub>2</sub>O を導入するとブロード化し、その後の光照射により減少することを見出した (図 1(c))。一方、H<sub>2</sub>O を導入して吸着



させた後に真空排気すると bidentate formate 由来の吸収は変化せず、その後光照射を行っても吸収の減少は認められなかった。これらの結果から、光照射下で bidentate formate と水分子が直接作用することによって CO を生成することが明らかとなった。

1.0 wt% Ag/Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>触媒について同様の FT-IR 測定を行った結果を図 2 に示す。CO<sub>2</sub>吸着時には 1500 cm<sup>-1</sup>と 1350 cm<sup>-1</sup>に 2 つのブロードな吸収が生じ、これらは分子状吸着した CO<sub>2</sub> に帰属される (図 2(a))。この CO<sub>2</sub>吸着種は光照射によってほとんど脱離するため、bidentate formate にならないことが明らかとなった。また、反応後では 1388 cm<sup>-1</sup>の CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>に由来する吸収が強く、触媒表面に CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>が多く残ることが分かった。

以上のように、銀の担持量によって CO<sub>2</sub>の吸着化学状態及び反応メカニズムに差異があることから、両触媒中の Ag 電子状態が異なることが推測される。

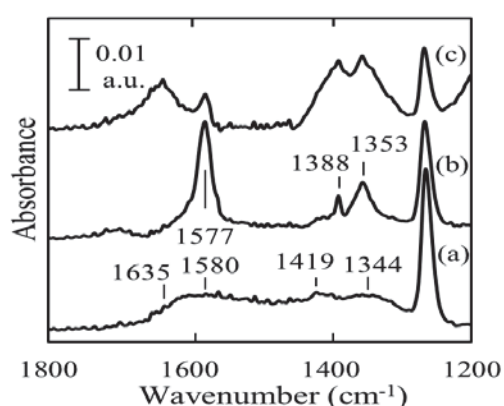


図1 0.1 wt% Ag/Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の FT-IRスペクトル。  
(a)CO<sub>2</sub>吸着後、(b)光照射後、  
(c)CO<sub>2</sub>及び水蒸気下での  
光照射後。

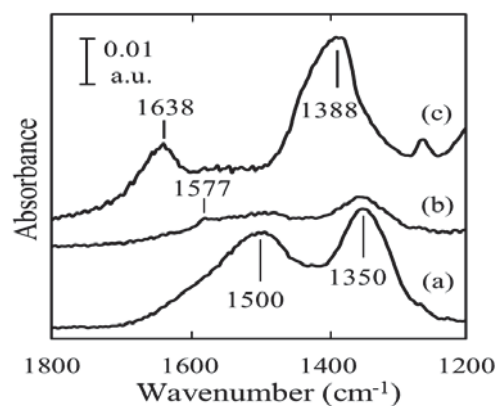


図2 1.0 wt% Ag/Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の FT-IRスペクトル。  
(a)CO<sub>2</sub>吸着後、(b)光照射後、  
(c)CO<sub>2</sub>及び水蒸気下での  
光照射後。

Ag L<sub>3</sub>-edge XANES 測定において 1.0 wt% Ag/Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>のスペクトルには Ag 金属由来の微細構造に加え、吸収端直後に Ag 酸化物由来の鋭い吸収が見られることから、Ag 粒子は部分的に酸化されていることが確認された。0.1 wt% Ag/Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>のスペクトルにも同様の吸収が認められるものの、Ag 金属由来の微細構造がブロードであることから Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>との結合により高分散化された小さな銀粒子が多数存在していると考えられる。IR 測定の結果を踏まえると、このような銀粒子が CO 生成に効果的であるといえる。

## 【研究成果の公表状況】

<原著論文>

M. Yamamoto, S. Yagi and T. Yoshida, Effect of Ag co-catalyst on CO<sub>2</sub> adsorption states over Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> photocatalyst, Catalysis Today (2018) in press.

<国際・国内会議>

M. Yamamoto, S. Yagi and T. Yoshida, CO<sub>2</sub> adsorption states affected by Ag co-catalyst over Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> photocatalyst, 16<sup>th</sup> Korea-Japan Symposium on Catalysis & 3<sup>rd</sup> International Symposium of Institute for Catalysis, Sapporo, Japan, May 15-17, 2017.



## シリサイドバルク結晶を用いた熱電特性の異方性評価

Anisotropy evaluation of the thermoelectric properties of silicide bulk crystals

原 嘉昭・茨城工業高等専門学校・自然科学科・准教授  
八木伸也・名古屋大学・未来材料・システム研・教授

### 1. 研究目的

Mg<sub>2</sub>Si, MnSi<sub>x</sub>, β-FeSi<sub>2</sub>などのシリサイド半導体は、資源が豊富で無毒な元素から構成され、また、高い熱電性能を持つことから 400~900K の中温域で利用できる熱電材料として注目されている。しかし熱電特性が実用レベルに達しているのは Mg<sub>2</sub>Si のみである。

一方、私は、β-FeSi<sub>2</sub>の高温相であるα-FeSi<sub>2</sub>単結晶片（厚さ数十ミクロンの板状結晶）に共析反応を施すことでβ-FeSi<sub>2</sub>結晶を得たところ、熱電特性が良いと言われている a 軸方向に強く配向した状態であることを見出した。この手法を数ミリ角サイズのバルク結晶に応用することができれば、β-FeSi<sub>2</sub>結晶の熱電材料への応用が現実味を帯びてくる。

そこで本研究の目的は、1) 数ミリ角サイズのバルク結晶の熱電特性を簡便に評価する装置立ち上げる、2) 引き上げ法により作製したα-FeSi<sub>2</sub>バルク単結晶に対して共析熱処理を施し配向性の高いβ-FeSi<sub>2</sub>バルク結晶を得る、3) その熱電特性を評価する、ことである。さらに、別の目的で作製した OsSi<sub>2</sub>と Si の混合物の熱電特性を評価することも目的とした。

最終的には、結晶の熱電特性に優れる方位のみを利用する新しい高性能熱電素子の開発を行うことで、火力発電所やエンジン等から排出される熱を再び電気エネルギーに戻す技術開発という観点から、革新的な省エネルギーの実現に資する技術を生み出すことが目的である。

### 2. 研究内容と成果

#### 1) 微小単結晶試料（5mm 以下）の熱物性測定装置の作製

本研究で用いる試料は単結晶、多結晶とも 5mm 角程度以下の大きさである。このような微小試料の熱起電力を測定する装置を作製した。この装置の特徴は、上下から試料をヒーターで挟み込むことで、微小な試料でも簡便に両端の熱起電力が測定できることと、上下のヒーターが 1000℃まで昇温可能であり、例えば、FeSi<sub>2</sub>であれば、955℃の共析温度以上から徐々に温度を下げることで、α-FeSi<sub>2</sub>からβ-FeSi<sub>2</sub>と Si の共析結晶へと相変化させることができることである。すなわち単なる熱起電力の測定装置ではなく電気炉の役割も併せ持つことである。Fig.1 a)に装置の模式図を、b)に実際に共析化熱処理を行っている様子を示す。

## 2) $\alpha$ -FeSi<sub>2</sub>結晶から $\beta$ -FeSi<sub>2</sub>バルク結晶の作製

トリアーク炉を用いて、 $\alpha$ -FeSi<sub>2</sub>単結晶の引き上げを行なった。背面ラウエ法により方位を求め、c軸方向に3mm、a,b軸方向に2mmの形状に整形した。この試料を1)に示した装置により、両端を970°Cまで昇温したのち、下側の温度を920°Cに下げ、温度差50°Cの状態ですべて約10時間かけて900-850°Cまで冷却し共析化熱処理を施した。共析化熱処理前後の試料の抵抗はおよそ30倍に増大しており、金属から半導体へ変化していることが確認された。

## 3) 熱起電力測定

Fig.2に、試料の熱起電力の温度依存性を示す。熱起電力は、試料両端に5Kの温度差をつけて測定した。 $\beta$ -FeSi<sub>2</sub>については、同一の試料をa軸方向とそれに垂直方向の2方向の測定を行った。その結果、今回の狙いと異なり、a軸に垂直方向が低温領域において優位な結果となった。今後試料の配向度をX線回折で調べる予定である。一方、OsSi<sub>2</sub>とSiの混合物は $\beta$ -FeSi<sub>2</sub>に比べ高温領域まで大きなゼーベック係数を示した。今後、OsSi<sub>2</sub>の単結晶を作製し、異方性を含めた特性調査を行なっていく予定である。

### 【研究成果の公表状況】

<国際・国内会議>

- ・磯前貴央，菅谷哲，岡崎尚太，佐藤桂輔，川中浩史，原嘉昭，チョクラルスキー法による(OsFe)Si<sub>2</sub>単結晶合成の試み，2018年 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，3月17～20日

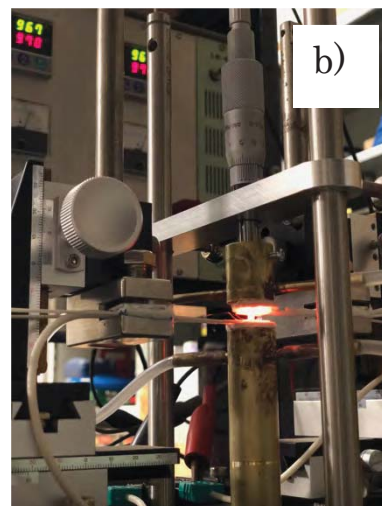
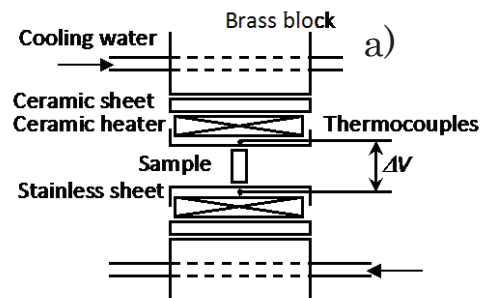


Fig.1 a) Schematic picture and b) a photo of the Seebeck effect measurement system.

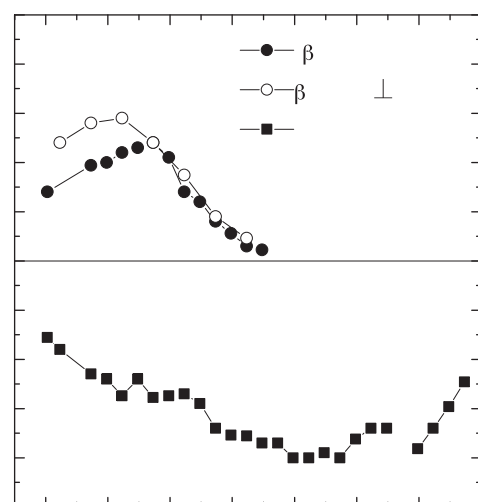


Fig.2 Temperature dependences of the Seebeck coefficient for silicide materials.

## 元素選択的イオン化を利用した生体分子内電荷移動の研究

### Intra-charge Transfer of Biomolecules utilizing Selective Ionizations

藤井 健太郎・量子科学技術研究開発機構・

量子ビーム応用研究部門・上席研究員

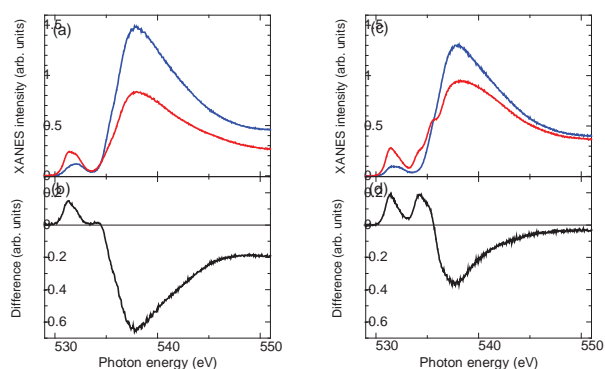
八木 伸也・名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授

#### 1. 研究目的

H28年度までに実施した共同研究では、放射線を利用した生体材料リサイクルシステムの研究により、内殻電子のイオン化によって、効率良い生体分子の分解や水素発生源としての可能性を見出すことができた。一方で、生体分子の周りに多数存在する水和水分子の役割により、これらの分解が著しく抑えられることが明らかになった。この過程は、イオン化後の非常に速い時間に起こる、生体分子から水和水分子への電荷移動が原因で生じると推察した。本申請課題では、この電荷移動の物理過程に関する知見を得ることで、省エネルギー生体分子デバイスの開発に資する、基礎的な知見を得ることを目的とする。

#### 2. 研究内容と成果

生体分子を構成する軽元素の K 殻電子のイオン化を行うと、その直後に起こる Auger 過程によって、価電子軌道に二個以上の正孔を生じる。この正孔同士のクーロン反発により K 殻イオン化を行った特定元素サイト近傍の結合を効率よく切断することが可能である。これまでに、DNA の酸素 K 殻イオン化によって起こる DNA 主鎖骨格分子 (デオキシリボース(dR)) の分解が、水和によって抑えられることを明らかにした。水和による dR 分子の分解の程度や、分解による分子構造変化に関する知見を得るため、乾燥及び水和 dR 薄膜に対して K 殻イオン化を行う前後の酸素 K 殻吸収端近傍の X 線吸収スペクトル(XANES)を測定した。その結果を図 1 に示す。水和 dR 薄膜の XANES スペクトルの変化は乾燥 dR 薄膜のスペクトルと比較して変化量が少なく、水和によって分解が抑えられていることがわかる。さらに、水和試料のスペクトル上 534eV 付近には、



(a) 乾燥dR薄膜の照射前(青)後(赤)のXANESスペクトルと(b)その差分スペクトル  
(c)水和dR薄膜の照射前(青)後(赤)のXANESスペクトルと(d)その差分スペクトル  
図1 軟X線照射によるdR薄膜のXANESスペクトル変化

乾燥試料のスペクトルでは見られなかったピークが確認された。このピークが出現するエネルギーは、ギ酸(HCOOH)のスペクトルと良い一致を示した。このことから、水和 dR において K 殻イオン化が起こった後に、カルボキシ基(-COOH)を生じる反応過程が特異的に存在することを見出した。水和 DNA 分子が放射線分解によりどのような分解生成物を生じるかを物理過程レベルで明らかにすることができれば、分解過程の効率良い制御技術の開発につながる知見となりうることから、今後この過程の詳細を明らかにすることは、効率よくかつ安全な生体分子の分解技術の開発に必須である。

一方、水和 dR に対する時間依存 DFT-MD シミュレーションにより、水和水分子の酸素 K 殻イオン化が生じた場合は、水和水分子から dR 分子へのプロトン移動も起こることを示唆する結果を得た。このように、酸素原子は dR 分子と水分子の両方に含まれるため、両方の分子内のイオン化サイトでそれぞれプロトン移動過程が起こる可能性がある。それらの相対的な頻度を探るため、dR 分子中の水酸基の水素を全て重水素に置換した試料 (D3-dR) を試料として用い、D3-dR 薄膜上に H<sub>2</sub>O の単分子膜を堆積させ、試料表面から光刺激によって脱離するイオンの質量分析を行った。dR の分解イオンの質量スペクトルでは見られていない質量数 19 及び 22 の脱離が D3-dR のスペクトル上で確認された。これらは、HDO<sup>+</sup>及び D<sub>3</sub>O<sup>+</sup>に相当すると同定した。一方で、D3-dR の脱離イオンスペクトルでは顕著な D<sup>+</sup>の脱離は確認されなかった。このことから、O-D 結合切断後の D<sup>+</sup>の生成はほとんど起こっていないと推察した。スペクトル上で確認された HDO<sup>+</sup>は、水和水分子から D3-dR 分子に向かってプロトン移動が起こり、その後 C-OD 結合の切断が生じてことで生成していると予想した。また、D<sub>3</sub>O<sup>+</sup>は C-OD 切断後に他の O-D 切断によって生じた D<sub>2</sub>が OD<sup>+</sup>と反応して生じた可能性がある。このようなプロトン移動過程の詳細を明らかにするために、H<sub>2</sub>O の代わりに D<sub>2</sub>O を堆積させた試料を用いた実験が必須である。今年度の予算によりその試料準備のための整備を行った。H30 年度はこれらの過程の詳細を明らかにする実験を進め、生体分子の分解を効率よく行うことができる条件を探る予定である。

### 【研究成果の公表状況】

<原著論文>

- K. Fujii, Y. Izumi, A. Narita, K. Ghose, P. Lopez-Tarifa, A. Touati, R. Spezia, M-P. Gaigeot, M-A Herve du Penhoat, M-F Politis, A. Yokoya, Roles of Hydration for inducing Decomposition of 2-deoxy-D-ribose by ionization of Oxygen K-shell Electrons, Radiation Research, (2018) in press.

<国際・国内会議>

- K. Fujii, M-A Herve du Penhoat, M-F Politis, A. Yokoya, Ultrafast Proton Transfer between DNA-Sugar Molecule and Hydrated Water induced by K-ionization of Oxygen, 1<sup>st</sup> QST International Symposium Quantum Life Science, Tokyo Bay Makuhari, 2017 年 7 月 25 日-26 日.
- 藤井健太郎, 横谷明德, M-A Herve du Penhoat, M-F Politis, 電離放射線によって生じる DNA 鎖切断に対する水和水分子の役割, 第 31 回日本放射光学学会年会, つくば国際会議場, 2018 年 1 月 8 日~10 日.

# 省エネルギー・低炭素化を推進する材料強度評価の 新学術・技術基盤創生

Formation of Novel Academic/Technical Bases on Materials Strength Evaluation toward  
Energy Saving and Low Carbon Emission

高橋可昌 関西大学 システム理工学部 准教授  
武藤俊介 名古屋大学未来材料・システム研究所 教授

## 1. 研究目的

内燃エンジン式に比べて劇的な省エネルギー化・低炭素化を達成する燃料電池自動車は、高圧水素ガス方式を採用したものが普及しつつあるが、水素ガスに曝される車載タンク・蓄圧インフラ等では水素脆性に対する強度の確保が極めて重要な課題である。しかし、水素脆性は複雑極まりない材料劣化現象であり、その発現機構の解明は現在もおお不十分である。本研究では、諸説ある水素脆性の素過程のうち「格子脆化 (Hydrogen-Enhanced Decohesion; HEDE)理論」に注目し、固体中における応力・水素の分布状態と脆性破壊現象の関係性を極めて精密な力学 - 化学複合実験解析 (mechano-chemical in situ TEM experiment)により検証することを目的としている。

## 2. 研究内容と成果

上記目的を達するために、報告者らは前年度に引き続き、異なる材料の界面を有するマイクロスケールの試験片をナノインデントホルダー(HN200E)へ取り付け、反応科学超高压電子顕微鏡(RSHVEM)中においてその場観察しながら破壊する実験に注力してきた。本実験においては、SiNとCuの界面を評価対象とし、二種類の外形状を有する試験片(Type I, II)を集束イオンビーム(FIB)加工により準備した。図1に試験片のTEM像および負荷時の荷重曲線を示す。本実験結果を基に、界面に沿った剥離亀裂が

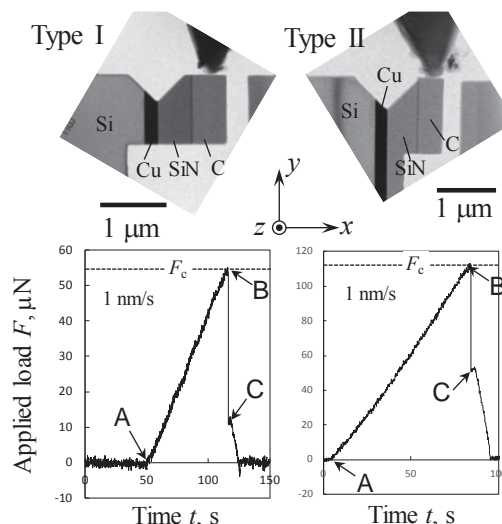


図1 マイクロ試験片のその場観察破壊実験

発生する時点(図中B点)において試験片に発生する応力分布を3次元有限要素法により解析した。本解析ではいずれの材料も弾性体であると仮定した。図2に示すように、切欠き底部近傍においては $\sigma = K/r^2$ で表される漸近応力場(特異応力場)が形成されている。亀裂発生に対する強さをパラメーター $K$ によって評価した。その結果を図3に示す。真空中における強度値はType I, IIにおいて同等であり、破壊力学則の成立が確認できる。一方、水素を含有するガス( $N_2$ - $H_2$ 混合ガス; 5000 Pa)中においては、どちらのタイプも



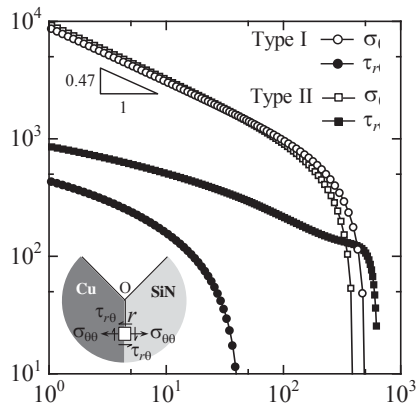


図2 剥離破壊発生時における界面に沿った応力分布

強度低下を示しているが、低下量は Type II の方が大きい。即ち、水素含有雰囲気中では破壊力学則が成立しない。この理由としては、切欠き底部近傍における Cu の塑性変形の関与が考えられた。そこで Cu の塑性変形を考慮した解析を別途行い、界面に沿った塑性ひずみ分布を比較した。図 4 より、Type II においては Type I よりも多く塑性ひずみが生じていることがわかる。この結果より、Type II における顕著な強度低下は、切欠き底部における塑性変形(転位)の存在状態と密接に関係している可能性が示された。

上記の結果は予想外の発見であり、非常に興味深い(論文発表済み)。なお、電子エネルギー損失分光法(Electron Energy-Loss Spectroscopy; EELS)分析を同時に行い水素分布を解析する実験については、引き続き検討を継続していることを付記する。

### 【研究成果の公表状況】

<原著論文>

- ・ Y. Takahashi et al., Interfacial fracture strength evaluation of Cu/SiN micro-components: applicability of the linear fracture mechanics criterion under a hydrogen environment, International Journal of Fracture, Vol. 210, 2018, pp. 223–231

<国際・国内会議>

- ・ 高橋可昌 他 7 名, マイクロ要素における界面端からの剥離き裂発生強度 (水素環境の影響), 日本機械学会 2017 年度年次大会, 埼玉大学, 2017 年 9 月 3 日~6 日.
- ・ 芦田至, 高橋可昌 他 3 名, Si/Cu マイクロ要素界面端からの剥離き裂発生強度 (水素の影響), 日本機械学会関西支部第 93 期定時総会講演会, 摂南大学, 2018 年 3 月 12 日~13 日.

