

# 令和5年度大阪大学工業会賞 受賞者研究紹介

- [研究表題](#)をクリックすると各研究紹介記事に移動します
- 各紹介記事上部の「大阪大学工業会賞」をクリックすると一覧に戻ります

機械工学専攻 機械工学コース 知能機械システム学領域 東森研究室

**市倉ひなの** [布状柔軟体の適応的変形特性を活用した In-Hand マニピュレーション](#)

生物学専攻 生物学コース 高分子バイオテクノロジー領域 内山研究室

**岡田 梨櫻** [次世代型抗体医薬品の合理的安定性予測法の開発](#)

電気電子情報通信工学専攻 量子情報エレクトロニクスコース 有機エレクトロニクス領域 尾崎研究室

**上藤 大和** [強誘電性ネマティック液晶の基板界面における分極状態に関する研究](#)

物理学系専攻 精密工学コース 超精密加工領域 山内研究室

**萱尾 澄人** [環境調和性に優れた高能率 GaN 表面研磨技術の開発](#)

環境エネルギー工学専攻 エネルギー量子工学コース 環境エネルギー材料工学領域 牟田研究室

**小杉 静花** [Cu 部分置換によるコバルトフェライト \(CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>\) の磁歪定数の向上](#)

環境エネルギー工学専攻 環境工学コース 都市エネルギーシステム領域 下田研究室

**正野 景大** [建築物側面の太陽光発電ポテンシャルの研究 —地域規模かつ1時間単位での分析—](#)

マテリアル生産科学専攻 マテリアル科学コース 材料設計・プロセス工学領域 小泉研究室

**瀬口 侑右** [データ同化を融合させた Phase-Field 法による共晶反応での固液界面物性の推定](#)

マテリアル生産科学専攻 生産科学コース 微細接合工学講座 西川研究室

**新田 隼也** [はんだ/非反応性ナノ粒子界面の理解と高強度はんだ接合部の開発](#)

ビジネスエンジニアリング専攻 産学官共創コース アルパック未来技術協働研究所/倉敷研究室

**堀内宏太朗** [メタサーフェスを用いた円偏光発光微細素子および円偏光を用いた癌検出技術に関する研究](#)

電気電子情報通信工学専攻 情報通信工学コース フォトニックネットワーク工学領域 丸田研究室

**松本 啓吾** [セルラーシステム向け情報源通信路深層結合符号化器の設計および実装に関する研究](#)

地球総合工学専攻 建築工学コース コンクリート系構造学領域 眞田研究室

**村田 晃康** [構造実験と数値解析に基づく CLT 壁充填型 RC 架構の耐震性能評価](#)

応用化学専攻 分子創成化学コース 有機金属化学領域 生越研究室

**水取 宥敬** [温室効果ガスの新たな活用法を拓く異種二核金属錯体の創出](#)

機械工学専攻 機械工学コース 材料評価工学領域 林研究室

**山崎 惇史** [金属三次元積層造形における表層付近欠陥検出に関する研究](#)

応用化学専攻 分子創成化学コース 機能有機化学領域 鳶巣研究室

**山村 志悟** [\*l\*-アリアルピラゾールを用いたアラインのオリゴマー化](#)

地球総合工学専攻 社会基盤工学コース 社会基盤マネジメント学領域 貝戸研究室

**四井 陽貴** [局所的な振動を考慮した多点振動計測による高速鉄道橋梁の動的挙動解析と加速度基準の検証](#)

# 布状柔軟体の適応的変形特性を活用した In-Hand マニピュレーション

機械工学専攻 機械工学コース  
東森研究室 市倉ひなの

## 1. In-Hand マニピュレーション

ロボットを用いた自動化技術として、単純な開閉グリップと汎用アームを組み合わせた自動化システムが産業分野で広く普及している。しかしながら、例えば、部品のはめ込みといったタスクにおいては、ハンドの姿勢調整や持ち替え動作が必要となり、操作計画が複雑になることが懸案となる。これに対処するために、ハンド内で対象物の位置や姿勢を制御する、In-Hand マニピュレーションと呼ばれる研究が注目されている（図1）。持ち替え動作などの手間を削減できるため、生産性の向上や、適用可能なタスクの増加が期待されている。ただし、In-Hand マニピュレーションは、対象物の形状や、変化しつづける位置姿勢にハンドの指姿勢を適応せねばならず、難易度は高い。例えば、ヒトのような多指多関節ハンドを用いる場合（図1）、各関節を制御することで、多様な接触形態を生成できるが、それらの操作計画は対象物の形状ごとに構築する必要がある。また、回転操作など連続的な操作を行う場合、適宜指の再配置など、複雑な制御が必要となる。

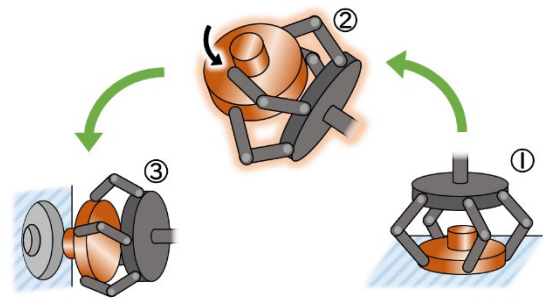
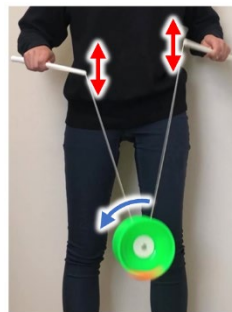


図1：In-Hand マニピュレーションで期待されるタスク例。

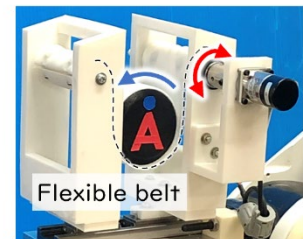
## 2. 布状柔軟体の活用

著者らは、ディアボロと呼ばれるコマを紐で操作するジャグリング（図2(a)）に着目し、この技術が In-Hand マニピュレーションにおいて要となる、対象物の安定保持と並進・回転運動の生成を同時に遂行していることを見出した。この技術は、紐の適応的変形によってコマを安定に保持しながら、紐端点への振動入力によってコマの回転運動を生成している。

この技術から着想を得て、著者らは、図2(b)に示すような、柔軟ベルトの高適応性を活用して柱状対象物の回転操作を行う2次元 In-Hand マニピュレーション手法[1]を提案した。この手法は、柔軟ベルトをグリップハンドの指先に取り付け、指先を振動させることで、ベルトとベルト上の対象物との間に滑りを生成し、対象物の回転運動を生成する。ベルトが適応的に変形して対象物を安定に保持することができるため、センサー等の複雑な機構を必要とせず、簡単な制御で回転運動を生成可能となる。また、本手法は、多様な形状・サイズ・質量をもった対象物に対し、同一の操作入力で回転運動を生成可能である。以上のように、布状柔軟体は、その高適応性により、In-Hand マニピュレーションにおいて優れた簡便性、高い汎用性を引き出すことができる。



(a)



(b)

図2：先行研究。

(a) ディアボロジャグリング。

(b) ベルトを用いた2次元 In-Hand マニピュレーション。

### 3. Ball-on-Cloth システム

操作性向上のため、前章で述べた操作手法を3次元問題へ拡張することを試みる。図3(a)に示すように、多指ハンドの指先に布を取り付け、布の上で対象物を操作することを考える。前章で述べた、柔軟ベルトを用いた回転操作手法は、安定保持と回転運動の生成は2次元平面内でのみ実現される。一方、本手法は、布が3次的に変形することで、対象物が布上で3次的に安定に保持される。なおかつ、指先への変位入力を適切に与えることで、布-対象物間に転がりや滑りを生じながら、多様な軸まわりの回転運動を生成することが期待される。

ここで、対象物を球とし、転がりを用いた回転操作手法に注目してみよう。転がりを用いた回転操作手法の例として、剛体プレートに挟まれた球の位置姿勢を、プレートの転がりによって制御する、Ball-Plate 問題が盛んに議論されている。この問題におけるアプローチの一つとして、転がり軌道を計画し、位置/姿勢を操作する手法が提案されている[2]。これに対し、布保持点への変位入力を与え、布上の球を転がり

によって操作する「Ball-on-Cloth 問題」について考えよう。Ball-on-Cloth 問題は、布の複雑な変形、および布-球の面状接触により、布への入力に対する球の姿勢変化の関係が複雑になる。しかしながら、Ball-Plate 問題における球の転がり軌道を布上で再現することができれば、Ball-Plate 問題におけるアプローチを適用することができる。このことから、Ball-on-Cloth 問題における主な問いは、「Ball-on-Cloth 問題における転がり軌道をどのように表すか?」「布保持点への変位入力と球の転がり軌道との間に発生する順/逆問題をどのように解くか?」といった問題に帰着する。

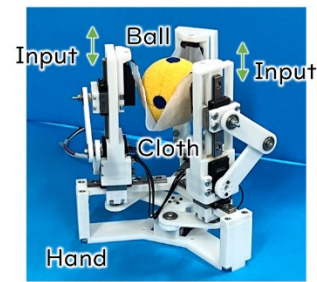
以上を踏まえ、著者らは、布の形状や転がりについての単純化モデルを定義したのち、転がり軌道を介して球の回転運動を生成する In-Hand マニピュレーション手法を提案した[3]。図3(b)に、転がり軌道として、円軌道を与えたときの実機実験の結果について示す。Ball-Plate 問題における経路計画法[2]において、円軌道上を球が転がると、球が見かけの鉛直軸まわりに回転することが確認されている。図3(b)より、Ball-on-Cloth システムにおいても、円軌道を描くような布保持点への入力を与えると、鉛直な軸まわりの回転運動が生成していることがわかる。このように、Ball-Plate 問題と Ball-on-Cloth 問題において球の姿勢変化に定性的な一致が見られ、転がり軌道を介した In-Hand マニピュレーションの実現性が確認される。

### 4. まとめ

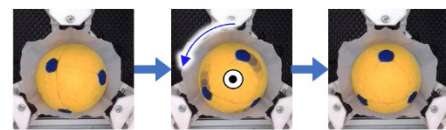
本研究では、柔軟布を用いた In-Hand マニピュレーション手法について提案した。今後、位置姿勢に対する操作手法の拡張だけでなく、非球状対象物などに対する一般化問題へと拡張していく予定である。布状柔軟体の高適応性を活用した、多様なマニピュレーション手法の構築を目指す。

### 参考文献

- [1] H. Ichikura and M. Higashimori: "In-hand manipulation inspired by diabolo juggling," IEEE Robot. Automat. Lett., vol. 7, no. 4, pp. 12227-12234, 2022.
- [2] M. Svinin and S. Hosoe: "Motion planning algorithms for a rolling sphere with limited contact area," IEEE Trans. Robot., vol. 24, issue 3, pp. 612-625, 2008.
- [3] H. Ichikura and M. Higashimori: "In-hand rolling manipulation based on ball-on-cloth system," Proc. of the IEEE Int. Conf. on Robotics and Automation, 2024 (accepted).



(a)



(b)

図3: 柔軟布を用いた3次元In-Hand マニピュレーション。  
(a) 3本指ロボットハンド。  
(b) 鉛直な軸まわりの回転操作。

# 次世代型抗体医薬品の合理的安定性予測法の開発

生物工学専攻 生物工学コース  
高分子バイオテクノロジー領域  
内山研究室 岡田 梨櫻

## 1. 研究背景

治療用抗体は、その高い安全性と有効性から、近年のバイオ医薬品開発において脚光を浴びている。治療用抗体は低分子医薬品に比べ、分子量が大きく構造も複雑である。そのため、抗体の安定性は適切な品質評価において重要であり、凝集傾向をモニターすることが求められている。この凝集体は患者の免疫反応に影響を与えると知られている[1]。これまでの品質評価では、静置試験や攪拌試験を行い、条件ごとに凝集傾向を個別に評価するという経験的なアプローチがとられてきた。

一方、これまでの研究により、凝集を引き起こす個々の現象に

ついての理解が進んできた。凝集原因としては、分子の分散性低下、構造変化、界面での変性が挙げられる。それぞれは物理化学的パラメータで示される安定性に関連し、第2ビリアル係数  $B_{22}$  で示されるバルク溶液中の抗体の分散性を反映する「コロイド安定性」、変性中点温度  $T_m$  三次で示される構造の安定性を反映する「構造安定性」、吸着量  $S$  で示される容器などの表面と接触したときの安定性を反映する「界面安定性」の3つが想定されている[2-4]。特に界面安定性は、固体表面への抗体の吸着量で評価できることが示唆されており、本研究室で凝集発生の原因の1つとして注目している[4]。しかしながら、吸着量と凝集発生傾向の定量的な相関解析は未だ明らかになっていない。さらに、これらの3つの因子が凝集傾向にどのように、またどの程度寄与しているのかについては、包括的な理解が得られていない。

本研究では、凝集因子として構造安定性・コロイド安定性に加え、本研究室で凝集発生の原因の1つとして注目している界面安定性の3つに着目し、これらの凝集傾向性への寄与度を明らかにした。本研究は異なる抗体の凝集傾向の違いを物理化学的パラメータに基づいて解釈できる可能性を示唆しており、安定性試験を行うことなく製剤の最適化を行える可能性がある。今後、新たな処方条件の検討・提案アプローチに繋がることを期待される。

## 2. 実験方法

ペプチドリンカーを含まない抗体 Ab-1 と含む抗体 Ab-2 を、pH、塩濃度の組み合わせで製剤化した。製剤化条件下での2つの抗体の物理化学的パラメータは、動的光散乱法（コロイド安定性）、ナノ示差走査蛍光光度測定（構造安定性）、および本研究で確立した吸着定量法（界面安定性）によって評価した。一方、凝集傾向も評価した。振とうストレスを2種類の異なる製剤下で2つの抗体に加え、ストレスによって減少するモノマーの残存率をサイズ排除クロマトグラフィーで評価した。最後に、物理化学的パラメータを入力変数、凝集傾向を出力変数として相関分析および予測モデルの作成を行った。

## 3. 物理化学的パラメータの取得

コロイド安定性については、pHが高いほど低い  $B_{22}$  値を示したことから、コロイド安定性は高pHの方が高いといえる。また、いずれの製剤条件においても、より高い  $B_{22}$  値を示す傾向にあった Ab-1 は Ab-2 よりもコロイド安定性が高いといえる。一方、Ab-1 も Ab-2 も pHが高いほど高い  $T_m$  値を示したことから、両者

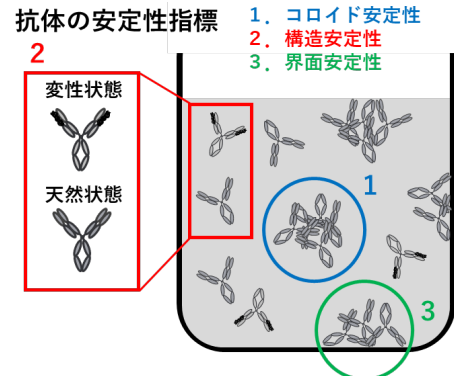


図1: 3つの安定性指標

の構造安定性はpHが高いほど高いといえる。すべてのpHおよび塩濃度条件において、より高い $T_m$ 値を示したAb-2の方が高い構造安定性を持つことが示唆される。界面安定性に関しては、pH、塩濃度が高いほど吸着量は増加する傾向にあり、さらにAb-2はAb-1よりも吸着量が多かった。モノマー回収率はpH依存的に増加し、塩濃度が高くなるとわずかに低下する傾向がみられた。モノマー回収率はAb-1の方がAb-2より高いので、Ab-2は攪拌ストレスに対してより不安定であるといえる。

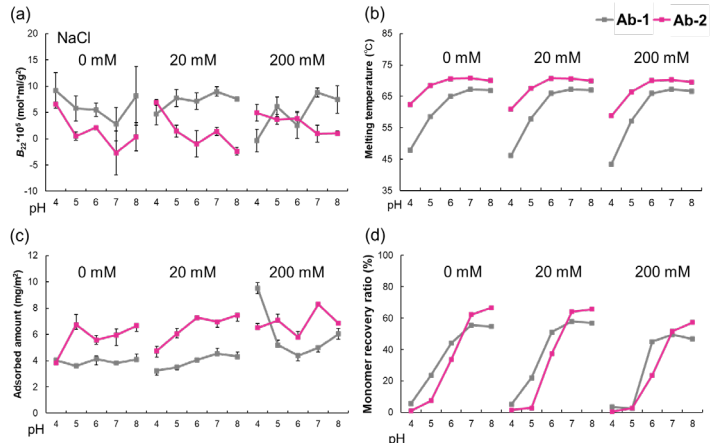


図2：(a)第2ピリアル係数【コロイド安定性】、(b)変性中点温度【構造安定性】、(c)吸着量【界面安定性】、(d)振とう条件におけるモノマー残存率【凝集傾向性】

以上より、モノマー回収率の良い処方条件を1つの物理化学的パラメータの評価結果から導くことは難しい。凝集を抑える処方条件決定のために、1つの安定性に注目して最適化するだけでは不十分であるといえる。各物理化学的パラメータが組み合わさって凝集形成に寄与している可能性が示唆された。

