

令和6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

マテリアル生産科学専攻 マテリアル科学コース 吉矢研究室
新井 太一 [AM急冷凝固環境における \$\beta\$ -Ti合金の空孔・置換元素拡散挙動解析](#)

物理学系専攻 精密工学コース 渡部研究室
大西健太郎 [量子デバイス応用に向けたSiO₂/SiC界面単一光子源の研究](#)

地球総合工学専攻 船舶海洋工学コース 船舶知能化領域
勝村 佳司 [ポート・ハミルトン系モデルを用いたパラメトリック横揺れの舵減揺手法の開発](#)

マテリアル生産科学専攻 生産科学コース 生産プロセス講座 接合界面制御学領域 神原研究室
久徳 空 [表面自由エネルギー視座による次世代高密度LIBナノ粒状負極高安定構造化指針の検討](#)

応用化学専攻 物質機能化学コース 有機電子材料科学領域 中山研究室
栗原 怜央 [高効率有機ELデバイス用ヘプタジン-カルバゾール誘導体の開発](#)

応用化学専攻 物質機能化学コース 佐伯研究室
小林 泰 [光電変換素子における新奇波長識別現象の機構解明と機能発展](#)

環境エネルギー工学専攻 環境工学コース 共生環境評価領域 嶋寺研究室
Supitcha SUKPRASERT [機械学習によるPM_{2.5}濃度高精度推定手法の開発](#)

生物学専攻 生物学コース 大政研究室
空田 和也 [CHL-YN細胞の生細胞濃度向上に向けた重要培地成分の検討](#)

地球総合工学専攻 建築工学コース 木多研究室
中村 大智 [大阪市域における「農的土地利用」の残存及び発生背景と共同利用に至るメカニズムの解明](#)

ビジネスエンジニアリング専攻 倉敷研究室
西村 壮真 [CNT添加エネルギーダイレクタを用いた熱可塑性CFRPの超音波融着接合に関する研究](#)

機械工学専攻 機械工学コース 東森研究室
宮崎 悠人 [柔軟ビームの動特性を活用した非同期型高速リサージュ曲線状振動生成法](#)

環境エネルギー工学専攻 エネルギー量子工学コース 量子反応工学領域 村田研究室
守實 友梨 [ホウ素中性子捕捉療法における深部がん治療のための中性子ビーム特性評価](#)

機械工学専攻 機械工学コース 森島研究室
山本康太郎 [昆虫サイborgの生体情報解析に向けた2次元・3次元神経マップの構築](#)

物理学系専攻 応用物理学コース バルマ研究室
楊 恵詩 [高速AFM/ラマン分光マルチモーダル計測装置の開発](#)

AM 急冷凝固環境における β -Ti 合金の空孔・ 置換元素拡散挙動解析

マテリアル生産科学専攻 マテリアル科学コース
吉矢研究室 新井 太一

1. 要約

金属チタンおよびチタン合金は、積層造形 (AM) 技術の観点から実用化候補材料の一つである。本研究では、レーザー溶融後の急冷凝固の要素過程を明らかにするために、分子動力学計算を行い、凝固駆動力の関数としての固液不均一界面エネルギーとその易動度を求めた。次に、結晶方位が異なる固液界面の界面易動度と界面エネルギーを用いて、フェーズフィールドモデリングによる連続体ベースのシミュレーションを行い、微細構造を注意深く調べた。その結果、置換元素の拡散が核生成頻度に大きく影響することがわかった。

2. 研究背景

3D プリンティング技術を用いた積層造形は、外形だけでなく内部の微細構造、ひいては材料特性をも調整する材料加工の新たな道を切り開いた^{[1][2][3]}。選択的レーザー溶融や粉末床溶融の場合、材料の急速な溶融と凝固が繰り返される。したがって、従来の casting や凝固の理論を 3D プリンティングに適用できるかどうかは、まだ不明である。加えて、急速な溶融と凝固は、従来の casting や凝固と比較して、巨視的なプロセスの背後にある物理的な洞察や、急速な凝固中の元素プロセスの詳細な理解を得るためのその場モニタリングの実施をさらに困難にしている。

3. 研究手法

レーザー溶融後の急冷凝固過程における β -Ti の微細構造に対する元素置換の影響を明らかにするために、分子動力学計算を行い、凝固駆動力の関数としての固液不均一界面エネルギーとその易動度を求めた。次に、結晶方位が異なる固液界面の界面易動度と界面エネルギーを用いて、フェーズフィールドモデリングによる連続体ベースのシミュレーションを行い、微細構造を注意深く調べた。

4. 結果

Cr の拡散 (Fig.1 (a)) は、拡散しない場合 (Fig.1 (b)) に比べて核生成頻度が増加することがわかった。一方、Ga の拡散 (Fig.1 (c)) は、拡散しない場合 (Fig.1 (d)) に比べて核生成頻度が減少することがわかった。この核生成頻度の変化は、固液界面近傍の置換元素の濃度分布に起因している。Fig.2 は、核成長に関する固液界面近傍の置換元素濃度分布を示している。固液界面の固体側では Cr の濃度が液体側よりも高く、固液界面の液体側では Ga の濃度が固体側よりも高いことがわかった。この結果は、固液界面近傍での置換元素の拡散が核生成の駆動力を変化させることを示している。

5. 結言

本研究から、置換元素の拡散が核生成頻度に大きく影響することがわかった。具体的には、Cr の拡散は拡散しない場合に比べて核生成頻度を増加させる。逆に、Ga の拡散は、拡散しない場合に比べて核生成頻

度を減少させる。これらの核生成頻度の変化は、固液界面近傍の置換元素の濃度分布に起因している。これらの洞察は、核成長中の材料特性に影響を与えるために元素拡散をどのように操作できるかについて深い理解を与える。Crの濃度は界面の固体側で高く、Gaの濃度は液体側で高い。この分布は核生成の駆動力を変化させ、固液界面近傍での置換元素の拡散が核生成プロセスの制御に重要な役割を果たしていることを示している。

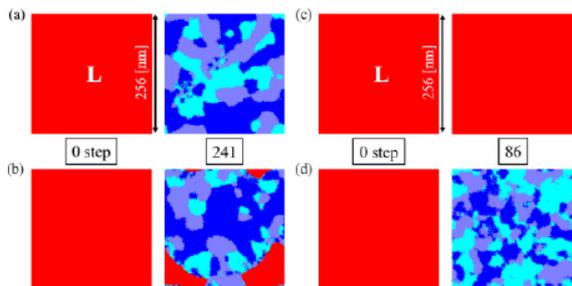


Fig. 1 連続核生成中のCr置換 β -Tiの微細構造。赤は液相、青は固相。(a)Cr拡散、(b)Cr非拡散、(c)Ga拡散、(d)Ga非拡散。

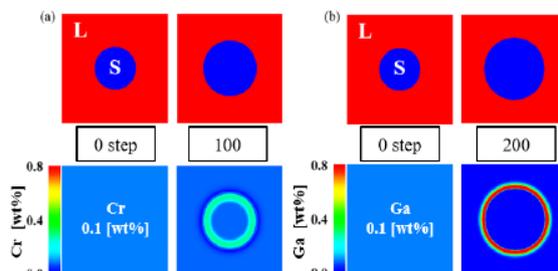


Fig. 2 核成長中の固液界面近傍における置換元素の濃度分布。(a)Cr拡散、(b)Ga拡散。

6. 謝辞

本研究の遂行にあたり、研究の進め方や学び方から、研究内容の深化に至るまで、惜しみないご指導と温かいご支援を賜りました大阪大学大学院工学研究科マテリアル生産科学専攻の吉矢真人教授に、深く感謝の意を表します。また、本研究を進める過程において、多角的かつ建設的な議論を重ねていただき、幅広い視点から丁寧にご指導と助言を賜りました九州大学大学院工学研究院材料工学部門の藤井進准教授に、心より感謝申し上げます。さらに、日々研究に専念できる環境を整え、陰ながら多大なるご支援を賜りました堀田英子様、この場を借りて深く御礼申し上げます。最後に、研究活動全般にわたり、日常的に活発な議論を交わし、共に切磋琢磨する機会を与えてくださった吉矢研究室の皆様、心より感謝の意を表します。

7. 参考文献

- [1] T. Ishimoto, K. Hagihara, K. Hisamoto, S. Sun and T. Nakano, “Crystallographic texture control of beta-type Ti-15Mo-5Zr-3Al alloy by selective laser melting for the development of novel implants with a biocompatible low Young’s modulus”, *Scr. Mater.*, 132 (2017) 34-38
- [2] B. Vrancken, L. Thijs, J.P. Kruth and J. Van Humbeeck, “Microstructure and mechanical properties of a novel β titanium metallic composite by selective laser melting”, *Acta Mater.*, 68 150 (2014)
- [3] L. Thijs, K. Kempen, J.P. Kruth and J.V. Humbeeck, “Fine-structured aluminium products with controllable texture by selective laser melting of pre-alloyed AlSi10Mg powder”, *Acta Mater.*, 61 1809 (2013)

量子デバイス応用に向けた SiO₂/SiC 界面単一光子源の研究

物理学系専攻 精密工学コース
渡部研究室 大西 健太郎

1. はじめに

近年、膨大な情報の処理や完全秘匿な暗号通信の実現に向け、量子コンピュータや量子暗号通信の実用化が期待されている。これらの量子デバイスには、識別不能な単一光子を任意のタイミングで取り出せる単一光子源 (Single Photon Emitter, SPE) が重要である。半導体中の発光中心は SPE として利用可能であり、各種デバイス技術を駆使することで、スケーラブルな量子デバイスの実現が期待されている。炭化ケイ素 (SiC) は、長年にわたるパワーデバイスの研究開発により、結晶成長、伝導型制御、微細加工などの半導体プロセス技術が確立しており、量子デバイス応用に適している。SiC の発光中心は結晶中だけでなく、SiO₂/SiC 界面にも存在することが報告されており、特に界面発光中心の発光強度は、量子研究分野で最も有名なダイヤモンド中の窒素-空孔中心 (NVセンター) を上回ることで知られている[2]。しかし、界面発光中心の形成過程や微視的起源は明らかではない。

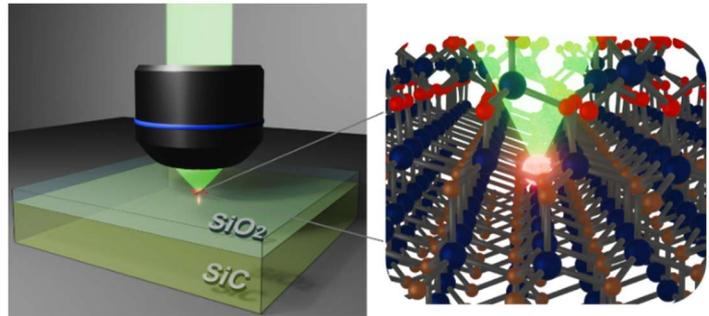


図1: SiO₂/SiC 界面発光中心の模式図[1]

2. SiO₂/SiC 界面発光中心の形成過程の研究[3]

SiO₂/SiC 界面発光中心は、SiC 表面の熱酸化により形成される[4]。しかし、一般的な熱酸化条件で形成した SiO₂/SiC 界面には発光中心が高密度に存在し、発光のオーバーラップにより単一光子性が劣化してしまう[5]。

そこで、私は界面発光中心の形成過程の理解及び密度制御に向け、予め発光中心のない高品質な SiO₂/SiC 界面を形成したのち、界面発光中心を後から形成する方法を考案した。具体的には、初めに超高温 (1600°C) かつ低酸素分圧雰囲気下での酸化により高品質 SiO₂/SiC 界面を形成し、後から低温(200–1000°C)での酸化を施すことで、界面発光中心を形成するアプローチをとった。

結果として、酸化温度 800°C 以上で高輝度な発光中心の形成が見られ、図 2(a)の共焦点フォトルミネッセンス (PL) マッピング像の例に示すように、孤立した発光中心の形成が確認できた。また、Hambury-Brown Twiss 測定を実施した結果、測定した全ての発光中心に対して強度相関関数 $g^{(2)}(0)$ は 0.5 を下回り、発光の単一光子性が示された (図 2(b))。本研究により、SiO₂/SiC 界面発光中心の形成過程に関する理解を構築すると共に、界面単一光子源を制御性よく形成する手法を確立した。