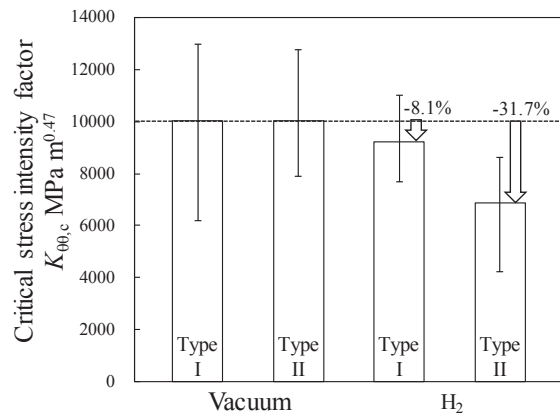


図3 剥離亀裂発生に対する抵抗(強度)値

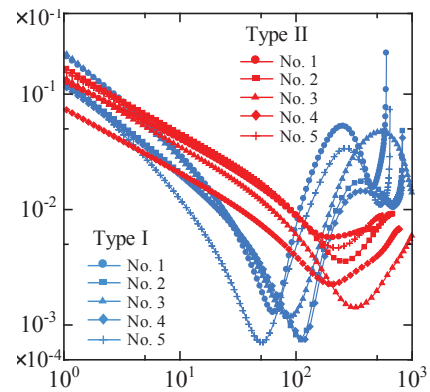


図4 剥離亀裂発生時の界面に沿った塑性ひずみ分布

## Cu 基エネルギー伝送材料の低サイクル疲労における 転位組織発達過程の解明

Study of dislocation structure evolution during low cycle fatigue  
in a Cu based energy transmission material

宮澤知孝・東京工業大学・物質理工学院・助教  
木村匠・東京工業大学・物質理工学院 材料系材料コース・修士学生  
藤居俊之・東京工業大学・物質理工学院・教授  
武藤俊介・名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授

### 1. 研究目的

導電性と強度のバランスの高い Cu は、エネルギー伝送材料としてコネクタ材料や自動車用配線等、広く用いられている。近年はスマートフォンのような小型のデバイスへの適用が急増しており、フレキシブル回路基板に用いられる高強度、高導電性、高屈曲性 Cu 箔の要求性能は高くなっている。特に重要となる特性として、熱疲労や機器ヒンジ部の繰り返し屈曲変形に対する疲労耐性がある。疲労特性は材料の高寿命化や省資源化にも寄与する特性であり、Cu の疲労特性の向上は、革新的省エネルギーの実現において必須の技術課題となる。そこで、本研究では Cu の疲労特性向上のために繰り返し変形機構の解明を目的として、Cu 単結晶の低サイクル疲労によって試料内部に形成される転位組織の超高压走査透過電子顕微鏡観察(High-voltage scanning transmission electron microscopy, HV-STEM)を行い、3 次元的形態とその塑性ひずみ振幅依存性を調査した。

### 2. 研究内容と成果

Bridgman 法によって育成した Cu 単結晶より[001]方位を応力軸とする試験片を切り出し、塑性ひずみ振幅制御での疲労試験を行った。塑性ひずみ振幅は  $3.5 \times 10^{-4}$  から  $1.0 \times 10^{-2}$  まで変化させて、いずれの条件においても積算総ひずみで 41.6 まで試験を実施した。各疲労試験片より(100)、(010)および(001)のそれぞれの面に平行に組織観察用試料を切り出し、電解研磨によって薄膜化した。転位組織観察は反応科学超高压走査透過電子顕微鏡(JEM-1000K RS)の STEM モードを用い、明視野像での観察を行った。

Fig. 1 に塑性ひずみ振幅  $1.0 \times 10^{-3}$  および  $1.0 \times 10^{-2}$  の疲労試験により形成された転位組織の 3 次元構成像をそれぞれ示す。塑性ひずみ振幅  $1.0 \times 10^{-3}$  の転位組織は、[010]方向に伸張した四角形状の高転位密度領域がチャンネルを挟んで周期配列した形態となっている。この転位組織は単一すべり方位の低塑性ひずみ振幅領域で形成される vein 組織と類似している。しかし、[001]応力軸では、主すべり系と臨界すべり系が同時に活動

する多重すべり方位となるため，単一すべり方位で形成される vein 組織とはその結晶学的方位と幾何学が異なる．そこで，この[001]応力軸の試験片に形成した組織を vein-like 組織と呼称した．これに対し，塑性ひずみ振幅  $1.0 \times 10^{-2}$  においては，(100)および(001)面に平行な 2 種類の転位 wall とチャネルによって構成される labyrinth 組織が形成されている．また，(010)面に平行な転位 wall は存在せず，labyrinth 組織も異方性のある転位組織となる．これらの結果より[001]多重すべり方位の Cu 単結晶において繰り返し変形によって形成される転位組織は，塑性ひずみ振幅の増加に伴い，vein-like 組織から labyrinth 組織へと変化するといえる．

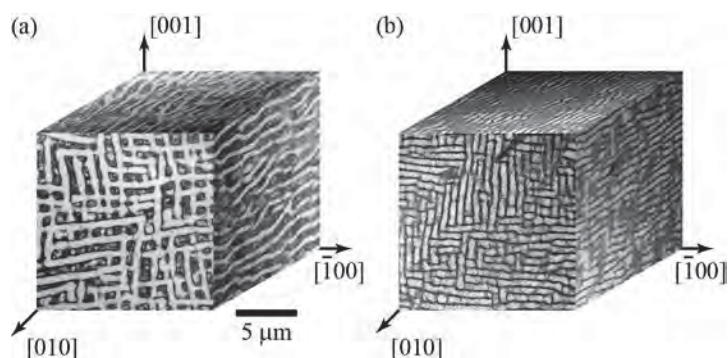


Fig. 1 塑性ひずみ振幅(a)  $1.0 \times 10^{-3}$  および(b)  $1.0 \times 10^{-2}$  における転位組織の 3 次元構成図．

## 【研究成果の公表状況】

### <原著論文>

- Toshiyuki Fujii, Takahiro Kajita, Tomotaka Miyazawa, Shigeo Arai, Characterization of dislocation microstructures in cyclically deformed [001] copper single crystals using high voltage scanning transmission electron microscopy, *Mater. Charact.*, DOI: <https://doi.org/10.1016/j.matchar.2017.12.026>.

### <国際・国内会議>

- 宮澤知孝，木村匠，藤居俊之，荒井重勇，[-111]銅単結晶の繰り返し変形により形成された転位組織の超高压走査透過電子顕微鏡観察，日本顕微鏡学会第 73 回学術講演会，札幌コンベンションセンター，2017 年 5 月 30 日～6 月 1 日．
- 木村匠，宮澤知孝，藤居俊之，荒井重勇，銅[-111]単結晶の繰り返し変形に伴う転位組織形成過程，日本金属学会 2017 年秋期(第 161 回)講演大会，北海道大学，2017 年 9 月 6 日～8 日．
- T. Miyazawa, T. Kajita, T. Fujii, and S. Arai, High-voltage scanning transmission electron microscopic observation of dislocation structures developed in cyclically deformation [001] Cu single crystals, ICMaSS2017, Nagoya, 2017.9.29-10.1.

## Mg マトリックス中における準結晶粒の析出挙動の観察 Observation for the precipitation behavior of Quasicrystal particles in Mg matrix

蔡 安邦・東北大学・多元物質科学研教授

大橋 諭・東北大学・多元物質科学研究所・技術職員

齋藤晃・名古屋大学・未来材料・システム研究所高度計測技術実践センター・教授

### 1. 研究目的

準結晶は正二十面体の対称性を持つ複数のシェルで構成されるクラスター構造を有し、従来の結晶学で許容されない 5 回回転対称性や準周期的な原子面間隔を示す。構造の複雑さから合金にもかかわらず硬いことが特徴である。準結晶の応用研究の一つとして、準結晶の硬さおよび金属としてマグネシウム(Mg)とのなじみ易さから準結晶分散 Mg 合金の研究がされている。分散材としての準結晶は Zn-Mg-Zr 系、Zn-Mg-Y 系、Mg-Cd-Yb 系などがあり、Mg 合金の機械的性質の向上や集合組織の緩和が報告されている。なかでも Mg-Cd-Yb 準結晶は準結晶の形成する組成範囲が広く、Mg との二相共存領域も広いと、準結晶の分散組織を制御し機械的性質との相関を研究する上で最適な系の一つである。Mg-Cd-Yb 合金においては溶体化処理を経て熱処理を行うことにより、Mg マトリックス中に 100 nm 以下の微細な準結晶粒が析出した組織を有する Mg 合金の作製ができる。本研究では析出初期の準結晶粒もしくは関連する化合物粒について高分解能 TEM 観察を実施し、準結晶構造の形成メカニズムならびに準結晶相と Mg マトリックスとの界面構造について明らかにすることを目的とする。

### 2. 研究内容と成果

母合金となる Mg-Cd-Yb 準結晶分散 Mg 合金を高周波溶解炉を用いて作製し、溶体化処理・再熱処理を実施することで Mg マトリックス中に 100 nm 以下の準結晶粒を均一に析出させる。マトリックス中に分散する微細な準結晶もしくは関連する化合物粒について TEM 観察を行い、数 10 nm 以下の小さなものから比較的大きなものまで異なるサイズの準結晶粒について HAADF-STEM 観察を行うことで、マトリックス中に析出する準結晶粒（準結晶構造）の形成過程を追及する。併せて、準結晶と Mg マトリックスの界面を観察し、準結晶の形成過程における両相の相関についても評価する。

今回、数 10 nm 程度の微細な準結晶について HAADF-STEM 観察することで複数の準結晶粒が Mg マトリックスと一定の方位関係を有していること、ならびに明瞭なファセットを持つ準結晶/Mg 界面が観察できることが明らかとなった。準結晶粒と Mg マトリックスの方位関係は準結晶の互いに直交する 3 つの 2 回回転対称軸が Mg の  $a$ -軸、 $[10-10]$ 、 $c$ -軸とそれぞれ平行に配置するものであり、これまでに報告されていた方位関係と一致する。Mg の  $a$ -軸に平行な方位から観察した準結晶粒について詳細に調べた結果、溶体化処理を経て析出させた準結晶は矩形の形状をしており、ファセット面は準結晶の 2 回回転対称面  $\{2-f\}$  と Mg の底面、および準結晶の 2 回回転対称面と Mg の  $\{10-10\}$  面からなる界面であることが分かった。一方、Mg の  $c$ -軸に平行な方位



から観察した場合には準結晶の形状は矩形ではなく、いくつかの規則的な方向に折れ曲がった形状をしていることが分かった。準結晶が成長する方向は Mg の  $\langle 10\text{-}10 \rangle$  と一致するものであり、折れ曲がりの部分は準結晶の 5 回回転対称面  $\{5\text{-}f\}$  を双晶面とする双晶が形成されていた。さらに微細な準結晶粒においては粒の形状が不定形に近く、より複数のドメイン構造を有していた。いずれの準結晶粒においても Mg の  $c$ -軸に平行な方位から観察した際に準結晶の 2 回回転対称面が多く観察されており、Mg-Cd-Yb 準結晶の 2 回回転対称面と Mg の底面が特に整合性が高いものと考察できる。以上より Mg-Cd-Yb 準結晶分散 Mg 合金において、準結晶の析出初期には上記の方位関係（特に準結晶の 2 回回転対称軸と Mg の  $c$ -軸が一致するよう）に配置され、複数のドメイン構造が見られるが、準結晶粒の成長は準結晶の 2 回回転対称面  $\cdot$  5 回回転対称面が Mg の  $\{10\text{-}10\}$  と安定な界面（整合界面）を作るように成長し、最終的にこれらを反映した形状を示すと考えられる。

これまでに Mg-Cd-Yb 準結晶と Mg の方位関係・XRD の結果を元に準周期的な構造と周期的な構造の界面の安定性を議論してきたが、今回の観察で得られた両相の界面構造はこれらを原子レベルで解析・議論できる重要な実験データである。準結晶による軽量・強化 Mg 合金の研究・開発は輸送コストやエネルギーの省エネに役立つだけでなく、合金の機械的性質の向上に準結晶（準周期構造）を利用するという点で新規性があり、その界面構造の詳細に興味を持たれる。

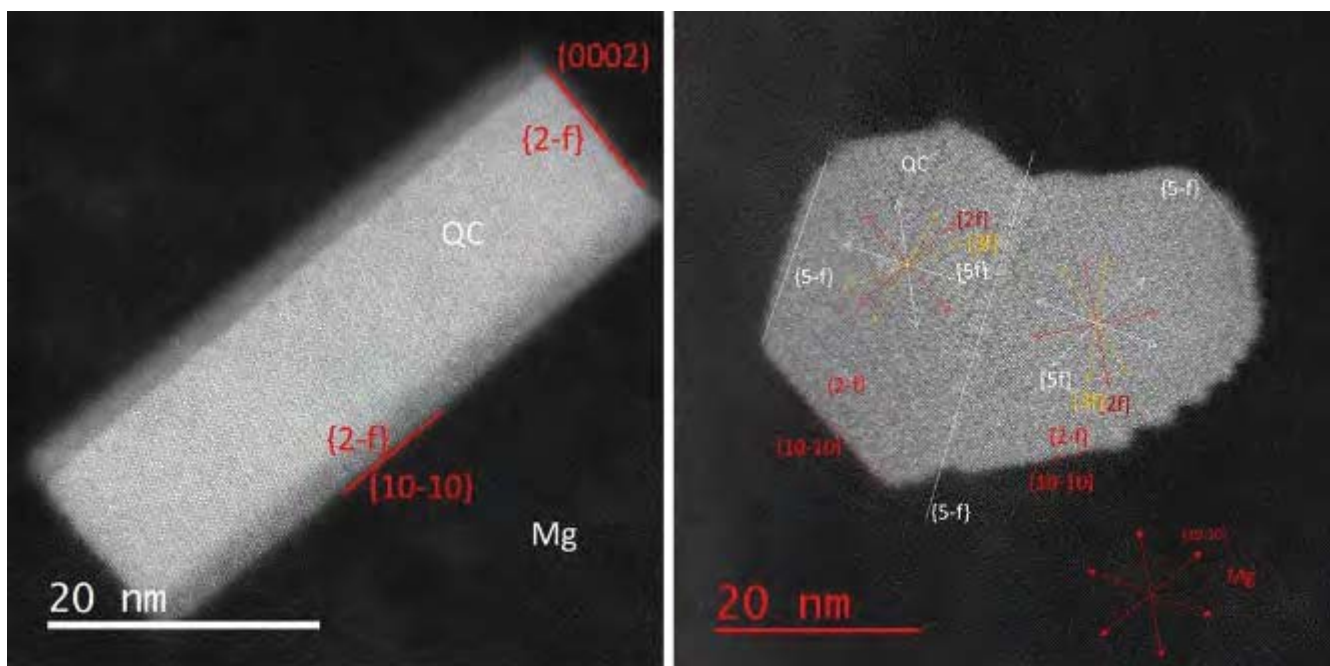


図 Mg マトリックス中に析出する Mg-Cd-Yb 準結晶粒：Mg の  $a$ -軸方向から観察(左)、 $c$ -軸方向から観察(右)。それぞれ別なサンプルから観察。

#### 【研究成果の公表状況】

<国際・国内会議>

- ・ 大橋諭、蔡安邦、加藤晃、齋藤晃，HAADF-STEM による Mg-Cd-Yb 準結晶/Mg 界面の観察，日本金属学会 2018 年春期講演大会，千葉工大，2018 年 3 月 19 日～21 日。（発表予定）



## ナノポーラス金属におけるナノ双晶と触媒特性

### Nano twins and catalytic properties on nanoporous metals

研究代表者氏名・東北大学・多元物質科学研究所・助教 西本一恵

研究分担者氏名・東北大学多元物質科学研究所・准教授・亀岡 聡

研究分担者氏名・東北大学工学研究科・修士学生・劉 珉宏(Liu Min Horng)

研究所担当教員氏名・名古屋大学・未来材料・システム研究所 齋藤晃

### 1. 研究目的

触媒は革新的省エネルギー実現のためのキーマテリアルの一つである。最近、ナノポーラス金属が貴金属代替用の新規触媒材料として注目されている。例えば、Al 基金属間化合物をアルカリや酸等の水溶液でリーチングして得られるナノポーラス金属は、ナノ金属粒子が存在しないバルク状態（低表面積）にも関わらず、貴金属に匹敵する高い触媒活性を示すバルク触媒である。特に、ポーラス Ag や Cu は高い CO 酸化特性をしめし、かつその金属組織はナノラメラ双晶が高密度に導入された特異な構造を持つ。双晶境界の表面原子の配位数は通常の表面原子に比べて低く、表面エネルギーが高いとされるため特異な活性サイトになり得ると考えられる。そのため、本研究を通じて格子欠陥が金属触媒の活性サイトとして働くことが証明できれば、高性能金属触媒の設計指針が格段に具体化され（高密度格子欠陥サイトの導入）、革新的省エネルギー（高効率、高選択性）を実現する新たな触媒材料開発に貢献できうる。本研究では、ポーラス金属に存在する双晶境界と分子の反応について環境雰囲気下でのリアル・タイム電顕観察することで、触媒活性に対する“双晶境界”の役割を解明し、新たな高性能金属触媒の開発につなげることを目的とする。

### 2. 研究内容と成果

Al-Cu および Mg-Ag 系金属間化合物を母合金とし、それらを HCl などの酸溶液でリーチング処理を行い Al または Mg を選択的に溶出させ、数 10nm 間隔で双晶欠陥が導入された高い CO 活性をもつナノポーラス金属触媒を作製した。TEM 観察は主にマイクログリット上に散布したナノポーラス粉末を観察試料とし、反応科学超高压走査透過電子顕微鏡にて、ナノポーラス Cu およびナノポー

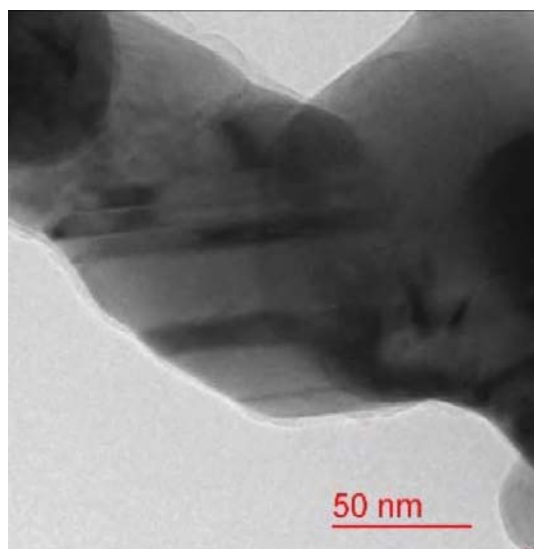


図 1. CO 雰囲気下（~5Pa）でのポーラス Ag

ラス Ag 触媒の組織評価を行い、また真空雰囲気下および CO 雰囲気下での表面相の変化や酸化物の成長過程を調べた。

ポーラス Ag においては真空雰囲気下で CO 雰囲気下(~5Pa)でもほぼ表面の第二相や酸化物が成長せず (図 1)、CO 濃度が高い状態でもポーラス Ag や双晶組織には変化はみられなかった。また、ポーラス Cu は非常に活性が高く、すでに酸化物で覆われている組織を有しており CO 雰囲気下での観察が困難であったが、ほぼ電子ビームや CO 雰囲気の影響を受けないポーラス Ag とは異なり、真空雰囲気下の清浄なポーラス Cu 表面においても電子ビームを長時間照射すると、表面を覆うように酸化物相の生成が見られ、その酸化物の成長とともにポーラス Cu 自体が侵食されていく様子を観察した。

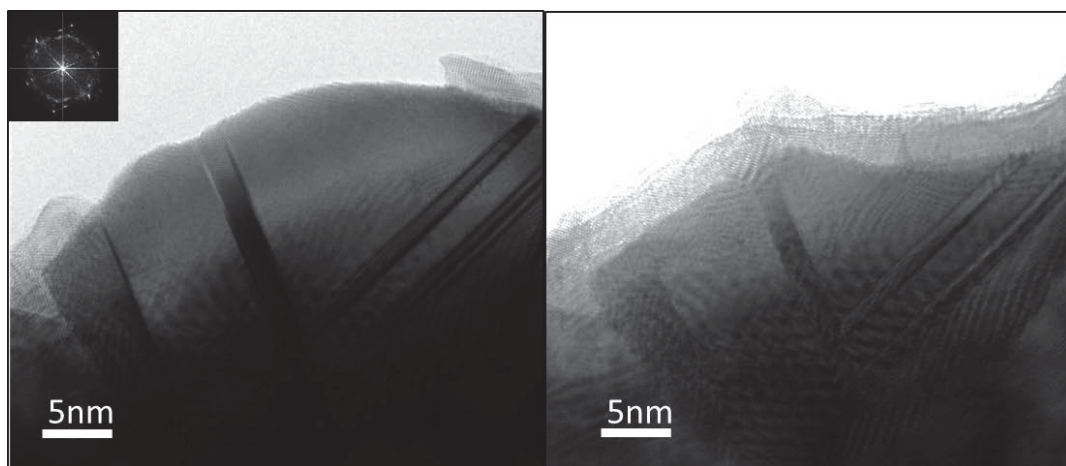


図 2. ポーラス Cu の電子ビーム照射下での酸化物成長の様子

### 【研究成果の公表状況】

<国際・国内会議>

劉 珉宏、西本 一恵、亀岡 聡、蔡 安邦

The Microstructure and Catalytic Property of Mg-Ag Ribbon

日本金属学会 2018 年春期講演大会、千葉工業大学、2018 年 3 月 19 日~3 月 21 日

The Microstructure and Catalytic Property of Mg-Ag Ribbon

## 非接触ダイバータプラズマ中の中性原子温度計測 Measurement of neutral atom temperature in detached divertor plasma

荒巻光利・日本大学・生産工学部・教授  
 羽田拓実・日本大学・生産工学部・電気電子工学科・M1  
 山本将来・日本大学・生産工学部・電気電子工学科・研究生  
 金森裕也・日本大学・生産工学部・電気電子工学科・B4  
 大野哲靖・名古屋大学大学院工学研究科・教授  
 梶田信・名古屋大学・未来材料・システム研究所・准教授