#### 4. 凝集傾向性に対する物理化学的パラメータの寄与度解析のための予測モデル作成

凝集傾向と物理化学パラメータの関係を定量的に確認するために、多変量解析を行った。最小二乗モデル分析を行ったところ図3の結果が得られ、3つの物理化学的パラメータで振とうによるモノマー回収率を予測できることが示唆された。各パラメータの寄与度を比較すると、いずれの抗体においても $T_m > S \geq B_{22}$ の順であり、構造安定性が凝集傾向に最も寄与していることを示唆している。Ab-1の各パラメータの寄与率は、表aの通りであった。このことは、 $B_{22}$ が高く、 $T_m$ が高く、吸着が低い条件では凝集が起りにくいことを示している。これは、 $B_{22}$ が高いと分子間の分散性が高く、 $T_m$ が高いと構造安定性が高く、吸着が低いと界面変性が起りにくいいため凝集が起りにくいという説明と一致する。一方、Ab-2の場合の寄与は、表bの通りであった。これは、 $B_{22}$ 値が低く、 $T_m$ 値が高く、吸着が高い条件下では凝集が起りにくいことを示している。この結果は一般的に説明される凝集抑制とは逆の働きを示しており、凝集が抑制される具体的な状況を説明する結果にはなっていない。以上のことから、pHによらず高い $T_m$ を維持していたAb-2の凝集傾向は、コロイド安定性の増大と界面安定性の不安定化により悪化したと考えられる。

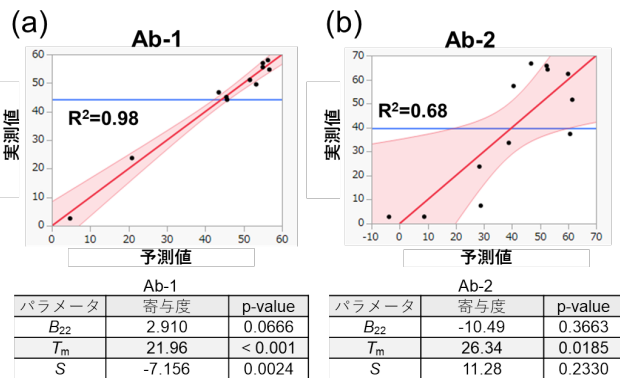


図3：(a)Ab-1と(b)Ab-2の予測可能性および凝集傾向に対する各パラメータの寄与度

Ab-1			Ab-2		
パラメータ	寄与度	p-value	パラメータ	寄与度	p-value
$B_{22}$	2.910	0.0666	$B_{22}$	-10.49	0.3663
$T_m$	21.96	< 0.001	$T_m$	26.34	0.0185
S	-7.156	0.0024	S	11.28	0.2330

#### 5. まとめと展望

本研究では、各抗体の物理化学的パラメータを用いて凝集傾向を予測することに成功し、界面安定性を含めた3つの安定性パラメータを総合的に評価することが重要であることが示された。いずれの抗体においても、凝集傾向に対して主な影響力を持つパラメータは構造安定性であった。一方で、パラメータの寄与は抗体の種類によって異なっていた。振とうストレスによる凝集傾向の違いを物理化学的パラメータに基づいて解釈できることを示唆しており、安定性試験を行うことなく製剤条件を最適化する戦略に可能性を与える。

[1] Moussa *et al.*, *J. Pharm. Sci.*, 2016. [2] Kim *et al.*, *J. Pharm. Investig.*, 2022. [3] Oyama H, *et al.*, *J Pharm Sci.*, 2020. [4] Yoneda S, Okada R *et al.*, *J Pharm Sci.*, 2021.

# 強誘電性ネマティック液晶の基板界面における分極状態に関する研究

電気電子情報通信工学専攻 量子情報エレクトロニクスコース  
有機エレクトロニクス領域 尾崎研究室 上藤 大和

## 1. 緒言

液晶とは液相と固相間に存在し、液相の流動性と固相の異方性を兼ね備える相状態である。

一般的に、強誘電性は対称性の低い特殊な結晶構造においてのみ発現し、流動性を有する液相や気相では発現しないと考えられてきた。しかし、2017年に液晶状態かつ対称性の高い分子配列の相状態において強誘電性が発現する**強誘電性ネマティック液晶** (図1) が報告され、基礎的にも応用的にも高い注目を集めている<sup>[1,2]</sup>。本来、一般的な液晶は常誘電性のため、電界による分子配列の変化は誘電率異方性に基いている。一方、強誘電性ネマティック液晶はその特性として、数 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ の自発分極密度や10000以上の比誘電率異方性を有しているため、自発分極と電界の相互作用に基づくトルクにより分子配列が変化する。そのため、従来の液晶デバイスに比べて3,4桁速い応答や低電圧駆動が期待でき、それらを活かした超低消費電力デバイスや、液晶性と強誘電性を兼ね備えたフレキシブルセンサなど、種々の応用が期待される。

流動体の液晶をデバイス応用する際には何らかの容器に封入する必要があり、一般的に2枚のガラス基板間に封入される。この際の液晶-ガラス基板の界面における液晶の配向状態は、セル全体の液晶の配向状態を決定し、素子の光学特性や電気特性に多大な影響を与える。そのため、デバイス応用には、図2に示すような基板への配向処理を行い、バルク内の分子配向・自発分極の配列を意図的に制御した分極ドメイン構造を設計することが必須である。しかし、本液晶材料は配向基板上での分子配向が一般的な液晶材料と全く異なっており、分極状態および配向処理効果などにおいて未解明な要素が数多く存在している<sup>[3]</sup>。

先行研究において<sup>[4,5]</sup>、ラビングしたポリイミド膜上では分子長軸方向に存在する分極のプラス側が界面で方向を揃えて固定されるという性質が明らかとなったが、その配向の直接的要因は未だ未解明である。

そのため、本研究では基板界面での分極分布解明および普遍的な配向メカニズムの解明を研究目標とし、界面でのパラメータである**プレチルト** (液晶分子の立ち上がり) および**配向膜の極性**に着目し、それらが本液晶材料の界面での分極状態に及ぼす効果について調査した。

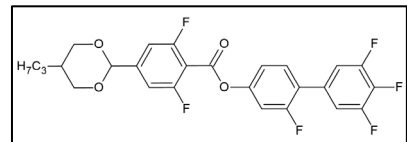


図1：強誘電性ネマティック液晶(DIO)

## 2. 基板界面の分極状態に及ぼすプレチルトの効果

本研究で用いた一般的な配向処理方法とプレチルトについて図2に示す。それぞれ配向処理を施した2枚のガラス基板を数 $\mu\text{m}$ の間隔を空けて貼り合わせ、そのセル中に液晶を封入し、偏光顕微鏡を用いて配向状態を観察する。ここで基板界面の液晶分子の立ち上がりを**プレチルト**という。光配向方法においても、非偏光を斜めから照射することでプレチルトを付与することが可能であり、本研究では、図2に示した2種類の配向方法で、それぞれプレチルトを付与したセルと付与しないセルを作製し、これらのセルに光学解析および電界応答観察を行うことで配向状態および分極状態を調査し、基板界面の分極状態に及ぼすプレチルトの効果を評価した。

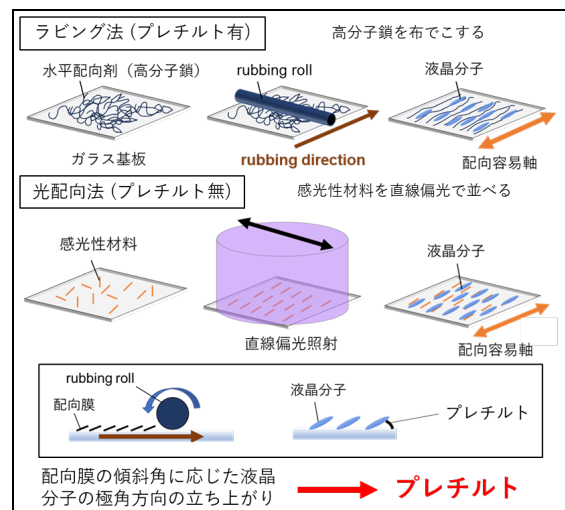


図2：本研究で用いた配向処理方法とプレチルト

結果のまとめを図3に示す。それぞれ実験を行うことで、プレチルトがある場合には、基板界面において分極方向が単一方向に固定され、プレチルトがない場合には基板界面において分極方向が単一方向に固定されないこと、すなわちプレチルトの有無によって界面での分極方向が単一方向に固定されるか否かが定まることを明らかにした。これは、プレチルトの存在により基板界面での極角方向に対する対称性が破れ、界面での分極方向の向きによって系全体のエネルギーに差が生じることが一つの要因であると考えられる。

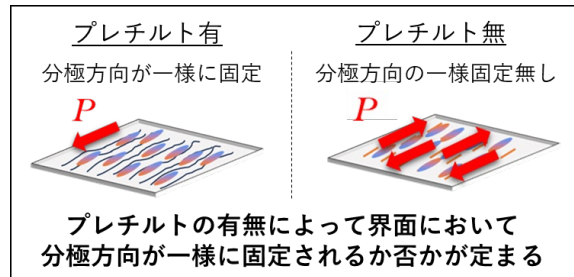


図3：基板界面の分極状態に及ぼすプレチルトの効果

また、ラビング処理時には静電気など電氣的な影響も同時に付与されることが知られているが、この電氣的効果は界面の分極状態にほとんど影響を及ぼさないことも明らかにした。

### 3. 基板界面の分極状態に及ぼす配向膜の極性の効果

先行研究では、分極方向のプラス側が界面で方向を揃えて固定されることを明らかにしたが<sup>[4]</sup>、ここでは分極方向のマイナス側も界面で方向を揃えて固定される場合もあるのではないかと考え、極性の異なる配向剤を用いることでその効果を調査した。プレチルトが存在する場合、界面において分極方向は単一方向に揃って固定される。そのため、本研究では図4に示すアルキル系、フッ素系の垂直配向剤であるシランカップリング剤を使用し、光学解析および電界応答の観察を行った。その結果のまとめを図4に示す。配向膜がアルキル系である場合には分極のプラス側が、配向膜がフッ素系である場合には分極のマイナス側が界面で方向を揃えて固定されること、すなわち、配向膜の極性によって界面で方向を揃えて固定される分極方向が変化することを明らかにした。これは、図1に示す強誘電性ネマティック液晶の液晶分子とそれぞれの配向膜との親和性が一つの要因であると考えられる。

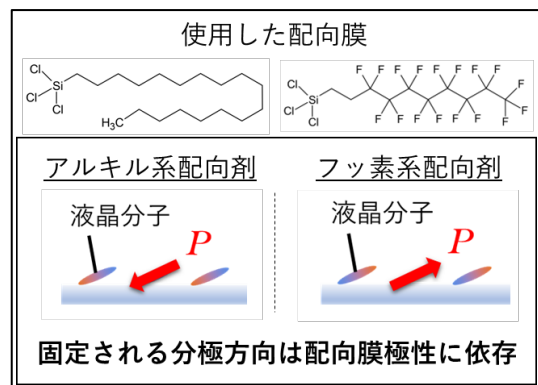


図4：基板界面の分極状態に及ぼす配向膜の極性の効果

また、プレチルトの効果は配向膜の極性に依存せず、プレチルトの有無のみで、界面において分極が方向を揃えて固定されることを明らかにした。さらに、以上の結果の応用として、上下基板で極性の異なる垂直配向剤を成膜し、バルク配向が界面の配向規制力を強く感じるセル厚が薄いセルを作製することで、外場を印加しない強誘電性ネマティック液晶の垂直方向への一様配向を世界で初めて実証した。

### 4. 結言

強誘電性ネマティック液晶のデバイス応用においてバルク中の分極制御は重要であり、特に基板界面での配向処理は必須である。本研究において、基板界面の分極状態に及ぼすプレチルトおよび配向膜の極性の効果を考慮した普遍的な配向メカニズムを明らかにし、外場を印加しない強誘電性ネマティック液晶の垂直方向への一様配向を実証した。今後、より様々な効果を考慮することで、強誘電性ネマティック液晶特有の性質に基づく新たな配向手法の確立・バルク中の分極制御を可能にするものであると考えられる。これは今後の強誘電性ネマティック液晶の応用に向けた基礎を築くことにつながると考えられる。

#### 参考文献

- [1] H. Nishikawa *et al.*, *Adv. Mater.*, **29**, 1702354 (2017).
- [2] R. J. Mandle *et al.*, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **19**, 11429 (2017).
- [3] F. Caimi *et al.*, *Soft Matter*, **17**, 8130 (2021).
- [4] H. Kamifuji *et al.*, *Appl. Phys. Express*, **16**, 071003 (2023).
- [5] J.-S. Yu *et al.*, *Soft Matter*, **19**, 2446 (2023).

# 環境調和性に優れた 高能率 GaN 表面研磨技術の開発

物理学系専攻 精密工学コース  
超精密加工領域 山内研究室 萱尾 澄人

## 1. はじめに

2050年カーボンニュートラルの実現に向けて、電気エネルギーの高効率利用は大きな課題であり、これに対してSiに代わる次世代半導体材料として窒化ガリウム (GaN) が注目されている。しかし、GaNの優れた物性を十分に活かしたデバイスを作製するためには、幾何学的、結晶学的に高度に規定され、原子レベルで制御された表面を持つ GaN 基板が必要となる。そこで、我々は新たな研磨技術として、触媒表面基準エッチング (CARE) 法<sup>[1]</sup>を提案している。本手法では、純水中で白金などの触媒を成膜した研磨パッド (触媒パッド) に GaN 基板を接触させ、相対運動させる (図1)。

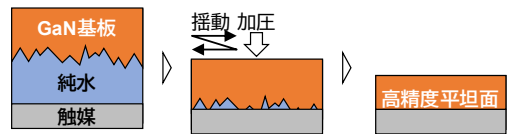


図1: CARE 法の概念図

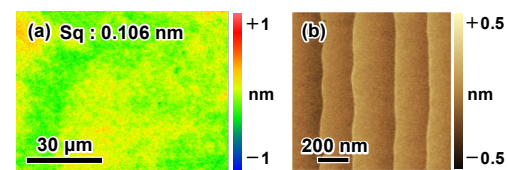


図2: GaN (0001) on-axis 基板の CARE 加工後表面; (a)白色干渉計像, (b)原子間力顕微鏡像

触媒が高頻度に接触する基板の凸部が選択的にエッチング

されることで、高精度な平坦化を実現する。CARE 法では水による化学的なエッチングのみで加工が進行するため、原理的に基板に機械的ダメージが導入されない。また、強烈な薬液や砥粒が不要なため、極めて環境負荷の小さい研磨技術であるといえる。CARE 法を GaN 基板に適用すると高精度平坦面を得ることができ (図2 (a)), さらに、原子間力顕微鏡 (AFM) 像 (図2 (b)) が示すような、ステップテラス構造を有する平滑面を創成できる。これは CARE 加工においてステップ端原子が選択的にエッチングされたことを示している。一方で、加工起点がステップ端に限定されるため、GaNの加工速度は1 nm/h程度に留まっております、加工速度の向上が課題となっている。

## 2. 光電気化学反応援用型 CARE 法による GaN 基板の高能率加工

上記のような背景のもと CARE 法の高効率化を目的として、光電気化学 (PEC) 反応を援用した PEC 反応援用型 CARE (PEC-CARE) 法を開発した。PEC 反応は加工液中で GaN 表面にそのバンドギャップ以上のエネルギーを持つ紫外光を照射したときに生成される正孔が表面を酸化させる反応である<sup>[2]</sup>。PEC-CARE 法では PEC 反応を用いて GaN 基板の最表面原子層の一部を酸素化し、酸素化領域を CARE 加工で即座に除去するという過程を繰り返す。

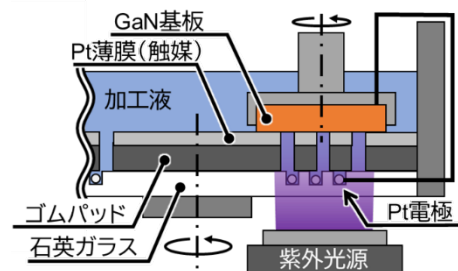


図3: PEC-CARE 加工装置

なお、酸化反応で分厚い酸化膜をつくり、それを除去する他の既存技術と区別して、本記事では PEC-CARE 法の原子スケールの酸化を最表面層の酸素化処理と表記している。酸素化領域が除去された後の表面には微小構造が形成され、この構造の端部が擬似的なステップ端となり加工起点としてはたらくことで加工速度が向上すると考えられる。PEC-CARE 加工装置を図3に示す。基板表面への紫外光照射を可能にするために、触媒パッドに貫通穴を設けた。光源には水銀キセノンランプを使用し、照度は70 mW/cm<sup>2</sup> (@波長245 nm)とした。また、酸素化領域の自然溶解を防ぐために加工液には中性の緩衝液を用いた。この装置を用いると、GaNの加工速度は720 nm/hまで飛躍的に増大し、GaN基板の高速加工を実現できた<sup>[3]</sup>。このように、加工中に基板表面へ紫外光を照射するだけで加工速度を向上させることができ、強烈な酸化剤などの薬液を使用しないため、PEC-CARE 法は CARE 法と同様に環境調和性に優れた研磨技術であるといえる。さらに、加工後表面には CARE 加工後表面と同様にステップテラス構造が形成されており、PEC-CARE 法で高速・高精度に GaN 基板を加工できることが明らかとなった<sup>[4]</sup>。



### 3. PEC-CARE 加工中の PEC 反応の挙動

CARE 法に PEC 反応を援用することで、加工速度と精度を両立した加工系を実現した。これは PEC 反応による酸化化が、単に CARE 法の加工速度を向上させるだけでなく、平滑化に積極的に寄与することを示している。

そこで、原子スケールの表面観察を通して PEC-CARE 加工における PEC 反応の挙動を調査した。まず、PEC-CARE 加工中の PEC 反応による酸化化処理の効果を評価するために、短時間、紫外光を照射した表面に CARE 加工を施し、AFM を用いて表面を観察した。

その結果、紫外光照射と CARE 加工によって 1 原子層深さのピットがテラス全体に導入され (図 4 (a)), 追加の CARE 加工によってピット径が拡大し (図 4 (b)-(c)), CARE 加工による通常のステップ端のエッチングに加えてテラス上でも材料除去が進行した。この観察結果から、酸化化処理と CARE 加工によって形成されたピットの端部が加工起点として作用することで、PEC-CARE 法の加工速度が増大していることが明らかとなった<sup>[4]</sup>。続いて、紫外光を繰り返し照射したときの基板表面を AFM で観察した。GaN 基板表面に短時間の紫外光照射による酸化化処理と硝酸水溶液への浸漬による酸化化領域の除去からなる加工サイクルを 3 回施した。各サイクル後の表面を図 5 (a)-(c) に示す。1 度目の照射で 1 原子層深さのピットがテラス全体に形成され、追加の照射で新規ピットの導入やピットの深さ方向への拡大はほとんど生じず、ピットのテラス水平方向への拡大が支配的であった。また、図 5 (b) より、加工によってステップ端が白点線から白実線に移動していることが確認され、PEC 反応によってステップ端のエッチングが進行したことが示唆された。これらの観察結果は、PEC 反応はピットの端部やステップ端などを選択的に酸化化する特性を持ち、CARE 法と同様のステップフロー型の反応であることを示しており、この特性が PEC-CARE 法の高速高精度加工の実現に寄与していると結論付けられた<sup>[4]</sup>。

### 4. 結言

本研究では PEC-CARE 法を提案し、原子スケールの平滑面を 720 nm/h の高加工速度で実現する高能率 GaN 表面研磨技術を確立した。AFM を用いた表面観察の結果、PEC 反応の援用によって加工起点が増加し、CARE 法の加工速度が向上することが明らかとなった。さらに、PEC 反応そのものがステップフロー型の反応であることが示され、この特性によって、PEC-CARE 法では高速かつ高精度な加工を両立できていると結論付けられた。PEC-CARE 法は既存の研磨装置に触媒パッドと紫外光照射装置を取り付けるだけで容易に導入可能な技術であり、本成果は研磨工程の高能率化による製造コストの削減によって、GaN デバイスの更なる普及、ひいてはカーボンニュートラルの達成に貢献するものである。

### 謝辞

この度はこのような栄えある賞を賜り、大変光栄に存じます。本研究の遂行にあたり、熱心なご指導を賜りました大阪大学大学院 工学研究科 山内和人教授をはじめとする物理学系専攻の諸先生方に厚く御礼申し上げます。この賞を励みに、今後も引き続き研究に邁進して参りたいと存じます。

### 参考文献

- [1] J. Murata et al., *J. Cryst. Growth*, **349** 83-88 (2012).
- [2] M. S. Minsky et al., *Appl. Phys. Lett.*, **68** 1531-1533 (1996).
- [3] K. Kayao et al., *ECS J. Solid State Sci. Technol.*, **12** 063005 (2023).