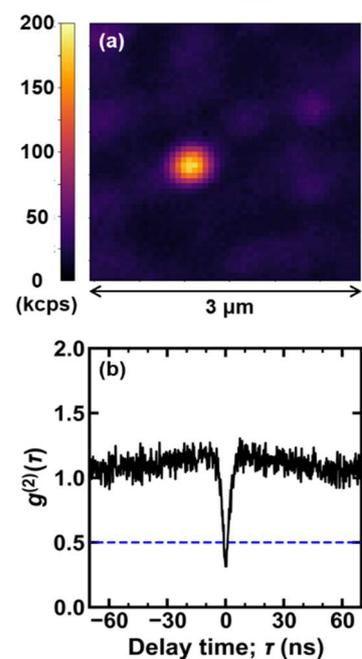


図2: 界面発光中心の(a)共焦点 PL マッピング像、および (b)強度相関関数の例[3]

3. SiO₂/SiC 界面欠陥の発光中心の起源解明の研究[6]

SiO₂/SiC 界面発光中心は優れた特性を有するものの、量子技術応用には至っていない。量子技術応用には界面発光中心の光学特性(発光波長、偏光など)を精密に制御する必要がある。特に、界面発光中心の起源は明らかではなく、これが実用化を阻む大きな要因の一つである。

そこで、私は発光中心の起源解明に向け、発光中心と電氣的欠陥との相関に着目して研究を行った。具体的には、SiC の熱酸化時の酸化温度と酸素分圧とを広範囲で変化させることで、界面欠陥密度を広範囲に変化させた試料水準を準備した。作製した試料に対し、詳細な光学特性および電気特性評価を実施することで、界面発光中心の起源に迫った。

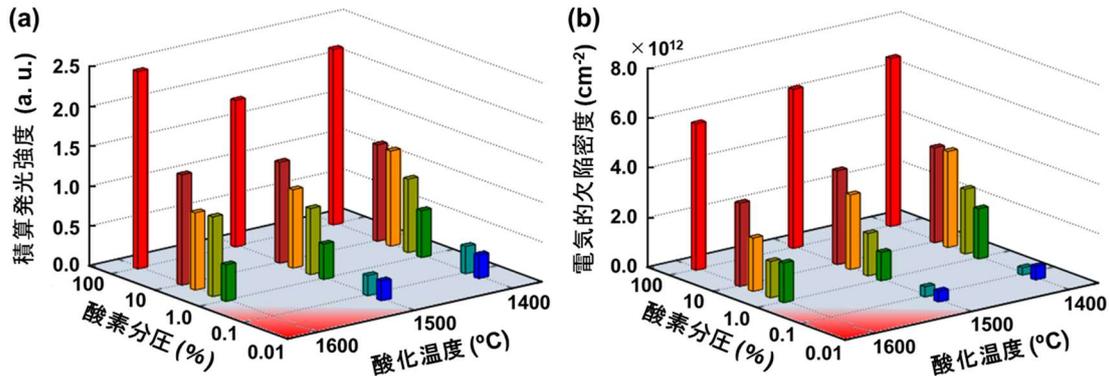


図3: SiO₂/SiC 界面における(a)発光中心の積算発光強度と(b)電氣的欠陥密度[6]

図3に示すように、結果として発光中心と電氣的欠陥は酸化条件に対して同一の振る舞いを示すことが明らかとなった。これらの相関係数を求めたところ0.95と高く、強い正の相関が得られた。このようにして、界面発光中心と電氣的欠陥が共通の起源に由来することを示した。

さらに詳細な解析を進め、界面発光中心がSiCの伝導帯下端から0.65–0.92 eVのエネルギー位置に欠陥準位を形成することを突き止めた。本結果を先行の理論研究と照らし合わせたところ、発光中心の有力候補は、界面近傍SiC中の置換型炭素ダイマー(SiC中のSiが2つのCに置き換わった構造(図4))であることが分かった。本研究で確立した欠陥の基礎的理解に基づき、今後発光中心の光学特性制御の進展が期待される。

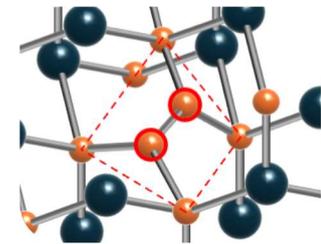


図4: 置換型炭素ダイマー欠陥

4. まとめ

本研究では、SiO₂/SiC 界面における発光中心の形成過程と起源解明の研究に取り組んだ。その結果、界面発光中心の密度制御を達成し、単一光子源を制御性よく形成する手法を確立した。また、発光中心と電氣的欠陥の相関を評価したところ、これらは同一の起源に由来することが分かり、界面発光中心のエネルギー準位を突き止めた。本研究成果をもとに、今後界面発光中心の光学特性制御が進めば、界面発光中心を単一光子源として活用した量子技術の実現が期待される。

5. 参考文献

- [1] 大阪大学 ResOU プレス発表記事 (https://resou.osaka-u.ac.jp/ja/research/2025/20250228_1)
- [2] A. Lohrmann *et al.*, Nat. Commun. 6, 7783 (2015).
- [3] K. Onishi *et al.*, Appl. Phys. Express 17, 051004 (2024).
- [4] A. Lohrmann *et al.*, Appl. Phys. Lett. 108, 021107 (2016).
- [5] T. Nakanuma *et al.*, Appl. Phys. Lett. 123, 102102 (2023).
- [6] K. Onishi *et al.*, APL Mater. 13, 021119 (2025).

ポート・ハミルトン系モデルを用いた パラメトリック横揺れの舵減揺手法の開発

地球総合工学専攻 船舶海洋工学コース
船舶知能化領域 勝村 佳司

1. 諸言

パラメトリック横揺れは波浪中の船舶に生じる危険な横揺れ現象の一つである。パラメトリック横揺れは波浪中の復原力変動に起因する現象であり、非線形力学分野ではパラメトリック励振と呼ばれる。その発生は特にコンテナ船などの船種で顕著であり、パラメトリック横揺れが原因とされるコンテナ流出事故も、以前から問題となっている。このような危険な現象であるパラメトリック横揺れを防ぐため、その発生条件や横揺れ振幅に関する理論的推定法、リスク評価などの研究が数多く行われてきた。



図1：パラメトリック横揺れの様子

不規則波中のパラメトリック横揺れを扱う際には、有色雑音で励起されるシステムを扱う必要がある。このような確率的なシステムを扱う方法として、確率論的平均化法やモーメント方程式を用いる方法などが提案されてきた。

一方、船体の横揺れ運動を制御によって積極的に防ごうとするアプローチも存在する。船舶における主要な入力器である舵によって船舶の横揺れ運動を安定化させようとするRRS(Rudder Roll Stabilization)はその手法の一つである。船舶が変針するために舵を切る際、回頭モーメントに加え横揺れ方向の傾斜モーメントが発生する。これを利用した横揺れ運動の舵による減揺手法がこれまで数多く研究されてきた。パラメトリック横揺れに対する舵減揺は、これまでにPID制御をベースにした研究が行われ、模型試験や実船試験によってその効果が検証された。しかしながら、PID制御はシステムの理論的安定性を保証せず、ゲインチューニングも容易ではない。

本研究では、制御工学の分野で発展されてきた手法である受動性に基づく手法を用いて、パラメトリック横揺れの舵減揺を達成する制御則を開発した。ポート・ハミルトン系¹⁾モデルを用いた制御則の設計によって、システムの非線形性の反映と、理論的な安定性の保証を実現することを試みる。

2. ポート・ハミルトン系モデルを用いた制御

本研究では、受動性に基づく制御手法の一つである、ポート・ハミルトン系¹⁾の枠組みによって制御則を設計した。受動性に基づく制御は、制御工学の分野において発展してきた手法で、非線形性を有する機械系のダイナミクスを利用する手法である。その中で、ハミルトンの正準方程式の拡張としてポート・ハミルトン系を扱う手法が発展してきた。ポート・ハミルトン系の安定化手法として、リアプノフの安定論に基づき、リアプノフ関数と制御アルゴリズムの設計をある種の偏微分方程式に帰着させる方法がいくつ

が提案されてきた。本研究ではその一つである一般化正準変換²⁾という方法を用いて、システムを安定化させるような制御則を設計する。

3. 制御則の設計

本研究の制御対象は、不規則波中パラメトリック横揺れを表す非線形横揺れ運動方程式と、方位角に関する非線形方程式である。ただし、パラメトリック励起項である横揺れ角に関する復原力の変動項と、システムの外乱は白色雑音で置換される。システムの入力は舵角に比例する項と仮定する。このようなシステムについて、横揺れ角がゼロ、方位角がある一定値で安定化するような制御を行う。システムをポート・ハミルトン系の形式に変換し、さらに一般化正準変換を導入することによって、横揺れ角と方位角の目標値に対する受動誤差系を作成し、パラメトリック横揺れの舵減揺と方位角制御を同時に達成するような制御則を導出する。こ

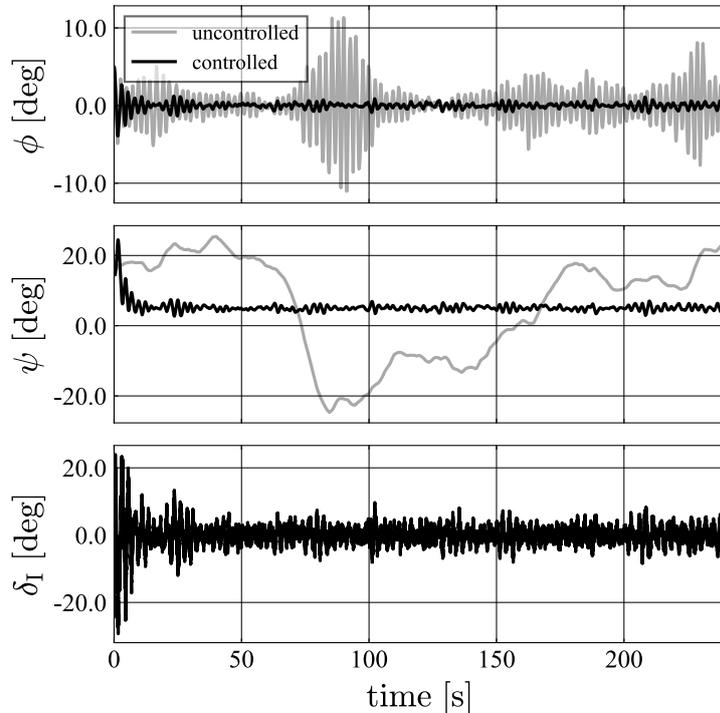


図 2：数値計算結果

の際、変換後のシステムが一般化正準変換の条件とシステムが受動性を保つ条件を満たすようにフリーパラメータを調整する。数値計算結果を図2に示す。横軸は時間 [s]、縦軸は上から横揺れ角 ϕ [deg.]、方位角 ψ [deg.]、舵角 δ_r [deg.]を表す。図中グレーの線が舵の制御を行わない状態の結果、黒い線が本研究で導出した制御則を適用した結果である。計算は1/100 模型船スケールを想定して行われた。また、方位角の目標値は5 [deg.]である。図2より、舵の制御を行わない状態では横揺れ運動が発生し、また方位角も安定していないことがわかる。一方、本研究で導出した制御則を適用することによって、横揺れ角をゼロ、方位角を目標値で安定化できていることがわかる。以上より、本研究で導出した制御則によって、パラメトリック横揺れの舵減揺と方位角制御を達成できることを確認した。

4. 結言

本研究では、不規則波中パラメトリック横揺れの舵減揺のため、舵によって横揺れ角と方位角の制御を同時に行うような制御則の設計が試みられた。制御手法としては受動性に基づく制御手法であるポート・ハミルトン系の枠組みが用いられ、一般化正準変換による誤差系の作成とその安定化制御が検討された。数値計算の結果、本研究で導出された制御則を用いることにより、パラメトリック横揺れの舵減揺と方位角制御が達成されることを確認した。

参考文献

- 1) B. Maschke, A.J. van der Schaft: In Proc. 2nd IFAC Symp. Nonlin. Control Syst., pp.282-288, 1992.
- 2) K. Fujimoto, T. Sugie: In Proc. 4th IFAC Symp. Nonlin. Control Syst., pp.544-549, 1998.