### 1. 研究目的

核融合発電の実現のためには、炉心プラズマから流出する膨大な粒子流および熱流を制御し、プラズマ対抗板（ダイバータ板）の損傷を低減することが最重要課題の一つである。本研究は、革新的省エネルギーの実現に向け、核融合発電によるエネルギーの創出において重要な課題となっている非接触ダイバータの開発に資することを目的としている。具体的には、非接触ダイバータプラズマ中の中性原子のドップラー分光法を確立し、非接触プラズマの形成に重要な役割を果たす中性原子温度および中性原子輸送を明らかにする。中性原子は電子の冷却に加え、伝熱過程でも重要な役割を担っていると考えられており、そのドップラー分光法の確立は非接触ダイバータの開発において重要な課題である。

### 2. 研究内容と成果

平成 29 年度は、ダイバータプラズマ模擬実験装置 NAGDIS-II において、波長可変ダイオードレーザー吸収分光 (TDLAS) およびレーザートムソン散乱 (LTS) 計測を行い、準安定 He 原子および電子の温度と密度の放電条件依存性について調べ、再結合プラズマ中の温度緩和過程について考察した。

図 1(a), (b)に準安定原子温度、電子温度および電子密度の放電電流依存性を示す。TDLAS で得られた準安定原子温度は、プラズマ中心( $r = 0\text{mm}$ )を通る光路での平均値であり、LTS で得られた電子温度・密度はプラズマ中心および周辺部( $r = 12\text{mm}$ )における値である。再結合プラズマでは、周辺部の電子温度は中心分よりも低くなるが、一方で、電子密度は周辺部の方が数倍高くなる。従って、準安定原子は主に周辺部におけるイオン-電子再結合によって生成されている。そのため、準安定原子温度はプ

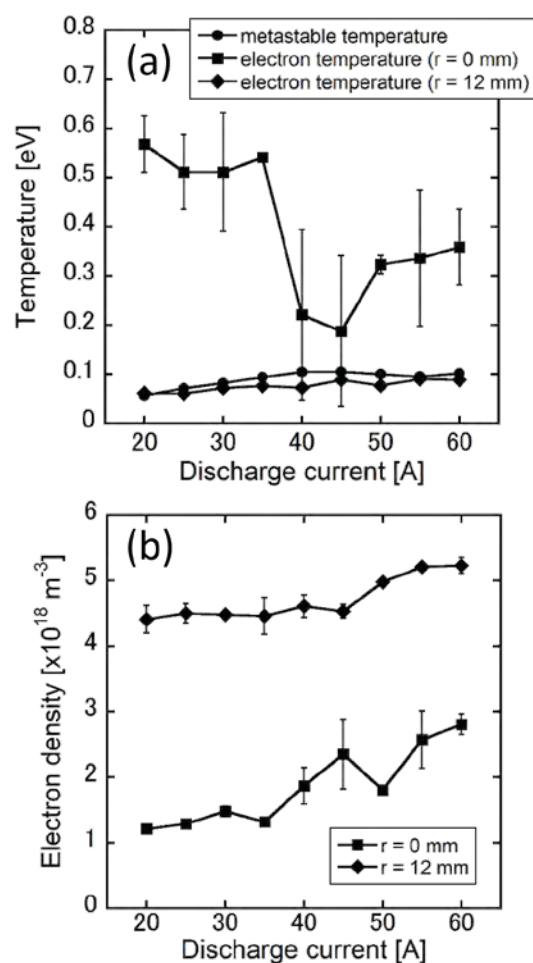


図 1 (a) 準安定原子温度および電子温度の放電電流依存性、(b) 電子密度の放電電流依存性。

ラズマ周辺部のイオン温度を反映している。さらに、プラズマ周辺部では、イオン—電子の強い相互作用により、イオン温度は電子温度とも等しくなる。従って、図 1(a)に示されるように、準安定原子温度はプラズマ周辺部の電子温度と等しくなる。一方、プラズマ中心部では電子密度が低く、電子とイオンの温度を等しくするほど相互作用が強くないため、電子温度はイオン温度および準安定原子温度よりも高くなる。放電電流の増加とともに電子密度が増加するため、電子—イオンの相互作用も増加し中心部の電子温度も準安定原子温度に近づいている。

図 2(a), (b)に準安定原子温度、電子温度および電子密度のガス圧依存性を示す。この測定では、プラズマ上流部の電子密度を一定に保ちつつ、ガス圧の上昇とともに中性ガスによる冷却効果が増加している。従って、ガス圧の上昇とともに、上流部の電子—イオン再結合は活性化するとともに、測定部での準安定原子および電子温度、電子密度は低下している。これらの実験結果は、再結合プラズマ中で期待される電子冷却メカニズムと一致している。

本研究により、再結合プラズマ中の準安定原子、電子、イオンの温度緩和過程に関する理解が進んだ。今後は、NAGDIS-II の複数個所で TDLAS、LTS およびプローブ測定を行うことで、電離進行プラズマから再結合プラズマへの状態遷移の全体像を明らかにする予定である。

### 【研究成果の公表状況】

<原著論文>

- M. Aramaki, T. Tsujihara, S. Kajita, H. Tanaka, and N. Ohno, Measurement of He neutral temperature in detached plasmas using laser absorption spectroscopy, AIP Advances 8, 015308 (2018).
- S. Kajita, T. Tsujihara, M. Aramaki, Hennie van der Meiden, O. Hiroshi, N. Ohno, H. Tanaka, R. Yasuhara, T. Akiyama, K. Fujii and T. Shikama, Behavior of  $2^3S$  metastable state He atoms in low-temperature recombining plasmas, Physics of Plasmas 24, 073301 (2017).

<国際・国内会議>

- S. Kajita, T. Tsujihara, M. Aramaki, H. van der Meiden, H. Oshima, N. Ohno, R. Yasuhara, K. Fujii, T. Shikama, Laser diagnostics in low-temperature recombining plasmas, ISPlasma2017/IC-PLANTS2017, March 1-5, 2017, Chubu Univ., Aichi, Japan.
- Y. Hayashi, N. Ohno, S. Kajita, H. Tanaka, H. Ohshima, M. Seki, H. Takano, H. Natsume, M. Aramaki, H. van der Meiden, Comprehensive study of plasma detachment in the linear plasma device NAGDIS-II, 6th International Workshop on Plasma Material Interaction Facilities for Fusion Research, Tsukuba, Japan, 1-3 November 2017.

<産業財産権>

- なし

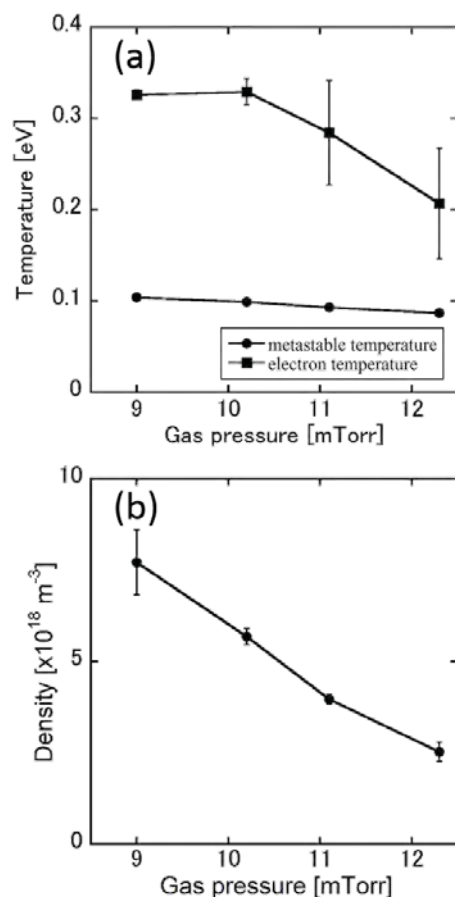


図2 (a) 準安定原子温度および電子温度のガス圧依存性、(b) 電子密度のガス圧依存性。

## 自己形成超格子構造を有する熱電セラミックス薄膜の局所構造と電子状態の観測

Observation of local microstructure and electronic states of thermoelectric ceramics thin films with self-organized superlattice structure

川口昂彦・静岡大学・学術院工学領域・助教  
原田俊太・名古屋大学・未来材料・システム研究所・助教  
鈴木久男・静岡大学・電子工学研究所・教授  
脇谷尚樹・静岡大学・創造科学技術大学院・教授  
坂元尚紀・静岡大学・学術院工学領域・准教授  
宇治原徹・名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授

### 1. 研究目的 (12pt ゴシック体)

昨今のエネルギー需要の増加に対応すべく、革新的省エネルギーを実現できる材料の創成が強く望まれている。そこで廃熱などの膨大な熱エネルギーを有効活用できる熱電変換材料に強い関心が集まっている。従来材料のPb-Teなどでは有害な元素を含むため、より安全な例えば酸化物による熱電材料が考案されている。特に最近では、人工超格子を利用することで高い性能指数を発現できることが報告されている。ただし人工超格子は、煩雑な製造工程が必要となる。これに対し、本研究代表者の所属する鈴木・脇谷研究室では、磁場を印加しながら成膜可能なパルスレーザー堆積法(磁場印加 PLD 法)を用いることで、膜厚方向に組成が周期的に変調した超格子構造が自発的に形成されることが分かった。この超格子構造の自己組織化現象を制御できれば、煩雑なデバイスプロセスを大幅に削減することにつながる。そのメカニズムはスピノーダル分解に起因すると考えられているが、その解明にはより詳細な局所構造を明らかにする必要がある。また、超格子構造の形成によって電子構造も影響を受けると考えられる。革新的な材料を設計するためには、実際に得られる超格子試料の電子構造を直接観測することが肝要である。そこで本研究では、磁場印加 PLD 法によって作製した超格子構造を有する熱電セラミックス薄膜について、その局所構造の解析および電子構造の解明を目的とした。

昨年度までに、磁場印加 PLD 法を用いて SrTiO<sub>3</sub> (001)基板上に成長した(La,Sr)CoO<sub>3</sub> 薄膜に関する研究を行った。その結果、作製した薄膜は、SrTiO<sub>3</sub>の成長の場合と同様に、成長方向に組成変調を起こした超格子構造の形成が確認された。また、その超格子周期は、レーザーのエネルギー密度や印加磁場によって変化させることができ、制御できることがわかった。さらに、超格子周期の減少とともに、熱電能が増加することが確認され、超格子形成に伴う二次元化による効果が示唆された。

このように(001)基板上の成長においてペロブスカイト構造であれば安定して超格子



を作製できることがわかってきた。その原因はスピノーダル分解であると考えられるが、そのメカニズムの全容が明らかになっているとは言い難い。そこで、これまでは(001)基板上の薄膜のみであったが、(011)基板上や(111)基板上でも超格子が得られるかを検証した。

## 2. 研究内容と成果

SrTiO<sub>3</sub>(011)基板上の A サイト過剰 SrTiO<sub>3</sub> 薄膜の成長を磁場印加 PLD 法を用いて行った。その結果、エピタキシャル成長が確認されたとともに、成長方向にそって組成変調した超格子が確認された。一方で、XRD から見積もられる面内の格子定数は基板の値よりも大きくなっており、面内格子整合していないことが示唆された。これは(001)基板上の場合格子整合が超格子形成に重要であったことと対照的である。そこで、STEM 観察による原子レベルでの解析の結果、[001]方向に積層欠陥が確認された。これは A サイト過剰による RP 欠陥であることが示唆されるが、(011)配向していることからその積層欠陥の入る[001]方位が二種類あるといえる。そのことから積層欠陥に起因した格子定数の増加が面外だけでなく面内にも影響を与えた結果だと考えられる。

一方で、SrTiO<sub>3</sub>(111)基板上の A サイト過剰 SrTiO<sub>3</sub> 薄膜の成長の場合には、これまでの結果の範囲では超格子形成が見られなかった。しかし、A サイト過剰量や印加磁場の大きさなどによっても超格子形成は影響を受ける可能性があるため、さらに成長パラメータを変化させて調査をしていく。

### 【研究成果の公表状況】

<原著論文>

なし

<国際・国内会議>

- Takuma Hiraiwa, Takahiko Kawaguchi, Naonori Sakamoto, Kazuo Shinozaki, Hisao Suzuki, Naoki Wakiya, “Spontaneous Superlattice Formation in [011] Direction in Strontium Titanate Thin film by Dynamic Aurora PLD Method”, The 34<sup>th</sup> International Japan-Korea Seminar on Ceramics (J-K Ceramics 34), 浜名湖ロイヤルホテル(浜松市), 2017年11月22~25日.

<産業財産権>

なし

## 高温熱処理による AlN 高品質化プロセスの解明

Qualitative improvement process of AlN crystal by annealing

三宅 秀人 三重大学大学院地域イノベーション学研究科 教授

肖 世玉 三重大学大学院地域イノベーション学研究科 助教

原田 俊太 名古屋大学未来材料・システム研究所 助教

宇治原 徹 名古屋大学未来材料・システム研究所 教授

### 1. 研究目的 (12pt ゴシック体)

Aluminum nitride (AlN) is proved to be a good candidate as a substrate for  $Al_xGa_{1-x}N$ -based optoelectronic devices due to its high UV transparency, small mismatch with AlGaN and so on. In order to realize the full potential of such devices, high-quality AlN template is essential. Recently, our group reported the realization of high-quality sputtered AlN films grown on sapphire substrates by high temperature “face-to-face” annealing which could suppress thermal decomposition of AlN films. However, the mechanism of sputtered AlN quality improvement by annealing is still unclear. In this work, the qualitative improvement process was investigated through a detailed study on the microstructure of sputtered AlN films at different annealing temperature by scanning transmission electron microscopy (STEM) coupled with energy dispersive X-ray spectroscopy (EDS). (11pt 明朝体)

### 2. 研究内容と成果 (12pt ゴシック体)

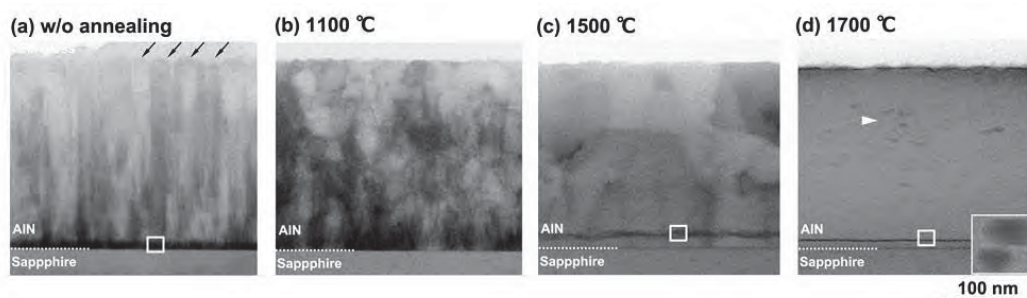


Fig. 1 Cross-sectional STEM images of sputtered AlN on sapphire substrate (a) without and with (b) 1300 °C, (c) 1500 °C and (d) 1700 °C annealing.

The cross-sectional STEM images of as-grown and annealed AlN/sapphire templates at 1300 °C, 1500 °C and 1700 °C respectively are shown as in Fig. 1 (a) (b) (c) and (d) respectively. Two-layer structure consisting of dark and light contrast layers is observed in the as-grown AlN film according to Fig. 1 (a). One layer corresponding to light contrasts comprise columnar grains with diameter about 25 nm indicated by arrows in Fig. 1 (a). The high resolution STEM image of dark contrast layer marked by rectangle

in Fig. 1 (a) demonstrate varied in plane twist direction between each grain while they are highly arranged along [0002] direction. The two-layer columnar-structure AlN film coalesces and forms irregular shaped grains corresponding to different contrasts after thermal annealing at 1300 °C by comparing Fig. 1 (a) and (b). The irregular shaped grain size increases and grain boundaries reduces when annealing temperature reaches 1500 °C as shown in Fig. 1 (c). Grains coalescence continues with increasing annealing temperature and grain boundaries disappear when annealing temperature achieves 1700°C according to Fig. 1 (d). The location marked by triangle was magnified and shown in the inset of Fig. 1 (d), which implies the presence of hexagonal shaped voids in AlN films after annealing. Meanwhile black horizontal line contrast corresponding to polarity inversion boundary from N-polar to Al-polar has been observed about 10 nm above AlN/sapphire interface as indicated by rectangle in Fig. 1 (c) and (d).

Considering the low growth temperature, column grains twist and tend to reduce grain boundaries by coalescence in order to reach energy stability when high temperature annealing is conducted. However, each column grain splits into several small irregular shaped grains since the strain at AlN/sapphire interface prohibits the whole column twist. The split small grains coalesce with each other and grain boundaries reduce due to solid phase growth with elevated annealing temperature. When annealing temperature reaches 1700 °C grain boundaries almost disappear with the gradual of coalescence and high quality AlN films are obtained.

#### 【研究成果の公表状況】 (12pt ゴシック体)

<原著論文> (11pt 明朝体, Times)

• Shi-yu Xiao, Ryoya Suzuki, Hideto Miyake, Kazumasa Hiramatsu, Shunta Harada and Toru Ujihara, Investigation of the quality improvement process of sputtered AlN films by high-temperature annealing, *Applied Physics Letters* (submitted).

<国際・国内会議> (11pt 明朝体, Times)

- Shi-yu Xiao, Yi-kang Liu, Hideto Miyake, Kazumasa Hiramatsu, Shunta Harada and Toru Ujihara, Investigation of the qualitative improvement process of sputtered AlN films by high-temperature annealing, 12<sup>th</sup> international conference on nitride semiconductors, Strasbourg France, July 24-28, 2017.
- Shi-yu Xiao, Yi-kang Liu, Ryoya Suzuki, Hideto Miyake, Kazumasa Hiramatsu, Shunta Harada and Toru Ujihara, Investigation of high-temperature annealing process of sputtered AlN films, The 78<sup>th</sup> JSAP autumn meeting, Fukuoka convention center, September 5-8, 2017.
- Shi-yu Xiao, Ryoya Suzuki, Hideto Miyake, Kazumasa Hiramatsu, Shunta Harada and Toru Ujihara, Investigation of high-temperature annealing process of sputtered AlN films, International workshop on UV materials and devices 2017, Fukuoka, November 14-18, 2017.

## 超低消費電力脳型コンピュータの基幹となる メモリスタシナプス素子の材料物性評価と機能制御

Characterization and control of material properties in memristive synaptic devices for  
ultra-low power consumption brain-inspired computer

酒井 朗・大阪大学・大学院基礎工学研究科・教授  
藤平 哲也・大阪大学・大学院基礎工学研究科・准教授  
竹内 正太郎・大阪大学・大学院基礎工学研究科・助教  
山口 賢吾・大阪大学・大学院基礎工学研究科・博士前期課程  
五十嵐 信行・名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授

### 1. 研究目的

高度なパターン認識や直観・連想記憶等の右脳的思考を実現する脳型コンピュータは、低消費電力の次世代情報処理に不可欠である。現在、その基幹となるニューロモルフィック回路のシナプス素子には、通常 6 つのトランジスタからなる SRAM アーキテクチャが採用されているが、更なる低消費電力化、集積化、多値化、不揮発化等の観点から課題を残している。これに対して、酸素空孔をドナーとする金属酸化物結晶で作製されたメモリスタ素子は、単体レベルでシナプス機能を有し、不揮発で多値の抵抗状態を発現することから、信号伝送において極めて高いエネルギー効率を発揮する。本研究では、TiO<sub>2</sub>メモリスタ素子における結晶の電子状態解析を切り口に、酸素空孔分布のトポロジーを精密にデザインすることで抵抗変化の発現機構を制御し、超低消費電力のシナプス素子を開発する。

### 2. 研究内容と成果

前年度に引き続き、メモリスタ素子材料として抵抗変化 (RS) 現象を示す TiO<sub>2</sub>を選択し、微細構造および電子状態の解析を行った。ルチル型 TiO<sub>2</sub>単結晶には特徴的な面方位として(100)面 (異方性面) と(001)面 (等方性面) があり、平面型メモリスタ素子として用いる際に、面方位により異なった電気特性が得られることがわかっている。これまでに、(100)面素子の抵抗変化領域においては電圧印加により表面近傍で局所的に筋状の結晶構造および価電子状態の変化が起こることが確認されている。一方、(001)面素子では多数回の抵抗変化スイッチを安定的に繰り返すことが可能であるが、抵抗変化の起源となる微細構造の詳細は明らかにされていない。今回、ルチル型 TiO<sub>2</sub>(001)単結晶メモリスタ素子内の抵抗変化領域の各箇所に対して、走査型透過電子顕微鏡法および電子エネルギー損失分光法 (STEM-EELS) を用いた分析評価を行い、電気的特性と結晶構造・価電子状態の相関を明らかにした。

ルチル型 TiO<sub>2</sub>(001)単結晶基板に対し、真空度 10<sup>-6</sup> Pa で 700°C、6 hour の熱還元処理

を施し、結晶内に酸素空孔を生成した。その後、基板表面にスパッタ蒸着によって Pt 電極を形成し、4 端子平面型素子を作製した (図 1 参照)。真空プローバ内において、電極 2 および 4 に 6 V の電圧を 50 sec 印加し、電極 1 および 3 間に跨る酸素空孔濃度が高い領域 (低抵抗領域) を形成した (図 1 中の LRS)。集束イオンビーム (FIB) によるマイクロサンプリング法を用い、電極 1~4 間の抵抗変化領域内の各箇所から STEM-EELS 用試料を作製した。収差補正電子顕微鏡 (JEM-ARM200, Cold-FEG) による STEM-EELS 測定では、Ti-3d 軌道の  $e_g$  軌道と  $t_{2g}$  軌道のエネルギー分裂を反映したピークの分裂に着目し解析を行った。

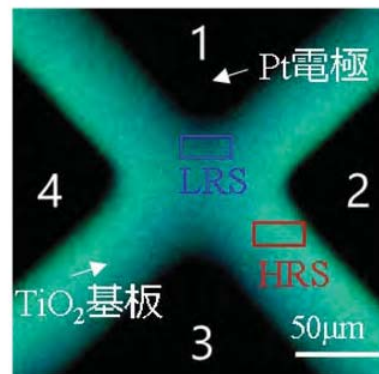


Fig. 1. Optical microscope image of a TiO<sub>2</sub> (001) four terminal device after applying 6 V to the electrodes 2 and 4.