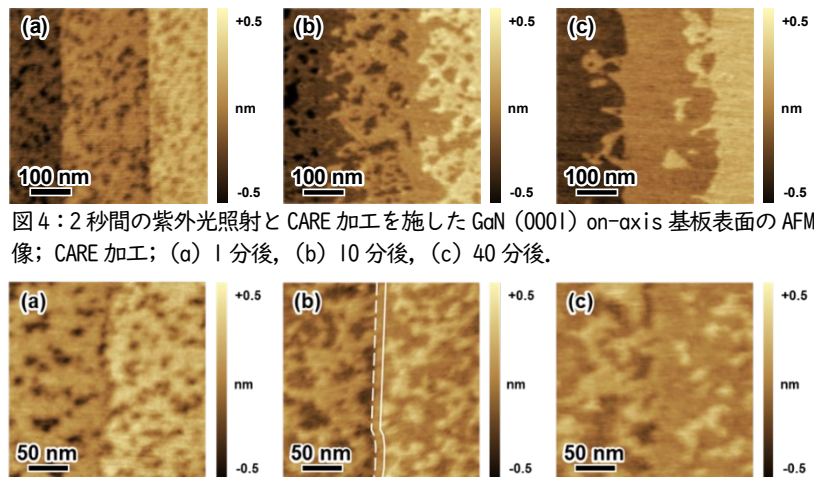


図 4 : 2 秒間の紫外光照射と CARE 加工を施した GaN (0001) on-axis 基板表面の AFM 像; CARE 加工; (a) 1 分後, (b) 10 分後, (c) 40 分後。

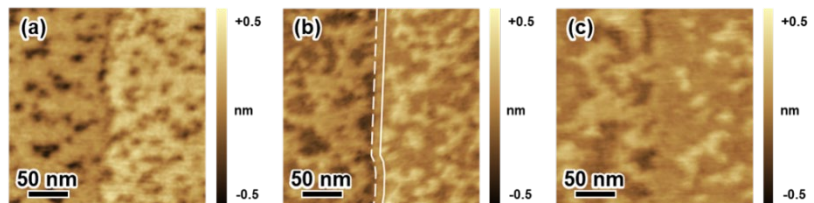


図 5 : 2 秒間の紫外光照射と硝酸水溶液への浸漬からなる加工サイクルを複数回施した GaN (0001) on-axis 基板表面の AFM 像; (a) 1 回, (b) 2 回, (c) 3 回。ただし、図(b)中の白点線は加工前のステップ端の位置、白実線は加工後のステップ端の位置を示し、線間の幅は加工によるステップ端のエッチング量を示している。

# Cu 部分置換によるコバルトフェライト (CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>) の磁歪定数の向上

環境エネルギー工学専攻 エネルギー量子工学コース  
環境エネルギー材料工学領域 牟田研究室 小杉 静花

## 1. はじめに

図1に示すように、強磁性体に磁場を印加すると長さ変化(歪み)が生じる(磁歪効果)<sup>1)</sup>。また、応力の印加により磁気的性質が変化する(逆磁歪効果)<sup>2)</sup>。顕著な磁歪効果や逆磁歪効果を示す磁歪材料は、魚群探知機等の振動子として用いられている。さらに、近年では、生産設備や建造物のモニタリング等を行うIoT技術の無電源ワイヤレスネットワークに対して、磁歪材料を用いた振動発電の応用が期待されている。

現在、Tb-Dy-Fe化合物およびFe-Ga合金が磁歪材料として実用化されている。これらの材料は優れた性能を示すが、高コストであることが応用研究の妨げになっている。そこで、原料コストおよび製造コストの優位性が期待できる金属酸化物系のCoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>に注目した。

先行研究において、CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>のCoをCu部分置換すると磁歪特性が向上し、従来材料を遥かに凌駕する大きな歪みが得られることが明らかになった<sup>3)</sup>(図2)。これまでにCoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>のCoやFeの他元素での部分置換が行われてきたが、このように顕著に磁歪特性が向上した例はなく、Cu部分置換による磁歪特性の向上のメカニズムに興味をもたれる。そこで、歪みの大きさを表す指標である磁歪定数におよぼすCu部分置換の影響を明らかにすることを本研究の目的とした。

本研究では、 $\lambda_s$ 、 $\lambda_{100}$ および $\lambda_{111}$ の3種類の磁歪定数に着目した。 $\lambda_s$ は飽和磁歪定数と呼ばれ、ランダム配向の多結晶の歪みの大きさを表す指標である。また、 $\lambda_{100}$ および $\lambda_{111}$ はそれぞれ単結晶の<100>および<111>方向の磁歪定数であり、 $\lambda_s$ と下式で関係付けられる。

$$\lambda_s = \frac{2}{5}\lambda_{100} + \frac{3}{5}\lambda_{111} \quad (1)$$

つまり、 $\lambda_{100}$ および $\lambda_{111}$ は $\lambda_s$ の大きさを決める重要因子である。本研究では、Cu-Coフェライト(Cu<sub>x</sub>Co<sub>1-x</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>)の多結晶試料を用いて $\lambda_s$ のCu部分置換量依存性を評価した。そして、単結晶試料の育成を試み、その $\lambda_{100}$ および $\lambda_{111}$ を調べた。

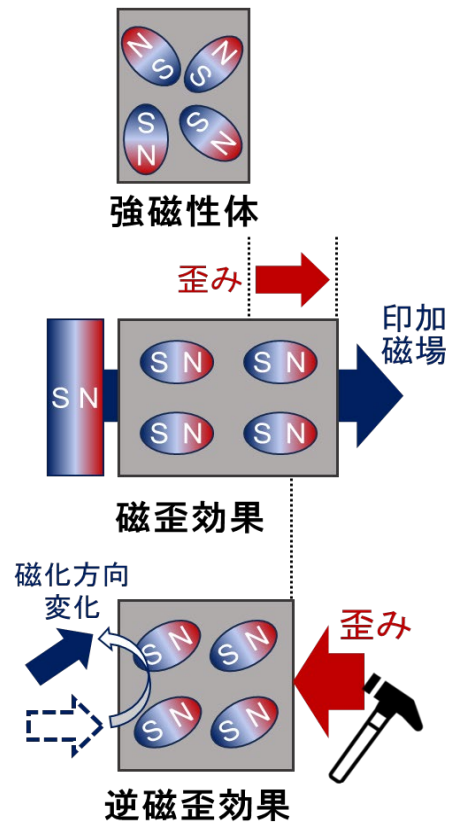


図1:磁歪効果および逆磁歪効果の概念図

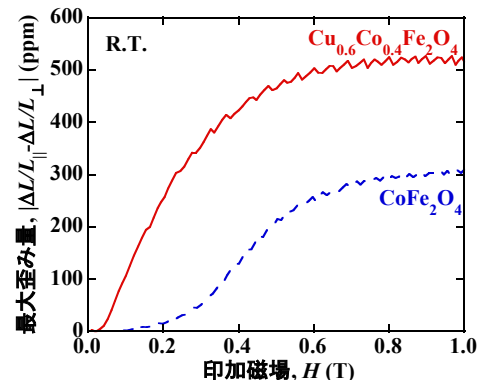


図2:Cu部分置換によるCoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>の磁歪特性の向上<sup>3)</sup>

## 2. 実験方法

$\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、CoO および Cu<sub>2</sub>O を出発原料とし、Cu-Co フェライトの多結晶試料および単結晶試料を作製した。試料の結晶相および結晶方位の決定にはX線回折を利用した。また、磁歪定数の評価には歪みゲージ法を用いた。

## 3. 実験結果・考察

### 3.1 多結晶試料の磁歪特性の評価

多結晶試料の飽和磁歪定数 $-\lambda_s$ のCu部分置換量 $x$ 依存性を図3に示す。Cu部分置換量の増加に伴い、 $-\lambda_s$ の値は増加し、 $x = 0.5 \sim 0.6$ の試料において最大値を示した。 $x = 0.5$ の試料の $-\lambda_s$ の値は250 ppmであった。しかし、 $x = 0.7$ の試料の $-\lambda_s$ の値は $x = 0.0$ の試料の値より小さくなる。結晶相は $0.0 \leq x \leq 0.6$ の試料で立方晶であり、 $x = 0.7$ の試料で立方晶と正方晶の二相混合であった。したがって、立方晶領域において、 $-\lambda_s$ の値はCu部分置換量の増加に伴い、向上する。

CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>はスピネル構造を示す。スピネル構造では、O<sup>2-</sup>により四面体および八面体が形成され、その中心を金属イオンが占有している(図4)。結晶相の変化は、八面体の中心をCu<sup>2+</sup>が占有した際に、八面体が歪んだ方が電子的に安定した状態になるJahn-Teller効果に起因する。つまり、Jahn-Teller効果と $-\lambda_s$ の値は密接に関係することが示唆される。

### 3.2 単結晶試料の磁歪特性の評価

得られた試料の外観およびLaue写真を図5に示す。試料の外観には、単結晶に特徴的なファセットが見られた。また、Laue写真では中心付近に対して3回対称のLaue斑点が観察された。この斑点はすべて、立方晶スピネル構造の{111}面の回折パターンと一致する。つまり、Cu-Co フェライト単結晶試料の育成に成功した。この単結晶試料を用い、磁歪定数 $\lambda_{100}$ および $\lambda_{111}$ を算出した。その結果、 $\lambda_{100} = -573$  ppm および $\lambda_{111} = 76$  ppmであった。(1)式より、Cu部分置換したCoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>の大きな負の $\lambda_s$ は、顕著に大きな負の $\lambda_{100}$ および小さな $\lambda_{111}$ に起因する。

## 4. まとめ

本研究では、Cu-Co フェライトの $\lambda_s$ 、 $\lambda_{100}$ および $\lambda_{111}$ の3種類の磁歪定数を明らかにすることを目的とした。多結晶試料では、立方晶領域においてCu部分置換に伴い、 $-\lambda_s$ の値は増加する。Jahn-Teller効果に起因した正方晶への結晶相の変化により $-\lambda_s$ の値が急激に小さくなることが明らかになった。また、単結晶試料の育成に成功し、その試料から $\lambda_{100}$ および $\lambda_{111}$ を評価した。その結果、本研究の単結晶試料の大きな負の $\lambda_s$ は、顕著に大きな負の $\lambda_{100}$ および小さな $\lambda_{111}$ に起因することが明らかになった。今後は、 $\lambda_{100}$ および $\lambda_{111}$ の大きさの決定要因の一つである弾性定数の評価に取り組み、CoのCu部分置換による磁歪特性向上のメカニズムを追求していきたい。

### 参考文献

- 1) J. P. Joule, *Ann. Electr. Magn. Chem.*, **8** (1847) 219-224. 2) E. Villari, *Ann. Phys. Chem.*, **126** (1865) 87-122.
- 3) S. Kosugi, *et al.*, *Mater. Trans.*, **64** (2023) 2014-2017.

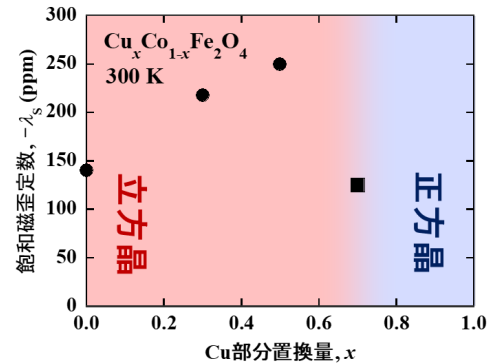


図3:Cu-Co フェライト多結晶試料の飽和磁歪定数 $-\lambda_s$ のCu部分置換量 $x$ 依存性

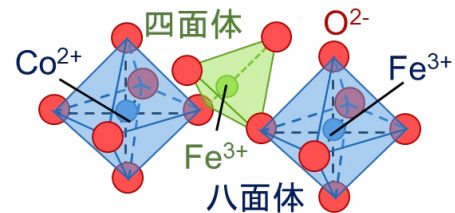


図4:CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>のスピネル構造の概略図

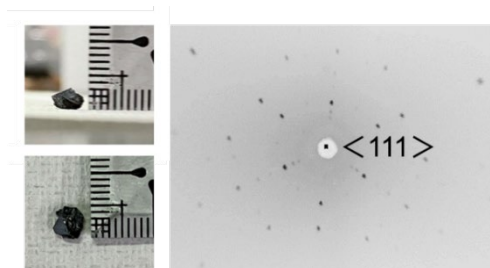


図5:Cu-Co フェライト単結晶試料の外観およびLaue写真

# 建築物側面の太陽光発電ポテンシャルの研究 —地域規模かつ1時間単位での分析—

環境エネルギー工学専攻 環境工学コース  
下田研究室 正野 景大

## 1. はじめに

気候変動は人類にとって喫緊の課題であり、持続可能な社会を形成するためには多岐にわたる対策の実施が不可欠である。建築部門においては、重要な対策の一つとして太陽光発電の導入が推進されている。現在主に普及しているのは屋根上に設置するものであるが、近年、建材一体型太陽光発電（BIPV：Building-integrated photovoltaics）の建築物側面への設置（図1）が注目を集めている。BIPVとは壁材や窓などの建材と太陽光発電モジュールが一体化したものであり、その利用により建築物の意匠に合わせつつ壁面や窓面においても太陽光エネルギーを利用した発電を行うことが可能となる。また、建築ストックにおける発電量を大幅に増加させ、気候変動の緩和に貢献することが期待されている。



図1：BIPVの建築側面設置<sup>i</sup>

BIPVの建築側面での利用については、複数の先行研究が発電ポテンシャルの推計・分析を行っており、種々の知見が提供されている。しかし、大規模（市や地域以上）の導入について短い時間間隔（e.g. 1時間）での発電ポテンシャルの分析は未だ行われていない。そこで、本研究は建築物側面に設置されたBIPVの発電ポテンシャルを地域規模かつ1時間単位で推計し、分析から気候変動の緩和に貢献する新たな知見を提供することを目指した。本研究は学術誌Solar Energyから発表された<sup>ii</sup>。

## 2. 手法

まず、建築物側面にBIPVが設置された場合の発電ポテンシャルを地域規模かつ1時間単位で推計可能なモデルを開発した（図2）。これを東京都の業務施設（GISデータ）に

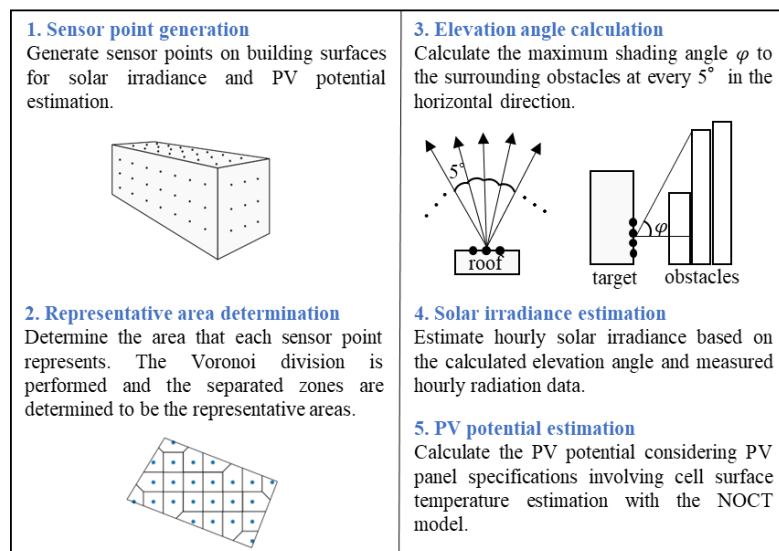


図2：開発した発電ポテンシャル推計モデル

<sup>i</sup> Bot, Karol, Laura Aelenei, Hélder Gonçalves, Maria da Glória Gomes, Carlos Santos Silva, "Performance Assessment of a Building-Integrated Photovoltaic Thermal System in a Mediterranean Climate—An Experimental Analysis Approach" Energies, 2021, 14 (8), 2191, <https://doi.org/10.3390/en14082191>.