表面自由エネルギー視座による次世代高密度LIB ナノ粒状負極高安定構造化指針の検討

マテリアル生産科学専攻 生産科学コース
生産プロセス講座 接合界面制御学領域 神原研究室 久徳 空

1. 緒言

電気自動車のバッテリー等に用いられるLiイオン二次電池(LIB: Lithium-Ion Battery)用電極は、一般に塗工型プロセスにより作製される。作製工程を図1に示す。スラリー化された電極構成材料を集電体金属箔上に塗布し、乾燥、プレスすることで電極化されるが、スラリー中での各材料の分散状態が不均質である場合、電池駆動時の伝導パス不良や、塗布工程における欠陥などの原因となる。特に、次世代高密度電極材料として期待される負極活物質Siはナノ粒子であり、その

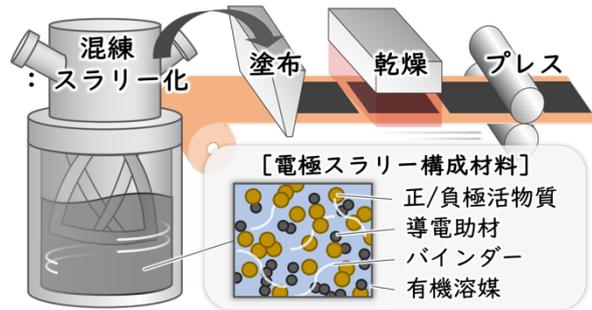


図1 塗工型電極作製工程

比表面積ゆえに凝集性が高い点や、全固体電池用の硫化物固体電解質の化学安定性による溶媒の制約などにより、均質分散には課題が残る。しかし現状、スラリーのような混相系の分散性を体系的に評価可能な指標および指針は十分に確立されておらず、一般にトライアンドエラー的な溶媒、バインダーの選定による改良が行われる。これに対し、粒子/溶媒界面の親和性の観点から、表面自由エネルギー(SFE: Surface Free Energy)に着目すると、層状二次元材料の液相剥離効率に対するSFE指標の有用性が報告されており^{1,2)}、粒子分散に対しても同様にSFE指標の有用性が期待される。また固体のSFEは表面改質などによる変調が可能である点からは、均質分散に向けたSFE指標による柔軟なアプローチが期待される。ただし現在、ナノ粒子のSFEデータは極めて少なく、またナノ粒子の特性のSFEへの影響は報告されていない。そこで本研究では、ナノ粒状負極の高安定構造化指針構築を目的とし、その基礎検討としてナノ粒子SFEの測定より始め、粒子特性のSFEへの影響の検討を行った。

2. 実験手法

SFE測定に用いたSiナノ粒子はプラズマスプレー物理蒸着法(PS-PVD: Plasma Spray Physical Vapor Deposition)により作製した。高温プラズマ中で原料を蒸発させ、冷却過程で核生成、粒成長させることでナノ粒子を作製する。本研究では原料粉末供給速度の制御により、平均粒径150, 50, 20 nm程度の3つのサイズ帯の粒子を作製した。作製された粒子は、酸素分析装置により含有酸素量を、X線電子分光装置によりSiナノ粒子表面の配位状態を測定した。

SFEは極性成分、分散成分により構成されており、固体のSFE各成分値の測定は、SFE成分値が既知である複数の溶媒との接触角をもとに算出される。一般に接触角測定は基板の上に滴下された液滴の直接観察により測定されるが、粉体の場合、滴下試験による接触角測定は困難である。そこで本研究では粒子の接触角測定法として、Washburn法を用いた。図2にWashburn法による粒子接触角測定の概略図を示す。Washburn法は毛管現象により、液体が粒子充填体内へ浸透する速度をもとに、接触角を測定する手法である。

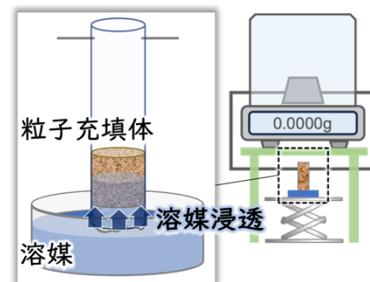


図2 粒子接触角測定概略図

3. Si ナノ粒子 SFE 測定結果および粒子特性の影響

図3に測定されたSi ナノ粒子のSFE 各成分値と、Si 基板のHF 処理後大気放置によるSFE 各成分値の変化を示す。Si ナノ粒子のSFE は、分散成分値は粒子ごとにばらつきが小さく、極性成分値のばらつきが大きいことが確認された。この極性成分の差異への粒子の特性の影響を検討する上で、まず粒径に着目すると、50 nm 系の粒子の極性成分値が最小であるように粒径のみによる傾向の説明は困難であることが確認された。SFE の粒径依存性は10 nm 以下で顕著になると推算されており³⁾、そのため、本研究で用いた粒子の粒径による影響は小さかったものと考えられる。

ここでSi 基板のSFE の測定事例において、HF 処理によって水素終端された表面が、大気放置時間経過に伴い、Si-O 結合へ置換されることで極性成分値が増加することが報告されており⁴⁾、Si ナノ粒子においても、酸化状態によるSFE への影響が考えられる。まず含有酸素量による影響の検討からは、粒子の比表面積増大に伴い含有酸素量は増大しており、全サイズ系の粒子の、極性成分の傾向の説明は困難であった。これに対し、粒子表面の酸化状態による影響の検討のため、X線電子分光法による測定結果をもとに各配位にピーク分離し、評価を行った。図4に、全ての配位に対するSi⁴⁺の割合とSFE 極性成分値との関係を示す。Si⁴⁺の割合の増加に伴うSFE 極性成分値の上昇が確認され、その相関係数は0.77であった。これはSi 基板における、表面のSi-O 結合の増加に伴うSFE の変化と同様の傾向であると考えられる。以上より、粒径依存性の小さいと考えられる領域においては、Si ナノ粒子のSFE 極性成分の、表面のSi⁴⁺の配位への依存性が示唆された。

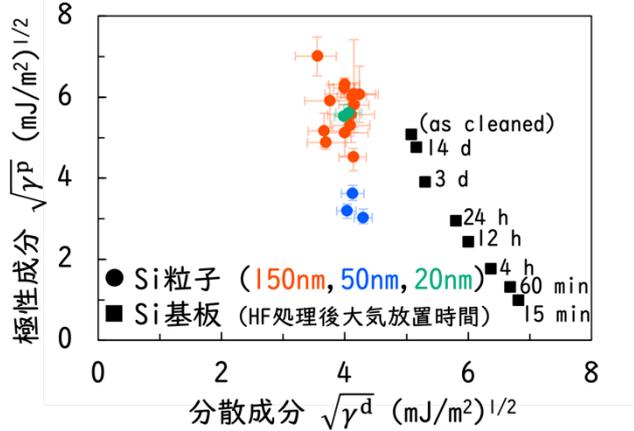


図3 Si 粒子およびSi 基板⁴⁾のSFE 成分値

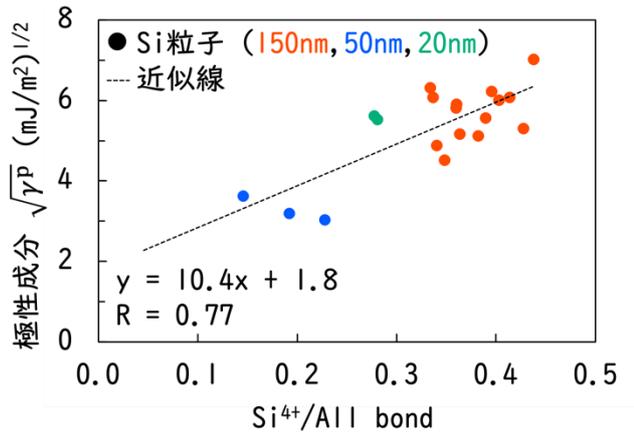


図4 Si⁴⁺割合とSFE 極性成分の関係

4. 結言

本研究では、ナノ粒状負極の高安定構造化指針構築を目的とし、その基礎検討としてナノ粒子SFE の測定および粒子特性のSFE への影響の検討を行った。Si ナノ粒子の表面配位状態に依存したSFE の変化からは、SFE 指標での検討を進める上で、表面酸化膜スケールでの制御が求められると推察される。また本研究において測定されたSFE により、粒子/液体界面の相互作用の評価が可能となり、電極高安定化に向けたアプローチの検討における一指標となり得ると考える。

参考文献

- 1) J. Shen, et al., Nano Letters, Vol. 15, No. 8 (2015), pp. 5449-5454.
- 2) W. Yu, et al., J. Colloid interface Sci., Vol. 546, (2019), pp. 361-370.
- 3) D. Vollath, et al., Beilstein J. Nanotechnol, Vol. 9, (2018), pp. 2265-2276.
- 4) Akira Kawai, et al., J. Photopolym. Sci. Technol., Vol. 21, No. 6 (2008), pp. 739-740.

高効率有機ELデバイス用 ヘプタジン-カルバゾール誘導体の開発

応用化学専攻 物質機能化学コース

有機電子材料科学領域 中山研究室 栗原 怜央

1. 諸言および目的

有機ELは、スマートフォンなどのディスプレイに使われている技術であり、有機化合物に電圧を加えると発光する現象（エレクトロルミネッセンス）を利用している。有機ELの発光過程（図1）では、電極から電子とホールが注入され、発光層内で再結合する。この再結合により、一重項励起子と三重項励起子がそれぞれ25%と75%の割合で生成される。一重項励起子は直接光を蛍光として放出するが、三重項励起子は通常では光を放出しない。そのため、有機ELの発光効率を高めるためには、三重項励起子を一重項励起子に変換し、光として利用することが重要である。

熱活性化遅延蛍光（Thermally Activated Delayed Fluorescence, TADF）材料は、一重項励起子と三重項励起子のエネルギー差（ ΔE_{ST} ）が小さく、三重項励起子から一重項励起子への逆項間交差を可能とする。これにより、三重項励起子を遅延蛍光として利用できるようになり、理論上100%の内部量子効率を実現できる（図2）。しかし、この逆項間交差は、熱活性化を要するため、遅延蛍光の寿命（三重項励起子が光を放出するために要する時定数）をマイクロ秒～ミリ秒に長引かせる原因となっている。これにより、特に高輝度動作時のような励起子密度が高い状態において、2つの三重項励起子が衝突し、対消滅することで発光効率が低下（すなわち消費電力が増大）する問題がある。

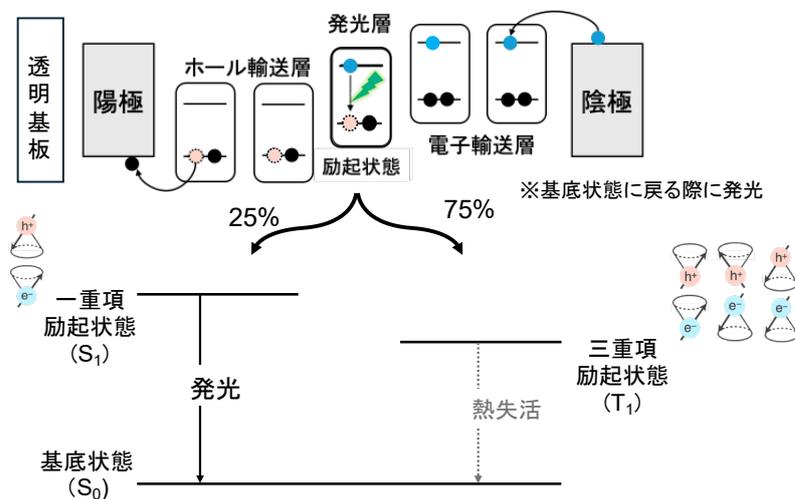
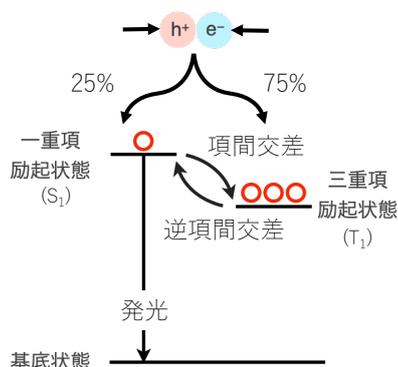


図1：有機ELの発光メカニズム

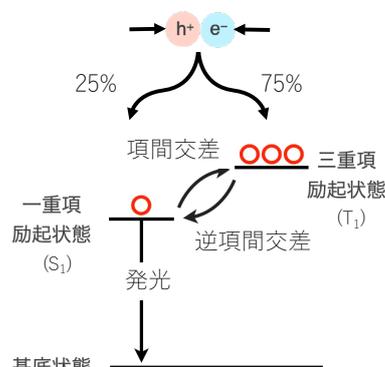
近年、ヘプタジン誘導体であるHzTFEX₂が、一重項励起子が三重項励起子よりも低いエネルギー準位を示す、つまり負の ΔE_{ST} を有する一重項-三重項逆転(Inverted Singlet-Triplet, IST)材料として報告された¹⁾。IST材料は、三重項励起子を低エネルギーの一重項励起子に速やかに変換できるため、TADF材料と同様に、有機ELの内部量子効率を理論上100%まで高めることができる（図3）。さらに、負の ΔE_{ST} に由来して遅延発光寿命が短いため、三重項励起子の対消滅を抑制し、高輝度時でも高い発光効率を実現できると考えられる。