図 2 に、(001)面メモリスタ素子の各箇所から作製した試料で測定された STEM-EELS スペクトル (結晶表面から 100 nm の領域で取得) を示す。電圧印加前 (PRI)、高抵抗領域 (HRS)、低抵抗領域 (LRS) のいずれも EELS スペクトルの概形は典型的なルチル型 TiO<sub>2</sub> の特徴を示している。一方、酸素欠損および還元度合いを反映すると考えられる L<sub>3</sub> 端ピークの分裂幅は、LRS において表面、深い位置ともに PRI よりも低い値を示し、この領域において TiO<sub>2</sub> が還元されていることが示唆された。この結晶構造変化を伴わない微視的な価電状態の変化が、本素子における抵抗変化の起源になっていると考えられる。

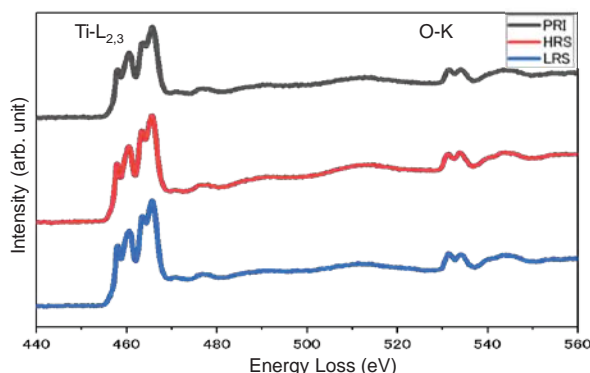


Fig. 2. STEM-EEL spectra of each regions sampled from the rutile TiO<sub>2</sub> (001) four terminal device shown in Fig. 1.

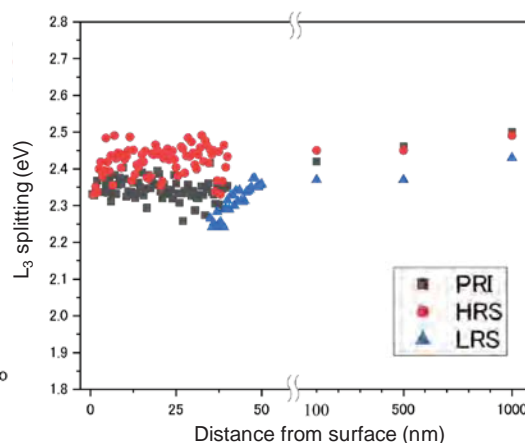


Fig. 3. Peak splitting of Ti-L<sub>3</sub> edge as a function of measurement position.

### 【研究成果の公表状況】

<国際・国内会議>

- K. Yamaguchi, S. Takeuchi, T. Tohei, N. Ikarashi, A. Sakai, Analysis of Ti Valence State in Resistive Switching Region of Rutile TiO<sub>2-x</sub> Four-Terminal Memristive Device, Presentation No.: P-24, 2017 International Workshop on Dielectric Thin Films for Future Electron Devices (IWDTF), Todaiji Temple Cultural Center, November 20-22, 2017.



## 超低消費電カトランジスタ用二硫化モリブデン半導体の TEM 解析

### TEM of Molybdenum disulfide for ultra-low power transistor

若林整 東京工業大学 工学院 教授

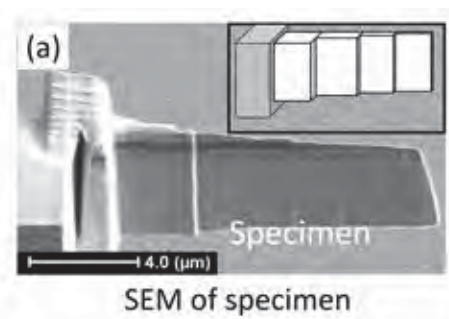
五十嵐信行・名古屋大学・未来材料・システム研・教授

#### 1. 研究目的

MoS<sub>2</sub> は 3D-LSI 用チャネル材料として開発が進められている。その物性は、結晶構造に依存するため、物性制御のための結晶構造と膜形成条件との相関の解明が必要とされている。

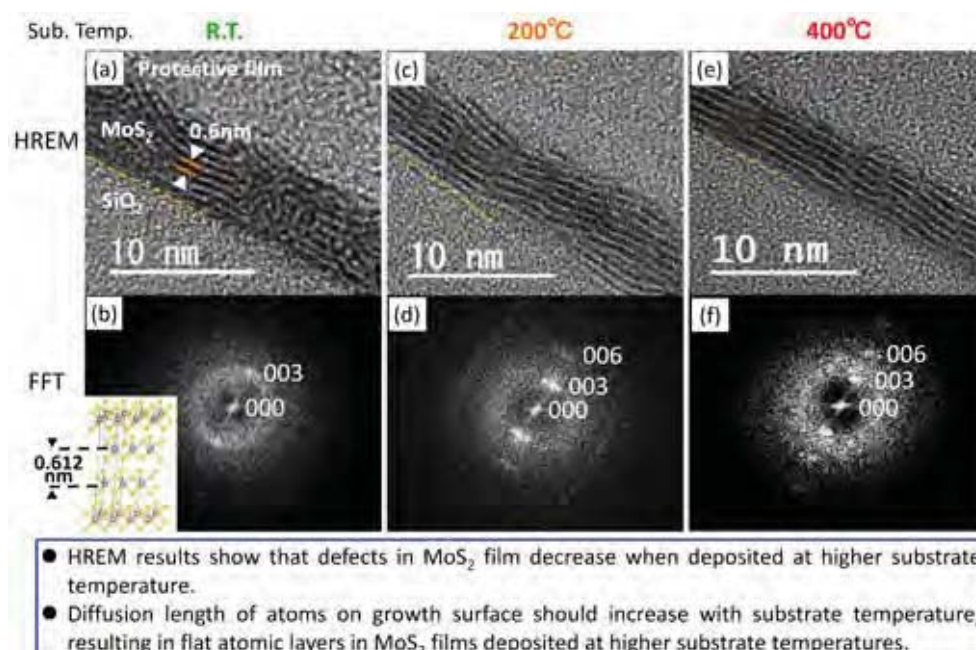
#### 2. 研究内容と成果

スパッタ法で SiO<sub>2</sub> 基板上に堆積した MoS<sub>2</sub> 薄膜の TEM 断面観察を行った。スパッタ時基板温度 200C, 300C, 400C のサンプルを準備した。試料加工には FIB を用い、高分解能観察を行うため、先端に近い部分ほど試料厚さを薄く加工した(左図)。



MoS<sub>2</sub> 薄膜の TEM 観察例を図(a)-(c)に示す。

いずれも、基板表面に平行な、層状の構造が観察される。層間の間隔は 0.6nm であり、MoS<sub>2</sub>(003)面間隔と一致する。成膜時基板温度が高いサンプルほど、格子像が一様に観察される領域が広いことが観察される。図(d)-(f)は TEM 像のフーリエ変換強度分布である。基板温度が高いサンプルほど高次のスポットが明瞭に現れており、基板温度が高いほど結晶の周期性が高いことを示している。この結果は、TEM 観察像の特徴と矛盾しない結果である。



## 【研究成果の公表状況】

### <原著論文>

- ・ 該当なし。

### <国際・国内会議>

- ・ Y. Suzuki, S. Hirano, J. Shimizu, K. Matsuura I. Muneta, M. Nagao, H. Wakabayashi, and N. Ikarashi, Transmission electron microscopy structural analysis of sputtered MoS<sub>2</sub> for 3D-LSI, Int. Conf. on Mat. and Systems for Sustainability 2017 Ext. Abst. P1230, (2017).

### <産業財産権>

- ・ 該当なし。

(注) 別紙様式 2-1 は A 4 サイズ 1 頁に、別紙様式 2-2 は図表等を含めて A 4 サイズ 2 頁になるようにしてください。

## ナノカーボン・原子層物質を用いた光エネルギー 変換デバイスの研究

Light Energy Transform Devices using Nano-carbon and Atomically Thin Materials

研究代表者 松田一成・京都大学エネルギー理工学研究所・教授  
研究分担者 Wang Xiaofan (京都大学・エネルギー理工学研究所・博士課程)  
Yang Fengjiu (京都大学・エネルギー理工学研究所・博士課程)  
Feijiu Wang (名古屋大学・理学系研究科・ERATO・博士研究員)  
研究所担当教員 大野雄高・名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授

### 1. 研究目的

近年、持続的な社会の実現に向け、太陽光を含む光エネルギーの高効率な生成・変換・利用が求められている。それらの要請に対し、我々は潜在的に高いポテンシャルを有するナノ物質、特にカーボンナノチューブ・グラフェンなどのナノカーボン物質や原子層物質に着目し、基礎・応用の両面から研究を進めている。本研究では、それらナノカーボン物質・原子層物質を利用し、その特徴を限生しながら高効率・高機能な太陽電池デバイスに代表される省エネルギーデバイスの性能向上を行うことを目的としている。特に、鉛ペロブスカイト太陽電池にナノカーボン物質を利用することで付加する事ができる新しい機能の探索の観点から研究を進めた。

### 2. 研究内容と成果

昨年度の研究成果において、有機と無機のハイブリッド材料である鉛ペロブスカイトを光活性層として、ホール輸送層にカーボンナノチューブ薄膜を利用した太陽電池の作製に成功し、光電変換（太陽光から電力への変換）効率として、13.3%の性能が得られた。その一方で、鉛ペロブスカイトを光活性層として利用した太陽電池デバイスとしては、更なる光電変換効率の向上やその特徴を生かした機能が望まれる。

本研究では、その目的のため基礎に立ち返って鉛ペロブスカイト太陽電池の安定性の向上やナノカーボン物質を利用することで付加する事ができる機能の探索の観点から研究を進めた。ナノカーボン物質の特徴である光透過性、柔軟性を生かす事ができるフレキシブルな鉛ペロブスカイト太陽電池を念頭に置いた。まず、作製したフレキシブル太陽電池デバイスの構造について説明する。ポリエチレンナフタレート (PEN) /ITO フィルム上に、新規な電子輸送層である SnO<sub>2</sub> を作製し、次に活性層となる鉛ペロブスカイト層をスピコートによって塗布する。その上に、ホール輸送層として働く Spiro-OMeTAD 層を形成し、上部金電極を設けた構造となっている。参照のため、電子輸送層として一般的に用いられている TiO<sub>x</sub> 層を形成したデバイスも同時に作製した。

このようにして作製したデバイスに対して、疑似太陽光を照射しながら光電変換（電流－電圧）特性を測定した。その結果、新規な電子輸送層である SnO<sub>2</sub>を利用した太陽電池デバイスにおいて、光電変換（太陽光から電力への変換）効率として、17.1%の高い性能が得られた。これは、参照として比較した TiO<sub>x</sub>を用いた太陽電池の光電変換効率と比べ、高い値となっている。それと同時に、SnO<sub>2</sub>を利用した太陽電池デバイスでは、光電変換特性の大幅な向上と履歴（ヒステリシス）の大幅な抑制が可能であることが明らかとなった。合わせて、フレキシブル太陽電池の特徴である曲げ試験（ベンディングテスト）による耐久性を調べた。特に、ベンディング曲率として 4 mm の条件で 2000 回のテストに対して、初期の光電変換効率と比較して 76.5%程度の性能低下に抑えられている事が明らかとなった。しかしながら、テスト後の走査電子顕微鏡による表面観察から、電極として用いられている金や PEN フィルムにクラックが見られ、それによる抵抗の増加が光電変換性能低下の主要因であることが明らかとなった。そのため、この部分を高い光透過性および柔軟性を有するカーボンナノチューブ薄膜やグラフェンに置き換えることによって、更なる耐久性の向上が見込まれる。

なお、その他にポリマー層を導入した鉛ペロブスカイト太陽電池において、光電変換特性の安定性が大幅に上昇し、その物理的なメカニズムの詳細についても成果が得られた点について付記しておく。

### 【研究成果の公表状況】

#### <原著論文>

- F. Yang, H. E. Lima, F. Wang, M. Ozaki, A. Shimazaki, J. Liu, N. B. Mohamed, K. Shinokita, Y. Miyauchi, A. Wakamiya, Y. Murata, and K. Matsuda, Roles of polymer layer in enhanced photovoltaic performance of perovskite solar cells via interface engineering, *Adv. Mat. Inter.* 5, (2017) 1701256.

#### <国際・国内会議>

- F. Yang, H.E Lim, M. Ozaki, A. Shimazaki, Y. Miyauchi, A. Wakamiya, Y. Murata and K. Matsuda, Roles of Polymer Layer in Interfacial Engineering Perovskite Solar Cells with High Photovoltaic Performance, 2nd Asia-Pacific Hybrid and Organic Photovoltaics (AP-HOPV18), 28-30, January, (2018), Kyushu, Japan.

#### <産業財産権>

特になし

## 放射線環境下における CNTFET のデバイス特性に関する研究 Investigation of the device properties of CNTFETs under radiation environment

石井聡・東京電機大学・理工学部・助教

大野雄高・名古屋大学・未来エレクトロニクス集積研究センター・教授

### 1. 研究目的 (12pt ゴシック体)

電離放射線の一種であるガンマ線が、カーボンナノチューブ電界効果型トランジスタ (CNTFET) の構造及びデバイス特性に及ぼす影響を明らかにする。CNTFET は、現行のシリコンデバイスと比較して放射線耐性が高いうえ、小型・軽量化や低消費電力が期待できることから、スペースや重量及びエネルギーなどの条件が厳密に制限され、且つ過酷な放射線に曝される航空宇宙分野への応用が有望である。そこで、省エネルギー放射線環境デバイスの開発に必要な知見を得るため、高線量の放射線環境で CNTFET のデバイス特性を評価した。

### 2. 研究内容と成果 (12pt ゴシック体)

本研究では、図 1 に構造を示すように、酸化膜付きシリコン基板表面に作製した、埋め込み式バックゲート型構造の CNTFET を使用した。ゲート絶縁膜として、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  薄膜を原子層堆積法 (ALD) で成膜した。また、チャンネルとなる CNT ネットワーク薄膜は、CNT 分散液を塗布することで形成し、デバイスの表面は、

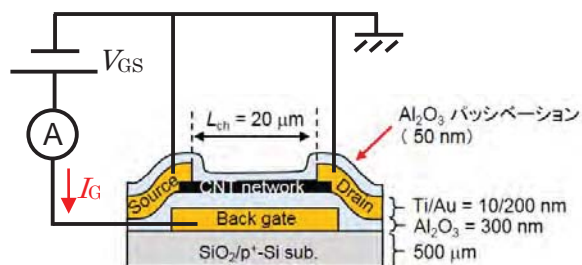


図 1 CNTFET の構造と測定回路。

ゲート絶縁膜と同様に  $\text{Al}_2\text{O}_3$  薄膜を ALD で成膜することでパッシベーションした。

ガンマ線照射実験は、量子科学技術研究開発機構の高崎量子応用研究所にて、 $^{60}\text{Co}$  ガンマ線源を利用して実施した。真空チャンバ内に設置したデバイスにガンマ線を照射しながら、図 1 に示すように、ソース電極とドレイン電極を接地した状態で、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  膜中を通過してゲート電極に流れ込むゲート電流 ( $I_G$ ) を測定した。尚、CNTFET

図 2 非公表



への照射線量率は、アラニン線量計と  
PMMA 線量計を用いた計測から 2.34  
kGy/h であった.

\*\*\*\*\*  
\*\*\*\*\*  
\*\*\*\*\*

\*\*\*\*\*  
\*\*\*\*\*  
\*\*\*\*\*  
\*\*\*\*\*  
\*\*\*\*\*  
\*\*\*\*\*非公表\*\*\*\*\*  
\*\*\*\*\*  
\*\*\*\*\*  
\*\*\*\*\*  
\*\*\*\*\*  
\*\*\*\*\*  
\*\*\*\*\*  
\*\*\*\*\*  
\*\*\*\*\*

本研究では、 $V_{GS}$  を印加した状態でガンマ線を照射すると、ゲート酸化膜中に電子-ホール対が生成しゲート電極に流れ込む様子を観測できた。これは、ガンマ線照射で CNTFET にリーク電流が発生することを示しており、放射線環境のデバイス特性解析では、こうしたデバイス中に照射で発生する電荷の寄与を加味する必要性を示している。また、パッシベーションで用いた  $Al_2O_3$  薄膜でも電荷生成が推測されることから、デバイス中の生成電荷の分布を詳細に評価し電界分布を制御することが、CNTFET を用いた放射線環境デバイスの開発を進めるうえで重要である。

## ナノカーボン微細構造体の作製とデバイス応用

Structure control of nano-carbon materials and application for electrical devices

研究代表者 杉目 恒志・早稲田大学・高等研究所・助教

研究分担者 大野 雄高・名古屋大学未来材料・システム研究所・教授

研究所担当教員 大野 雄高・名古屋大学未来材料・システム研究所・教授

### 1. 研究目的

本研究では、カーボンナノチューブ(CNT)の微細化可能性、高い電気伝導性を活かした高性能な立体型櫛型電極の作製と評価を目的とした。特に CNT が基板に垂直配向成長している「フォレスト」を利用し、UV リソグラフィと金属電極上への高密度 CNT フォレストの成長技術[1,2]を組み合わせることで実用化に近い作製プロセスの実現を目指した。リソグラフィによる微細化プロセスと CNT の成長プロセスがフォレスト構造に与える影響を調べ、プロセスの最適化を行うことで、より高感度で耐久性のある小型バイオセンサの開発を目指した。

### 2. 研究内容と成果

UV リソグラフィを用いてレジストを Si 基板上にパターンニングし、金属電極(Au/Ti)を堆積させた。その上に触媒を担持することで、金属電極上のみ高密度 CNT を低温成長させることで、立体型櫛型電極の開発を行った(Fig. 1a and 1b)。熱分解カーボンを用いた IDE は報告例があるが[3]、一般的に高温(約 1000°C)で数時間のプロセスを必要とする。本研究における熱 CVD 法による CNT フォレストの成長は 470°Cと比較的低温であり、成長時間も数分間である。これによりガラス基板など廉価な基板の使用が可能であり、より実用化に近いプロセスを開発することができた。

バイオセンサとしての基本的な特性評価はサイクリックボルタンメトリ(CV)による KCl 中(100 mM)の  $K_4[Fe(CN)_6]$ (100  $\mu$ M)の測定によって行った。電極デザイン(電極幅と電極間距離)と CNT フォレストの構造(高さと密度)の最適化を行った結果、CNT フォレストを成長させていないリファレンスの Au 電極 IDE(Au-IDE, Fig. 1c)と比較して CNT フォレストを成長させた IDE(CNTF-IDE, Fig. 1d)では酸化還元電流が定常状態に早く到達した。またレドックスサイクルによる電流増幅は CNTF-IDE では 18 倍であり、Au-IDE と比較しておよそ 3 倍高かった。神経伝達物質のモデルケースとしてドーパミンを選択し、L-アスコルビン酸(100  $\mu$ M)共存下において PBS 中(pH 6.0)での選択的測定を行った結果、線形領域が 100 nM - 100  $\mu$ M、検出限界(LOD, S/N=3)が 42 nM と CNTF-IDE は高い特性を示した。また耐久性の評価のため高濃度ドーパミン中(100  $\mu$ M)で繰り返し CV 測定を行った結果、30 回の繰り返し測定後でも CV の半波電位のシフトがほとんど見ら

れず，CNTF-IDE はコンタミネーションに対して高い耐久性を持っており，実用上有用である可能性が示された。今後さらに詳細な特性の評価を行っていく予定である。

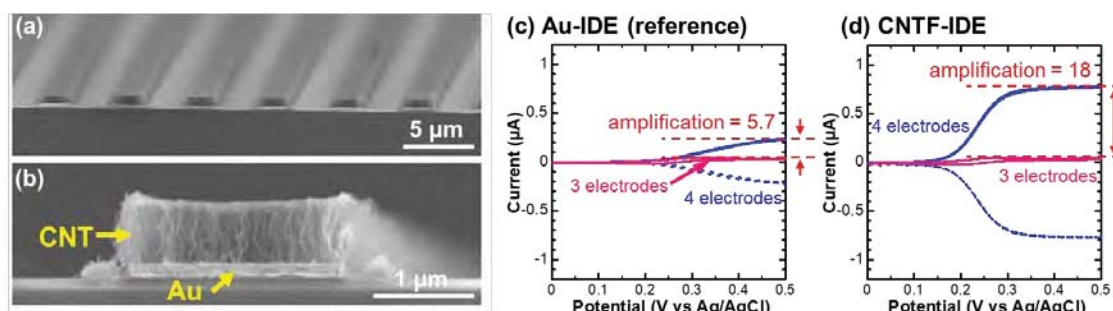


Fig 1. (a) Oblique-view and (b) side-view SEM images of the CNT forests on Au electrodes. CV results of (c) Au-IDE (reference) and (d) CNTF-IDE with the  $K_4[Fe(CN)_6]$  (100  $\mu$ M) in KCl (100 mM) at the scan rate of 10 mV/s.

<参考文献>

- [1] Sugime et al., Appl. Phys. Lett. 103, 073116 (2013).
- [2] Sugime et al., ACS Appl. Mater. Interfaces 6, 15440 (2014).
- [3] Niwa et al., Anal. Chem. 66, 285 (1994).

【研究成果の公表状況】

<国際・国内会議>

- Hisashi Sugime, Takuya Ushiyama, Yutaka Ohno, and Suguru Noda, "Interdigitated electrode with high mass density carbon nanotube forests for electrochemical biosensors," 2017 MRS Fall Meeting, NM02.11.25, Boston, Massachusetts, USA, Nov. 30, 2017.
- Hisashi Sugime, Takuya Ushiyama, Keita Nishimura, Yutaka Ohno, Suguru Noda, "Interdigitated electrode with high mass density carbon nanotube forests for electrochemical biosensors," 第 54 回フラーレン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム，東京大学本郷キャンパス，東京都文京区，2018 年 3 月 10-12 日.
- 杉目 恒志，牛山 拓也，西村 圭太，大野 雄高，野田 優 「高密度カーボンナノチューブフォレストを用いた楕型電極の開発と電気化学センサへの応用」化学工学会第 83 年会，418，関西大学 千里山キャンパス，大阪府，2018 年 3 月 13-15 日.
- 杉目 恒志，牛山 拓也，西村 圭太，大野 雄高，野田 優 「高密度カーボンナノチューブフォレストを用いた楕型電極の開発と電気化学バイオセンサへの応用」第 65 回応用物理学会春季学術講演会，17p-A202-2，早稲田大学 西早稲田キャンパス，東京都新宿区，2018 年 3 月 17-20 日.