<sup>ii</sup> Keita Shono, Yohei Yamaguchi, Usama Perwez, Tao Ma, Yanjun Dai, Yoshiyuki Shimoda, "Large-scale building-integrated photovoltaics installation on building façades: Hourly resolution analysis using commercial building stock in Tokyo, Japan" Solar Energy, Volume 253, 2023, Pages 137-153, ISSN 0038-092X, <https://doi.org/10.1016/j.solener.2023.02.025>.

適用し、発電ポテンシャルの推計を行った。その後、推計結果を年間及び一時間当たりの地域規模の発電ポテンシャルとして集計し、エネルギー需要を考慮した分析を行った。分析においては、経年でのエネルギー需要の削減や電化の進展、太陽光発電導入の経済性を考慮した。ここで、経済性の考慮は年間日射量閾値（閾値以上の年間日射量を持つ箇所を経済的な導入が可能だと考える）の設定により行った。

### 3. 結果と考察

年間発電ポテンシャルとエネルギー需要との比較（図3）より、東京都の業務施設の2050年における年間電力需要のうち15%~48%が太陽光発電によって満たされ得ることが示された。需要満足の程度は建築物側面の発電ポテンシャルをどの程度活用するかに大きく依存しており、気候変動の緩和により大きく貢献するためにはある程度の経済的コストを受け入れる必要があると分かった。一時間単位の結果（図4）からは、建築物側面への太陽光発電導入において高い経済性を追求する場合、発電量の時間変動を従来からほとんど変化させないことが分かった。

これは、一般に建築側面設置のBIPVに期待される発電量の平準化の効果が得られないことを意味する。また、ロードカーブに関する分析から、設備利用率の低下と調整力の必要性の増加という、BIPVの大規模導入が電力システムに与える悪影響が明らかとなった。

### 4. 結論

本研究は、東京都の業務施設を対象として、建築物側面に設置されたBIPVの発電ポテンシャルを地域規模かつ一時間単位で推計し、エネルギー需要との比較をはじめとする分析を行った。本研究で得られた知見は、自治体以上の規模でのBIPV活用の検討において大きく貢献すると期待される。

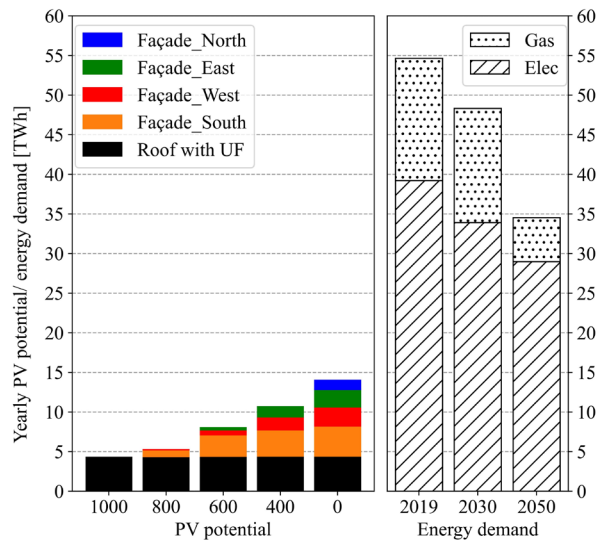


図3：各年間日射量閾値に対する年間発電ポテンシャルと年間エネルギー需要

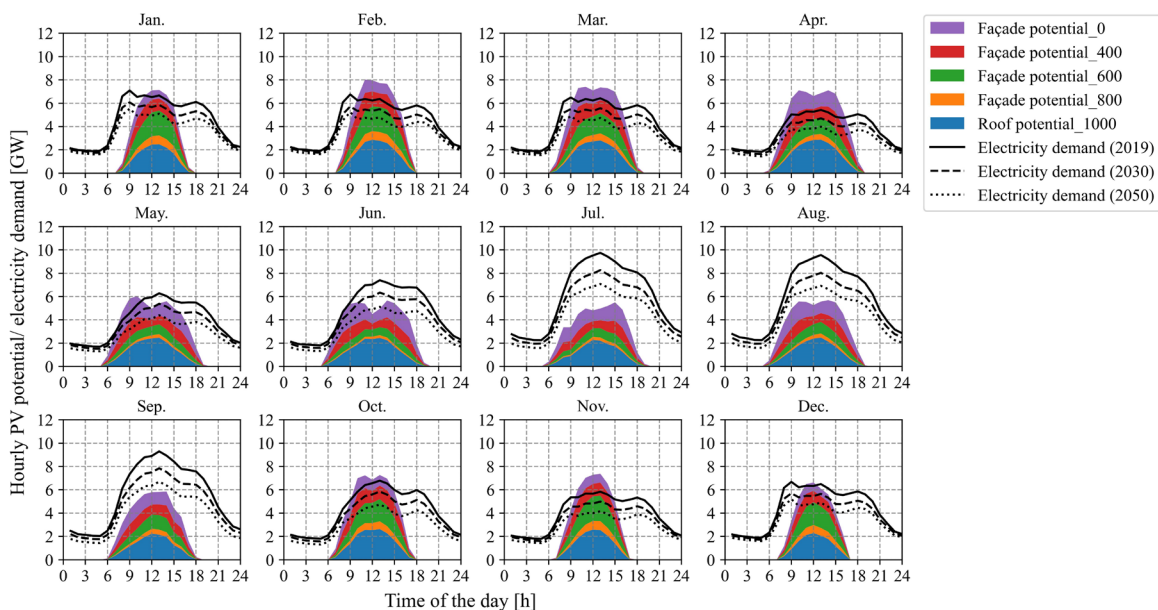


図4：各月の晴天日について平均した一時間単位の発電ポテンシャルと電力需要

# データ同化を融合させた Phase-Field 法による 共晶反応での固液界面物性の推定

マテリアル生産科学専攻 マテリアル科学コース  
材料設計・プロセス工学領域 小泉研究室 瀬口 侑右

## 1. 緒言

共晶反応は液相から結晶構造と組成の異なる2種以上の固相が晶出する反応であり、形成される材料組織は、層状、棒状、螺旋状などの多様な形態を持つ。材料の微細組織は力学・光学・磁気特性などに直接影響を及ぼすため、組織制御によって材料特性を向上させるためには、共晶組織の多様な形態の形成機構を理解することが求められる。形成される組織形態は、構成相の物性、界面の物性、プロセス条件などの多くの因子のバランスによって決定される。各因子の寄与については数値解析による定量的な分析が有効である。Phase-Field (PF) 法は、合金の組織形成予測の強力な数値解析手法として知られる一方で、多くのパラメータを必要とするという課題をもつ。これまで、値が不明なパラメータは、シミュレーション結果が実験結果に整合するように試行錯誤的に調整されてきた。これには長時間を要し、決定した値の信頼性も不明である。これに対して近年では、パラメータを適切に決定し PF シミュレーションによる系の状態予測の精度向上の手法としてデータ同化が注目されている[1]。同手法は、ベイズの定理に基づいてシミュレーション結果が実験観測データに近づくようにパラメータを自動的に修正することで、パラメータの逆推定と同時にシミュレーションによる状態推定の精度向上を可能とする。これまでに筆者らは、逐次データ同化の一種であるアンサンブルカルマンフィルタ (EnKF) を共晶反応の PF シミュレーションに適用し、双子実験と呼ばれる数値シミュレーション結果を疑似の実験観測データとするデータ同化にて、微細組織形成の再現とパラメータの推定に成功した[2]。双子実験で手法自体の有効性が検証されたが、実験観測データを用いたデータ同化については先行研究も存在しない。そこで本研究は、その場観察実験データから、PF シミュレーションと EnKF により、固液界面の物性および状態を逆推定する手法の確立を目的とした。

## 2. 方法

EnKF は、時系列の観測データを用いて、シミュレーションによる予測を逐次的に修正する手法である。Fig. 1 にその概略図を示す。EnKF はベイズ推定の一環であるため、シミュレーションの予測と観測データは、いずれも不確実性を含む確率密度関数として取り扱う。シミュレーションによる予測は、パラメータをばらつかせた複数の PF シミュレーションを同時に実行し、複数個の状態を用意する。このような複数の状態

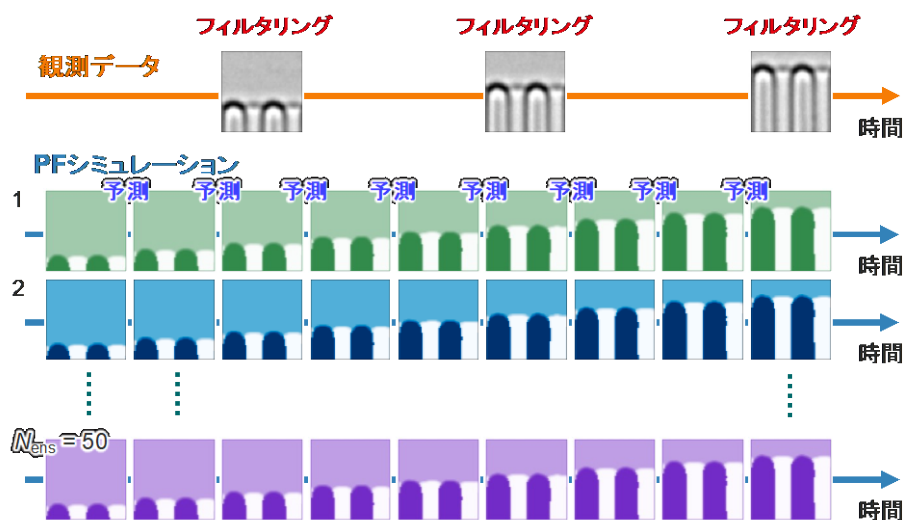


Fig. 1 EnKF の概略図。

をアンサンブルと呼び、アンサンブルの疎密でガウス分布を近似することで、シミュレーションによる予測分布を表現する。また、観測データは観測誤差を含むと仮定し、観測値が平均値、観測誤差が標準偏差のガウス分布として表現する。シミュレーションによる予測分布と観測データは、それぞれベイズの定理の事前分布と尤度に対応し、事後分布を推定結果として得る。PFシミュレーションによる状態の予測と、観測データによる修正を繰り返し行うことによって観測した組織を再現するようなパラメータと状態を逆推定する。

EnKFを適用する材料系として、共晶点温度が低くその場観察が比較的容易であること、拡散係数や界面エネルギーなどの多くのパラメータが既知であることの2つの理由から、テトラブロモメタン-ヘキサクロロエタン ( $\text{CBr}_4\text{-C}_2\text{Cl}_6$ ) 共晶合金を選択した。界面モビリティの値が不明であるため、一方向凝固実験のその場観察像から抽出した相分布を観測データとしたEnKFによって推定した。

### 3. 結果

界面モビリティと相分布の推定結果の推移をFig. 2に示す。 $\alpha$ 相/液相界面と $\beta$ 相/液相界面の界面モビリティの推定値は同一の初期値から出発し、 $t = 5$  sまでに増大したのちに、それぞれ異なる値に収束した (Fig. 2(a))。収束値はそれぞれ、 $\alpha$ 相/液相界面モビリティが  $6 \times 10^{-9} \text{ m}^4/(\text{J} \cdot \text{s})$ 、 $\beta$ 相/液相界面モビリティが  $2 \times 10^{-9} \text{ m}^4/(\text{J} \cdot \text{s})$  であった。一般的な合金系の凝固PFシミュレーションでは、界面モビリティの値は  $1 \times 10^{-8}$  から  $1 \times 10^{-11} \text{ m}^4/(\text{J} \cdot \text{s})$  のオーダーで調整されており、EnFKによって推定された2つの界面モビリティの値はどちらもこの範囲内にある。対応する相分布の推定結果は、推定初期では推定結果は観測データに対して大きくずれたが、推定が進行するに従って界面モビリティの値が修正されることで、界面形状が一致するようになった (Fig. 2(b))。

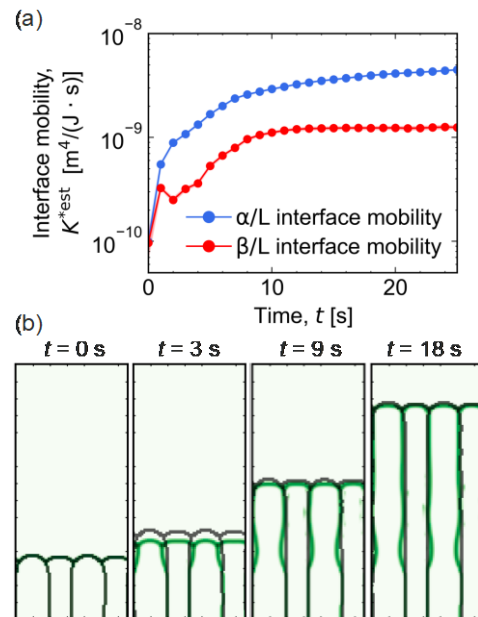


Fig. 2 EnKFによって得られた、(a) 界面モビリティと (b) 相分布から算出した界面形状の推定結果の推移。緑色の線が推定値、黒色の線が観測値である。

### 4. 結言

EnKFとPFシミュレーションの融合により、これまで恣意的に決定されていた界面モビリティの値が、その場観察像から逆推定可能であることを世界で初めて示すことに成功した。本研究によって手法を確立したデータ同化手法の汎用性は高く、PFモデルとその場観察像さえあれば、共晶反応に限らず他の組織形成過程にも適用可能である。そのため、界面特性の異方性や温度依存性なども観測データから推定可能になると考えられる。さらには、Additive Manufacturingなどの非平衡プロセス下の組織形成予測への応用も可能であると期待される。

### 5. 謝辞

この度、研究紹介記事を執筆する機会をいただき、誠にありがとうございます。日頃よりご指導いただきました、マテリアル生産科学専攻の小泉雄一郎教授、奥川将行助教に深く感謝申し上げます。また、研究遂行にあたり、東京農工大学工学研究院先端機械システム部門の山中晃徳教授、国立研究開発法人物質・材料開発機構の野本祐春博士に多くのご助言をいただきました。この場を借りて厚く御礼申し上げます。

### 6. 参考文献

- [1] A. Yamanaka, Y. Maeda and K. Sasaki, *Mater. Des.*, **165** (2019) 107577.
- [2] Y. Seguchi, M. Okugawa, C. Zhu, A. Yamanaka, Y. Koizumi, *Comput. Mater. Sci.*, **237** (2024) 112910.

# はんだ/非反応性ナノ粒子界面の理解と 高強度はんだ接合部の開発

マテリアル生産科学専攻 生産科学コース  
微細接合工学講座 西川研究室 新田 隼也

## 1. 緒言

JIS に規定されたはんだ合金の一つである Sn-52In 合金は融点が 119°C と低いため、接合時の投入エネルギーの削減や、入熱による損傷が心配されるフレキシブル基板への適用が期待されている。しかしその接合強度は約 10 MPa と低く、一般的な鉛フリーはんだである Sn-3.0Ag-0.5Cu 合金の約 5 分の 1 である。そのため接合強度の増加が望まれている。はんだの強化手法として、近年非反応性ナノ粒子の添加が広く検討されている。中でも酸化物系セラミックや遷移金属のような、接合温度ではんだと化合物を作らない非反応性ナノ粒子の添加は融点を変化させず接合強度を増加させることができるという利点がある[1][2]。具体的な強化メカニズムを図 1 に示す。特に  $ZrO_2$  は、はんだと非反応性セラミック中でも高硬度であるため、添加するナノ粒子として有望である。しかし溶融はんだと  $ZrO_2$  ナノ粒子のぬれ性の悪さによる凝集が問題視されている[2]。そのためぬれ性改善を目的としたはんだ/ナノ粒子界面の特性理解が必要不可欠である。

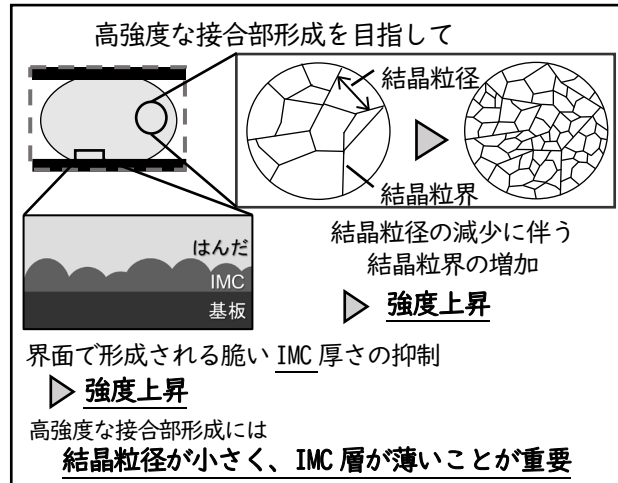


図 1 高強度な接合部開発への設計指針

## 2. 表面改質の効果

我々の研究グループでは NiO を用いて  $ZrO_2$  ナノ粒子を表面改質することでナノ粒子を Sn-1.0Ag-0.5Cu はんだ内で均一に分散させることに成功しており[3]、Sn-52In 合金に対しても同様の効果が期待される。そこで表面改質による界面特性の変化を調査するため、密度汎関数理論に基づく第一原理計算を用いた界面エネルギー計算を行った。計算したモデルは、ナノ粒子表面を模擬した  $ZrO_2$  あるいは NiO の結晶構造上にはんだ合金原子を配置したものであり、はんだ合金原子がナノ粒子表面に吸着する容易さを評価できる。ナノ粒子の表面に Sn 原子を乗せた時の界面エネルギーの変化をマッピングしたものを図 2 に示す。これはナノ粒子表面におけるはんだ合金原子との界面エネルギー分布を視覚化したものであり、黒になるほどエネルギーが低く安定なことを示している。この結果より(b)はおおむね黒い領域で示されていることがわかる。これは NiO 表面のほうがはんだ合金原子との付着が容易になる可能性が示唆される。平均界面エネルギーに着目すると、 $ZrO_2$  及び NiO と Sn 原子ではそれぞれ -0.75、-2.56 eV となった。これは Sn 原子が NiO の表面に吸着しや