本研究では、新規 IST 材料として、ヘプタジン-カルバゾール誘導 (HzCz) を開発し、その光物性および有機 EL 特性について調査した。



※逆項間交差に熱エネルギーが必要

図2：TADF 材料（逆項間交差が遅い）



※逆項間交差に熱エネルギーが不必要

図3：IST 材料（逆項間交差が速い）

2. 実験方法

HzCz 溶液を調製し、フォトルミネッセンス (PL) スペクトル、PL 量子収率、過渡 PL 減衰を測定した。さらに、HzCz を発光層に用いた有機 EL デバイスを作製し、その外部量子効率を評価した。

3. 結果と考察

3-1. 光物性

HzCz は、UV 光照射により緑色発光を示した。PL 量子収率は 83% であり、以前に報告されたヘプタジン誘導体 HzTFEX₂ の発光量子収率 (74%) を上回る値であった¹⁾。また、過渡 PL 減衰結果から、HzCz は 370 ns の短い遅延蛍光寿命を示した。一般的な TADF の寿命がマイクロ秒からミリ秒オーダーであることから、HzCz は三重項励起子を速やかに一重項励起子に変換し、遅延蛍光として利用できることがわかる。さらに、過渡 PL 減衰の解析から、 ΔE_{ST} が -5 meV であると見積もった。

3-2. 有機 EL デバイス特性

HzCz を発光層に用いた有機 EL デバイスは、既存 IST 材料である HzTFEX₂ を用いたデバイスと比較して、輝度 1 cd m⁻² に達するのに必要な電圧 (駆動開始電圧) の低下を示した。最大外部量子効率は 30% に達し、高輝度における 1,000 cd m⁻² と 10,000 cd m⁻² においても 20% 以上の高い値を維持した。以上の結果から、高輝度時においても、三重項励起子の対消滅を抑制し、高い発光効率を実現できることを明らかにした。

4. 参考文献

1) N. Aizawa et al. *Nature* **2022**, *609*, 502-506.

光電変換素子における新奇波長識別現象の機構解明と機能発展

応用化学専攻 物質機能化学コース
佐伯研究室 小林 泰

1. 研究背景

光電変換素子の出力特性は一般に Shockley ダイオード式に従うため、照射強度で大きく変化するがバンドギャップエネルギー以上の波長選択性はない。しかし当研究室では、TiO₂ / SbSI:Sb₂S₃ / PCPDTBT の構造を持つ n-i-p 型光電変換素子において、照射波長に応じて電圧が可逆に変化する新現象 Wavelength-dependent photovoltaic effect (WDPE) を見出した(Fig.1)^[1]。本現象の機構についてはこれまでに一定

の知見が得られているものの、解明にはまだ遠かった。加えて本現象は単一素子による波長識別を初めて実現したものであり、さらなる発展が期待される。しかし波長の識別だけでは応用先としてはかなり限られており、様々な。本研究では光電気特性評価や各種分光を用いた WDPE の機構に関する調査を行い、それに基づく波長応答の高速化および機能の発展に取り組んだ。

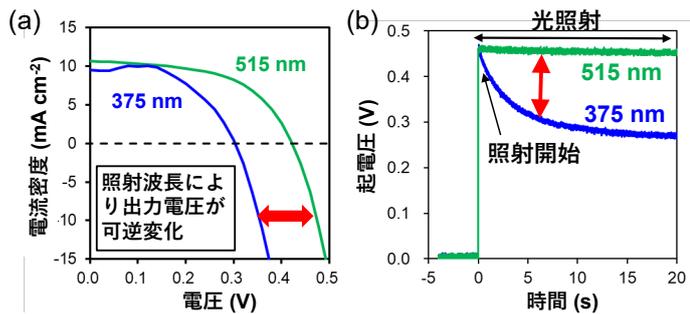


Fig.1 375 nm もしくは 515 nm 光照射時の SbSI:Sb₂S₃ 太陽電池の (a) $J-V$ 曲線。 (b) 出力電圧の経時変化。

2. WDPE の機構調査

WDPE の湿度依存性を評価することにより、高湿度中で測定を行うと応答性が大幅に向上することを見出した(Fig.2(a))^[2]。この結果は水分子の存在が WDPE の発現に重要であることを示唆している。また、電圧の波長依存性測定から 400 nm 付近から電圧低下が起こることが分かった。TiO₂ による光吸収が WDPE 発現の必要条件であることが分かった(Fig.2(b))。以上のことから WDPE の原理について、UV 光照射時に TiO₂ 表面に吸着した H₂O 分子が光触媒反応により分解され、生成した H⁺ や OH⁻ が一時的な電荷トラップとして作用する機構を提案した(Fig.2(c))。

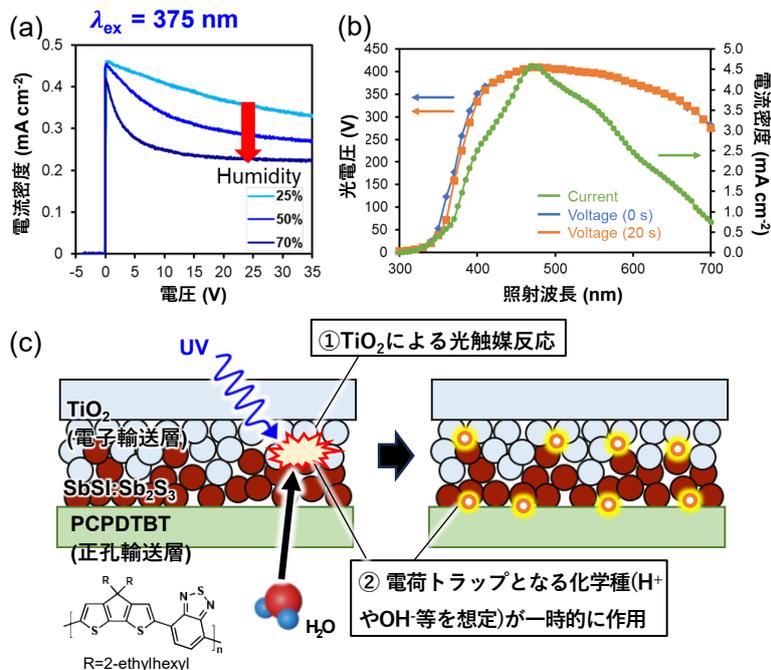


Fig.2 (a) WDPE の湿度依存性。 (b) 光電圧変化の波長依存性。 (c) WDPE の仮説機構。

3. 波長応答機能の発展

次にWDPEの機構から着想を得た新原理光電気メモリの創成を試みた。素子設計としてはTiO₂上に光触媒反応を起こし得る物質を「中間層」として成膜する。初期状態では可視吸収層で生成したキャリアが中間層にブロックされるために電流がほとんど流れない。そこに紫外光を照射すると中間層がTiO₂からの光触媒反応によって変質し、新たにエネルギー準位が生成することでその準位を介して電荷輸送が可能となる。この状態に対して可視光を照射すると中間層が可視吸収層から逆反応の光触媒反応を受けることで元の状態に戻り、電流がほとんど流れない状態に戻る。このような照射波長によってスイッチング可能なメモリの創成を目的として研究を行った。

Fig.4に実際に試作した素子の挙動を示す。中間層にはZnCl₂を用いた。初期状態では可視光照射により低い電流値となった。その後紫外光を照射し、再度可視光を照射すると初期状態よりも大幅に電流値が大きくなった。さらにこの素子は約6時間暗状態

で保存した後でも大きな電流値を示した。一方で可視光を連続で照射すると、約1分で元の電流値まで低下することも確認した。このように紫外光照射による

書き込みおよび可視光照射によるデータ消去が可能な、光でスイッチングが可能な新概念光電気メモリとしての実現可能性を示した。さらに本メモリは现阶段で約20 ns程度の読み出し時間を実現できており、これは現在広く用いられているフラッシュメモリの数倍速い読み出し時間である。このように光を用いた高速読み書きが可能な新たなメモリとしてさらなる発展が期待される。

4. 結論

以上のように、本研究では光電変換素子が示す特異な波長応答現象の機構解明に取り組み、TiO₂への水の吸着および紫外光照射時の光触媒反応が重要であることを見出した。その機構を基に波長応答の高速化を達成した。また、この機構を応用した新原理光電気メモリの概念実証にも成功した。

5. 参考文献

- [1] R. Nishikubo, S. Li, A. Saeki, *Adv. Funct. Mater.* **2022**, *32*, 2201577.
 [2] T. Kobayashi, R. Nishikubo, Y. Chen, K. Marumoto, A. Saeki, *Adv. Funct. Mater.* **2024**, *34*, 2311794.

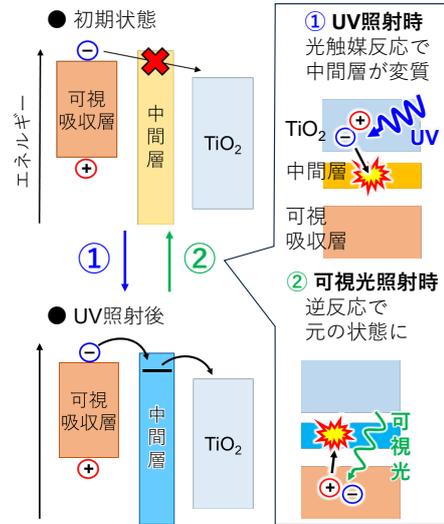


Fig.3 WDPEの機構から着想を得たメモリの駆動原理。

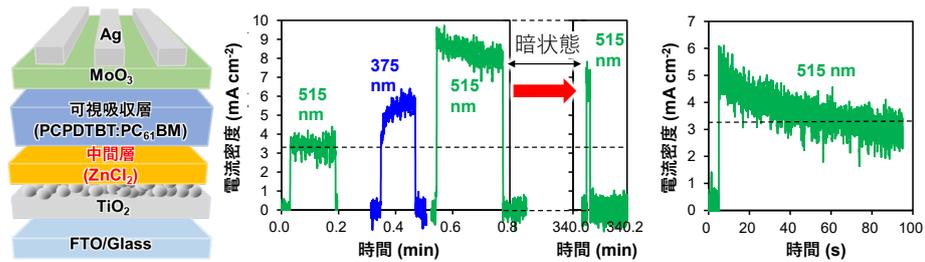


Fig. 4 (a) 中間層を導入した素子の構造。(b) 紫外光照射前後での可視光による電流値の変化。(c) 可視光の連続照射時の電流値の変化。

機械学習によるPM_{2.5}濃度高精度推定手法の開発

環境エネルギー工学専攻 環境工学コース
共生環境評価領域 嶋寺研究室 Supitcha SUKPRASERT

1. Introduction

Thailand has faced severe PM_{2.5} pollution for over a decade, mainly due to Biomass Burning (BB) emissions from agricultural burning and forest fires. Long-term exposure to PM_{2.5} is linked to health risks, such as respiratory and cardiovascular diseases. To effectively study the health impacts, researchers need complete-coverage PM_{2.5} data. However, Thailand's air quality monitoring (AQM) network is limited, and expanding it is costly, making modeling a more feasible solution. The Chemical Transport Model (CTM) and Machine Learning (ML) models are common models for PM_{2.5} predictions. Tree-based ML models, such as Light Gradient Boosting Machine (LightGBM), are preferred for training speed and efficiency over deep learning models, such as Neural Networks. However, CTMs require complex atmospheric settings and high-quality inputs, while ML models lack atmospheric process integration. Thus, researchers have integrated both models to enhance the performance, but no study has yet decoupled single emissions from CTMs for ML applications. This research aims to develop a LightGBM model incorporating BB-decoupled CTM predictors to improve daily PM_{2.5} predictions in Central Thailand during 2019 (see **Figure 1**).

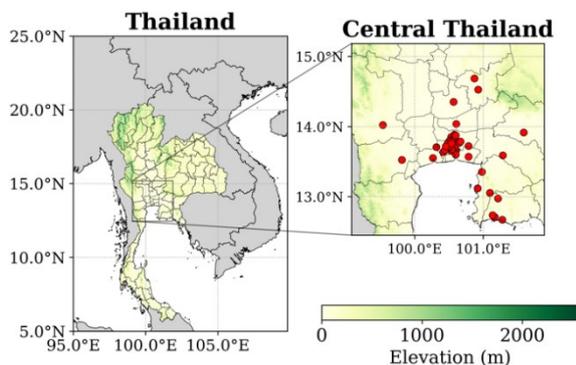


Figure 1 The study area (red dots are AQM stations)

2. Methodology

This study used 1-year PM_{2.5} data from 55 AQM stations provided by the Pollution Control Department and Bangkok Metropolitan Administration.