<産業財産権>

- 国内特許申請中

## GaN 結晶歪みの空間分布を超高感度核スピン計測で非破壊観測する

### Non-Destructive Observation of Spatially Distributed Strain in GaN through Ultra-High Sensitive Nuclear-Spin Measurements

研究代表者

佐々木 進・新潟大学・工学部・准教授

研究分担者

白石賢二・名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授

森勇介・名古屋大学・未来材料・システム研究所・寄附研究部門・教授

研究所担当教員

白石賢二・名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授

森勇介・名古屋大学・未来材料・システム研究所・寄附研究部門・教授

#### 1. 研究目的

GaN をパワー素子へ応用するには、GaN 結晶の歪みの分布を観察することが不可欠である。種々の顕微的手法では、結晶の表面を詳細に観測できるものの、より深い界面および結晶全体にわたる歪みの分布は観測できない。研究代表者は、物質に照射した非破壊の電波に対する核スピンからの微弱な応答を検出する装置をゼロから独自に構築し、市販装置の数 100 倍の超高感度化を実現している。本研究では、この超高感度核スピン計測技術を駆使し、GaN 結晶中の歪みの分布を実験室レベル・非破壊で観測することを目的とする。市販装置では感度不足のために不可能であった歪みの分布観測を、独自装置に基づく超高感度計測技術によって実現する。その知見を試料作成の現場に提供・提言し、パワー素子の実用化に向け GaN 結晶中の歪みを大幅に低減するための有力で革新的な知見を提供する。

#### 2. 研究内容と成果 (12pt ゴシック体)

- ・分担者である森が提供した GaN 結晶 (c 面) に対し、代表者が独自に組み上げた装置を用い、Ga-NMR 周波数スペクトルを得た。具体的には、c 面に垂直に静磁場を加えた状態で、この磁場で共鳴する電波をパルス状に照射し、結晶中の Ga 核スピンからの微弱な応答信号の周波数依存性を調べた。

- ・その結果、極めてシャープな中心共鳴線に加え、その両側に大きな周波数間隔で 2 本のサテライト線が観測された。

- ・これは、GaN 粉末のスペクトルが 1 本の共鳴線のみが観測されるのと対照的である。

- ・この split が磁氣的な要因ではないこと、さらに電氣的な要因であることを一連の Ga-NMR から実験的に明らかにした。具体的には、異なる静磁場これを踏まえ、Ga 核スピンが感じている電場勾配の大きさと方向を明らかにした。





## 超省エネ・高密度磁気メモリ開発に向けた スキルミオン物質の設計と評価

Design and characterization of skyrmion materials  
for ultra-low energy and high density magnetic memories

肖英紀・秋田大学・大学院理工学研究科・助教  
長尾全寛・名古屋大学・未来材料・システム研究所・准教授

### 1. 研究目的

磁気スキルミオンはナノスケールの特殊な磁気渦構造であり、スキルミオン一つを超低電流密度で駆動できることから、次世代の高速かつ低消費電力磁気記録デバイスの素子として期待されている。スキルミオンは、らせん磁性体に弱い磁場を印加することによって、スキルミオン1つ1つが周期配列したスキルミオン結晶として形成することが知られている。これまで、スキルミオンは主に金属元素を主体とした結晶質材料で見出されており、良質な単結晶試料を用いることで研究が進展してきた。一方、現実の結晶物質では、種々の構造欠陥および化学的欠陥が存在するため、これらがスキルミオンの形成や運動にどのように影響するのかを調べるのが極めて重要である。本研究では、最近発見された室温以上でスキルミオンを形成する $\beta$ -Mn型Mn-Co-Znをはじめとした種々のスキルミオン物質を合成し、超高圧電子顕微鏡施設の透過型電子顕微鏡を用いて原子レベルでの構造評価とスキルミオン観察を実施することによって、局所的な結晶構造とスキルミオン形成との関係を明らかにすることを目的としている。

### 2. 研究内容と成果

前年度まで、室温でスキルミオンを形成する $\beta$ -Mn型MnCoZnだけでなく、種々の新規合金において $\beta$ -Mn物質の合成に成功し、合成条件が確立した。今回は、得られた新合金におけるスキルミオン直接観察法を確立するために、典型的な $\beta$ -Mn型合金であるMn-Co-Znを用いてスキルミオン観察を実施した。試料は全て高純度金属原料を種々の組成で秤量し、石英管に真空封入後電気炉を用いて適宜融解・熱処理を施すことによって作製した。試料の結晶構造評価および組織観察には粉末X線回折および走査型電子顕微鏡を用いた。試料を機械研磨およびアルゴンイオンミリングにより薄片化し、ローレンツ電子顕微鏡を用いてらせん磁気構造および磁気スキルミオン観察を実施した。

図1(a)はCo-Zn-Mn合金の粉末X線回折図形であり、 $\beta$ -Mn単相が得られたことを示している。格子定数は $a=0.637$  nmと求まった。この試料に対してスキルミオン観察を行い、図1(b)のようにスキルミオンが六方格子状に配列したスキルミオン結晶を捉えることに成功した。転移温度はおおよそ295 Kであり、スキルミオンサイズは約150 nm

であった。今後、今回得られた実験条件に基づいて、新規  $\beta$ -Mn 合金のスキルミオン観察に研究を展開していく予定である。

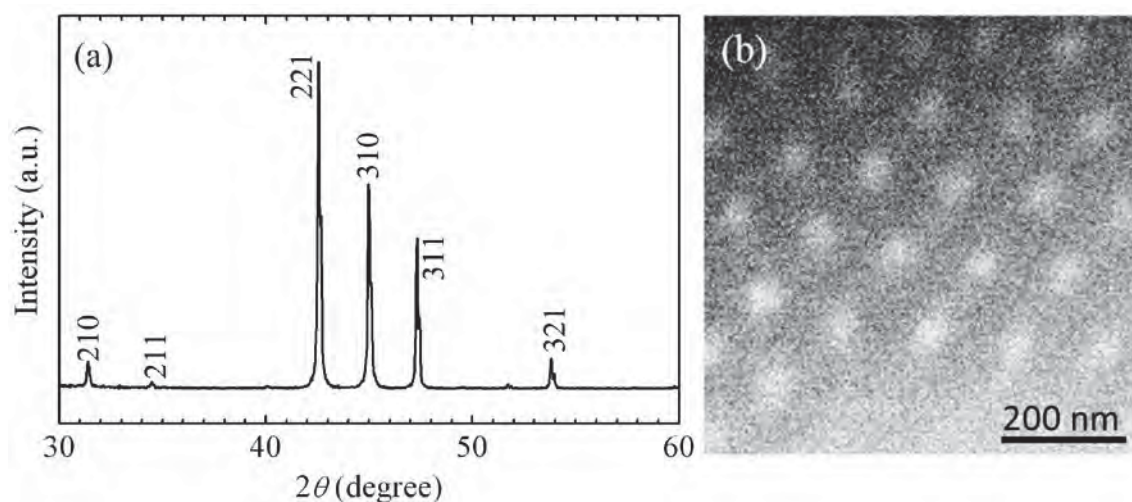


図 1. (a) Co-Zn-Mn 合金の粉末 X 線回折図形.  
(b) ローレンツ透過型電子顕微鏡像(アンダーフォーカス像).

### 【研究成果の公表状況】

<原著論文>

- ・なし

<国際・国内会議>

- ・小松正弥, 肖英紀, 鈴木潤士, 桑原真人, 長尾全寛, Co-Zn 系  $\beta$ -Mn 型合金の作製と磁気構造観察, 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 日~24 日.
- ・小松正弥, 肖英紀, 鈴木潤士, 桑原真人, 長尾全寛,  $\beta$ -Mn 型 Co-Zn 合金の作製と磁性測定, 第 16 回日本金属学会東北支部研究発表大会, 東北大学さくらホール, 2017 年 11 月 22 日.
- ・小松正弥, 高場健太郎, 肖英紀, 鈴木潤士, 桑原真人, 長尾全寛, Co-Zn 系  $\beta$ -Mn 型合金の作製と磁気構造観察 II, 日本物理学会第 73 回年次大会, 東京理科大学野田キャンパス, 2018 年 3 月 22 日~25 日.

<産業財産権>

- ・なし

## 強く捻れた光場中でのカイラル核形成による結晶カイラリティ制御 Control of Crystal Chirality by Inducing Chiral Nucleation under Superchiral Near Field

新家寛正・千葉大学・大学院工学研究院・特任助教

田川美穂・名古屋大学・未来材料研究所未来エレクトロニクス集積センター・  
准教授

### 1. 研究目的

結晶構造における空間反転対称性の欠如(カイラリティ)は、反対称性電子スピン-軌道相互作用をもたらし、結晶中の電子スピン縮退を解くことが知られている。この性質は、電子スピン制御(スピントロニクス)の観点から極めて重要な性質である。そのため、結晶カイラリティの性質の理解及び制御は、革新的省エネルギー技術の創生のために必要である。古くから、円偏光二色性に代表されるような光とカイラル分子における左右非対称な相互作用が、絶対不斉合成においてキラリティの偏りを誘起するために用いられてきた。しかし、円偏光とカイラル分子間のスケール差が大きいため、カイラルな光-物質相互作用の左右非対称性は一般に小さく、この非対称性の小ささが光による物質キラリティ制御高効率化のボトルネックとなっている。本研究では、金属カイラルナノ構造体の表面プラズモン近接場で形成する、円偏光よりも捻れた『強く捻れた近接場(Superchiral Near Field)』を不斉場とし、アカイラル分子のカイラル結晶化を誘起することにより、高効率な結晶カイラリティ制御の実現し光による物質キラリティ制御の新しいフェーズを示すことを目的としている。

### 2. 研究内容と成果

共同利用機器の電子線描画装置を用いて、一辺 528 nm の卍型構造を構成単位とした 105.6 nm 間隔のカイラル金ナノ周期構造と一辺 480 nm の+型構造を構成単位とした 96

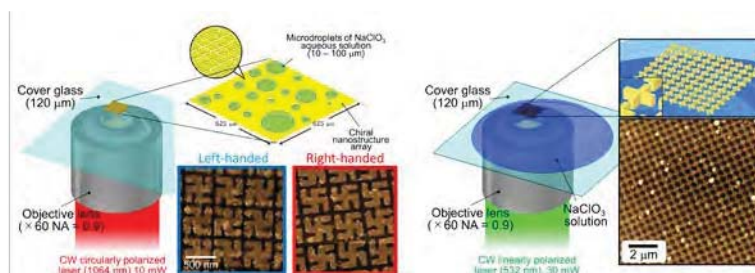


Fig. 1 Experimental setup for crystallization experiment. The experiment using chiral gammadion-type Au nanostructure (left). The experiment using achiral cross-type Au nanostructure (right).

nm 間隔のアカイラル金ナノ周期構造をガラス基板上に 625 μm 四方の広さで作成した (Fig. 1)。カイラル金ナノ周期構造上に、カイラル結晶化する塩素酸ナトリウム(NaClO<sub>3</sub>)水溶液の微小液滴(直径 10 μm - 100 μm)をスプレー噴射により形成し、倒立型顕微鏡に搭載された波長 1064 nm 出力 10 mW の円偏光を NA=0.9 の対物レンズを用いてナノ構造に集光した。集光点近傍の様子を偏光顕微鏡によりその場観察した。ナノ構造と円偏光それぞれの利き手の組み合わせによって決まる 4 通り(右,右)、(右,左)、(左,右)、(左,左)においてそれぞれ 50 回ずつ結晶化を行い、得られる結晶の利き手を検光子法により





## 基板担持脂質二重膜の相分離の制御

### Control of phase separation in supported lipid bilayer

研究代表者：手老龍吾・豊橋技術科学大学・環境・生命工学系・准教授

研究分担者：宇治原徹・名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授

田川美穂・名古屋大学・未来材料・システム研究所・准教授

原田俊太・名古屋大学・未来材料・システム研究所・講師

磯貝卓巳・名古屋大学・未来材料・システム研究所・研究機関研究員

研究所担当教員：田川美穂・名古屋大学・未来材料・システム研究所・准教授

#### 1. 研究目的

直径 1~100 nm 程度の大きさを持つナノ粒子は、高い触媒能や表面プラズモン、量子サイズ効果など、バルクの物質とは異なる性質を持つ。ナノ粒子を用いたデバイス作製に向け、ナノ粒子を結晶内の原子のように配列させた「ナノ粒子結晶」に関する研究が行われている。我々は、DNA を被覆したナノ粒子(DNA 被覆ナノ粒子)を脂質二重膜に吸着・拡散させることで、2次元ナノ粒子結晶を作製する手法を開発した。本手法では、脂質二重膜内の特定の相(指組みゲル相)に DNA 被覆ナノ粒子が分配されることがわかっている。これは、脂質二重膜内の相分離を制御することで、2次元ナノ粒子結晶の成長の起点となる核形成サイトを操作できる可能性を示唆する。それが実現できれば、配向の揃ったナノ粒子の2次元単結晶も作製可能となる。そこで、脂質二重膜の相分離を制御する手法の開発を目指す。

#### 2. 研究内容と成果

脂質二重膜を詳細に観察する代表的な手法として蛍光顕微鏡と原子間力顕微鏡 (AFM)がある。蛍光顕微鏡は、脂質二重膜内の組成を観察する手法として有用である。また、観察時間も短いため広範囲を観察できる。しかし、膜のナノメートルスケールの詳細な構造をみることはできない。一方、AFM はナノメートルスケールの表面構造を観察できるが、観察に時間がかかるために、膜全体の情報を得ることはできない。脂質二重膜の情報を効率的に得るためには、蛍光顕微鏡で膜の相を特定し、重要な領域を AFM で観察する必要がある。そこで、蛍光顕微鏡と AFM の同時観察を実現する装置の構築を行った。図 1 に装置の写真を示す。AFM(MultiMode 8 atomic force microscopy, Bruker)の試料ステージを上から観察できるように蛍光顕微鏡 (SZX16, Olympus)を設置した。この装置を用いて脂質

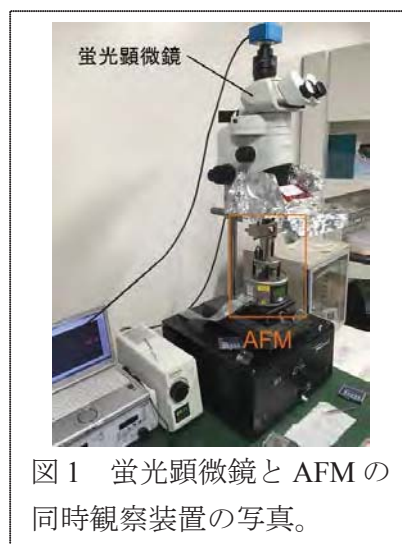


図 1 蛍光顕微鏡と AFM の同時観察装置の写真。



二重膜を観察した。Dimethyl dioctadecyl ammonium bromide (DDAB) に蛍光脂質(TR-DHPE)を 1 mol%混ぜてベシクル懸濁液を作製し、それをマイカ上に滴下して高温に保持することで脂質二重膜を得た。図 2 に AFM ステージ上の脂質二重膜の明視野像と蛍光像を示す。図 2(a)に示すように、明視野像では AFM のプローブとマイカ表面が観察された。次に、図 2(a)と同じ領域を蛍光観察すると、図 2(b)に示すように明るいドメインが形成している様子が観察された。我々のこれまでの研究で、蛍光像内の明るい領域は DDAB 脂質二重膜内の指組みゲル

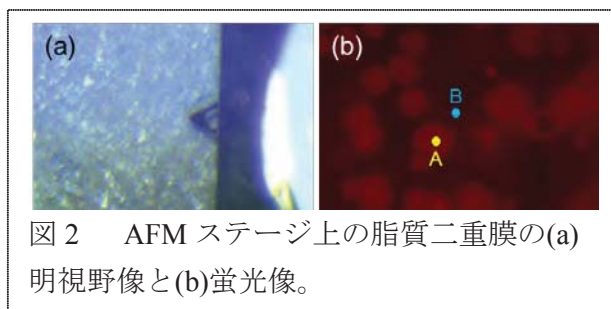


図 2 AFM ステージ上の脂質二重膜の(a)明視野像と(b)蛍光像。

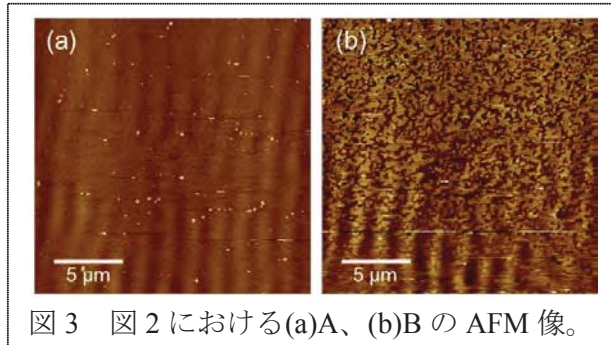


図 3 図 2 における(a)A、(b)B の AFM 像。

相、暗い領域はゲル相であることがわかっている[T. Isogai *et al*, *J. Cryst. Growth* **468** (2017) 88–92.]. そこで、図 2(b)内の A と B の場所の AFM 観察を行った。図 3(a)に示すように、A では 1.5 nm ほどの高さをもつゲル相のドメインが少し形成していたものの、ほとんどの領域は指組みゲル相であった。一方、図 3(b)に示すように、B では 1.5 nm ほどの高さをもつゲル相のドメインが多数形成していた。これらの AFM 観察から得られた膜内の相は、蛍光像と一致した。以上のように、蛍光顕微鏡と AFM の同時観察により、特定の相の領域を AFM で選択的に観察することに成功した。

### 【研究成果の公表状況】

<原著論文>

Takumi Isogai, Sakiko Nakada, Naoya Yoshida, Hayato Sumi, Ryugo Tero, Shunta Harada, Toru Ujihara, and Miho Tagawa, Phase transition process in DDAB supported lipid bilayer, *Journal of Crystal Growth*, 468, 88-92(2017).

<国際・国内会議>

[1] 磯貝 卓巳, 鷺見 隼人, 手老 龍吾, 原田 俊太, 宇治原 徹, 田川 美穂, DNA 被覆ナノ粒子による DDAB 脂質二重膜の指組みゲル相形成の促進, 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会, 福岡国際会議場・国際センター・福岡サンパレス, 2017 年 9 月 5 日～8 日.

[2] 磯貝 卓巳, 脂質分子をキャリアとした DNA 被覆金ナノ粒子の 2 次元結晶化と構造制御, 静岡大学ナノ粒子革新的応用若手研究会(Nano-PIA)第 3 回 研究セミナー, 静岡大学 浜松キャンパス, 2018 年 1 月 18 日.

<産業財産権>

該当なし

## 深紫外発光ダイオード構造における発光特性の評価

### Optical characterization of deep-ultraviolet light-emitting diode structures

小島一信・東北大学・多元物質科学研究所・准教授  
 秩父重英・東北大学・多元物質科学研究所・教授  
 天野 浩・名古屋大学・未来研・センター長、教授  
 本田善央・名古屋大学・未来研・准教授

#### 1. 研究目的

近年、紫外線波長領域の高効率固体光源の開発が盛んに行われている。特に、265 nm は殺菌能力が高いため重要な波長と言える。このような現状の中、280 nm～300 nm 帯における AlGaIn 発光ダイオード(LED)の外部量子効率(EQE)は、樹脂封止等がない構造にて最大 6%程度を達している。また、同構造を樹脂封止した場合、光取り出し効率が改善し、EQE は最大 10%近くの値が報告されている。しかし、265 nm 帯の LED 構造においては、樹脂封止がない場合の EQE が最大でも 3%程度にとどまっておき、さらなる改善が望まれている。そこで本研究では、このような発光波長の短波化に伴う、AlGaIn LED 構造の EQE 低下要因を調べるために、その発光特性を評価する。

#### 2. 研究内容と成果

##### 【試料構造と実験概要】

図 1 に、本研究にて評価した試料（樹脂封止なし）の構造概略図を示す。基板は  $m$  軸方向に  $1.0^\circ$  傾斜した  $c$  面サファイアである。発光層は 3 周期の AlGaIn/AlGaIn 量子井戸であり、AlN 層から引き継いだ特徴的なマクロステップを有する。井戸層幅は  $3\pm 1\text{nm}$ 、また、貫通転位密度は  $5\times 10^8\text{ cm}^{-2}$  である。試料の評価は、チタンサファイアレーザ（繰り返し周波数：8 MHz、パルス幅：80 fs）の三倍高調波（244 nm～266 nm）を励起光に用いた、時間分解フォトルミネセンス（PL）による評価を行った。PL は、AlGaIn:Mg 層から検出した。

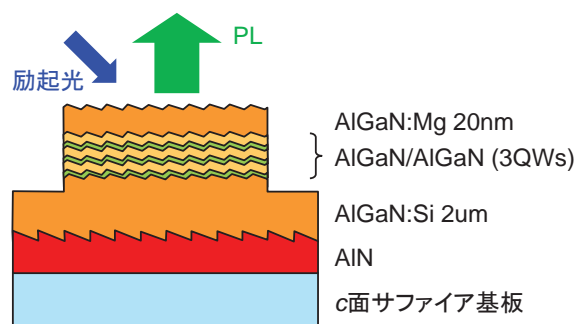


図 1 試料の層構造概略。

## 【結果】

図2は、室温における発光ピーク波長が300 nm および265 nmのLED構造(以後、それぞれLED300 およびLED265 と表記する)の、PL積分強度の時間発展をあらわす。両者を比べると、LED300の方がLED265よりも発光の減衰が遅いことが分かる。発光の減衰曲線を、二つの異なる寿命を持つexp型関数でフィッティングしたところ、速い寿命がLED300とLED265とでそれぞれ0.68 nsおよび0.16 nsと見積もられた。これは、測定温度が室温であることを考えると、LED300に比べLED265はより強く非輻射再結合過程に支配されていることを示唆するものと考えられる。

したがって、AlGaIn量子井戸の短波長化に伴うEQEの低下は、IQEの低下が主要因であることが予想される。

AlGaInにおける主要な内因性の非輻射再結合中心(NRC)はカチオン空孔複合体であること、また、同じ成長条件ではAINモル分率の増加に従いカチオン空孔濃度が増加することが分かっている。したがって、LED265ではLED300より井戸層・障壁層ともにAINモル分率が高いためカチオン空孔濃度が高く、それらがNRCとして振舞うことでIQEを低下させていることが強く示唆された。

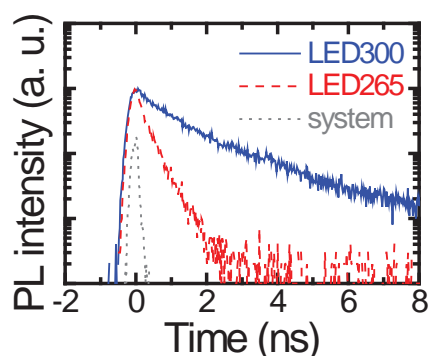


図2 PL積分強度の時間発展。  
点線は測定系の応答関数。

## 【研究成果の公表状況】

<国際・国内会議>

1. 小島一信, 長澤陽祐, 平野光, 一本松正道, 本田善央, 天野浩, 赤崎勇, 秩父重英, "マクロステップを有するc面AlGaIn量子井戸発光ダイオード構造の発光特性", 2017年第64回応用物理学会春季学術講演会, パシフィコ横浜, 横浜市, 2017年3月.
2. K. Kojima, Y. Nagasawa, A. Hirano, M. Ipponmatsu, Y. Honda, H. Amano, I. Akasaki, and S. F. Chichibu, "Optical characteristics of c-plane AlGaIn multiple-quantum-well light-emitting diode structures with macro-size steps", *The 12th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS12)*, Strasbourg, France, July (2017).