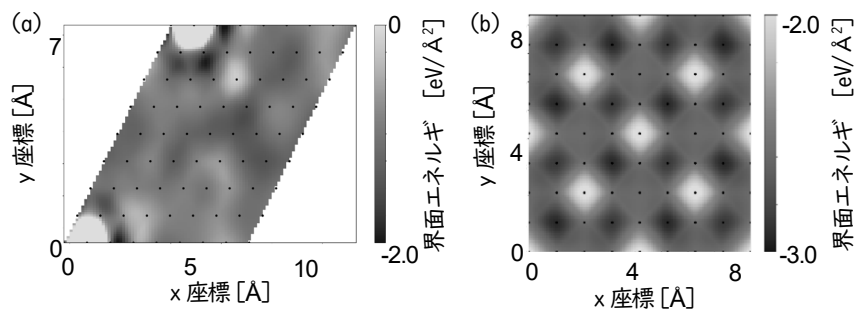


図 2 はんだ合金原子(Sn) / ナノ粒子の界面エネルギー((a)  $ZrO_2$ 、(b) NiO)



すいことを示している。また Sn-52In はんだを形成するもう一つの原子である In でも同様の計算を行った。ZrO<sub>2</sub> 及び NiO と In 原子の平均界面エネルギーはそれぞれ -0.10、-2.42 eV となった。これは In 原子が Sn 原子同様、NiO の表面に吸着しやすいことを示している。以上より表面改質がはんだ原子をナノ粒子に吸着させやすくすることを明らかにした。これは ZrO<sub>2</sub> ナノ粒子に対して安定なはんだ/ナノ粒子界面が形成できることを示唆している。

### 3. 表面改質した ZrO<sub>2</sub> ナノ粒子の添加効果

Sn-52In 合金と表面改質した ZrO<sub>2</sub> ナノ粒子を添加した Sn-52In 複合金の微細組織を図 3 に示す。(a) はナノ粒子を添加していない Sn-52In 合金の微細組織を示しており、(b) はナノ粒子を 0.3 mass% 添加した Sn-52In 複合金の微細組織を示している。EDS 分析の結果、どちらの微細組織も平滑な  $\gamma$ -InSn<sub>4</sub> 相と凹凸のある In<sub>3</sub>Sn 相の二相で構成されていた。 $\gamma$  相の相間距離を測定した結果、Sn-In 合金は約 15  $\mu$ m、Sn-In 複合金は約 6  $\mu$ m となった。この結果より、ナノ粒子の添加は  $\gamma$  相の相間距離を約 60% 減少させることが明らかとなった。これは凝固時に表面改質した ZrO<sub>2</sub> ナノ粒子が Sn-In 合金内で核生成サイトとなることで不均質核生成を促進したためであると考えられる。

次に表面改質した ZrO<sub>2</sub> ナノ粒子を添加した Sn-52In 複合金と Cu を接合することにより作製した Sn-52In 複合金/Cu 接合部のせん断強度を図 4 に示す。図 4 より表面改質した ZrO<sub>2</sub> ナノ粒子を添加することでせん断強度は最大 21% 増加することがわかる(0.3 mass%)。せん断強度上昇のメカニズムは結晶粒微細化とナノ粒子の分散強化であると考えられる。ナノ粒子の分散強化とは合金内にナノ粒子が存在することにより、強度に重要な役割を持つ転位の移動を妨げることで強度が上昇する現象のことである。一方表面改質した ZrO<sub>2</sub> ナノ粒子の添加量が 0.3 mass% 以上の場合、せん断強度変化は小さかった。これは Sn-52In 合金内でナノ粒子が凝集することによってナノ粒子による強度増加効果が十分に得られなかったためであると考えられる。

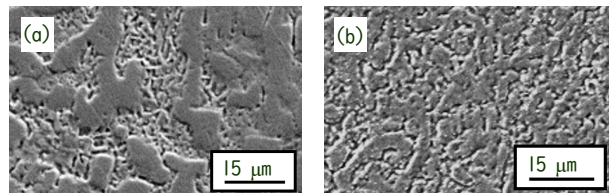


図 3 ナノ粒子添加による微細組織の変化  
(a) 0 mass%、(b) 0.3 mass%

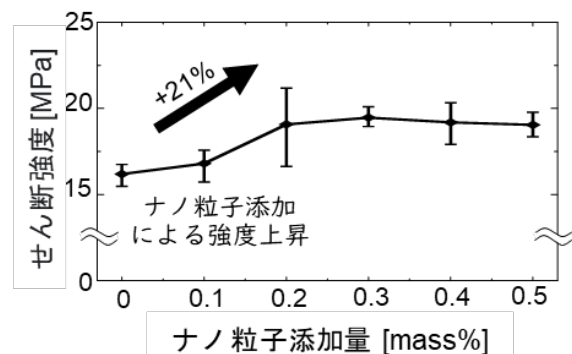


図 4 ナノ粒子添加によるせん断強度の変化

### 4. 結言

本研究では Sn-52In 合金の強度向上を目的とし、NiO で表面改質した ZrO<sub>2</sub> ナノ粒子の添加を検討した。計算の結果、ZrO<sub>2</sub> より NiO のほうがはんだ合金原子と安定な界面を形成することがわかり、NiO による表面改質の有用性が示唆された。NiO で表面改質を行った ZrO<sub>2</sub> ナノ粒子を作製し、Sn-52In 合金に添加した結果、凝固組織は微細化した。これは表面改質した ZrO<sub>2</sub> ナノ粒子が核生成サイトとなり、不均質核生成を促進したためであると考えられる。また Sn-52In 複合金/Cu 接合部のせん断強度は 0.3 mass% まで増加し、最大 21% の増加となった。一方 0.3 mass% 以降では強度の変化があまり見られなかった。これは Sn-52In 合金内でナノ粒子が凝集したことで強度向上の効果が得られなかった可能性がある。さらなる強度向上のためには Sn-52In 合金とより安定な界面を形成する新たなナノ粒子表面の創出が必要であるといえる。

### 参考文献

- [1] S. H. Rajendran, S. J. Hwang, and J. P. Jung, *Metals*, Vol. 10, pp.1295, (2020).
- [2] S. Li, K. Kondoh, H. Imai, B. Chen, L. Jia, J. Umeda, and Y. Fu, *Mater. Des.* Vol. 95, pp.127 (2016).
- [3] F. Huo, Y. A. Shen, S. He, K. Zhang, and H. Nishikawa, *Vacuum*, Vol. 191, pp.110370, (2021).

# メタサーフェスを用いた円偏光発光微細素子 および円偏光を用いた癌検出技術に関する研究

ビジネスエンジニアリング専攻 産学官共創コース  
アルバック未来技術協働研究所 堀内 宏太郎

## 1. 研究背景と目的

円偏光とは、電界ベクトルの振動方向が光の進行方向に対して垂直な面内で回転し、振幅がその向きによらず一定な光のことである (Fig. 1)。その特異な性質から、情報通信や記録媒体、病理診断など幅広い応用が提案されており、本研究では円偏光内視鏡技術に着目する。円偏光内視鏡とは、癌細胞の検出に円偏光を利用する内視鏡のことで、微小な癌細胞や埋没している癌細胞の検出を可能にする新たな技術として期待されている<sup>[1]</sup>。また、通常の内視鏡は既に社会実装されており、多くの周辺技術が既に確立されていることも本技術に着目する理由である。しかし、円偏光による癌検出に最適な測定および解析手法は未だ確立されておらず、物理的に未解明な部分も多い。さらに、デバイス開発の面では、実用的な円偏光発光単一微細素子が存在しないことが円偏光応用技術発展の障壁となっている。円偏光発光単一素子の研究例として、スピン偏極電子を再結合することで円偏光を発生させる spin-LED があるが<sup>[2]</sup>、取り出し光の円偏光度や素子の耐久性、電力効率などの課題が残る。これらの課題を解決しうる技術としてメタサーフェス (Metasurface : MS) に注目が集まっている<sup>[3]</sup>。MS とは、光の位相や反射、屈折等に対して特定の操作を可能にする周期構造的薄膜のことである。本研究では、MS を利用することで高効率に動作する円偏光発光微細素子の開発を行った。対象波長は生体透過性の高い 800 nm とした。さらに、円偏光を用いた病理診断技術の実証をもう一つの研究目的として定め、測定手法や解析手法の検討を行った。

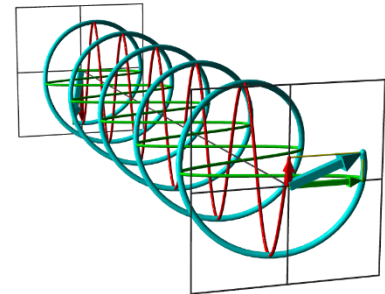


Fig. 1 円偏光の概念図

円偏光発光単一微細素子として、直線偏光性の高い面発光レーザーと位相変調 MS を組み合わせた単一微細素子を考える。MS の構造は Si のラインアンドスペース構造とした。まず、マグネトロンスパッタリング法でガラス基板上に Si を成膜し、反射率分光法によって膜の屈折率を解析した。その結果、波長 800 nm において屈折率 3.43 の薄膜が得られた。次に、有限差分時間領域法によって Maxwell 方程式を解く電界シミュレーションを行い、目的の光位相変調性能を有する MS の設計を行った。ここで、MS の膜厚、Si の線幅、空気の線幅をそれぞれ  $d$ 、 $W_{Si}$ 、 $W_{Air}$  と定義する (Fig. 2)。 $d=160$  nm の MS の下面から垂直に直線偏光を入射する系において、 $W_{Si}$  と  $W_{Air}$  を 50~300 nm の範囲でそれぞれ変化させたときの光の透過率  $T$  と透過光の円偏光度  $P_{CP} = |I_L - I_R| / (I_L + I_R)$  を算出した。 $I_L$  と  $I_R$  は透過偏光を左回り円偏光 (Left-handed Circular Polarized light : LCP) と右回り円偏光 (Right-handed Circular Polarized light : RCP) の合成として考えたときのそれぞれの光強度である。Fig. 3 に透過率  $T$  (左) と円偏光度  $P_{CP}$  (右) それぞれの算出結果を示す。これらの両方が高い領域が目的の性能を有する構造である。さらに、加工性も考慮して  $d=160$  nm、 $W_{Si}=100$  nm、 $W_{Air}=150$  nm が最適な構造であると考えられる。

## 2. メタサーフェスの設計

円偏光発光微細素子として、直線偏光性の高い面発光レーザーと位相変調 MS を組み合わせた単一微細素子を考える。MS の構造は Si のラインアンドスペース構造とした。まず、マグネトロンスパッタリング法でガラス基板上に Si を成膜し、反射率分光法によって膜の屈折率を解析した。その結果、波長 800 nm において屈折率 3.43 の薄膜が得られた。次に、有限差分時間領域法によって Maxwell 方程式を解く電界シミュレーションを行い、目的の光位相変調性能を有する MS の設計を行った。ここで、MS の膜厚、Si の線幅、空気の線幅をそれぞれ  $d$ 、 $W_{Si}$ 、 $W_{Air}$  と定義する (Fig. 2)。

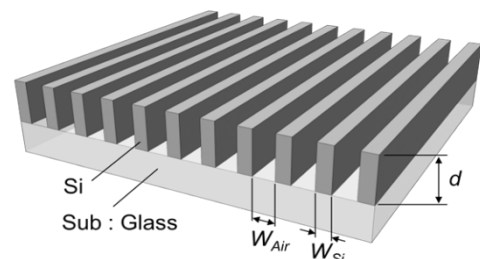


Fig. 2 MS の模式図

$d=160$  nm の MS の下面から垂直に直線偏光を入射する系において、 $W_{Si}$  と  $W_{Air}$  を 50~300 nm の範囲でそれぞれ変化させたときの光の透過率  $T$  と透過光の円偏光度  $P_{CP} = |I_L - I_R| / (I_L + I_R)$  を算出した。 $I_L$  と  $I_R$  は透過偏光を左回り円偏光 (Left-handed Circular Polarized light : LCP) と右回り円偏光 (Right-handed Circular Polarized light : RCP) の合成として考えたときのそれぞれの光強度である。Fig. 3 に透過率  $T$  (左) と円偏光度  $P_{CP}$  (右) それぞれの算出結果を示す。これらの両方が高い領域が目的の性能を有する構造である。さらに、加工性も考慮して  $d=160$  nm、 $W_{Si}=100$  nm、 $W_{Air}=150$  nm が最適な構造であると考えられる。

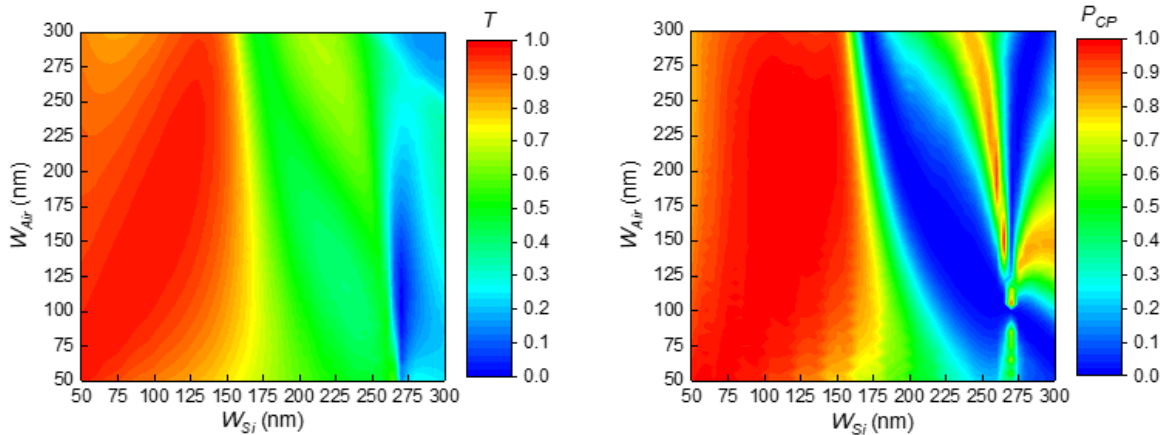


Fig. 3 MSの透過率（左）と透過光の円偏光度（右）

### 3. 癌細胞の円偏光特性評価

ヒト肺由来の正常細胞 BEAS-2B および癌細胞 A-549 をガラス製シャーレにそれぞれ培養した試料を作製した。試料に波長 350~850 nm の白色 LCP および RCP を入射し、透過光の  $P_{CP}$  の波長依存性を評価した。その結果を Fig. 4 に示す (BKG : 試料無し、Normal : 正常細胞、Cancer : 癌細胞)。RCP と LCP のいずれの場合においても、試料透過後の  $P_{CP}$  は正常細胞より癌細胞の方が低くなっていることが分かる。これは細胞核による光の多重散乱が原因であると考えられる。正常細胞と癌細胞では細胞核のサイズが異なるのでその散乱形態も異なっている。そして、円偏光が散乱されたときの偏光解消度はその散乱形態に依存する<sup>[4]</sup>。また、癌細胞による偏光解消は RCP においてより顕著であった。これは生体分子の吸収円二色性が主な原因であると考えられる。

### 4. 結言

本研究では、生体透過性の高い波長 800 nm で動作する円偏光発光単一微細素子の設計指針が得られた。また、円偏光を用いた癌細胞のイメージングが可能であることを示唆する結果が得られた。これらの成果は円偏光内視鏡技術のために非常に重要であるといえるが、その実現にはまだ課題残る。デバイス開発における全体設計や MS の微細加工精度は今後検討する必要がある。癌検出においては、偏光解消度やその円二色性および波長依存性に対する理解が定量的にも定性的にも不十分である。したがって、本研究のさらなる発展が期待される。

### 5. 参考文献

- [1] N. Nishizawa *et al.*, *J. Biophotonics* **15**, e202200062 (2022).
- [2] K. Etou *et al.*, *Phys. Rev. Applied* **19**, 024055 (2023).
- [3] H. S. Khaliq *et al.*, *Adv. Optical Mater.* **11**, 2300644 (2023).
- [4] B. Kunnen *et al.*, *J. Biophotonics* **8**, No. 4, 317 (2015)