2.1 The LightGBM model's predictors: There are two types of predictors. (a) CTM predictors: The CTM was used to simulate PM_{2.5} concentrations under two scenarios. The first scenario includes all emission sources (baseline CTM predictor),

and the second excludes BB emissions (BB-excluded CTM predictor). The difference between these scenarios yields a BB-contributed CTM predictor. BB-excluded and BB-contributed collectively form the BB-decoupled CTM predictors (see **Figure 2**). (b) Control predictors: They include population density, elevation, land use, and meteorological variables simulated from the weather model.

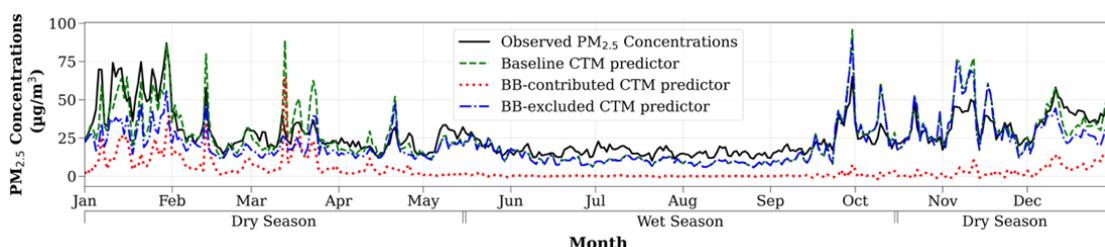


Figure 2 Daily average of observed and CTM-simulated PM_{2.5} concentrations across all AQM stations

2.2 The LightGBM model development: Two LightGBM models were developed (baseline and decoupled model). The baseline model used the baseline CTM predictor, and the decoupled model used BB-decoupled CTM predictors. Both used identical control predictors. The model hyperparameters were adopted directly from Thongthammachart et al. [1], who studied the same area and dataset. The model evaluation employed five-fold cross-validation (CV) across three aspects: overall, spatial, and temporal, splitting the data by samples, monitoring sites, and dates, respectively. Finally, a one-tailed paired t-test was used to compare the model performance.

3. Results and discussion

Table 1 The baseline and decoupled models' performance

Model	CV aspects	Annual		Wet season		Dry season	
		R ²	RMSE*	R ²	RMSE*	R ²	RMSE*
Baseline model	Overall	0.82	6.68	0.76	4.71	0.77	7.82
	Spatial	0.70	8.61	0.51	6.80	0.65	9.74
	Temporal	0.71	8.46	0.69	5.41	0.62	10.14
Decoupled model	Overall	0.86	5.92	0.79	4.46	0.83	6.80
	Spatial	0.73	8.18	0.52	6.69	0.69	9.13
	Temporal	0.75	7.83	0.70	5.30	0.68	9.27

* The unit of RMSE is $\mu\text{g}/\text{m}^3$

Table 1 presents the performance scores of the baseline and decoupled models evaluated across three CV aspects. The incorporation of decoupled predictors has been statistically proven to improve the performance scores of the LightGBM model across all CV aspects (p -value < 0.01). The largest improvement is observed in the dry season, which is the period with the intense BB activities.

The spatial map further highlights the decoupled model's advantage in capturing the spatial variations of $\text{PM}_{2.5}$ on the high BB Day (see **Figure 3**). With an R^2 of 0.64 and RMSE of $7.86 \mu\text{g}/\text{m}^3$, it outperforms the baseline model ($R^2=0.51$, $\text{RMSE}=9.16 \mu\text{g}/\text{m}^3$). The improvement is likely due to the decoupling process, which creates two CTM predictors with unique variations (see **Figure 2**). This could help the Light model to better learn the relationship between source-specific $\text{PM}_{2.5}$ and other predictors, enabling it to correct CTM biases more effectively.

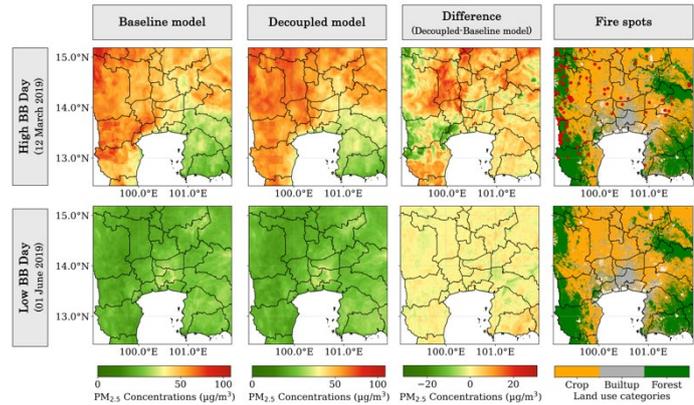


Figure 3 Spatial distribution of predicted $\text{PM}_{2.5}$ concentrations on high BB Day (12 March 2019) and low BB Day (01 June 2019). Red dots in the rightmost plot represent fire spots.

4. Conclusion

Applying the BB-decoupled predictors significantly improves the LightGBM model performance in all CV aspects, demonstrating the effectiveness of the decoupling process in refining the $\text{PM}_{2.5}$ predictions. However, other ML models, such as deep learning algorithms, may yield different results. Further exploration is needed to determine whether the decoupling process enhances performance in other types of ML models.

5. Reference

[1] T. Thongthammachart et al., *Atmos. Environ.*, **297**, 119595, (2023).

CHL-YN 細胞の生細胞濃度向上に向けた 重要培地成分の検討

生物工学専攻 生物工学コース
大政研究室 空田 和也

1. 研究背景

バイオ医薬品は生物を用いて製造される医薬品の総称であり、例として、抗体、ホルモン、ワクチンなどが挙げられる。近年では、バイオ医薬品の中でも特に抗体医薬品が高い安全性と有効性を併せ持つ有望な医薬品として注目を集めている。チャイニーズハムスターの卵巣由来細胞（CHO 細胞）は、糖鎖修飾などの複雑な翻訳後修飾を行う能力や無血清培地への適応性を有していることから、抗体医薬品製造の宿主細胞として最も広く用いられている動物細胞である。しかしながら、CHO 細胞には大腸菌や酵母などの他の宿主細胞と比較して増殖が遅いという課題がある。この課題に対して、当研究室ではチャイニーズハムスター肺組織の初代培養から CHL-YN 細胞が樹立された^[1]。CHL-YN 細胞は従来の CHO 細胞より約2倍早く増殖するため、バイオ医薬品製造における開発期間の短縮が期待されている。CHL-YN 細胞の特長を最大限に活用するためには、高い増殖特性を支える適切な培地条件を確立することが重要である。CHL-YN 細胞の増殖を促進する重要な培地成分を特定することは、CHL-YN 細胞の産業応用に重要な指針を与えるとともに、高増殖特性の理解にもつながると考えられる。本研究では、CHL-YN 細胞の増殖に重要な培地成分を明らかにすることを目的とした。

動物細胞培養用の培地には50種類以上の成分が含まれていることが一般的であり^[2]、成分間の相互作用を考慮すると、各成分を個別に評価することは非効率的かつ現実的ではない。そこで本研究では、1) CHL-YN 細胞の細胞増殖を向上させる可能性がある培地成分のスクリーニング、2) スクリーニングされた成分の中からの重要培地成分の同定、の2段階で実験を進め、重要成分の検討を行った。

2. 実験方法

1 段階目の初期スクリーニングでは、培地ブレンドにより培地条件を調製した。この方法では、12種類の市販の無血清培地を混合することで120種類の異なる培地条件を作成し、CHL-YN 細胞を培養した。細胞増殖を向上させる可能性がある培地成分をスクリーニングするため、生細胞濃度（Viable cell concentration, VCC）を目的変数、培地成分の相対濃度を説明変数とする PLS-R（部分最小二乗回帰）モデルを構築した。成分の重要度の指標として VIP（Variable Importance in Projection）スコアを使用した。2 段階目の重要成分同定では、逐次後退選択法（Sequential Backward Selection, SBS）を用いて、スクリーニングされた成分の中から重要成分を逐次的に同定した。生細胞濃度は Vi-CELL BLU（Beckman Coulter）で測定した。培地成分の相対濃度は LCMS-8060NX および ICPMS-2030（島津製作所）を用いて測定した。細胞培養の生物学的レプリケートは N=3 とした。

3. 初期スクリーニング

CHL-YN 細胞を、培地ブレンドにより調製した120種類の培地条件下で培養した結果、培養開始69時間（対数増殖後期から定常期）での生細胞濃度は 9.5×10^6 cells/mL から 19.5×10^6 cells/mL の範囲で変動した（図1）。生細胞濃度を向上させる可能性がある培地成分をスクリーニングするために、培地成分の相対濃度を説明変数、生細胞濃度を目的変数とした PLS-R（部分最小二乗回帰モデル）を構築し、各培地成分の重要度算出のために VIP スコアを算出した。本研究では、VIP スコア上位13成分（アスパラギ

ン、シスチン、ロイシン、バリン、イソロイシン、グルコース、チロシン、スレオニン、メチオニン、ヒスチジン、リシン、フェニルアラニン、グルタミン酸)を生細胞濃度向上の可能性のある成分として同定した。その後、生細胞濃度が低かった培地条件にこれら13成分を添加する試験を行ったところ、最大生細胞濃度の向上が観察された(図2)。

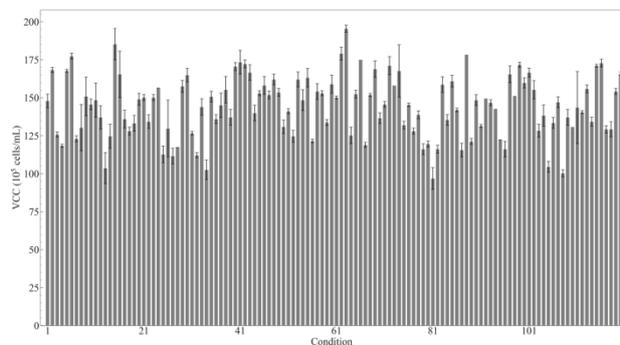


図1：培養69時間における120条件の生細胞濃度(VCC)。

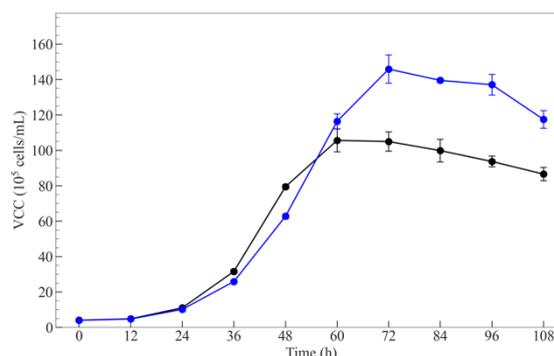


図2：成分添加条件の生細胞濃度(VCC)の経時変化。黒色はコントロール、青色は13成分添加条件。

4. 重要成分の同定

初期スクリーニングでは、培地成分間の多重共線性(説明変数の中に相関係数が高い組み合わせの変数があること)を許容していた。そのため、選択された13成分の中には、生細胞濃度を真に向上させる成分に加えて、疑似相関により見かけ上、重要度が高くなった成分も含まれている可能性が考えられた。本研究では逐次後退選択法(SBS)を用いて13成分の中に含まれる重要成分を逐次的に同定した。その結果、ロイシン、バリン、チロシン、メチオニン、リシン、およびフェニルアラニンの6成分が最大生細胞濃度を向上させる重要な成分であることが示唆された(図3)。これら6成分を補充した条件では、生細胞濃度のピークが 1.45×10^7 cells/mLであり、13成分を添加した場合(図2)と同程度の最大生細胞濃度が達成された。本研究の結果から、ロイシン、バリン、チロシン、メチオニン、リシン、およびフェニルアラニンがCHL-YN細胞の最大生細胞濃度を向上させることが示唆された。

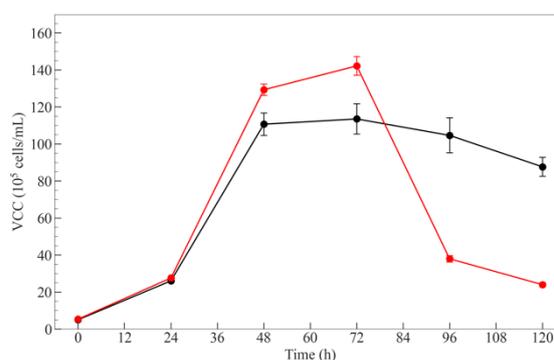


図3：成分添加条件の生細胞濃度(VCC)の経時変化。黒色はコントロール、赤色は6成分添加条件。

5. まとめと展望

本研究では、培地ブレンドと統計的手法を組み合わせることで、CHL-YN細胞の細胞増殖に重要な成分の効率的な同定に成功し、ロイシン、バリン、チロシン、メチオニン、リシン、およびフェニルアラニンが生細胞濃度を向上させる成分であることが示された。この知見はCHL-YN細胞の高増殖特性の理解および高い増殖特性を支える適切な培地条件の開発につながり、CHL-YN細胞の産業応用に重要な指針を与えると考えられる。