## N 極性 InGaN 発光ダイオードの高効率化にむけた 局在発光の微視的評価

Microscopic investigations on localized emission in N-polar InGaN LED  
toward its efficiency improvement

代表者	片山竜二	大阪大学	工学研究科	教授
分担者	松岡隆志	東北大学	金属材料研究所	教授
	谷川智之	東北大学	金属材料研究所	助教
	正直花奈子	三重大学	工学研究科	助教
担当者	本田善央	名古屋大学	未来材料システム研究所	准教授

### 1. 研究目的

これまで研究代表者らは、白色 LED に代表される固体照明等の革新的な省エネルギー化を目指した窒化インジウムガリウム (InGaN) 系発光素子開発の中で、従来の III 族極性薄膜に比べ、これを裏返した面方位である N 極性薄膜が高い In 取込効率を有することに着目し、未踏波長域であった緑から赤色といった長波長で発光する N 極性 InGaN 量子井戸 LED の実現に成功した [正直他, APEX **8** (6), 061005 (2015)]. その際、これまでの電場変調分光測定、透過電子顕微鏡観察といった個別の評価結果をまとめると、量子井戸からの主たる光学遷移に加え、量子ドットの発光中心が自己形成され、この局在発光が上記の長波長発光の起源であることが示唆されている [谷川他, JJAP **55** (5S), 05FA04 (2016)]. そこで本研究では、微視的構造と発光の直接観察が同時に可能な透過電子顕微鏡に装備されたカソードルミネッセンス装置を用い、この局在発光の起源を突き止め、更なる発光効率向上と実用素子への発展の可能性を探ることを目的とした。

### 2. 研究内容と成果

東北大学において有機金属気相成長した N 極性 InGaN 量子井戸及び薄膜試料を用い、名古屋大学未来材料システム研究所保有の収束イオンビーム加工装置 (FIB, HITACHI NX2000) を用いて断面観察用の薄片試料へと加工し、走査型透過電子顕微鏡 (STEM, HITACHI SU9000) を用いた明・暗視野観察により、反転ドメインを起点として InGaN 多重量子井戸中に自己形成された量子ドットの微視的構造特性を評価した。また上記顕微鏡に装備されたカソードルミネッセンス (CL) 装置 (GATAN VLB3) を用いた発光強度分布測定を行い、この微視的構造が局在発光中心としての機能を検証した。

図 1 (a) に、基板側から伝搬する反転ドメインが InGaN 多重量子井戸層と交差する領域近傍の断面 STEM 像を示すが、量子井戸層を境に反転ドメインが消失し貫通転位が発生するとともに、格子緩和にともなう井戸層厚の増加が見受けられ、量子ドットの構



造を呈することがわかる. 図 1 (b)に同領域のパンクロマティック CL 強度分布像を示すが, 上記量子ドットの構造にあたる部分で強い発光が見られる. 図 1 (c)の赤線と青線は, それぞれ図 1 (b)中の量子ドットの領域 (赤枠内) と量子井戸の領域 (青枠内) を含むように井戸層水平方向に積分した CL 強度プロファイルを示すが, 量子ドットの領域でより強い発光が得られることを明確に示しており, 当初計画どおりの結果が得られた.

また上記試料の低温顕微フオルミネッセンス分光測定を行ったところ, 0.2~3.0 meVの超狭スペクトル線幅の局在発光を呈し, その面密度が反転ドメイン密度 (0.3  $\mu\text{m}^{-2}$ ) とほぼ一致した. 更に, 励起強度を増加させると低エネルギー側に新たな狭線幅発光が出現し, その発光強度が励起強度の 2 乗に比例することから, 弱励起下の発光は局在励起子, 強励起下で生じる発光は局在励起子分子が起源であると考えられる.

本研究で得られた結果より, N 極性 InGaN 量子井戸構造中の反転ドメイン近傍に生じる量子ドットの微視的構造は高効率な局在発光中心として働くことがわかった. 今後は局所極性制御技術によりこの微視的構造の位置・密度の制御を行うことで, LED の高効率化や単一光子や量子相関光子対発生など新規量子機能の発現が期待される.

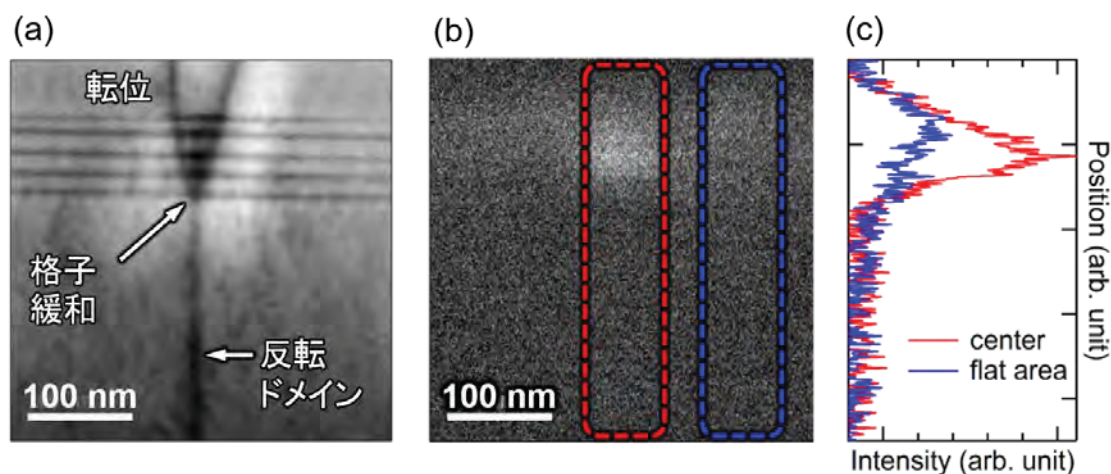


図 1 N 極性 InGaN 量子ドットの微視的構造近傍の (a)断面 STEM 像, (b)パンクロマティック CL 発光分布像, (c) パンクロマティック CL 発光強度プロファイル.

### 【研究成果の公表状況】

<原著論文>

- K. Takamiya, S. Yagi, H. Yaguchi, H. Akiyama, K. Shojiki, T. Tanikawa, and R. Katayama, “Biexciton emission from single quantum-confined structures in N-polar (000-1) InGaN/GaN multiple quantum wells,” *physica status solidi (b)*, 1700454 (2017).

<国際・国内会議>

- K. Takamiya, S. Yagi, H. Yaguchi, H. Akiyama, K. Shojiki, T. Tanikawa, R. Katayama, and T. Matsuoka, “Biexciton emission from single quantum-confined structures in N-polar (000-1) InGaN/GaN multiple quantum wells,” 12th International Conference on Nitride Semiconductors (ICNS-12) Strasbourg, France, July 24 - 28 (2017).



溶液法成長 SiC 結晶を基板として用いたパワー半導体素子の評価  
Characterization of power semiconductor devices using solution grown SiC crystals as substrates

加藤正史・名古屋工業大学・大学院工学研究科・准教授  
宇治原徹・名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授  
原田俊太・名古屋大学・未来材料・システム研究所・講師

## 1. 研究目的

SiC 結晶は従来昇華法により成長されてきたが、その場合転位密度が  $10^3 \text{ cm}^{-2}$  を超えるのが通常であった。一方で、溶液法により成長された SiC 結晶では、転位密度が  $10^2 \text{ cm}^{-2}$  を下回るものが得られており、高品質結晶の成長が可能であることが実証されてきた。しかしながら、SiC 結晶の応用ターゲットであるパワー半導体素子に対して、溶液法成長の結晶が基板として利用できるかどうかの実験的検証は未だに不十分である。従って、本共同研究では、申請者が有する電氣的評価の知見を活かし、溶液法成長による SiC 結晶を基板として用いたパワー半導体素子の特性を評価する。これにより、溶液法がパワー半導体素子用の基板の成長手法として高いポテンシャルを持っていることを実証する。

ここで SiC パワー半導体素子は一般に、基板結晶の上にエピキシャル成長により不純物密度を制御した SiC 耐電圧維持層を形成することで作製される。この耐電圧維持層がパワー半導体素子の性能を決定するが、耐電圧維持層には基板からの転位が引き継がれるため、基板結晶の品質は重要である。ここで溶液法により転位密度が抑制された SiC 結晶を基板とし、SiC 耐電圧維持層を形成すれば、転位密度の低い耐電圧維持層が得られ、高性能な素子の作製が期待できる。ただし、溶液法といえども、全ての転位を除去することは困難であり、転位が素子に与える悪影響を定量的に観測することは重要である。したがって、本研究では転位の挙動および、溶液成長基板上のエピタキシャル成長膜を用いた素子の電気特性評価を行った。

## 2. 研究内容と成果

SiC 基板中の転位のうち、基底面内転位は、素子動作の間にその転位に伴う積層欠陥を拡張させ、耐電圧維持層に広がることで素子特性を悪化させることがわかっている。そこで SiC 基板中の積層欠陥のフォトルミネッセンス発光寿命を定量的に観測し、拡張メカニズム解明を行った。

n 型および p 型の SiC 基板に対し、波長 355 nm のパルス励起光を照射し、積層欠陥付近にキャリアを励起し、420 nm 付近の積層欠陥からの発光を観測した。その結

果 n 型、p 型どちらからも 3ns 以下の短い発光寿命が観測され、積層欠陥は励起キャリアを直ちに再結合させることがわかった。また、積層欠陥の拡張が起こるには積層欠陥の境界に存在する部分転位と呼ばれる、基底面内転位が分解したものが動く必要がある。部分転位に相当する発光波長 680 および 790 nm の発光寿命を観測したところ、4-14 ns と積層欠陥よりも長い寿命を示した。部分転位でのより長い寿命が示唆することは、積層欠陥の拡張は部分転位での再結合が律速過程であることを示唆している。発光寿命(1/e ライフタイムとして抽出)の温度依存性をまとめたものを図 1 に示す。部分転位での発光寿命は温度が高いほど短くなった。これは温度とともに積層欠陥の拡張速度が上がることを示唆している。また現在、積層欠陥の拡張を制御するプロセスの開発を行っている。

一方、転位の少ない溶液法により成長した基板が、素子の特性にどのような影響をあたえるのかを直接確認するために、基板上へのエピタキシャル成長とエピタキシャル成長膜状へのショットキーバリアダイオード(SBD)作製を行った。そして作製された複数の SBD の耐電圧の測定を実施した。その結果、SBD の耐電圧の平均値は約 750 V となった。参照用に作製した市販の昇華法により成長した基板上にエピタキシャル成長して作製した SBD の耐電圧の平均値約 660 V に比べて高い値となり、溶液法により成長した基板は市販の基板に対して遜色ない品質を有していることが確認された。今後はさらに高耐圧の素子を作製し、溶液成長の優位性を確認していく予定である。

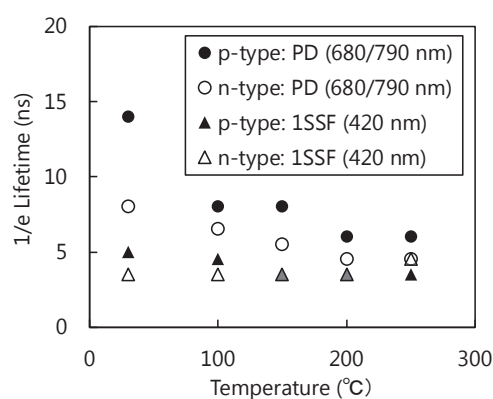


図 1 積層欠陥(1SSF)および部分転位(PD)からの発光寿命の温度依存性

## 【研究成果の公表状況】

<国際・国内会議>

Masashi Kato, Shinya Katahira and Shunta Harada, “Decay time of photoluminescence from single Schockley stacking fault in n-type 4H-SiC” International conference on Materials and Systems for Sustainability 2017 (ICMaSS2017), Nagoya, 2017年9月30日

Masashi Kato, Shinya Katahira, Yoshihito Ichikawa, Shunta Harada and Tsunenobu Kimoto, “Decay Time of Photoluminescence from 1SSFs and PDs in 4H-SiC” The International Conference on Silicon Carbide and Related Materials (ICSCRM 2017), Washington DC, 2017年9月17-22日

## 溶液法 SiC 結晶成長と評価に関する研究 Study on solution growth and evaluation of SiC crystals

太子 敏則・信州大学・工学部・准教授  
鈴木 皓己・信州大学・総合工学系研究科・D1  
土本 直道・信州大学大学院・総合工学系研究科・M1  
原田 俊太・名古屋大学・未来材料・システム研究所・講師

### 1. 研究目的

今日、パワー半導体材料の主流はシリコン(Si)であるが、物性的な観点からこれ以上の性能向上は困難とされている。そこで、新たな材料として炭化ケイ素(SiC)が注目されており、Si より優れた物性値を有するため、エネルギー変換効率の向上が可能となる。現在、昇華法によって成長させた SiC が広く使用されているが、一方で溶液法での SiC 結晶成長は、熱平衡状態に近い成長ができ、昇華法の結晶に比べて欠陥が少ないとされている。しかし、溶液法は SiC 特有のポリタイプ現象や成長機構の複雑であることから、長尺化や大口径化が困難であり、さらなる高品質化も必須である。

本研究では、研究代表者が有する機能性バルク単結晶成長技術の知見を活かして、貴研究所で先駆的に SiC 溶液成長に関する研究を行っている宇治原教授・原田講師・村山特任助教の研究室と連携して、相互でできなかった成長条件の改善や結晶評価を行い、SiC 結晶の高品質化を目的とする。そして、この共同研究の実施により、溶液法による SiC パワーデバイスの実用化と省エネルギー社会の実現を目指す。

### 2. 研究内容と成果

信州大学所有の抵抗加熱式の結晶育成装置で、カーボンるつぼを用いて 4H-SiC 基板の C 面を種結晶として SiC 結晶を溶液法により育成した。得られた結晶の評価は、名古屋大学・未来材料・システム研究所の原田講師・村山特任助教のご指導のもと、ラマン分光法によるポリタイプの評価を実施した。また、SiC 溶液成長に用いる名古屋大学の高周波加熱炉および信州大学の抵抗加熱炉内の温度分布と対流の数値解析を実施し、これに合わせて双方の SiC 溶液成長の知見を活かして、結晶成長条件を検討した。これらの実験、評価、数値解析を名古屋大学・信州大学が共同で実施し、高品質な SiC 溶液成長条件の最適化を目指した。

信州大学にて SiC 溶液成長における種子づけの最適化を行い、その後結晶成長実験を実施し、その後名古屋大学の未来材料システム研究所のラマン分光装置を用いて評価を行った。図 1 は、1700℃で Si と Cr の組成比を変えた溶媒を用いて成長した SiC 結晶のラマンマッピングの評価結果の一例である。Si 単独および Cr が 20%の溶媒では成長面

のほとんどが 4H-SiC を示したが、Cr が 40% となったときに 3C-SiC となる領域が観察された。同様の評価を、他の成長条件で成長した結晶に対しても実施した。


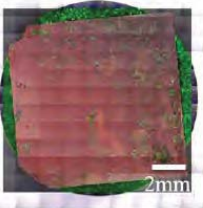
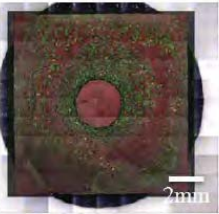
Cr組成	0 mol%	20 mol%	40 mol%
1700°C	 <p>Red : 4H, Green : 3C</p>	 <p>Red : 4H, Green : 3C</p>	 <p>Red : 4H, Green : 3C</p>

図 1 信州大学で育成した SiC 結晶に対しての、名古屋大学のラマン分光装置によるポリタイプマッピング評価結果の一例

上記以外に、信州大学にて STR 社の結晶成長シミュレーションソフト「CGSim」を用いて、名古屋大学の高周波加熱炉内について、約 200 パターンの成長条件で数値解析を実施した。成長条件に応じた様々な温度分布対流分布となる解析結果が得られ、これらを名古屋大学で行う機械学習に役立てた。

このように、信州大学での結晶成長実験、名古屋大学での結晶品質評価、名古屋大学・信州大学双方での数値解析を繰り返して SiC 溶液成長に関する実験・解析を行っている。今後も結晶成長条件の最適化と結晶の高品質化を図っていく。

### 【研究成果の公表状況】

<国際・国内会議>

- ・ K.Suzuki, M. Takahashi, N. Tsuchimoto, K. Hyun, T. Taishi, K. Murayama, S. Harada and T. Ujihara, Evaluation of Polytype of SiC Grown by Top-Seeded Solution Growth Technique Using Various Composition of Cr in Si-Cr Based Solvents, International Conference on Materials and Systems for Sustainability 2017, Sep. 30, 2017.
- ・ N. Tsuchimoto, K. Suzuki, M. Takahashi, K. Hyun, T. Taishi, K. Murayama, S. Harada and T. Ujihara, The effect of the structure of seed attachment on polytype and morphology in solution growth of SiC by TSSG method, International Conference on Materials and Systems for Sustainability 2017, Sep. 30, 2017.
- ・ 鈴木皓己、高橋大、土本直道、玄光龍、太子敏則、村山健太、原田俊太、宇治原徹、SiC 溶液成長法における溶媒中の Cr 組成に対する成長ポリタイプの面内分布及び相対存在割合の評価、先進パワー半導体第 4 回講演会、名古屋、平成 29 年 11 月 2 日。
- ・ 他、国際会議発表 3 件、国内学会発表 5 件

## 窒化物半導体を用いた MOS デバイスにおける 半導体/絶縁膜界面の評価

Evaluation of interface between semiconductors and insulators on MOS devices  
using nitride semiconductors

佐藤威友・北海道大学・量子集積エレクトロニクス研究センター・准教授  
赤澤正道・北海道大学・量子集積エレクトロニクス研究センター・准教授  
松本悟　・北海道大学・情報科学研究科・修士課程 2 年  
植村圭佑・北海道大学・情報科学研究科・修士課程 1 年  
天野浩　・名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授  
本田善央・名古屋大学・未来材料・システム研究所・准教授  
出来真斗・名古屋大学・未来材料・システム研究所・助教

### 1. 研究目的

窒化物半導体は、高い飽和電子速度および高い絶縁破壊電界を持つことから、高耐圧パワーデバイスへの応用が期待されているが、ゲート絶縁膜の高品質化および高信頼化が大きな課題となっている。本共同利用・共同研究の目的は、堆積絶縁膜の高品質化と欠陥準位の低密度化および欠陥準位の起源解明である。前年度までに、絶縁体/窒化物半導体界面に発生する界面準位および欠陥準位の低減には、低損傷な界面形成手法の適用、300~400°C の熱処理 (PMA: Post-Metallization Annealing) が効果的であることを示した。本年度は、これらの知見を活かして「絶縁リセスゲート型 AlGa<sub>N</sub>/Ga<sub>N</sub> 高電子移動度トランジスタ (HEMT)」を試作し評価した。

### 2. 研究内容と成果

作製した素子の模式図を図 1 に示す。SiC 基板上に MOVPE 成長した Al<sub>0.24</sub>Ga<sub>0.76</sub>N/GaN ヘテロ構造を初期基板とした。ゲート電極領域に深さ 12nm の光電気化学 (PEC) エッチングを施した「リセス加工素子 ( $d_{\text{AlGa}_N} = 8\text{nm}$ )」と、無加工の「プレーナ素子 ( $d_{\text{AlGa}_N} = 20\text{nm}$ )」を同一チップ上に作製した。ゲート絶縁膜として、原子層堆積法により酸化アルミニウム (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) を 30nm 堆積した。PMA 処理 (3 hour @ 300°C in N<sub>2</sub>) の有無および、リセス加工の有無が電気的特性に与える影響を、電流-電圧 ( $I$ - $V$ ) 法および容量-電圧 ( $C$ - $V$ ) 法により評価した。また、エミッション顕微鏡を用いてゲート電極近傍からの Electro-luminescence (EL) を観察した。

PMA 処理を施すことにより、MIS ゲートキャパシタの  $C$ - $V$  曲線の傾きは理想特性に近づき、ヒステリシスは大幅に減少した。さらに、ゲートリーク電流が減少し、相互



コンダクタンスは大幅に向上した。また、PEC エッチング面では、ドライエッチング面に見られるような窒素空孔に由来する欠陥準位の生成は見られなかった。

プレーナ素子のしきい値電圧： $V_{th}$  は約-13Vであったのに対し、リセス加工素子の $V_{th}$ は約-1Vとなった（正方向に12Vシフト）。動作ON状態（ $V_{GS} = V_{th} + 6V$ ）のドレイン電流（ $I_{DS}$ ）はどちらの素子も  $10^{-2}A$  オーダーであり、加工による電流値の減少などは見られなかった。一方、動作OFF状態（ $V_{GS} = V_{th} - 2V$ ）では、リセス加工素子の $I_{DS}$ はプレーナ素子と比べて約2桁減少した。また、プレーナ素子のゲートリーク電流（ $I_{GS}$ ）は強いドレイン電圧（ $V_{DS}$ ）依存性を示したのに対し、リセス加工素子の $I_{GS}$ は $V_{DS} = 40V$ においても  $10^{-11}A$  オーダーの極めて低い値を維持した。

動作OFF状態で観察したエミッション顕微鏡像を図2に比較して示す。PMA処理前のプレーナ素子（図2b）では、 $V_{DS} = 30V$ の時ゲート電極端のドレイン側で局所的な強い発光スポットが観測され、その瞬間に素子は破壊された。一方、PMA処理後は、 $V_{DS} = 40V$ まで印加しても素子は破壊されず、ゲート電極端（ドレイン側）に沿って一様な強い発光が観測された。同様に、リセス加工素子においても素子は破壊されず、わずかだがゲート電極端に沿って一様な発光が観測された。

これらの結果から、(1) PMA処理が $Al_2O_3/AlGaN$ 界面特性の改善に有望であること、(2) PECエッチングは表面に大きな加工損傷を与えないこと、(3) 今回試作したリセス加工素子は電極端への電界集中を抑制する構造となっていることが示された。

### 3. まとめと今後の展望

本年度は、北大グループで作製した素子を、名大グループ（未来材料・システム研究所）が保有するエミッション顕微鏡で観察することにより、PECエッチングによるリセス加工とPMA処理の効果を確認できた。今後は、ゲート絶縁膜界面状態とEL発光のメカニズムとの関連性について検討を進めていきたい。