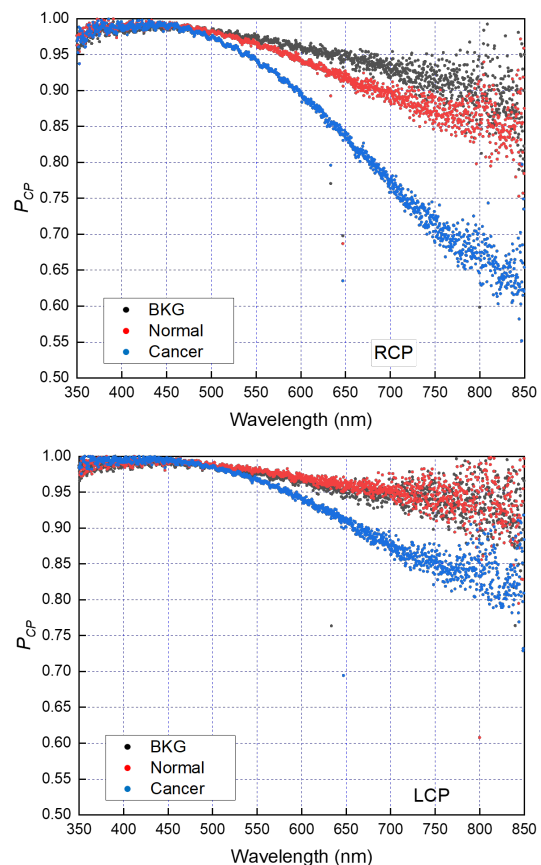


Fig. 4 試料透過光の円偏光度の波長依存性

# セルラーシステム向け情報源通信路結合符号化器の設計および実装に関する研究

電気電子情報通信工学専攻 情報通信工学コース  
フォトリックネットワーク工学領域 丸田研究室 松本 啓吾

## 1. 研究背景

画像データの符号化法として深層学習を用いた情報源通信路結合符号化 (Deep Joint Source-Channel Coding, Deep JSCC) が2019年ごろから注目されている<sup>[1]</sup>。Deep JSCCは、5G技術等で用いられるJPEG符号化とLDPC符号を組み合わせた手法と比べ、半分程度のデータ量で同程度以上の通信品質の画像伝送が可能であることが報告されている有望な技術である<sup>[2]</sup>。期待される用途として、産業向けの5Gネットワークであるローカル5Gが挙げられる。ローカル5Gのように、ネットワークカメラやセンサといった長時間にわたり動画通信を行うデバイスを扱う場合、接続台数に応じて通信品質が低下する恐れがある。そこで、ローカル5GシステムにDeep JSCCを用いることで、従来手法よりも少ない通信資源で高品質な画像伝送を実現できる可能性が高い。

近年、画像の高品質化や映像データへの対応等のように様々なDeep JSCCの研究開発が加速している一方で、実際の無線環境を模した実験による検証はほとんど報告されておらず、通信システム全体として動作するのか検証する必要がある。そこで、本研究では、5層程度のシンプルな畳み込みニューラルネットワーク(CNN)のDeep JSCCを設計し、市販のローカル5Gシステムを用いた原理確認実験を実施することで、Deep JSCCの有効性を確認した。

## 2. 同軸ケーブル直結による通信実験

Deep JSCCは画像を符号化するエンコーダと、復元するデコーダに分けられる。実験に用いた通信システムの構成を図1に示す。エンコーダを搭載したPCとローカル5G基地局を接続し、基地局から信号を送信した。本実験では、無線伝送ではなく、基地局と受信端末を同軸ケーブルで結び通信を行った。ここで、アッテネータを用いて電力を減衰していき、信号劣化の程度を確認した。受信端末で受け取った信号はPCに転送され画像に復元した。

結果、使用したローカル5Gシステムが受信可能な電力感度の装置限界である121 dB電力減衰まで十分な品質を保ったまま画像が復元可能であった(図2)。つまり、ローカル5Gシステムの同期信号や制御信号が受信できる範囲でDeep JSCC信号が送受可能であることが確認された。

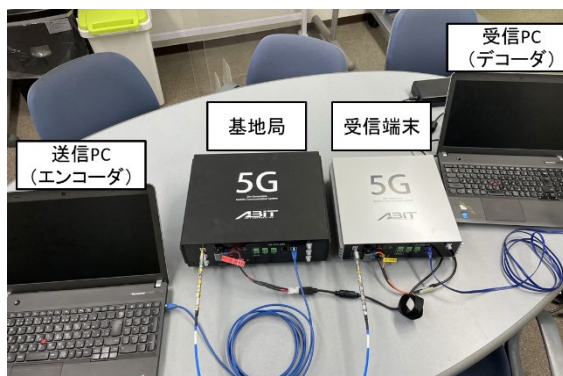


図1：同軸ケーブル直結による通信の様子



図2：電力減衰量ごとの復元画像

前章では通信に同軸ケーブルを用いたが、本章では無線信号による通信実験について紹介する。無線伝送の場合、同軸ケーブルによる通信とは異なり、反射波や伝搬路中の障害物の影響も信号劣化の要因となる。実験は実施したシールドルームの大きさの都合上、基地局と受信端末間は40 cm程度の距離で通信を行った(図3)。品質の評価には、復元画像の品質をピーク信号対雑音比(Peak Signal-to-Noise Ratio, PSNR)を指標に用いた。

画像1万枚のPSNRの累積度数分布を図4に示す。青線が実験値のグラフを示し、赤線は量子化誤差や伝搬損失のない理想条件でのシミュレーション値のグラフを示している。2つのグラフの概形が近く、無線伝送による大幅な信号劣化は確認されなかった。

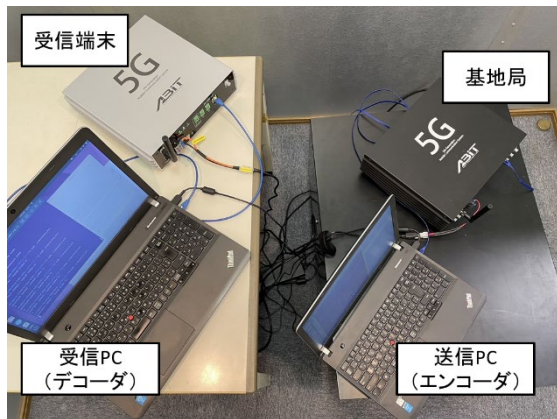


図3：無線伝送実験の様子

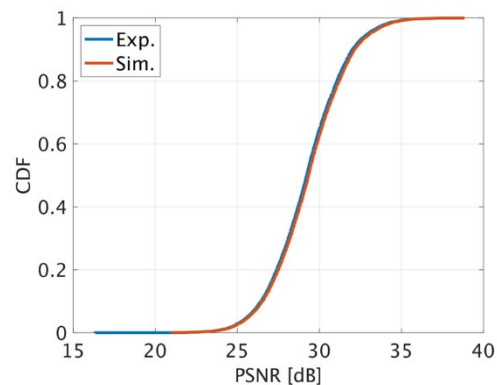


図4：PSNRの累積度数分布

#### 4. 結論

本研究では、ローカル5Gシステムを用いたDeep JSCC信号の伝送実験を実施した。結果、同軸ケーブルで通信した場合も、無線通信した場合も共に十分な画質で通信が可能であった。得られた結果について、設計した深層学習モデルに特殊な機構を用いておらず、ローカル5Gシステムに関しては、外部PCとデータの送受を行えるようにしたこと他に市販のものから手を加えていない点が重要である。これは、現行の通信システムの符号化プロセスのみDeep JSCCに変更するだけで運用ができることを意味する。また、深層学習のレイヤ構造は、既に他研究で提案されているモデルに自由にカスタム可能であり、更なる高画質化も期待できる結果となった。本研究を通して、実システム環境下においてもDeep JSCCが有効な符号化手法であると確認できた。Deep JSCCは、近年大規模言語モデルの台頭で注目されている生成AI分野とも密接に関係するため、ビット情報を超えた意味・意図を通信する新たな研究領域として、今後も注視していきたい。

#### 5. 参考文献

- [1] E. Bourtsoulatze et al, “Deep Joint Source-Channel Coding for Wireless Image Transmission, IEEE Trans. Cog. Commun. Netw., vol. 5, No.3, pp.567-579, Sept. 2019.
- [2] Y. Inoue, D. hisano, K. Maruta, Y. Hara-Azumi, Y. Nakayama, “Deep Joint Source-Channel Coding and Modulation for Underwater Acoustic Communication, ” IEEE Global Telecommunications Conference (GLOBECOM), Dec. 2021.

# 構造実験と数値解析に基づく CLT 壁充填型 RC 架構の耐震性能評価

地球総合工学専攻 建築工学コース  
コンクリート系構造学領域 村田 晃康

## 1. はじめに

近年、地球温暖化の防止、また持続可能な社会の実現に向けて、CO<sub>2</sub>削減への取組、地震後も継続使用可能な建築物の設計、木材需要の多くを占める建築領域での木材の活用促進などが社会的な課題となっている。これらの課題の解決策の一つとして Cross Laminated Timber (以下、CLT) の利用に注目が集まっている。CLT とはひき板を繊維方向が直交するように積層接着した木質構造用材料であり、既に欧州では中高層建築物の構造部材として実用化されている。特に、CLT の原材料となる木材は中小径木及び間伐材を活用することができるため、CLT の生産及び活用を普及促進することにより地域林業・木材産業の活性化が期待される。世界中で広く用いられている鉄筋コンクリート造 (以下、RC) 建築物に CLT 壁を使用することで、森林資源が循環し、CO<sub>2</sub>吸収率の高い新たな木を植林することができるため、持続可能な社会に大きく貢献できると考えられる。しかし、CLT を耐震壁として挿入した RC 架構の構造性能は未だ研究事例が少なく、明らかにされていない。

以上の背景を踏まえて、本研究では、CLT 壁を RC 造建築物へ適用するための基礎的な検討及び将来的に CLT 壁を中高層建物へ適用することを見据え、CLT 壁が梁降伏型架構に与える影響についての検討を主目的とし、実験を実施した。また、実験結果を模擬する数値解析モデルを提案し、その整合性を確認し、提案モデルを用いて分析を行った。

## 2. 構造実験

本研究の実験対象は、研究対象建物の CLT 壁を有する RC 架構部分を模擬する約 40%スケールの試験体であり、試験体は計 5 体作成した。試験体一覧を図 1 に示す。実験変数は CLT 壁の有無、CLT 壁の壁厚、CLT 壁の分割数である。図 2 に載荷時の試験体設置図を示す。試験体は上下階の柱端部に 4 台のピン支承を取り付け、載荷装置に固定した。各試験体ともに南北の鉛直オイルジャッキによって各柱断面に対し軸力比 0.15 の初期軸力を加え、一定軸力を維持し、正負交番繰り返し載荷を行った。

実験から得られた試験体 BF、試験体 4CLT-60、試験体 4CLT-36 の荷重変形角関係を図 3 に、試験体 4CLT-60、試験体 2CLT-60、試験体 6CLT-60 の荷重変形角関係を図 4 にそれぞれ重ねて示す。図 3 より CLT 壁を RC 架構に組み込むことで、架構全体の耐力及び靱性能力の向上を確認した。また、試験体 4CLT-60 と試験体 4CLT-36 を比較すると初期剛性に違いが見られたものの、概ね同様の履歴性状を示したことから、CLT 壁の厚さは初期剛性には

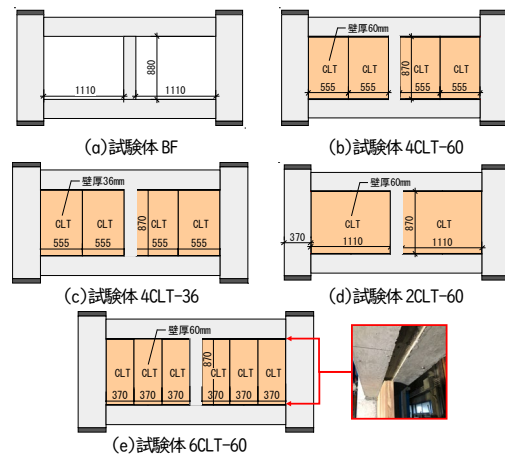


図 1 試験体一覧 (unit:mm)

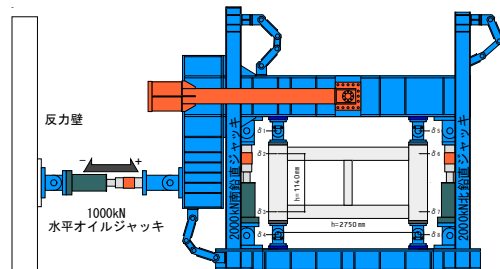


図 2 試験体設置図 (unit:mm)

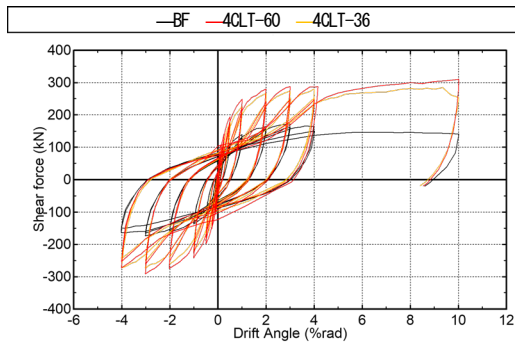


図3 試験体BF, 4CLT-60, 4CLT-36の荷重変形角関係

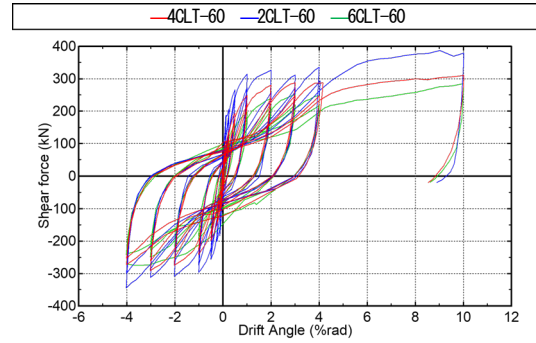


図4 試験体4CLT-60, 2CLT-60, 6CLT-60の荷重変形角関係



図5 試験体4CLT-60 最終破壊状況

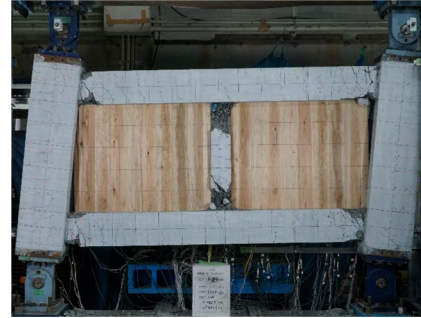


図6 試験体2CLT-60 最終破壊状況

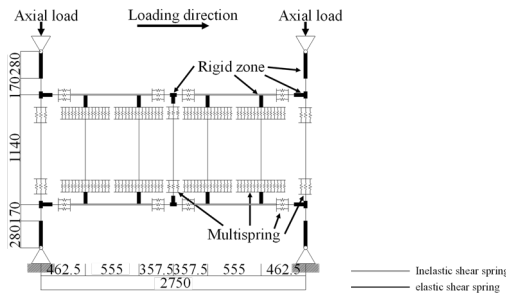


図7 試験体の解析モデル (試験体4CLT-60)

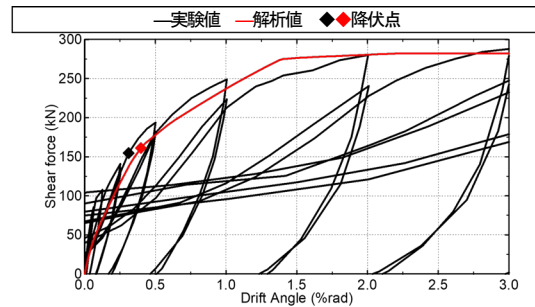


図8 試験体の解析モデル (試験体4CLT-60)

寄与するものの、架構の耐力への寄与は限定的であることを確認した。図4より、CLT壁の分割が少ないほど、架構の初期剛性及び耐力が増大する傾向を確認した。また、図5のようにCLTパネルが縦長の試験体(試験体4CLT-60, 4CLT-36, 6CLT-60)ではCLTパネルが梁に対してロッキングする挙動を示し、図6のようにCLTパネルが横長の試験体(試験体2CLT-60)では柱に対してロッキングする挙動を示した。

### 3. 数値解析

図7に試験体4CLT-60を例に試験体の解析モデルを示す。本研究では研究対象建物と同様のCLTパネルが縦長の試験体を対象とした。本モデルの最も特徴的な点はCLTパネルが梁に対してロッキングする挙動を、CLTパネルをM-N相関を考慮するMSバネに置換することで模擬した点である。図8に示すように解析結果は実験結果の骨格曲線を良好に評価した。また、本解析モデルから得られる応力図を力学的に修正することで、梁の保証設計に必要な知見を得る方法を提案した。力学的な補正を行う前と行った後とで結果を比較し、補正前の状態でも補正後とほとんど結果に差異がみられないことから、提案した解析モデルそのものの妥当性を確認し、提案した解析モデルが実務設計でも用いられる可能性を示唆した。これらの詳細については紙面の都合上、割愛する。

### 4. 結論

本研究では、持続可能な社会の実現のためにCLT耐震壁とRC架構を組み合わせた新たな工法の構造性能に関する研究を構造実験及び数値解析を用いて行った。構造実験ではCLT壁の有無、CLT壁の壁厚、CLT壁の分割数による影響を把握し、数値解析ではそれらの結果を模擬する解析モデルを提案し、提案した解析モデルが実務設計でも用いられる可能性を示唆した。

# 温室効果ガスの新たな活用法を拓く 異種二核金属錯体の創出

応用化学専攻 分子創成化学コース  
有機金属化学領域 生越研究室 水取 宥敬

## 1. 緒言

亜酸化窒素 ( $N_2O$ ) は二酸化炭素やメタンと同様に温室効果ガスであり、産業活動の拡大に伴って、その放出量は増加の一途を辿っている。また  $N_2O$  はオゾン層にも悪影響を及ぼす分子であり、その効率的な循環を実現する基盤技術の創出は重要である。<sup>1</sup> しかし、 $N_2O$  は反応性が乏しい不活性ガスの一つであり、従来の  $N_2O$  変換反応には高温・高圧条件が必要とされてきた。<sup>2</sup> ゆえに、 $N_2O$  を有用有機化合物の合成へ効果的に活用する、温和かつ高効率な分子変換技術の開発が求められている。