参考文献

- [1] Yamano-Adachi, N., et al., *Scientific Reports*, **10**:17612 (2020)
- [2] Galbraith, S.C. et al., *Current Opinion in Chemical Engineering*, **22**:42-47 (2018)

大阪市域における「農的土地利用」の残存及び発生背景と共同利用に至るメカニズムの解明

地球総合工学専攻 建築工学コース
木多研究室 中村 大智

1. 研究背景と目的

人口減少社会への移行に伴い、かつて都市化を図った市街化区域内でも農地は「あるべき」ものとして、環境保全や食糧の安定保障、都市住民の新たなライフスタイルの創出といった機能が期待されている。近年では、建物等解体跡地や空き地の菜園利用など、既成市街地内での農的空間の発生も散見され、政府は都市縮退への対応策としても推進している。このように、都市部の農地環境は多様化しており、その適切な保全のためには、「営農」に限定せず、「農」を多様な価値として捉える視点が求められる。

しかし、市街化区域内の農地環境を維持してきた生産緑地法はあくまでも「営農」の支援を基盤とするものであり、その制度的限界が指摘されている。特に面積的な保全を重視する制度であることから、かえって耕作放棄地が発生するという、維持管理の問題も生じている。近年の価値観の推移とともにこうした課題に対応するためには、「営農」に依らない「農」の都市計画上の位置づけを検討するとともに、個人の所有者だけでなく、共同利用による維持管理の仕組みを模索することが不可欠である。

そこで本研究では、全域が市街化区域である大阪市において生産緑地を除き残存する農地や、建築ストックを活用し発生した農的空間を併せて「農的土地利用」と定義し、以下の二点を目的とする。

- ①残存・発生の背景を多角的に考察し、都市計画上の位置づけに向けた知見を得ること。
- ②利用実態の調査を通じて、土地所有を越境した共同利用が生じる、そのメカニズムを解明すること。

2. 研究方法

【対象土地の抽出と分類】「筆ポリゴンデータ(2024年度公開)」(農林水産省)を利用し、QGISを活用して市域全体の耕地の分布状況を把握した。そして、都市計画図を用いて生産緑地を除外し、さらに現況調査等を踏まえて利用がないもの・市街地更新が生じたものを除外することで対象土地を抽出した。また、そのうえで、1928年から現在までの段階的な航空写真(国土地理院)の利用や現地調査等を踏まえ、農地の残存・既成市街地での発生にそれぞれ成立過程別に分類を行った。

【残存及び発生背景の調査】「市街地発展図(昭和49年)」(大阪市都市調整局)・「大阪市都市再開発図(令和5年)」(大阪市整備局)をQGIS上でジオリファレンスし、市域全体の都市形成過程をデータ化し、対象土地と重ね合わせることで、主に都市形成の観点からその背景を分析した。そして、残存に関しては市史や区史、土地区画整理事業誌等の歴史資料も併用した。また、発生に関しては旧土地台帳と不動産登記簿を取得し、登記開始時点の1887年から現在までの土地ごとの動態(主に地目・土地取得・所有者・居住地それぞれの変遷)の把握とともに、昭和30年代から現在までの住宅地図を総覧し、従前の土地利用や発生年度の把握も網羅的に行った。なお、部分的にヒアリング調査を通じた所有者個別の事情の把握も行った。

【利用実態の調査】市域全体における現況調査に加え、土地関係主体へのヒアリング調査を実施した。

3. 残存及び発生背景

【都市形成の観点からの分析】市街地発展過程を5領域に分類し、領域ごとの対象土地の筆数を残存・発生に分けて集計した(Fig.1)。

その結果、残存は高度経済成長期以降に都市化した領域に全体の90%以上の筆数が確認されたが、1950年までに都市化した領域にも一定数確認された。そして発生は旧集落とその周囲、高度経済成長期に都市化した領域に多く集積していることが明らかとなった。

【残存背景】都市基盤整備事業の観点からさらに分析を進めた。詳細はFig.1に示すが、特に未整備区域では、旧集落内及び近傍に残存が多く集積することが明らかとなった。

【発生背景】公文書等により分析を進めた。詳細はFig.1に示すが、旧集落内及び近傍の土地を旧集落居住者が所有し続けることや、福祉法人等が土地を取得することによる発生が多く見られることが明らかとなった。

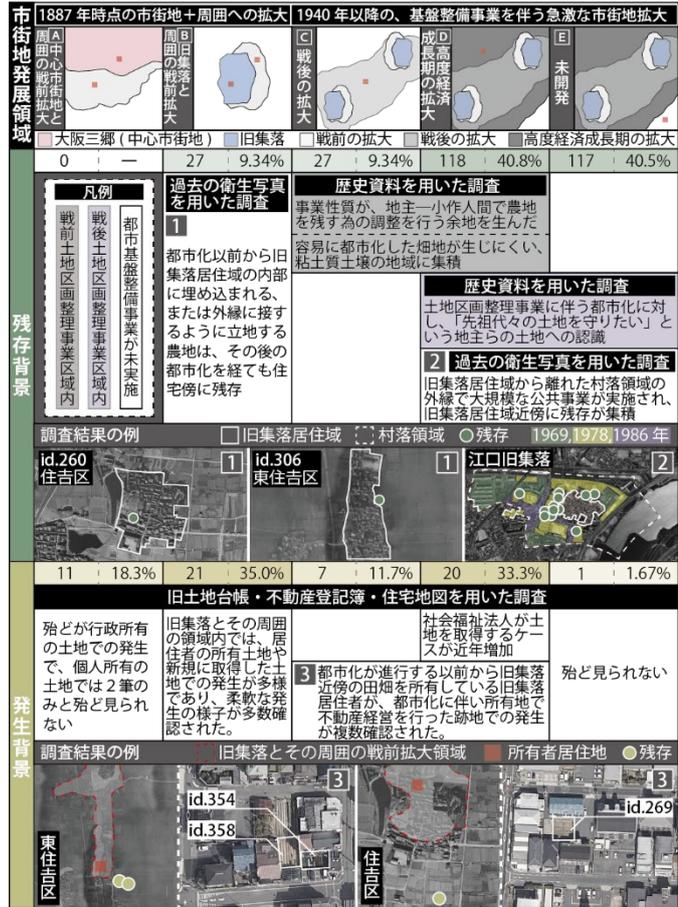


Fig.1 残存及び発生背景

4. 共同利用に至るメカニズム

土地所有から共同利用発生のプロセス、利用形態、立地する市街地発展領域を分析した。詳細はFig.2に示すが、残存・発生ともに、共同利用が生じるのは、旧集落居住者が都市化以前から所有する旧集落近傍の土地が殆どを占めており、地主と周辺住民らとのかかわりの中で自然発生的に生じていた。さらに、福祉協議会や不動産管理会社等の第三主体の介入により、より周辺住民らに開かれた利用形態となり得る。また、戦後以降に拡大した領域では、一連のプロセスの中に法人が介在し、福祉的価値や地域活力の向上を図り建築ストックを活用する実態が明らかとなった。



Fig.2 共同利用に至るメカニズム

5. 結論

旧集落内及び近傍に多く残存や発生の両者が見られ、旧集落居住者らが当該土地を都市化以前から所有する場合、周辺住民らや地域の第三者的主体と有機的に結びつくことで、共同利用に至ることが分かった。つまり、「農的土地利用」の共同利用に向けては、「都市に内在する「旧集落」の土地や人の動態」が重要な観点である。また、農地保全の制度的限界が指摘される中で、旧集落居住者らが土地を所有し続けることで、一度都市化しても循環的に再び発生が見られることは、持続的な市街地形成に向けて特に重要な観点である。現在の法制度では不可測な、都市に内在する諸要素に目を向けた方策の構築が求められる。

CNT 添加エネルギーダイレクタを用いた 熱可塑性 CFRP の超音波融着接合に関する研究

ビジネスエンジニアリング専攻 倉敷研究室 西村 壮真

1. 研究背景と目的

近年、炭素繊維強化熱可塑性プラスチック (Carbon Fiber Reinforced Thermoplastics、CFRTP、以下、熱可塑性 CFRP) が、次世代の航空機や自動車、産業機器の構造部材として適用され始めている⁽¹⁾。熱可塑性 CFRP を用いて構造部材を製造する際には、何らかの手法で接合する必要があり、高い接合強度・信頼性で接合するために部材間の樹脂を加熱溶解させて接合を行う融着接合手法が提案されている⁽²⁾。超音波融着接合手法は、接合部の熱可塑性樹脂を表面摩擦と粘弾性摩擦による発熱で瞬時に加熱溶解することができるため、高い生産性で融着接合することが可能である⁽³⁾。熱可塑性 CFRP の超音波融着接合は、図 1 に示すようにエネルギーダイレクタと呼ばれる熱可塑性樹脂の突起物やシート等を接合界面に挿入し、エネルギーダイレクタに超音波振動を集中させて融着接合を行う手法⁽³⁾が提案されているが、接合強度や信頼性に課題がある。

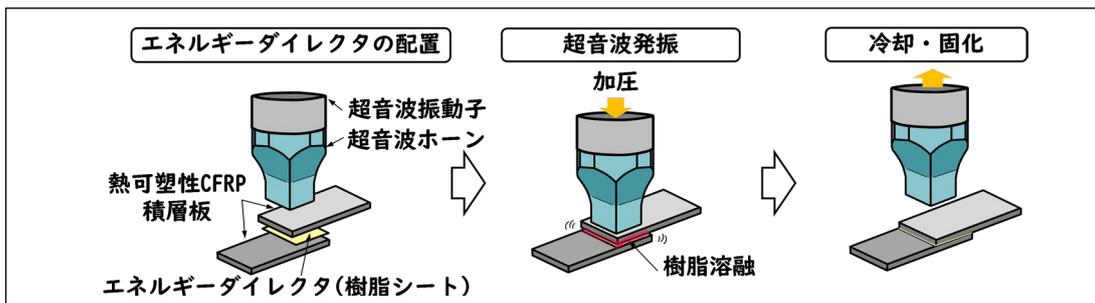


図 1：熱可塑性 CFRP の超音波融着接合プロセスの概略図

そこで、より高い接合強度・信頼性で熱可塑性 CFRP の超音波融着接合を行うために、エネルギーダイレクタの改質や繊維強化等による補強が必要となる⁽⁴⁾。また、炭素繊維や CNT は荷重負荷に伴う電気抵抗値が変化するピエゾ抵抗効果を示す。この特性を利用し、融着接合部の抵抗ひずみ特性⁽⁵⁾を調査することで、接合部の健全性モニタリングへの応用が可能となる。本研究で提案するエネルギーダイレクタの CNT 添加による期待できる効果を図 2 に示す。図 2 に示すように、製造時から使用時そして使用後までの一連の過程において効果が期待できる。

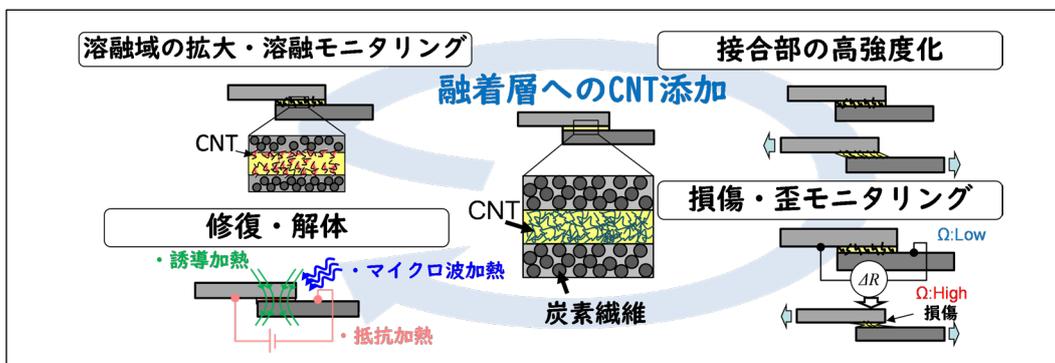


図 2：エネルギーダイレクタの CNT 添加により期待できる効果

本研究では、熱可塑性 CFRP の超音波融着接合時の樹脂溶解挙動の解明や接合強度の向上および損傷検知能力の付与を目的に、エネルギーダイレクタに単層カーボンナノチューブ (SWCNT) または多層カーボン