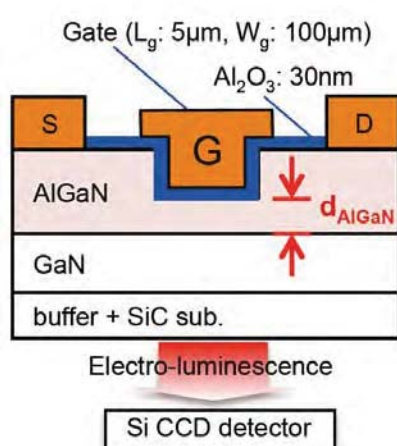


図1 素子の模式図

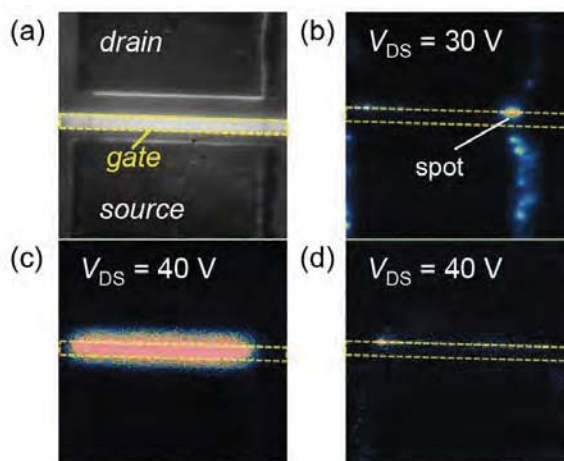


図2 (a) 試料裏面から撮影した顕微鏡像とエミッション像：(b) プレーナ素子 w/o PMA, (c) プレーナ素子 w/ PMA, (d) リセス加工素子 w/ PMA

## GaN 厚膜の HVPE 成長における成長面方位と欠陥形成機構

Effect of growth orientation on defects generation  
in the HVPE growth of thick GaN films

谷川智之・東北大学・金属材料研究所・講師  
萩原千拡・東北大学・金属材料研究所・大学院生  
藤田達也・東北大学・金属材料研究所・大学院生  
大西一生・東北大学・金属材料研究所・大学院生  
岡田成仁・山口大学・大学院理工学研究科・助教  
出来真斗・名古屋大学未来材料システム研究所・助教  
天野 浩・名古屋大学未来材料システム研究所・教授  
本田善央・名古屋大学未来材料システム研究所・准教授

### 1. 研究目的

省エネルギー社会の実現に向けてワイドギャップ半導体を用いたパワーデバイスが求められている。ワイドギャップ半導体の一つである GaN を用いた縦型パワーデバイスの耐圧向上に向けて、GaN バルク基板の高品質化が課題である。本研究課題では、ハライド気相成長（HVPE 成長）による高品質 GaN 基板作製を目的とし、欠陥生成機構の解明を目的としている。今年度の研究課題では、GaN 結晶中に存在する貫通転位と縦型デバイスの電気的特性との関係を明らかにすることを目的とする。具体的には、GaN 基板上にホモエピタキシャル成長した GaN 試料の貫通転位の三次元分布を多光子励起顕微鏡を用いて観察し、その試料に作製したショットキーバリアダイオードのリーク電流特性をエミッション顕微鏡で観察する。それらの結果を比較し、貫通転位がリーク電流に及ぼす影響を評価する。

### 2. 研究内容と成果

HVPE 法を用いて作製した GaN 基板上に有機金属気相成長法を用いて GaN を 5  $\mu\text{m}$  成長した。その後、素子間分離のために誘導結合型反応性イオンエッチングを用いて成長層を 1  $\mu\text{m}$  程度エッチングした。電極を形成する前に多光子顕微鏡を用いて GaN 基板および成長層の貫通転位の三次元像を観察した。次に、表面の保護を目的として  $\text{SiN}_x$  膜をプラズマ化学気相堆積法を用いて成膜し、オーミック電極およびショットキー電極を形成した。これらの電極間に逆方向電圧を印加し、リーク電流が発生し始めた電圧においてエミッション像を観察した。

図 1 に成長層の多光子顕微鏡像を示す。図 1 では観察像のコントラストを反転し、貫通転位が明点として観察されている。さらに、素子間分離により形成された凹凸のエッ

ジ領域が白円状に観察されている。貫通転位の密度を GaN 基板と成長層で比較すると、両者とも  $3 \times 10^6 \text{ cm}^{-2}$  程度であり、成長前後で貫通転位密度は変化せず下地基板から成長層へ貫通転位が伝搬していた。次に、エミッション像を観察した。リーク電流は、逆方向電圧を 50 V から 200 V 程度印加したときに発生し、電圧値は試料によりばらついていた。エミッション像を図 2 に示す。発生した試料のリーク電流は、主に素子分離により形成されたエッジ領域や  $\text{SiN}_x$  絶縁層の端部から発生していた。これは、リーク電流の原因がプロセスの不良による電界集中によることを示している。このような低電圧でリーク電流が発生する試料においては貫通転位との相関は得られなかった。

結論として、多光子顕微鏡とエミッション顕微鏡による観察により、貫通転位とリーク電流の位置関係が得られることが分かった。今後、プロセス条件を改良し、耐圧がより高い試料を作製し、転位とリーク電流との関係を調べる。

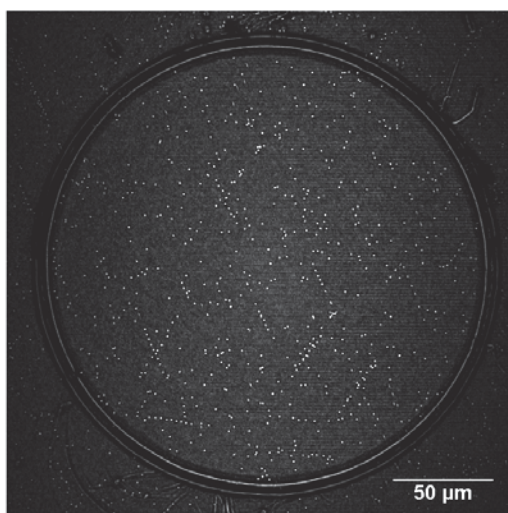


図 1 多光子顕微鏡像  
(コントラスト反転)

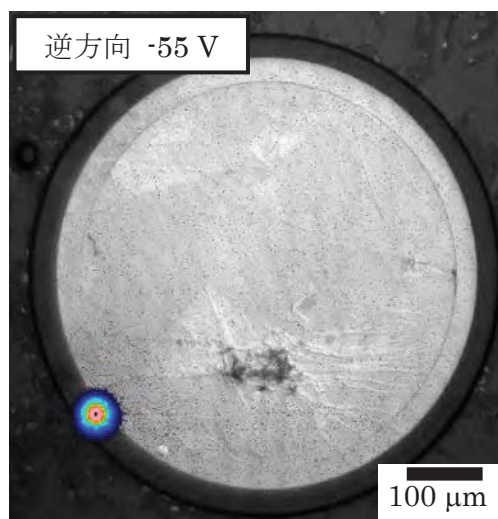


図 2 エミッション顕微鏡像

### 【研究成果の公表状況】

<原著論文>

・特になし

<国際・国内会議>

・特になし

<産業財産権>

・特になし

(注) 別紙様式 2-1 は A 4 サイズ 1 頁に、別紙様式 2-2 は図表等を含めて A 4 サイズ 2 頁になるようにしてください。

## HVPE 法による GaN バルク結晶及び GaN 薄膜作製

### Growth of bulk or thin film GaN crystal by HVPE

岡田成仁・山口大学大学院・創成科学研究科・助教

村上尚・東京農工大学・工学府・准教授

新田州吾・名古屋大学・未来材料システム研究所・特任准教授

#### 1. 研究目的

GaN は優れた電気的特性を示すことから、大電力のデバイス応用が期待されている。特に絶縁破壊電圧が 3.3 MV/cm と大きく高耐圧の電子デバイスの応用が可能とされている。これらのデバイスを実現するためには、残留キャリア濃度  $10^{15}$  cm<sup>-3</sup> 以下かつ 10 μm 以上の膜厚の結晶が必要とされている。しかしながら、GaN の結晶成長技術は未熟であり、MOVPE 法に依れば  $10^{15-16}$  cm<sup>-3</sup> 台の C 不純物の混入が問題となっている。一般的に C 原子はキャリアのキラートとなるため、低不純物密度のエピ膜を作製することが困難である。また、成長速度も 2 μm/h 程度と遅く、工業的な応用において大きなボトルネックとなっている。この問題を解決すべく、本研究では HVPE 法を用いる。HVPE 法は原料に C を含まないため、低不純物密度の実現の可能性があり、また、成長速度も 100 μm/h をはるかに超える速度で成長が可能であることから、将来の電子デバイス作製用成長手法として期待されている。さらに、その高速成長を利用することで、バルク GaN の作製が可能となる。本研究では、HVPE のバルク及び薄膜成長における問題点を明らかにし、高品質結晶作製を目指す。

#### 2. 研究内容と成果

高品質厚膜 GaN 結晶の一環として、山口大学において DEEP 法を用いた HVPE 厚膜成長を行った。その結果、図 1 に示すように、ファセット構造を有する GaN を得ることに成功した。この結晶の欠陥挙動を見るために名古屋大学にて多光子 PL 装置による転位観測を行った。その結果、転位はファセット側へ吐き出されて成長していることが分かり（図 2）、最終的に無転位の GaN が成長されていることが明らかとなった。この結果は、将来の電子デバイス作製のための高品質 GaN 結晶の基盤技術となることが分かった。また、東京農工大学にて大口径 GaN 基板作製のために、-c 面 GaN を用いて -c 面方向に GaN を THVPE 成長させた。その結果図 3 に示すように、-c 面成長させた GaN は末広りの成長をしていることが明らかとなった。この末広がり成長部の欠陥挙動を調べるために名古屋大学にて多光子 PL 装置により転位観察を行った。その結果、GaN



基板部には基底面転位および貫通転位が黒い細線状に観察される一方、末広がり領域における転位は観測されず、 $-c$ 面を用いた THVPE は GaN の大口径化に有利な成長方法であることが明らかとなった。

今後はこれら作製した GaN 基板を用いて実際の、pin 構造デバイス構造を作製し、それぞれの特性を SBD にて測定した後、電子デバイスの耐圧特性の評価を行っていきたい。

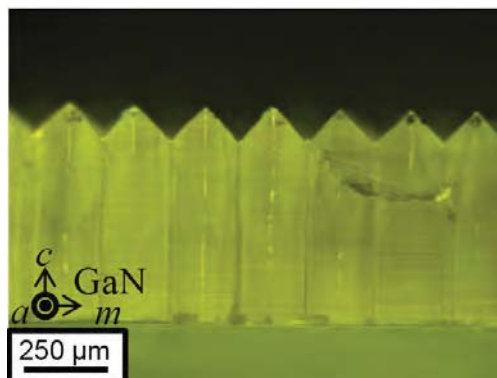


図1 DEEP法で作製した GaN の断面 SEM 像

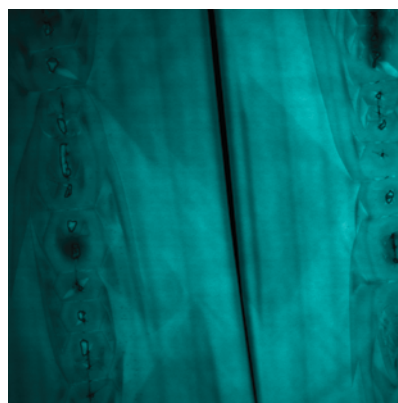


図2 DEEP法で作製した GaN の多光子 PL 像

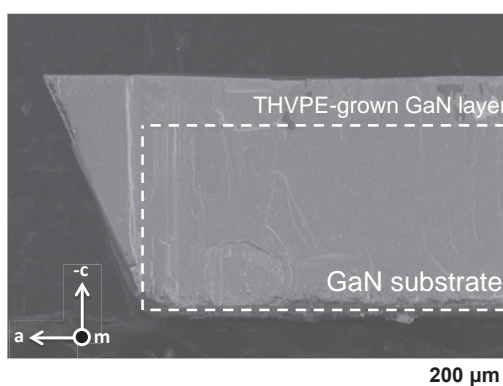


図3  $-c$ 面成長させた GaN の断面 SEM 像

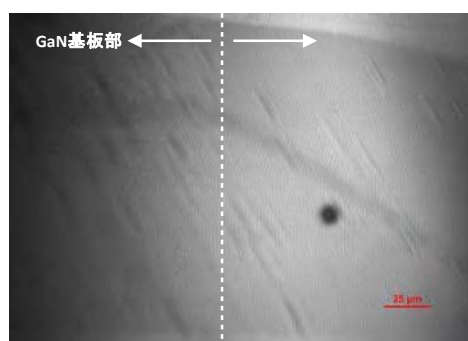


図4  $-c$ 面 GaN の末広がり部の多光子 PL 像

### 【研究成果の公表状況】

<原著論文>

特になし。

<国際・国内会議>

- ・ 江崎建弥, 重藤祐輔, 岡田 成仁, 只友 一行「ハイドライド気相成長法における Ga・N 両極性を有する GaN のファセット成長」2017 年 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会, 福岡国際会議場 福岡県, 2017 年 9 月 5~8 6a-A301-2

<産業財産権>

特になし。



## 光学観察による SiC 結晶内部欠陥の評価

### Characterization of Crystal Perfection by Optical Methods

研究代表者： 塚本勝男・大阪大学大学院・工学研究科・招へい教授

研究分担者： 村山健太、宇治原徹、原田俊太、田川美穂（名古屋大学未来材料・システム研究所）

研究所担当教員： 村山健太

#### 1. 研究目的

SiC 結晶の完全性の評価は表面の光学観察や AFM によって古くからなされている。それに対して、結晶の成長メカニズムや物性に関わる結晶の内部欠陥の観察は、シンクロトロンをつかった X 線トポグラフでもって行われている。しかし、X 線観察は原理的に拡大像がとれない、装置の使用頻度が多くない、実時間測定やその場観察に不向きなどの欠点があり、もっと手軽な方法も必要とされる。

本研究の目的としているのは、最近の光学的観察法を SiC の欠陥分布や完全性の観察測定に有効利用するためのフーズビリティスタディを行うことである。そのため、本申請者が開発してきた最新の干渉計、リアルタイム測定装置などを SiC 結晶の“その場”評価につかい、その適用性を評価することにある。

これにより名古屋大学で育成中の、革新的省エネルギーを実現する SiC パワーデバイス用の SiC 結晶の品質評価の高度化と将来の生産ラインへの適用を目指す。

#### 2. 研究内容と成果

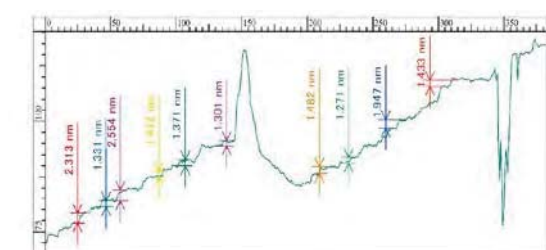
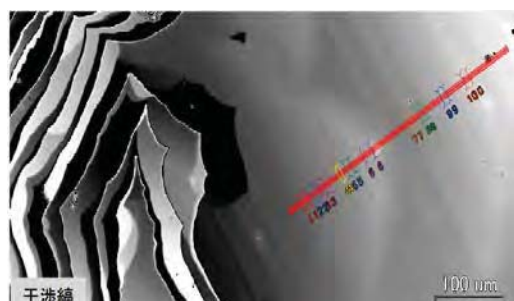


図 1 位相シフト干渉計による SiC ステップ高の測定。単分子高まで測定可能。

り、高さ分解能は AFM に十分匹敵することが分かった(図1)。

- (2) 実時間複屈折位相差マッピング法: 偏光高速イメージセンサ(図2)を使用すると、実時間に複屈折位相差が実時間でマッピングすること

基板上に成長させた SiC 結晶の表面、内部欠陥、光学軸の分布を、位相シフト干渉計、高精度偏光顕微鏡、偏光高速イメージセンサによる実時間複屈折位相差マッピング法を利用して光学主軸分布を詳細にした。後者の方法は昨年度 SiC 結晶へ適用したが、今回は併せて GaN 結晶にも適用して観察法の一般性を示した。

- (1) 塚本らが結晶成長のその場観察用に開発した位相シフト干渉法を利用して SiC ラセンスステップの高さの測定を行った。ユニット高の 1.4nm の高さのステップが広い範囲で一度に測定出来るようにな

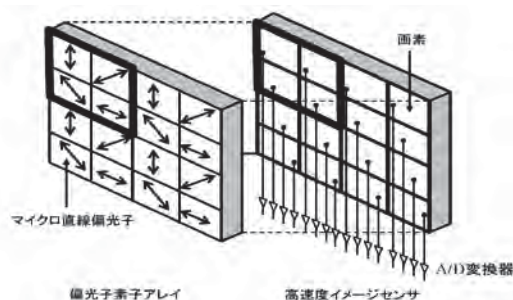
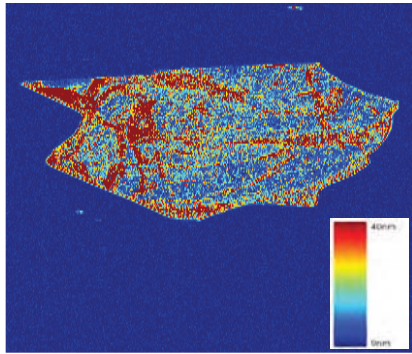
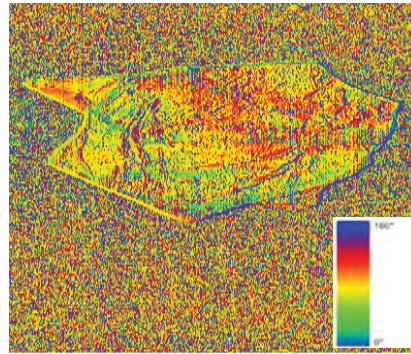


図 2 偏光高速イメージセンサ (フォトン(株))。



複屈折 位相差



複屈折 主軸方位

図 3 実時間複屈折位相差高速マッピング、SiC。結晶は約 2 センチ長。主軸分布の赤い部分はラセン成長で成長した領域

ができる。この方法をSiC結晶に起用して、複屈折の分布と光軸の主軸方向をプロットしたのが図3である。

その結果、光学軸の分布がリアルタイムで測定できるようになった。図3の光学主軸分布で赤くプロットされる部分はラセン成長で成長した領域で、他の成長メカニズムでできた部分より光学主軸が

わずかに違う事も初めて分かった。

### (3) GaN結晶への適用

光学主軸分布測定が他の結晶にも有効であることを示すために、市販のウエハーにも適用した。その結果、一見、単結晶であるように見える結晶でも、多数の異なる結晶主軸方位をもつことが示された。

半導体結晶の評価として、光学主軸分布の観察という方法が有効であるという報告はこれが初めてである。本年度は、この方法の一般化を示すために、GaNや氷の結晶成長にも適用した。



図 3 非公表

図 3 市販 GaN ウエハーの位相分布 (左) と光学主軸分布 (右)。

## 【研究成果の公表状況】

### <原著論文>

- H. Koizumi et al., Crystallization Technique of High-Quality Protein Crystals Controlling Surface Free Energy, in press, Crystal Growth & Design.
- K. Tsukamoto, In-situ observation of crystal growth and the mechanism, Progress in Crystal Growth and Characterization of Materials, 62 (2016) 111-125.
- Y. Tominaga, M. Maruyama, M. Yoshimura, H. Koizumi, M. Tachibana, S. Sugiyama, H. Adachi, K. Tsukamoto, H. Matsumura, K. Takano, S. Murakami, T. Inoue, H.Y. Yoshikawa, Y. Mori, Promotion of protein crystal growth by actively switching crystal growth mode via femtosecond laser ablation, Nature Photonics, 10 (2016) 723-726.

### <国際・国内会議>

- K. Tsukamoto, Optical Characterization of GaN and SiC Crystals by Optical Axis Mapping, ICMaSS2017, Nagoya, Sept. 29- Oct. 1, 2017.
- K. Tsukamoto, In-situ observation of crystal growth and the mechanis, Int. Summer School on Crystal Growth (ISSCG-16), Shiga, Aug. 2015.