本研究では、ニッケルとアルミニウム (Ni/Al と表記)、又はニッケルとホウ素 (Ni/B と表記) を含む新規な二核金属錯体を創出し、その反応性を精査した。その過程で、Ni/B 錯体が  $N_2O$  と反応して、医薬品や機能性化合物合成の鍵中間体となる金属ビアリアル種を与えることを世界に先駆けて見出した (図 1)。なお、以降では鍵となる配位子として、窒素上にホスフィンオキシドを導入した *N*-ヘテロ環状カルベン (SPoxIm) を **L** と表記している。

## 2. Ni/Al 二核金属錯体の合成

ニッケルジカルボニル錯体 (*syn-κ-C,O*-**L**)Ni(CO)<sub>2</sub> (**1**)<sup>3</sup> と Al(C<sub>6</sub>F<sub>5</sub>)<sub>3</sub> (ACF) を反応させることにより、Ni/Al 錯体 (**2**) が 90% の収率で得ることを見出した (図 2A)。<sup>4,5</sup> <sup>31</sup>P NMR 測定により、ホスフィノイル基 (P=O) に対応するケミカルシフトが、錯形成に伴い 67.8 ppm から 82.2 ppm へ高磁場シフトしており、ホスフィノイル基の Ni からの解離が示唆された。別途、単結晶 X 線構造解析により、錯体 **2** においてホスフィノイル基が Ni から解離し、Al に配位していることを確認した。続いて、錯体 **2** に対してルイス塩基である 4-ジメチルアミノピリジン (DMAP) を作用させたところ、DMAP-Al(C<sub>6</sub>F<sub>5</sub>)<sub>3</sub> 付加体と錯体 **1** の再生が確認された。以上より、Al(C<sub>6</sub>F<sub>5</sub>)<sub>3</sub> の添加/除去によって、**1** と **2** の間で相互変換が進行することが示された。

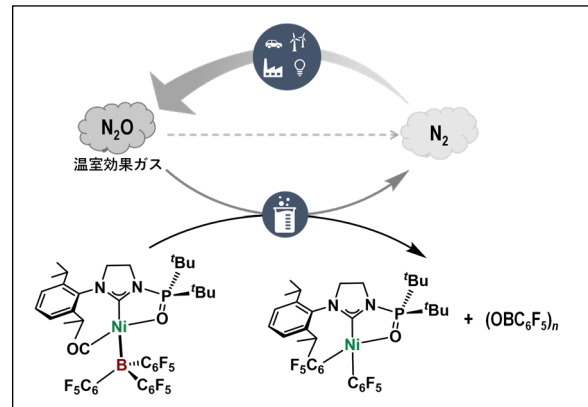


図 1:  $N_2O$  を利用した新規  
二核錯体による新たな変換反応の開拓

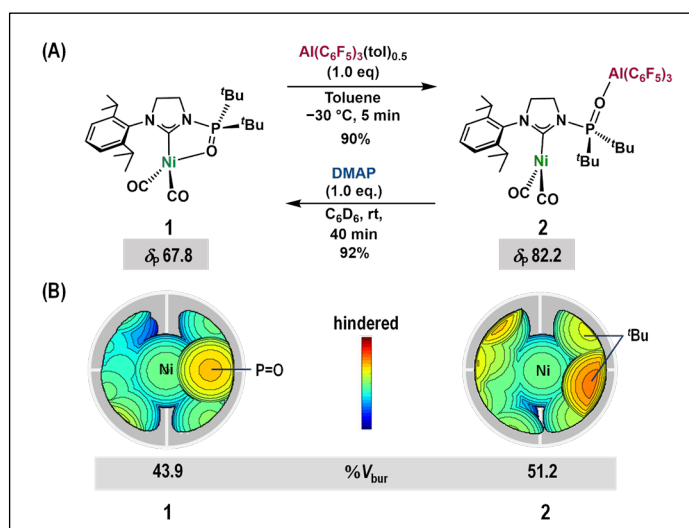


図 2: アルミニウムを介した錯体 **1** と錯体 **2** の相互変換



次に、Ni/Al 錯体の形成によるカルベン周辺の体積変化を定量的に評価するために、 $\%V_{\text{bur}}$ の計算を行った(図2B)。<sup>5</sup>  $\%V_{\text{bur}}$ はNi中心周辺において配位子が占める体積を表しており、この値が大きいほどその配位子が嵩高いことを意味している。錯体2の形成に伴い、 $\%V_{\text{bur}}$ の値は43.9から51.2と大きくなっており、Ni周りの空間体積および形状が顕著に変化していることが分かった。

### 3. Ni/B 二核金属錯体の合成とその反応性

続いて、配位子Lを有する新たな二核金属錯体の合成を狙って $\text{B}(\text{C}_6\text{F}_5)_3$ (BCF)の利用を検討した。その結果、錯体2に対応するNi/B錯体の形成は確認されず、かわりに、ホウ素へNiが直接配位したNi/B錯体3が73%の収率で得られた(図3)。本錯体はトリアリールボランを単座の $\sigma$ 受容性ボラン配位子として有する初めての報告例である。<sup>6</sup> 加えて、合成した錯体3に対して $\text{N}_2\text{O}$ を反応させたところ、トリアリールボラン中のアリール基がNiに移ったNiビアリール錯体4の形成を確認した。ここで、 $\text{N}_2\text{O}$ はNi/B錯体3に対する酸化剤として作用し、無害な窒素( $\text{N}_2$ )に変換された。今後は、生じたビアリール錯体4の有用有機化合物への変換を検討する。

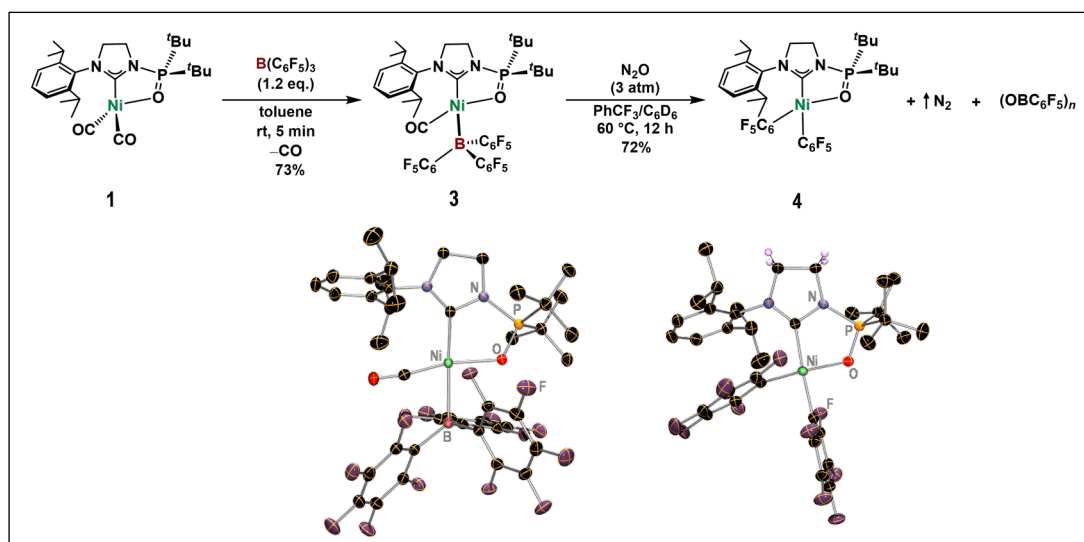


図3: Ni/B 錯体3と $\text{N}_2\text{O}$ の反応

### 4. まとめ

本研究では、ニッケルとルイス酸(Al又はB)を組み合わせたNi/AlおよびNi/B二核金属錯体を合成し、その特異な反応性を明らかにした。これらの二核金属錯体は、これまでに報告例がない外部刺激感応性や結合様式を含んでおり、基礎研究としての重要性が高い。特にNi/B二核金属錯体は、 $\text{N}_2\text{O}$ に対して興味深い反応性を呈し、医薬品や機能性化合物合成の鍵中間体であるビアリール金属種を効率的に発生させた。以上の観点から、本研究は、新たな分子の機能創出と地球温暖化ガスである $\text{N}_2\text{O}$ の革新的利用法の開拓を結びつける重要な成果を見出した。

### [参考文献]

- (a) A. R. Ravishankara, J. S. Daniel, R. W. Portmann, *Science* **2009**, 32, 123. (b) S. -Y. Pan, K. -H. He, K. -T. Lin, C. Fan, C. -T. Chang, *npj Climate and Atmospheric Science* **2022**, 43, 5.
- K. Severin, *Chem. Soc. Rev.* **2015**, 44, 6375.
- Y. Yamauchi, Y. Hoshimoto, T. Kawakita, T. Kinoshita, Y. Uetake, H. Sakurai, S. Ogoshi, *J. Am. Chem. Soc.* **2022**, 144, 8818
- Y. Yamauchi, Y. Mondori, Y. Uetake, Y. Takeichi, T. Kawakita, H. Sakurai, S. Ogoshi, Y. Hoshimoto, *J. Am. Chem. Soc.* **2023**, 145, 16938.
- L. Falivene, Z. Cao, A. Petta, L. Serra, A. Poater, R. Oliva, V. Scarano, L. Cavallo, *Nat. Chem.* **2019**, 11, 872.
- G. Erker, *Dalton Trans.* **2005**, 1883.

# 金属三次元積層造形における表層付近欠陥検出に関する研究

機械工学専攻 材料評価工学領域  
林研究室 山崎 惇史

## 1. 緒言

三次元積層造形技術 (Additive Manufacturing: AM) は、層ごとに構造を形作り、その層を積み上げていくことで、複雑な形状や内部構造を有する造形体の作成を行うことができる技術である。当初は材料として樹脂が主に使われていたが、最近では金属の積層造形技術についても Powder Bed Fusion (PBF) 法をはじめとした方法が開発されている。しかし、造形原理上空隙やひび割れ、剥離等の欠陥が生じやすく、強度の必要な部分でこの技術を用いて作成された部品を使用することは困難である。造形中に検査ができれば、直ちに欠陥部を補修した後に次の層の造形に移ることで最終的に欠陥のない造形体を作ることにつながるため、造形中の検査には意義があるが、有効な検査技術の確立には至っていない。

レーザ超音波法は、レーザを材料表面に照射し、その熱で発生する熱ひずみによって超音波を励振させ、その超音波で検査を行う方法であるが、この方法は非接触でかつ、PBF 法での造形に使われることの多いレーザを用いて検査できるという点で、造形中の検査手法として有力な候補に挙がる。先行研究[1]では、レーザ超音波法の一つであるレーザ弾性波源走査法を用いて造形後の造形体の欠陥画像化を行っている。しかし、その研究では、造形中に検査を行う仕組みの構築には取り組めていなかった。そこで、本研究では、先行研究の手法を応用し、金属粉末から構造を作成した造形体の表層付近欠陥のその場検出手法に関して検討を行う。

## 2. 実験装置と実験手法

レーザ弾性波源走査法とは、定められた領域で超音波発生用のレーザを走査させ、各点で超音波を発生させた上で固定された点で超音波を受信する超音波計測方法である[1] (図1)。欠陥のない部分にレーザを照射すると得られる超音波の振幅は小さくなる (図1上) のに対し、欠陥部にレーザを照射すると欠陥直上の部分が特別な周波数特性を持つことにより欠陥部局所共振が発生し、超音波の振幅が大きくなる (図1下)。走査領域各点で取られた波形について、振幅の二乗和をとり、その値が大きいところを黒、小さいところを白とすることで、欠陥の位置が黒となる欠陥画像を得ることができる。

実験装置として、不活性ガスを注入でき、実際の積層造形環境を実現できるチャンバーを用意する。その内部の様子を図2に示す。造形中の検査では、金属粉末から造形体を作っていく都合上、超音波を受信するトランスデューサを造形体に直接取り付けることは不可能である。そこで、造形を行うビルドプレート裏に取り付けることで、造形を妨げずに検査できる。

まず、PBF 法の手法に則り、金属粉末をレーザで溶融させ1層の構造を形作り、その層を積み上げていく。その際、意図的に

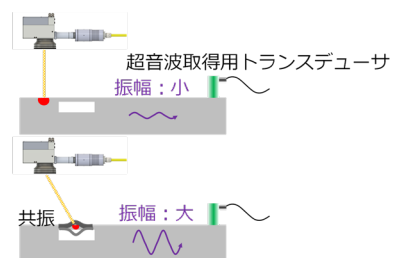


図1：レーザ弾性波源走査法の原理

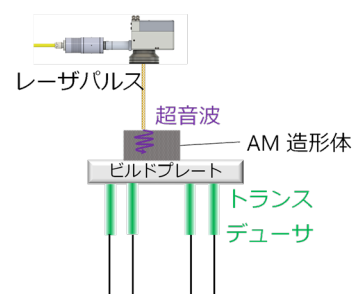


図2：チャンバー内の様子

未熔融部を導入する。その後、未熔融部直上に4 mm×4 mmの走査領域を定め、その走査領域上に等間隔でレーザ照射点を定め、各点に対してレーザパルスを照射し、超音波を発生させる。すると、超音波が造形体とビルドプレートを伝播し、トランスデューサにより受信される。各点の波形を収集し、強度が大きいところを黒、小さいところを白とすることで、欠陥位置を示す画像が得られる。黒く示された場所が有欠陥部であると考えられる場所である。

### 3. 実験結果と考察

PBF法の手法に則り、図3のような寸法で表される造形体をビルドプレート上に作製した。この造形体は、底面が5 mm×5 mmの正方形で、高さが0.5 mmの直方体形状をしており、表面から深さ0.1 mmの場所に底面が2.5 mm×2.5 mmの正方形、高さが0.3 mmの直方体状の未熔融部が導入されている。この未熔融部をレーザ弾性波源走査法を用いて検出することを目指す。

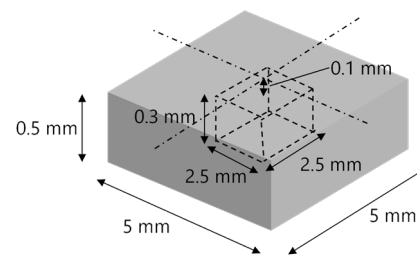


図3：作製した造形体の寸法

欠陥直上の4 mm×4 mmを画像化領域として定め、プレートに固着した造形体に対してレーザ弾性波源走査法を適用し画像化を行った結果を図4 (a)に示す。これを見ると、多くの点で局所的な超音波強度の増大が見られ、欠陥部らしきものを画像から観測することは困難であった。そこで、導入した欠陥の共振周波数が含まれると考えられる、比較的低い周波数帯のみに注目することにした。0-0.4 MHzの周波数ゲートをかけた結果得られた欠陥画像を図4 (b)に示す。これを見ると、鮮明とは言えないがおおよそ2.5 mm×2.5 mmの正方形領域に超音波強度が高い領域が集中しているように見える。このことから、造形中の造形体の表層付近欠陥を画像化できる可能性が示された。

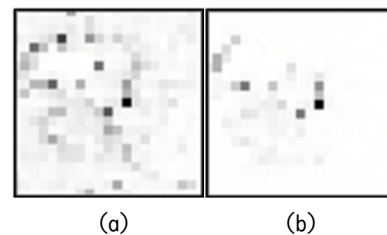


図4：欠陥画像化の結果

(a)周波数ゲートなし

(b)0-0.4 MHzの周波数ゲート

局所的な超音波強度の増大は造形時に導入された微小な欠陥や表面の粗さに起因していると考えられる。実際、本実験装置を用いて作成した造形体をやすりで削ったところ、表面の外観が大きく変化したほか、微小な空隙が多数観測された。そのため、より意図した欠陥の画像を鮮明化するためには造形体の品質を上げることが必要であると考えられる。また、表面の層を形作る際に、未熔融部として残すべき領域も熱により一部が熔融・凝固してしまい、未熔融部が想定よりも表面から深いところに形成されてしまったことも、欠陥画像が不鮮明になった理由として挙げられる。

### 4. 結言

本研究では、表層付近に意図的に欠陥を導入した、金属粉末から作製した造形体に対しての欠陥のその場検出に取り組んだ。実際の金属積層造形のプロセスに則り造形体を作製し、その際に意図的に未熔融部を導入し、それを画像化したところ、鮮明な欠陥画像が得られない、という結果になった。そこで、周波数ゲートにより低周波数帯の成分のみを用いて画像化したところ、わずかながら意図した欠陥部が強調される画像が得られた。

### 参考文献

- [1] T. Hayashi, N. Mori, T. Ueno, Non-contact imaging of subsurface defects using a scanning laser source, Ultrasonics. 119 (2022) 106560. <https://doi.org/10.1016/j.ultras.2021.106560>.