ナノチューブ (MWCNT) を溶融混練および加熱プレス成形により任意の重量割合で添加し、超音波融着接合した際の引張せん断強度および損傷・ひずみ検知能力を明らかにした。

2. 実験結果

織物 CF/PPS 積層板の超音波融着接合時において、融着接合面に挿入するエネルギーダイレクタへのSWCNTおよびMWCNTの添加率が引張せん断強度に及ぼす影響を明らかにするために、本研究ではPPS樹脂単体と、PPS樹脂にSWCNTおよびMWCNTを0.1、0.5、1.0、1.5、2.0 wt%添加したエネルギーダイレクタを用いて超音波融着接合を行った。エネルギーダイレクタ中の各種CNTの重量含有率が引張せん断強度に及ぼす影響を図3に示す。MWCNTを0.5-1.0 wt%添加することで融着接合部がナノ繊維強化され、引張せん断強度が向上することが確認された。

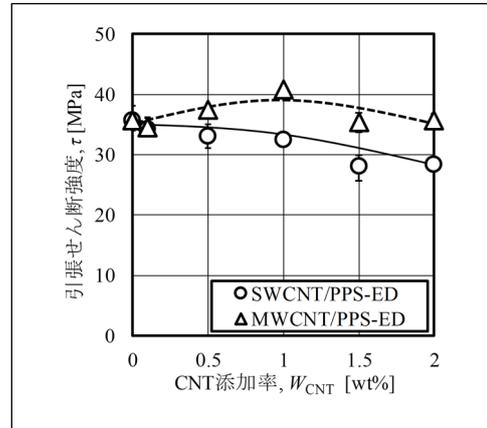


図3：エネルギーダイレクタ中のSWCNTおよびMWCNT添加率が引張せん断強度に及ぼす影響

融着接合部の健全性モニタリングの評価には、電気伝導経路を単純化するためにUD-CF/PPS積層板を用いた。その際、PPS樹脂単体とSWCNTを1.0 wt%添加したエネルギーダイレクタを用いて超音波融着接合により作製した試験片を用いた。各試験片の繰り返し引張荷重負荷時の電気抵抗変化を図4に示す。SWCNTを1.0 wt%添加した場合は、未添加時と比較して電気抵抗変化率とゲージ率が向上した。これは、エネルギーダイレクタにCNTを添加することで接合層の導電経路が増加し、荷重負荷時の導電経路変化と、積層板の炭素繊維とCNTのピエゾ抵抗効果が顕著になったためと考えられる。

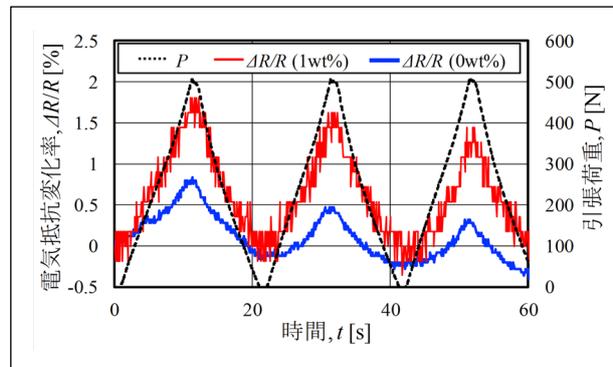


図4：CNT添加が荷重負荷時の電気抵抗変化に及ぼす影響

3. まとめ

本研究では、PPS樹脂単体およびCNTを添加したPPS樹脂エネルギーダイレクタを用いてCF/PPS積層板の超音波融着接合を行った際の、融着接合挙動や引張せん断強度に及ぼす影響を調査した。エネルギーダイレクタにCNTを添加することで、樹脂融着が促進され、一部の条件において引張せん断強度も向上することが確認された。健全性モニタリングの評価では、CNTを添加した場合、電気抵抗変化率とゲージ率が向上し、電気抵抗変化率が負荷荷重に良好に追従することが分かった。このように、製造時から使用時までの一連の過程において効果が確認され、産業適用に向けて着実に進歩したといえる。なお、これらの成果の一部に関して国際学会5件、国内学会7件の口頭発表にて研究報告を行った。今後は、本研究で得られた知見をもとに静的なスポット接合から接合ツールを連続的に摺動させることで大面積の接合を安定的に行う手法を開発し、産業実装に向け研究を推進する。

4. 参考文献

- (1) I. F. Villegas, et.al, Journal of Thermoplastic Composite Materials, Vol.28, No.8, pp.1007-1024, 2012.
- (2) I. F. Villegas and G. Palardy, Composite Interfaces, Vol.24, No.5, pp.515-528, 2017.
- (3) J.C. Yan, X.L. Wang, R.Q. Li, H.B. Xu and S.Q. Yang, Key Engineering Materials, Vol.353-358, pp.2007-2010, 2007.
- (4) 田邊大貴, 堀内睦之, 西村壮真, 西籙和明, “織物CF/PPS積層板の超音波スポット融着接合に及ぼすエネルギーダイレクタの炭素繊維強化の影響”, 材料, Vol.71, No.6, pp.495-500, 2022.
- (5) Bregar, T et al., Sci Rep 10, 16833, 2020.

柔軟ビームの動特性を活用した 非同期型高速リサージュ曲線状振動生成法

機械工学専攻 機械工学コース
東森研究室 宮崎 悠人

1. 背景・従来研究

近年、柔軟構造体の動的な形状変化を活用したソフトロボットが盛んに研究されている[1]. 粘弾性と異方性を有する柔軟構造体に対して振動を与え、特定の周波数で振幅が増大する、共振を活用することによって駆動されるロボットが開発されてきた。しかし、従来研究ではモータによって入力される波形が正弦波状のものに限定されていることが多く、柔軟構造体の動的挙動は、直線、円弧、楕円形状の振動軌道に留まり、ロボットの動作パターンを多様化するまでには至っていなかった。

2. リサージュ曲線状振動生成法（同期型）

著者らは、独自の振動アクチュエータを用いて、2正弦波の合成波を与えることで多様な振動軌道を形成する手法を構築した[2]. 当該アクチュエータは図1(a-i)に示したように回転型モータと矩形断面の柔軟ビームおよび付加質量を組み合わせた構造を有しており、図1(a-ii)に示したように柔軟ビーム断面両主軸(x,y軸)がモータ回転軸に対して非平行となっていることを特徴とする。次のような入力を回転型モータに与える。

$$\theta(t) = a_1 \sin(2\pi f t - \zeta_f) + a_2 \sin(2\pi \gamma f t - \zeta_{\gamma f} + \phi) \quad (1)$$

a_1, a_2 を入力振幅, f を入力周波数, $\gamma = \{1.5, 2, 3\}$ を周波数比, ϕ を位相差とする。 $\zeta_f, \zeta_{\gamma f}$ は調整用パラメータとする。柔軟ビームの共振周波数は x 軸方向（断面短手方向）に対して小さく、y 軸方向（断面長手方向）に対して大きくなる性質があり、低周波成分は x 軸方向に、高周波成分は y 軸方向に振動しやすい。したがって、 f として x 軸方向の共振周波数に近い値を与えることで、先端点はおおむね x 軸方向に周波数 f で、おおむね y 軸方向に周波数 γf で振動し、2つの直交する単振動が合成されることによって図1(b-i)–(b-iii)に示したような振動軌道が形成される。このような2つの直交する単振動の合成によって描かれる曲線はリサージュ曲線と呼ばれる。

図2(a)に、当該アクチュエータを適用したマニピュレータを示す。マニピュレータは柔軟アクチュエータ先端点にプレートを取り付けた構造を有している。回転型モータに対して、式(1)のような2正弦波の合成波入力を与えプレートをリサージュ曲線状に振動させることで、摩擦力と慣性力を利用してプレート上の対象物を操作する。周波数比 1.5(図2(b-i)), 2(図2(b-ii)) の場合は並進、3(図2(b-iii)) の場合は回転が生じる。

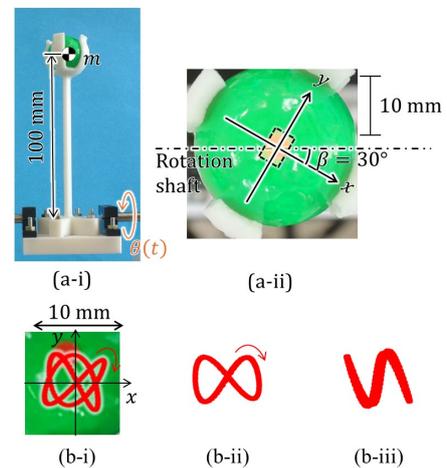


図1：アクチュエータ駆動の様子(a-i)振動アクチュエータ。(a-ii) アクチュエータを上面からみた様子。(b-i) $\gamma=1.5$, (b-ii) $\gamma=2$, (b-iii) $\gamma=3$ の場合の生成軌道例。

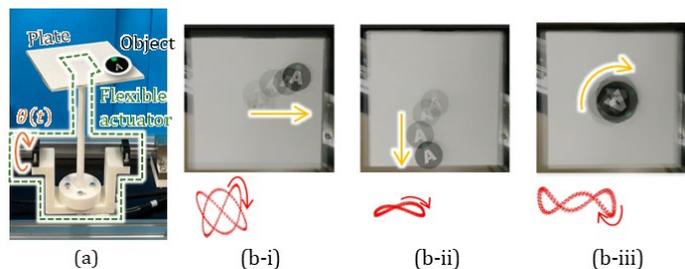


図2：(a) マニピュレータ。(b-i) $\gamma=1.5$, (b-ii) $\gamma=2$, (b-iii) $\gamma=3$ の場合のプレート中心軌道及び対象物操作の様子。

3. 非同期型振動生成法

図1 (b-i)のような8の字状の振動軌道は、昆虫をはじめとした飛翔性動物の翼端軌道でも観察されることが知られており[3]、著者らは、当該アクチュエータを小型飛翔ロボットの羽ばたき機構に適応することを見据えている。しかし、数十～数百 Hz の高速な振動を生成する必要がある、回転型モータの応答性がボトルネックとなる。再度、飛翔性動物に注目してみる。生体システムは、一般的に

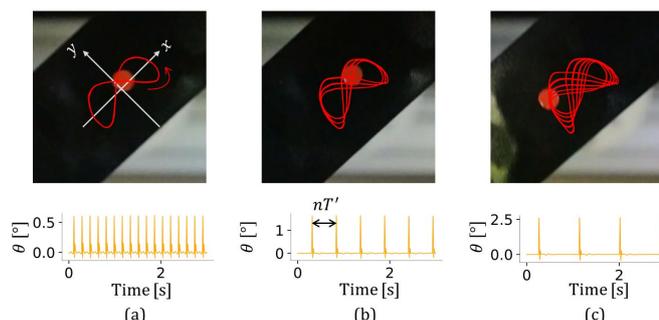


図3：非同期型振動軌道形成手法。(a) x軸方向の共振周波数と一致した周波数および、その (b) 1/3, (c) 1/5の周波数のインパルス列入力を与えた場合の生成振動軌道と入力 $\theta(t)$ 。

入力として神経による単純なインパルスが採用されており、そのタイミングや強さによって身体運動が制御されている。また、非同期型間接飛翔筋と呼ばれる、筋骨格系の共振周波数に基づいて、神経インパルスの周波数よりも大きい羽ばたき周波数を実現できるシステムの存在が知られている[4]。著者らは、このような生体システムの有する特徴から着想を得て、インパルス列入力を採用し、柔軟ビームの持つ共振周波数を活用することで入力の周波数よりも振動の周波数が大きくなるような振動生成法を構築した[5]。図3に実験の様子を示す。アクチュエータは図1 (a-i)のものと同様の構造を有しており、柔軟ビームの共振周波数はx軸方向とy軸方向で1:2となるように調整されている。はじめに、入力 $\theta(t)$ としてx軸方向の共振周波数と同じ周波数のインパルス列入力を与える(図3(a))。このときx軸方向では、先端点が1往復するごとに、y軸方向では2往復するごとにインパルスが入力されるため、x軸方向にはx軸方向の共振周波数に基づいて、y軸方向にはy軸方向の共振周波数に基づいて振動が生じ、8の字状のリサージュ曲線状軌道が生成される。続いて、その状態からインパルス列入力の周波数を1/3にして与える。この場合ではx軸方向では3往復するごとに、y軸方向には6往復するごとにインパルスが入力され、それぞれの共振周波数で振動することによって、同様の振動軌道が生成される(図3(b))。さらに周波数を1/5にして与えた場合でも、粘性減衰による軌道の乱れが生じているものの、おおむね8の字状の軌道が維持されている(図3(c))。以上によってインパルス列入力を与える手法により、入力の周波数よりも大きい周波数の振動を生成できることが示された。

4. まとめ

本研究では、構造的な異方性を有する独自の振動アクチュエータの2次元リサージュ曲線状振動生成法を提案した。今後は非同期型振動生成法を改良し、10 Hz オーダーの低速な入力から100 Hz オーダーの高速振動の生成に取り組み、小型飛翔ロボットの羽ばたき機構への適用を行う予定である。

参考文献

- [1] 一般社団法人日本ロボット学会：“特集：刺激 - 応答性に基づくロボティクス”，日本ロボット学会誌第42巻8号，2024.
- [2] Y. Miyazaki and M. Higashimori：“Generation of Desired Lissajous Curve-Like Vibrational Orbits for a Single Motor-Based Flexible Actuator,” IEEE Robot. Automat. Lett., vol. 10, no. 4, pp. 3660-3667, 2025.
- [3] H. Liu：“生物規範飛行の学理とバイオミメティクス”，生物多様性を規範とする革新的材料技術，pp. 55-67, 2013.
- [4] 岩本裕之：“昆虫たちのすごい筋肉：1秒に1000回羽ばたく虫もいる”，pp. 55-82, 裳華房, 2019.
- [5] 宮崎悠人, 東森充：“柔軟ビームの動特性を活用した非同期型高速リサージュ曲線状振動軌道形成法”，日本ロボット学会誌, 2025 (accepted).