図 3 は未発表ですので公開はしないでください。

## 電気自動車のための高効率昇降圧 DC/DC 充電器 High-Efficiency Buck-Boost DC/DC Charger for Electric Vehicles

千住智信・琉球大学・工学部・教授  
 浦崎直光・琉球大学・工学部・教授  
 與那篤史・琉球大学・工学部・助教  
 加藤丈佳・名古屋大学・工学研究科・教授  
 舟橋俊久・名古屋大学・工学研究科・客員教授

### 1. 研究目的

「パリ協定」の発効により我が国においても二酸化炭素排出量の削減が急務である。二酸化炭素の排出量削減が今後求められているのは家庭部門と運輸部門における対応が社会的に求められている。再生可能エネルギーの全量買い取り制度（FIT 制度）により近年では太陽電池価格が大幅に低下しており、再生可能エネルギーによるグリッド・パリティの実現が可能である。他方、太陽電池の電力系統への接続量が大幅に増加していることから、島嶼地域においては太陽光発電設備の系統連系が抑制されており、現状の状況では結果的に低炭素社会の実現が遅滞する恐れがある。そこで本研究では、新規の太陽光発電設備のさらなる導入を達成するためのオフグリッド型の太陽光発電設備を用いた電気自動車蓄電池の高効率充電器について検討する。

### 2. 研究内容と成果

【まえがき】 近年、化石燃料の枯渇や CO<sub>2</sub> 排出量削減の観点から再生可能エネルギーを活用した電源が注目を集めている。特に家庭用の太陽光発電器(PV) は国内で広く導入されており、家庭内におけるエネルギーの自給自足に関心が高まっている。しかし、一般的には PV によって発電された電力は一度 AC 電力に変換されるため、その利用効率は十分高いと言えない。そこで本研究では太陽光発電器(PV)と電気自動車(EV)を有する一般住宅を対象として、オフグリッドシステムで再生可能エネルギーの効率的使用を可能とする電力変換器について検討した。DC/DC 充電器はトランスを有しており、電気的絶縁を行うと共に最大電力点追従(MPPT) 制御を行

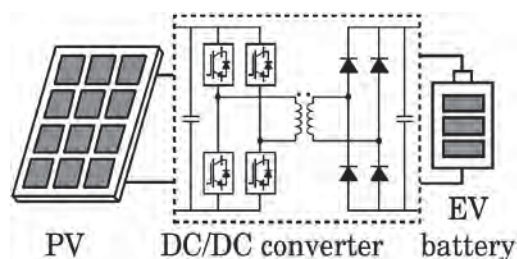


図 1 絶縁型 DCDC コンバータ

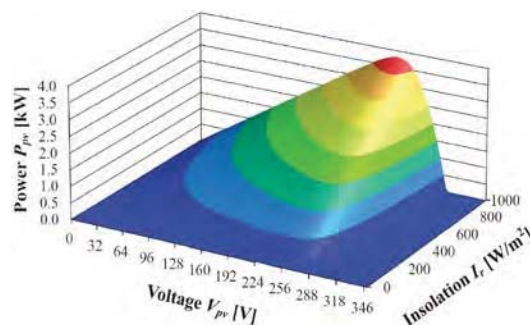


図 2 太陽光出力電力特性



う。

【EV 充電システム】 図 1 に EV 充電用 DC/DC コンバータを示す。DC/DC コンバータはデューティ比制御により PV 発電機の端子電圧を最適点へと調整し、最大発電点追従 (MPPT) 制御を行う。そのため MPPT 制御、電気絶縁および EV 蓄電池への充電が 1 つの変換ステージで可能となり、総合効率の改善が可能である。本制御システムでは最大点探索アルゴリズムとして山登り法を採用した。

【シミュレーション結果および考察】 PV モデルとして PV-TD190MF5 を採用し、定格出力電力を 3.8 kW とした。PV モデルの出力特性を図 2 に示す。シミュレーションにおいて想定した太陽光の日射量を図 3 に示す。図 4 は PV による発電電力と蓄電池への充電電力を示している。図 4 から変換損失が低く抑えられていることが確認でき、最大変換効率は約 98% である。図 5 は PV 端子電圧を示しており、日射量が変化した場合でも電圧が最適点に保たれることが分かる。図 6 にデューティ比が示されており、山登り法によって最適動作点を追従していることが確認できる。

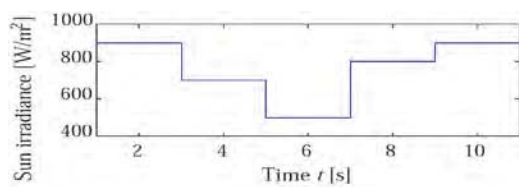


図 3 日射量

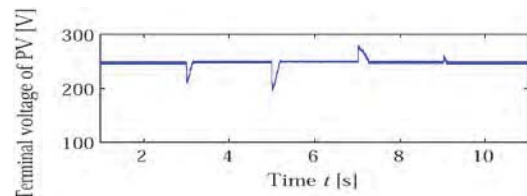


図 5 コンバータ入力電圧

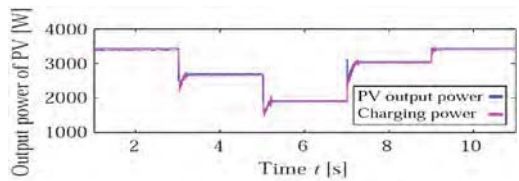


図 4 コンバータ入出力電

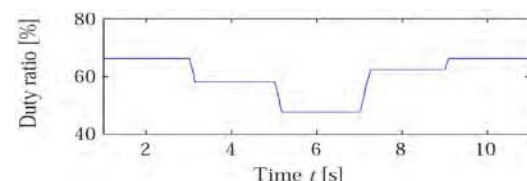


図 6 通流率

【むすび】 本論文では家庭用の太陽光発電機を対象として EV への高効率充電システムを提案した。本研究の利点はシングルステージでの MPPT 制御、電気絶縁および EV 蓄電池への充電を行うことで、電力利用効率を改善することである。今後の課題はワイヤレス給電コイルを適用することで非接触型についての検討を行うことである。

### 【研究成果の公表状況】

<国際・国内会議>

Hidehito Matayoshi, Tomonobu Senjyu, and Toshihisa Funabashi, "High-Efficiency DC/DC Charger for Electric Vehicle," International Conference on Materials and Systems for Sustainability 2017 (ICMaSS2017), 1040, Nagoya, Japan, Sep. 28 - Oct. 2, 2017.

又吉秀仁, 千住智信:「住宅用太陽光発電のための高効率 EV 充電器」, 平成 29 年度電気・情報関係学会九州支部連合大会・講演論文集, 論文番号 03-2P-09, pp.451, Sep. 2017.

<産業財産権>

出願予定はない。

## 小規模電力系統における仮想同期発電機の制御効果

Effectiveness of a virtual synchronous generator in a microgrid

北條昌秀・徳島大学・大学院社会産業理工学研究部・教授

加藤丈佳・名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授

舟橋俊久・名古屋大学・未来材料・システム研究所・客員教授

### 1. 研究目的

一般に交流電力系統では回転形発電機がその慣性エネルギーを背景にして互いに同期を保ちながら、一定の周波数の下、負荷変動に対して時々刻々釣り合った発電電力を供給して電気エネルギーの供給が成立している。これに対し、小規模な電力系統で自然エネルギーを利用した分散電源の割合が増加すると、発電設備群が一定の周波数の下で同期を保つことが困難になることが指摘されている。これに対し、蓄電池システムを導入し、その蓄えられたエネルギーを利用して同期発電機の振る舞いを模擬することで解決を図る、仮想同期発電機という考え方が注目を集めている。しかし、現実には蓄電池の蓄電残量や電力変換器自体の容量にその制御効果も左右されるほか、特に小規模電力系統においては負荷の動的な挙動が安定性に大きな影響を及ぼす。本研究は、蓄電池システム及び対象とする小規模電力系統の諸特性といった現実的制約の下でも有効な仮想同期発電機の制御方式を検討することを目的とする。

### 2. 研究内容と成果

まず、提案制御方式を実装する電力変換器として、図1に示すような蓄電池システムや太陽光発電システム等で使用される系統連系インバータの直流側に簡便なエネルギーバッファを構成する方式について、シミュレーション解析により動作特性の検討を行った。エネルギーバッファとして挿入した大容量キャパシタ  $C_c$  の充放電によって、太陽光発電の出力変動を補償しつつ全体出力の一定制御が可能であることを示すことができた。

また、図1の電力変換回路を接

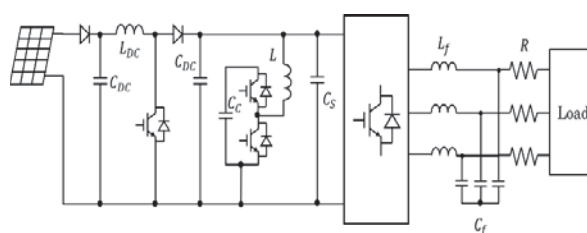


図1 提案制御を実装する電力変換器の構成例

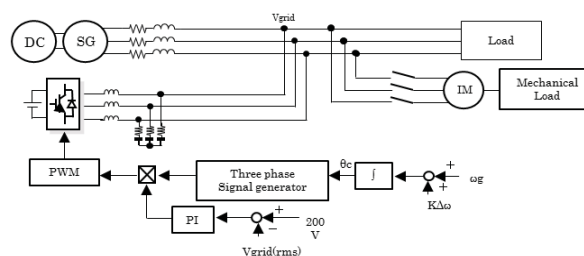


図2 小規模電力系統モデル



続するシステム側については、負荷としてインピーダンス負荷と誘導機負荷を有し、電源は同期発電機とインバータ型分散電源で構成される小規模系統モデルを図2の通り作成し、解析を行った。

表1のシステムパラメータを用いてPSIMによりシミュレーションを行った結果を図2に示す。負荷変動を与えたときの応答例として、周波数変動を図2(a)、電圧変動を図2(b)に示す。提案制御方式は、制御ゲイン $K$ を変更して制御効果を調整することができることに特徴がある。同図では、その制御ゲイン $K$ を変更したときの制御効果の違いを示している。なお、 $K=0$ の場合が現行の方式で、連系点電圧に同期して所定の有効電力のみを出力する場合であり、理論的には、 $K$ を大きくすることで電力系統の需給調整に貢献して周波数変動の抑制制御効果を高めることができると考えられるが、図2(a)に示すように、そのことをシミュレーション解析によって確かめることができた。

今後は、図1と図2の両システムを組み合わせた上で、提案制御の具体的な実装方法とその制御効果について評価を進める計画である。

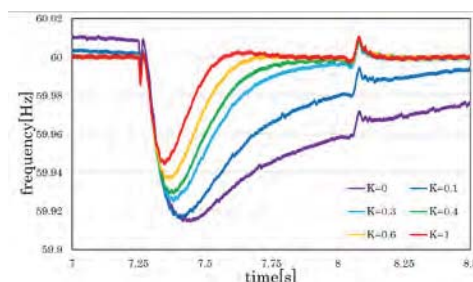
### 【研究成果の公表状況】

<国際・国内会議>

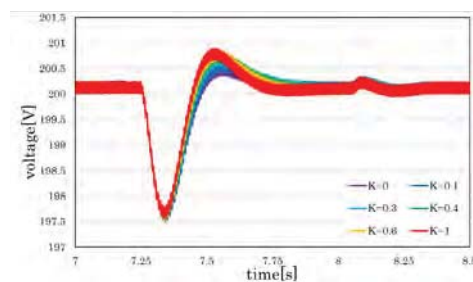
- Hiroyuki Nakagawa, Masahide Hojo, Kenji Yamanaka, Toshihisa Funabashi, Takeyoshi Kato, A Control Method of Voltage Source Inverter with Photovoltaic Generation System and Energy Storage, ICMASS2017, Nagoya University, Sep. 29 – Oct. 1, 2017.
- Hibiki Kawaguchi, Masahide Hojo, Kenji Yamanaka, Toshihisa Funabashi, Takeyoshi Kato, Power Quality Improvement of a Microgrid with Induction Motor by an Inverter Power Supply, ICMASS2017, Nagoya University, Sep. 29 - Oct. 1, 2017.
- 川口響, 北條昌秀, 山中建二, 舟橋俊久, 加藤丈佳, 誘導機負荷を有するマイクログリッドにおけるインバータ電源を用いた電力品質改善, 平成30年電気学会全国大会, 九州大学, 2018年3月14日~16日(発表予定)。

表1 システムパラメータ

System Parameters	base frequency	60[Hz]	Squirrel-cage Induction Machine	Rf(stator)	0.49[Ω]
	ac line-to-line voltage	3phase 200[V]		Lf(stator)	38.1[mH]
Synchronous Generator	DC Machine voltage	200[V]	Load	Rr(rotor)	0.2[Ω]
	Synchronous moment of inertia	0.2[s]		Lr(rotor)	12.8[mH]
Inverter	s Machine pole number	4	Lm(magnetizing)	41[mT]	
	dc voltage source	400[V]	pole	4	
	interconnecting inductance	5.0[mH]	moment of inertia	0.001[s]	
	ac filter capacitor	6[μF]	Mechanical Load	3.655[kW]	
	switching frequency	10[kHz]	Load	25[kW], 0.684[Ω], 1.317[mH]	



(a) 周波数変動の抑制効果



(b) 連系点の電圧変動

図2 シミュレーション結果

## 宇宙線ミュオンを用いた火山の三次元密度構造の解明

Imaging internal density structure of volcanoes by using cosmic-ray muons

宮本 成悟・東京大学・地震研究所・助教)

森島邦博・未来材料システム研究科・特任助教

### 1. 研究目的

火山内部の密度構造は、噴火動態モデルの構築、次なる噴火の様相・規模などを知る上で非常に重要なパラメータとなる。宇宙線ミュオンと原子核乾板を用い、火山の多点ミュオン観測を行った場合、どのような空間分解能・密度精度で火山の三次元構造決定が可能か、シミュレーションを用いて評価することが目的である。

### 2. 研究内容と成果

X線CTと同様に、あらゆる方向から宇宙線ミュオンの減衰を測定した場合に、どのような空間解像度・密度精度で、火山の三次元密度構造を調べられるか、シミュレーションを用いて研究を行った。結果として、総有効面積 10 平米の原子核乾板検出器を 16 点に分割して、静岡県伊東市に位置する大型スコリア丘である大室山に 100 日間設置した場合、クレーター底で期待される溶結岩(密度 2.0g/cm<sup>3</sup> 以上)とスコリア部(1.5g/cm<sup>3</sup>)の密度コントラストが、(20m)<sup>3</sup> の空間分解能で撮像可能であることが分かった(図 1)。この研究結果に基づき、2018-2019 年度に、大室山で実際に総有効面積 10 平米の原子核乾板を 20 点程度に分割して設置することを計画している。その観測を行う前に、2017 年度 3 月末に小型の原子核乾板検出器を設置し、大雑把なバルク密度と背景ノイズ粒子量の測定を行う予定である。

#### 【研究成果の公表状況】

<原著論文> (11pt 明朝体, Times)

なし

<国際・国内会議>

- ・ 宮本成悟, 長原翔伍, 森島邦博, 宇宙線ミュオンによる大室山単成火山の CT 撮像観測計画, 日本写真学会 2017 年度大会, 一橋講堂(学術総合センター), 2017 年 6 月 20 日(火)~24 日(土)
- ・ 宮本成悟, 長原翔伍, 森島邦博, 小山真人, 宇宙線ミュオンによる大室山単成火山の CT 撮像観測計画, ICMASS2017, 名古屋大学, 2017 年 9 月 29 日~10 月 1 日.

<産業財産権>

- ・なし

観測期間100日、総面積10m<sup>2</sup>、試行回数500の例

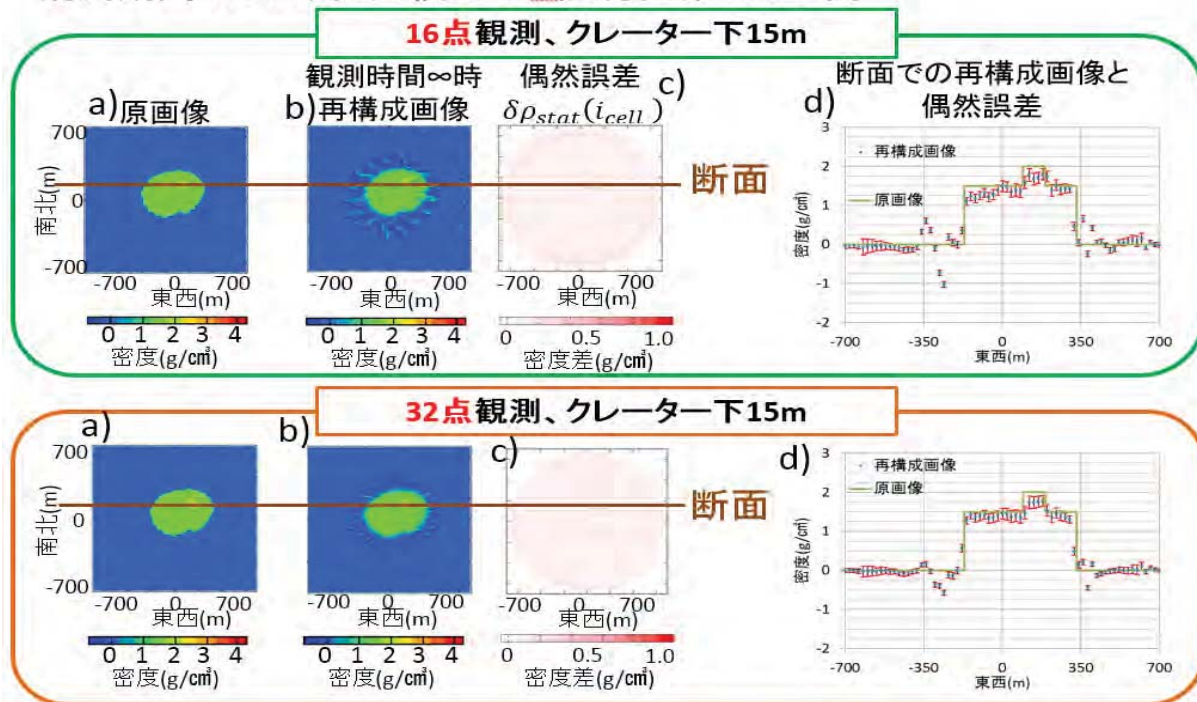


図1：静岡県伊東市に位置する単成火山・スコリア丘である大室山，そのクレーター底 15メートルの断面に，直径 100m 密度 2.0g/cm<sup>3</sup> の溶結岩，その他の山体部分は密度 1.5g/cm<sup>3</sup> を想定し，総有効面積 10 平米をそれぞれ 16/32 分割し，山麓を取り囲むように 100 日間設置した場合に期待される密度精度。上段が 16 点，下段が 32 点の結果。上段下段とも，左から a) 原画像（大室山のクレーター底より下 15m を水平に切った断面，空間分解サイズは(20m)<sup>3</sup>），b) 仮に無限の観測時間を想定した場合に再構成した画像，c) シグナル量から生じる統計誤差を想定した時に各点で生じる誤差，d) 溶結岩を通る線上での原画像と統計誤差付き再構成画像の比較を表す。

(注) 別紙様式 2-1 は A 4 サイズ 1 頁に、別紙様式 2-2 は図表等を含めて A 4 サイズ 2 頁になるようにしてください。

## エマルジョン飛跡検出器の大規模応用に向けた巨大粒子乳剤の開発

R&D of extra-large crystal emulsion detectors for future large-scale experiments

有賀智子・九州大学・基幹教育院・助教  
中村光廣・名古屋大学・未来材料・システム研究所・教授

### 1. 研究目的

写真フィルム的一种であるエマルジョン検出器は、荷電粒子の飛跡を 3 次元的に記録するデバイスであり、粒子検出器の中で最も高い位置精度を有する。その強みを生かし、素粒子物理学の発展に寄与してきたが、近年、宇宙線ミュオンラジオグラフィを用いた火山や遺跡のイメージングなど様々な分野での応用が展開されている。本研究の目的は、大面積の検出器を必要とする将来プロジェクトに向けてエマルジョン検出器の解析スピードを向上させるため、従来の 200 nm より 5-10 倍大きい結晶を含む新乳剤を開発・実用化することである。巨大粒子乳剤を開発することにより、広視野・低倍率での粒子飛跡の認識が可能になり、飛跡の読み出しスピードの大幅な向上が見込まれる。

### 2. 研究内容と成果

エマルジョン検出器の地球科学分野への応用として、宇宙線ミュオンラジオグラフィを用いてスイスの山岳氷河の形態を研究するプロジェクトを行っている[1]。この手法は X 線検査と同様の原理で、対象を透過してきた宇宙線を検出し各方向の検出数から通過した物質質量を見積もるイメージング技術である。この技術を氷河研究に導入し、氷河の浸食モデルを検証することは学術的に興味深く、さらに温暖化などに関連して一般からの関心も高い。このような研究の将来的な応用において広視野での高速で簡便な読み出しを行うことを目的に、これまでに従来の 3-6 倍大きい結晶を含む新乳剤の製造方法の確立に取り組み、飛跡認識のために十分な初期性能を確認してきた[2]。標準乳剤に比べて長期特性に不安定性があるため、保存条件を調整して、実用化に向けた試験的な使用を試みた。Eiger 氷河に対して 3 ヶ所にミュオン検出器を設置して観測を実施中であるが、大粒子乳剤を塗布したエマルジョンフィルムをその検出器の一部に用いた。2017 年に 4 ヶ月間設置後に現像したフィルム中の飛跡を図 1 に示す。自動飛跡認識システムによる読み出しが十分可能な性能を保持していることを確認し、今後の応用に向けての可能性を開いた。

また、新たなタイプの検出器として、平板結晶の製造に取り組み始めた。このタイプでは、材料となる銀を少なくして大サイズ化できることから、大サイズ結晶の製造手法の簡便化および長期特性の不安定性の改善が見込まれる。粒子サイズが 10 倍の乳剤を実用化することにより、エマルジョン検出器の解析スピードがおおよそ 100 倍向上する可能性が開く。大面積を高速に解析できることにより、対象とする大構造物を多方向から同時に観測して 3 次元的イメージングに挑戦することや、エマルジョンフィルムを交換しつつ長期間のモニタリングを行うことが可能になる。そのような応用研究を進展させる技術になると考えている。



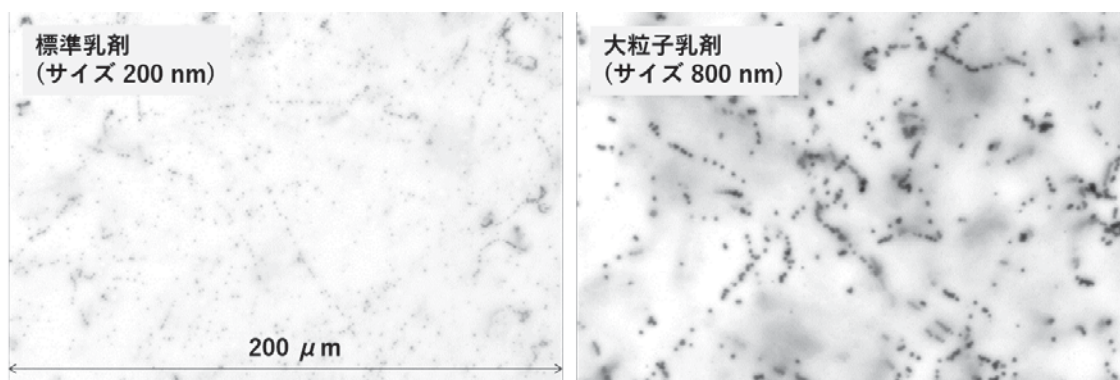


図 1： Eiger 氷河観測のために設置した検出器に記録された粒子の飛跡（左：標準乳剤、右：開発した大粒子乳剤）。

[1] R. Nishiyama, A. Ariga, T. Ariga, S. Kaser, A. Lechmann, D. Mair, P. Scampoli, M. Vladymyrov, A. Ereditato, F. Schlunegger, First measurement of ice-bedrock interface of alpine glaciers by cosmic muon radiography, *Geophysical Research Letters* 55933 (2017).

[2] T. Ariga, A. Ariga, K. Kuwabara, K. Morishima, M. Moto, A. Nishio, P. Scampoli, M. Vladymyrov, Extra-large crystal emulsion detectors for future large-scale experiments, *JINST* 11 (2016) P03003.

### 【研究成果の公表状況】

#### <国際・国内会議>

・有賀 智子, 西山竜一, 有賀昭貴, 他 Eiger-mu GT collaboration, 宇宙線ミュオンラジオグラフィを用いたスイス山岳氷河のイメージング, 日本物理学会, 2017.09.

・A. Ariga and the Eiger-mu GT collaboration, First results from glacier muon radiography, International Conference on Materials and Systems for Sustainability 2017, 2017.09.

・有賀 智子, 西山 竜一, 有賀 昭貴, アルプス山岳氷河のイメージングおよび新タイプミュオン検出器の研究開発, 画像関連学会連合会 第4回秋季大会, 2017.12.