# N-アリアルピラゾールを用いたアラインのオリゴマー化

応用化学専攻 分子創成化学コース  
機能有機化学領域 鷲巣研究室 山村 志悟

## 1. 緒言

ポリフェニレンは太陽電池、トランジスタ、発光ダイオードなどの有機半導体材料への応用が期待されている。ポリフェニレンは、多数のベンゼンが単結合でつながった最も単純な芳香族高分子の一つであり、その結合様式からオルト置換体(POPs)、メタ置換体およびパラ置換体に分類することができる(Fig. 1a)。中でも、POPsは立体的な要因から、らせん構造をとることが知られている。この構造に起因した特徴的な酸化還元特性や光化学特性を持つため、近年注目されている。<sup>1)</sup>しかし、古くから精力的に研究されているメタ置換体およびパラ置換体と比較して、POPsは合成が困難であるため、近年までほとんど発展してこなかった。したがってPOPsの新規合成法の開発が求められている。

本研究では、POPsの合成法としてアライン(ベンゼンの二重結合の1つが三重結合に置き換わった化合物)の重合に注目した(Fig. 1b)。しかし、アラインは高活性・短寿命の化学種であるため、アラインそのものの重合は難しく、報告例は限定的である。<sup>2)</sup>そこで本研究では、N-アリアルピラゾールを開始剤とするアラインのオリゴマー化を着想した(Fig. 1c)。

## 2. 作業仮説

本反応では、はじめにピラゾールがアラインに対して求核付加することで双性イオン中間体 Int-1 が生成する。次に、発生したアニオンが分子内の赤で示す炭素に求核攻撃し安定な5員環遷移状態 TS-1 を経由する。続くピラゾールの脱離により炭素-炭素結合が形成される。生成物の構造を見ると、原料のN-アリアルピラゾールの部分構造が再生している。したがって、ここから同様にピラゾールがアラインと反応すれば、順次、アラインが挿入していくことになる。反応全体としてはアラインがN-アリアルピラゾールの炭素-窒素結合間に挿入することで高分子鎖が伸長するという反応形式である。(Fig. 1c)。

ここで、ピラゾールを用いる利点は2点ある。1点目は不安定なアニオンがすぐに分子内反応し、安定な5員環遷移状態をとることで重合が進行する点である。2点目は活性末端のピラゾールが安定に存在し続ける点である。したがって、重合反応以外の副反応が存在しないため、長さのそろったアラインのオリゴマー化が期待できる。

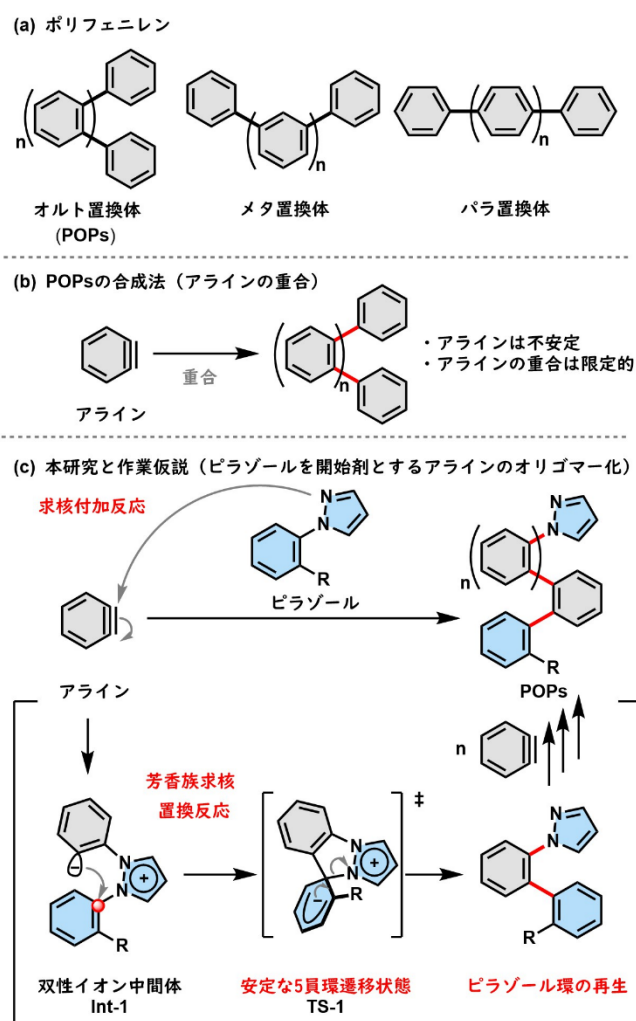


Fig.1 アラインの重合によるポリオルトフェニレン(POPs)の合成

### 3. 実験結果

実際に、*N*-アリールピラゾールを開始剤として、アラインを過剰量反応させた。MALDI-TOF-MSによる分子量測定の結果、多量体の生成が確認でき、その分子量間隔は、繰り返し単位であるアラインの分子量と一致していた (Fig. 2)。つまり、当初の作業仮説の通り、アラインのオリゴマー化反応が進行していることがわかった。次にサイズ排除クロマトグラフィーにより合成した多量体の平均分子量の測定を行った。その結果、数平均分子量 1800、重量平均分子量 2060、分子量分布の指標である  $M_w/M_n$  は 1.14 であることがわかった。 $M_w/M_n$  は 1 に近ければ近いほど長さがそろっている。また、得られたオリゴマーにさらにアラインを追加すると、平均分子量が増大した。これは、活性末端が存在し続けていることを示唆する結果である。つまり、ピラゾールを開始剤とすることでアラインのリビングオリゴマー化反応が達成された。(Fig. 3)。

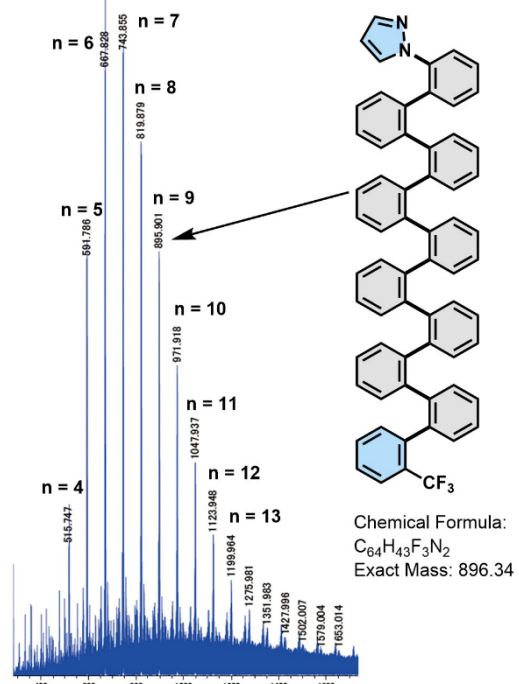


Fig. 2 MALDI-TOF MSによる分子量測定

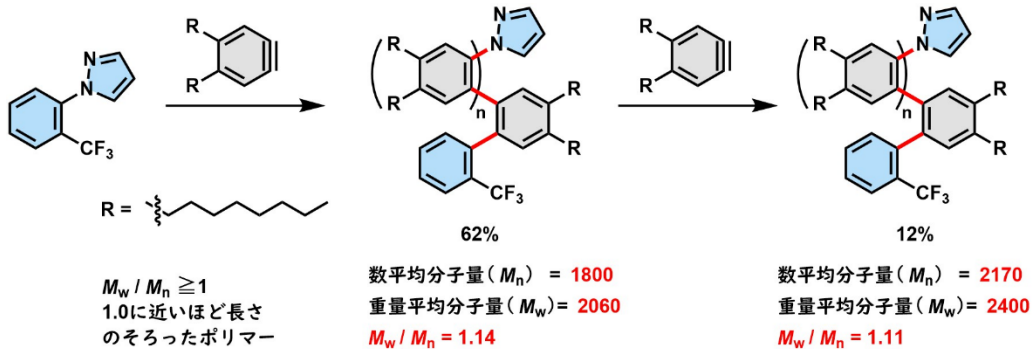


Fig.3 サイズ排除クロマトグラフィー測定による平均分子量・分子量分布の測定

### 4. まとめ

本研究では *N*-アリールピラゾールを開始剤とするアラインのオリゴマー化反応を開発した。本反応はオリゴオルトフェニレンの新規合成法であり、*N*-アリールピラゾールの炭素-窒素結合間にアラインの連続的な挿入が進行することで高分子鎖が伸長する。さらに、ピラゾール環が常に活性末端に存在し、副反応が存在しないため、長さのそろったオリゴマーが合成可能である。今後は、重合反応の効率を改善するとともに、得られたオリゴマーの構造解析や物性解析、ピラゾールを用いた新しい重合反応や触媒反応を探索する。

### 5. 参考文献

- (a) Hartley, C. S. *Acc. Chem. Res.* **2016**, *49*, 646.  
 (b) Ohta, E.; Sato, H.; Ando, S.; Kosaka, A.; Fukushima, T.; Hashizume, D.; Yamasaki, M.; Hasegawa, K.; Muraoka, A.; Ushiyama, H.; Yamashita, K.; Aida, T. *Nat. Chem.* **2011**, *3*, 68.
- (a) Mizukoshi, Y.; Mikami, K.; Uchiyama, M. *J. Am. Chem. Soc.* **2015**, *137*, 74.  
 (b) Bürger, M.; Ehrhardt, N.; Barber, T.; Ball, L. T.; Namyslo, J. C.; Jones, P. G.; Wertz, D. B. *J. Am. Chem. Soc.* **2021**, *143*, 16796.

# 局所的な振動を考慮した多点振動計測による 高速鉄道橋梁の動的挙動解析と加速度基準の検証

地球総合工学専攻 社会基盤工学コース  
社会基盤マネジメント学領域 四井 陽貴

## 1. はじめに

高速鉄道橋梁では、通過する車両の規則的な車軸配置による加振振動数と橋梁の固有振動数が近接することにより列車通過時に動的応答が増大する共振現象が発生する場合がある。鉄道橋の共振現象に対しては国内外で数多くの研究が実施され管理基準の整備が進められてきた。桁の最大変位が基準となっている日本の高速鉄道とは異なり、欧州の構造物基準である Eurocode では列車通過時の床版加速度に基準値が設定されている。この基準値は車輪がレールから浮き上がることや支承の浮きを防止する観点で設定されており、本研究で取り扱う軌道構造の場合には  $5\text{m/s}^2$  が上限値となっている。

しかし、欧州高速鉄道では床版加速度が基準値であるにも関わらず、慣例的に桁に生じる加速度を計測して床版加速度の照査が実施されている。列車通過時に桁全体の振動だけでなく床版部材単位の局所的な振動が卓越する場合には、このような照査方法では実際に生じている加速度の過小評価につながっている可能性がある。実測結果に基づいて床版部材単位の振動を評価するためには面的な多点加速度計測による振動モード同定が必要である。ただし実橋梁を対象とした加速度の実測事例は数少なく、実測結果に基づいて Eurocode 基準を検証した事例も、本研究とは軌道構造が異なる合成桁を対象とした研究<sup>1)</sup>が存在する程度であった。このように列車通過時の動的挙動解析が十分実施されていない状況であったことから、本研究では日本のコンクリート箱桁橋を対象に加速度計測を実施して Eurocode 基準を評価した。

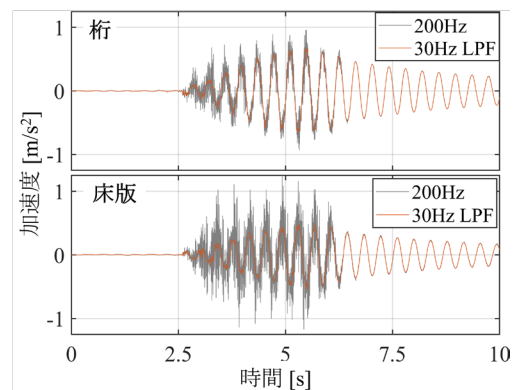
## 2. 検討手法の概要

箱桁内部の上面と下面に合計 23 台の加速度計を設置し、計 24 列車通過時の加速度を測定した。桁下面の計測点は桁全体の挙動を把握するために設置した。桁上面の加速度計は床版部材の面的な振動を把握するために設置し、横桁と偏向部隔壁に囲まれた領域を一単位と考えて 2 次元平面状にアレイ配置した。得られた波形から Eurocode の基準である 30Hz ローパスフィルタ (LPF) 加速度を算出し分析した。

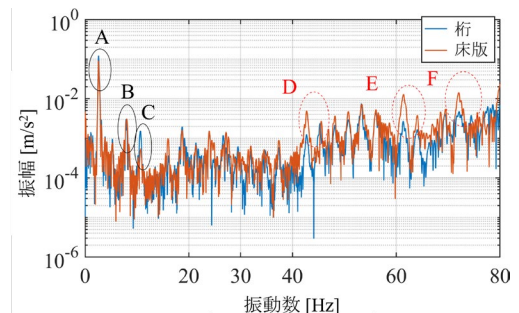
振動モードの同定には ERA (Eigensystem Realization Algorithm) を適用した。ERA は線形時不変システムを仮定して最小実現の考え方に基づいて多点で計測された自由振動波形から振動特性を同定する手法である。本研究では、列車通過後の残存波形を自由振動波形とみなして ERA を適用し、各振動モード形の固有振動数とモード減衰比を同定した。

## 3. 加速度計測と振動モードの同定結果

計測された加速度波形の事例を図-1(a)に示す。加速度の最大値は Eurocode の基準値  $5\text{m/s}^2$  を大きく下回っている。また、30HzLPF 加速度は床版部材振動モードの影響が反映さ



(a) 加速度波形の比較



(b) 加速度スペクトル

図-1 桁と床版の加速度計測結果の事例

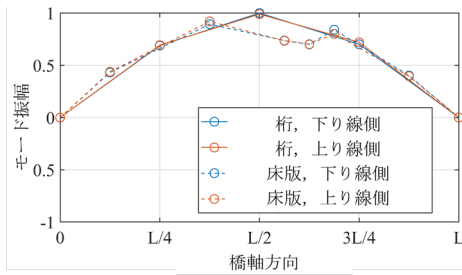


図-2 桁全体振動モード (1次曲げ 2.58Hz)

れる床版計測点で桁計測点より値が小さく、床版部材振動が卓越する状況にはなっていないことが明らかとなった。(b)に示す加速度スペクトルの比較でも、D から F に示すような床版のみで卓越するピークは 30Hz 以下の範囲では確認できない。30Hz 以下で比較的大きなスペクトル振幅を有するピーク A から C は桁と床版で同等程度の振幅を有していることから桁全体振動に対応していると考えられ、この仮説をモード同定により検証した。

桁全体振動モードは、図-2 に示す 1 次曲げ (2.58Hz) に加えて 1 次ねじれ (7.88Hz)、2 次曲げ (9.25Hz) の合計 3 モードが同定された。これらの固有振動数は図-1 (b) で示した 3 つのピーク A, B, C にそれぞれ対応する振動数になっていた。また、図-3 は床版部材の振動モードである。合計 4 モードが同定されたが、2 種類の 1×1 次モード (図-3 では A と B で区別) が存在した。本研究では隣接床版部材との位相関係を比較し、隣接床版と同位相か逆位相による連成性状の違いとして結果を考察した。図-4 は、当該床版の計測点 (D7 と記載) と隣接する床版部材の同じ位置の計測点 (図中では D1, D14 と記載) とのクロススペクトルの位相を算出した結果である。A モードでは両方の隣接床版と逆位相であるのに対して、B モードは片側と同位相であることが確認できる。同位相モードの場合には、隣接床版に回転を拘束されるため周辺固定支持の条件に近づくのに対して、逆位相モードの場合には周辺単純支持の条件に近くなる。実際に同定結果を計算値と比較した結果、A モードは周辺単純支持された平板振動の理論値と、B モードは固有値解析によって算出された周辺固定支持された平板の固有振動数と一致した。このように多点情報を生かすことにより連成性状も考慮した列車通過時の局所的な動的挙動を解明した。

さらに、以上の床版部材の局所的な振動を考慮した動的挙動解析の結果を踏まえると、分析対象としたコンクリート箱桁橋では桁全体の 1 次曲げ振動が卓越しているため、慣例的に実施されていた床版加速度を桁加速度で代用した照査でも実際に生じている加速度の過小評価にはつながっていないといえる。

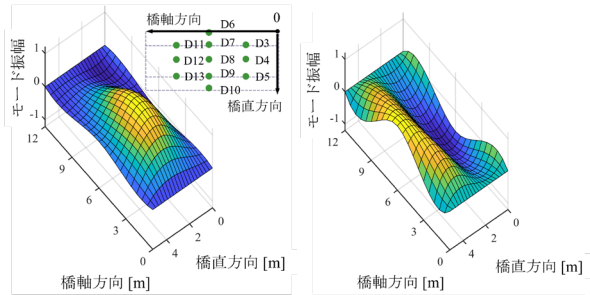
#### 4. おわりに

本研究では加速度の面的な多点計測によって、分析対象の高速鉄道橋梁では局所的な床版部材単位の振動を考慮しない照査でも、Eurocode の加速度基準に対して過小評価につながっていないことを実証した。

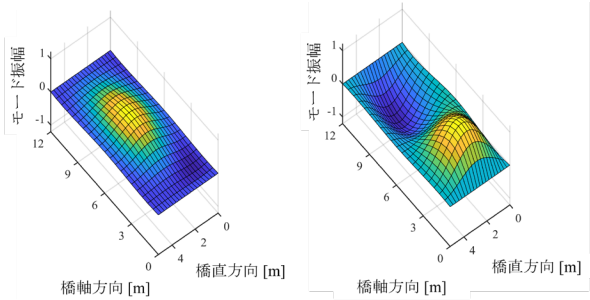
#### 参考文献

- 1) Matsuoka, K., Collina, A., Somaschini, C and Sogabe, M.: Influence of local deck vibration on the evaluation of the maximum acceleration of a steel-concrete composite bridge for a high-speed railway, *Engineering Structures*, Vol.200, 109736, 2019.

謝辞：本研究の実施にあたっては、指導教員である貝戸清之先生ならびに公益財団法人鉄道総合技術研究所の皆様にご多大なご支援を賜りました。深く感謝申し上げます。



(a) 1×1 次 A (23.9Hz) (b) 1×2 次 (41.1Hz)



(c) 1×1 次 B (52.7Hz) (d) 2×1 次 B (60.3Hz)

図-3 床版部材振動モード

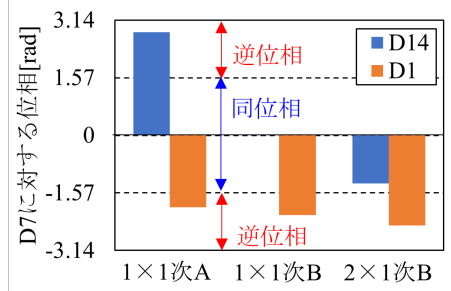


図-4 隣接床版との連成性状