ホウ素中性子捕捉療法における 深部がん治療のための中性子ビーム特性評価

環境エネルギー工学専攻 エネルギー量子工学コース
量子反応工学領域 村田研究室 守實 友梨

1. 背景

近年がんの治療成績は向上しつつあるが、深部がんにおける治療成績は未だ低迷している。ホウ素中性子捕捉療法(Boron Neutron Capture Therapy, BNCT)はホウ素と中性子による核反応を用いた低侵襲かつ腫瘍細胞選択性を持つがん治療法¹であり、深部がんへの応用が期待されている。一方で、中性子の減衰や治療基準の不明瞭さにより、BNCTにおける治療可能深さは6 cm程度が限界である。BNCTにおける深部腫瘍治療の実現のために、中性子源や照射条件の観点から照射プロトコルの開発を行う。本研究ではその第一段階として、中性子ビームの特性の評価及び治療線量計算体系の確立を行った。

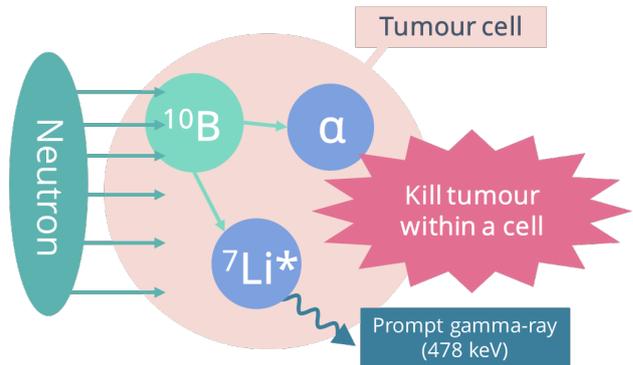


図1：ホウ素中性子捕捉療法
(Boron Neutron Capture Therapy: BNCT)
の概要

2. 実験方法

2.1 数値計算手法

頭部腫瘍における治療線量の傾向を調査するために、Snyder Head Phantomと呼ばれる人体頭部ファントムモデルを使用し、中性子ビームの3つの要素である(1) ビーム半径 (2) エネルギー (3)カレントフラックス比(CF)を変えた際の線量効果について計算・評価した。腫瘍は直径1 cmのものを想定し、頭部表面から深部まで移動した時の腫瘍線量の傾向についても調査した。計算ソフトウェアにはモンテカルロ法を用いたMCNPを使用した。また、深部腫瘍への治療案の一つである多門照射についても検討した。

2.2 実験検証手法

2.1節で述べた数値計算の結果を検証するために、中性子照射実験およびクロスチェックを行った。照射実験は東北大学高速中性子照射室(FNL)にて行った。FNLの所有する加速器は4.5MVで運転するダイナミトロンであり、使用したビームラインでは最大3MeV・7 μ Aの陽子線ビームが生成される。ターゲットにはリチウムを使用し、中性子を発生させた。FNLの中性子スペクトルは高速中性子が優位であるため、図2に示すように減速材(Beam Shaping Assembly; BSA)を設計し、BNCTの実際の治療に近い熱外中性子場を作成した。ファントムは直径20 cmのアクリルボックスを水で満たすことで人体頭部を模擬し、そこに計測素子を沈めて中性子照射を行った。金箔を用いた中性子束、ガラス線量計を用いたガンマ線量の測定を行い、計算値との比較を行った。クロスチェックにはPHITSと呼ばれるMCNPと同様のモンテカルロ法による線量計算ツールを使用した。

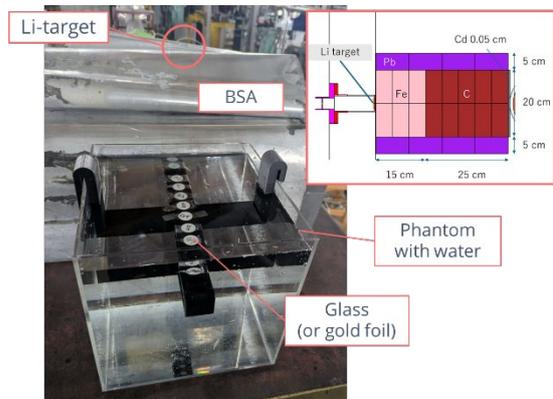


図2:東北大学高速中性子照射室(FNL)における
中性子照射実験の体系

3. 実験結果

CF 比とビーム半径を増加させると、どの腫瘍位置においても平均腫瘍線量は線形的に向上した。エネルギーを変えた際には腫瘍位置によって腫瘍線量を最大化するような線量値は異なり、浅在腫瘍では低いエネルギー、深部腫瘍では高いエネルギーが治療に効果的であることが分かった。(図3)一方で、深部腫瘍に対してエネルギーを向上させると必ずしも治療効率が向上するわけではないことがわかった。10 keV以上のエネルギーになると、腫瘍における最小線量と正常組織における最大線量の比は減少した。また、多門照射を活用することでより深部の腫瘍においても照射条件を満たすことができた。

東北大FNLにおける中性子照射実験では、図4に示すように、ファントム内5 cm以後の深部では、実験結果と計算結果は概ね一致した。一方で、表面における線量は実験値が計算値を大きく上回った。PHITSを用いたクロスチェックでは、MCNPによる計算値と概ね一致したものの、表面線量においてはMCNPが過大評価された。

4. 考察

数値計算の結果では、低いエネルギーが浅在腫瘍、高いエネルギーが深部腫瘍において効果的であるとわかったが、100 keV以上の中性子エネルギーでは正常細胞へのダメージが強く、治療に効果的ではなかった。これは、中性子カーマ値の影響で説明が可能である。中性子カーマは中性子が物質と反応した際に付与されるエネルギーである。ホウ素の中性子カーマは中性子エネルギーの増加とともに減少し、一方で水素と窒素はエネルギーが高い部分ではホウ素のカーマ値を上回る。従って、BNCTのホウ素によるダメージよりも、その他の原子が与える線量が

大きくなり、正常細胞と腫瘍に与えるダメージがほぼ変わらなくなったためだと考える。特に100 keVの領域では水素のカーマ値が優位であり、頭部表面での線量値が大幅に増大したと考えられる。なお、実験では表面値において計測値との乖離が見られた。これは周囲の構造物に由来する二次散乱中性子によるものであり、特に表面近傍ではシミュレーションでは想定されていない挙動が検出されたと考えられる。

5. 結論

BNCTにおける深部照射プロトコル開発のために、本研究では中性子ビーム特性を評価し、線量計算の検証を行った。さらに、多門照射の検討により、深部にある腫瘍に対してBNCTにおける治療可能性が見出された。今後は照射計画最適化アルゴリズムの開発や、それぞれの線量寄与の測定装置の開発を行う。

6. 参考文献

- INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. Advances in Boron Neutron Capture Therapy. In: *Advances in Boron Neutron Capture Therapy*. 2023:1-416.

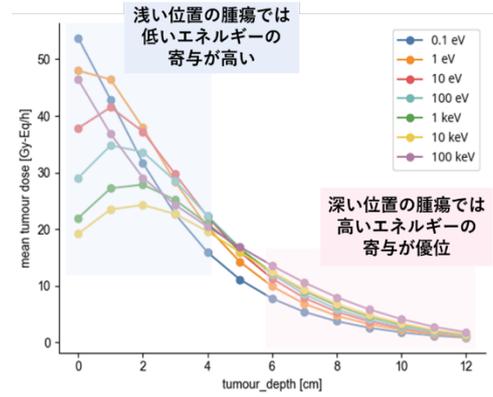


図3: エネルギー毎の腫瘍深さと平均腫瘍線量の関係 (CF=0.7, beam radius=6 cm)

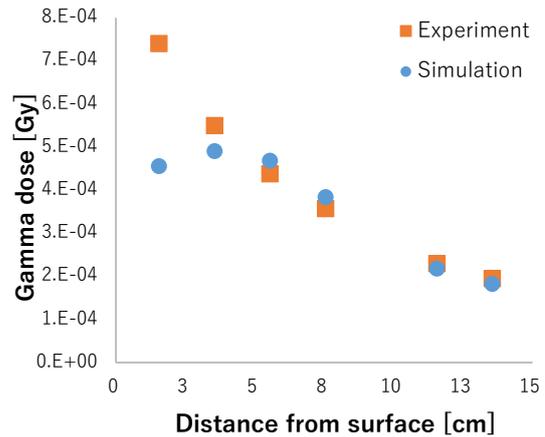


図4: FNLにおけるガラス線量計の中性子照射実験結果

昆虫サイボークの生体情報解析に向けた2次元・3次元神経マップの構築

機械工学専攻 機械工学コース
森島研究室 山本 康太郎

1. 研究背景

昆虫サイボークは昆虫と機械を融合させたハイブリッドロボットである(Fig.1)。生きた昆虫の背側に電子バックパックを取り付け、感覚器官を刺激することで行動を制御する。昆虫サイボークの研究方針は「昆虫の持つ優れたセンシング能力、自律判断能力、運動能力といった昆虫要素と機械知能を統合することで、昆虫要素と機械要素の相乗的な能力向上を実現する」ことにある。しかし、従来研究は探索救助ロボットとしての性能向上に偏重しており、昆虫の運動能力のみを用いていた。近年、生物の振る舞いを考慮した制御則設計がなされているものの、生体センサ情報や自律判断情報を直接取得できていない。本研究は生体情報の1つである神経信号に着目し、神経信号から昆虫のセンサー情報、情報処理プロセスを読み解き、それらを活用した制御則の設計を目的とする。



Fig.1 Cyborg Insect

2. 原理

本研究ではマダガスカルゴキブリを用いる。昆虫サイボークの制御原理は電気刺激による逃避行動の誘発に基づく。触角と、尾葉と呼ばれる腹部後端の感覚器官に刺激用電極を挿入し、電子バックパックから電圧を印加する。電気刺激を受けた昆虫は刺激箇所から逃避するように行動する。例えば、左触覚を刺激すると右旋回を行う。この逃避行動を利用して行動制御を行う。

昆虫サイボークの計測原理は中枢神経系の局所電圧の計測に基づく。昆虫の中枢神経系には巨大介在ニューロンが存在し、脳から腹部神経後端まで投射している。食道下神経節(頸部)に電極を挿入し、アンプと接続し計測する。Fig.2に電気刺激時の昆虫サイボークの生体信号データの一例を示す。電気刺激箇所は右触角、計測箇所は食道下神経節である。上から個体A, B, Cのデータであり、縦軸は信号強度、横軸は時間である。青線は未処理データ、赤線は波形データをヒルベルト変換し、移動平均フィルターをかけた平滑化信号振幅包絡線である。個体A, Bでは電気刺激時の信号振幅が0.75程度出のに対し、個体Cでは1.0に到達する。また、個体によって電気刺激時以外のノイズ強度が異なる。電気刺激時のバックパック電源による待機電圧によるノイズであると考えられるが、個体B, Cに比べ、個体Aはノイズが小さい。電気刺激前後の1[s]の信号発火数[Hz]を計測すると、個体B, Cでは40Hz~60Hzであるのに対し、個体Aでは20Hz前後である。先行研究[6]と比較すると個体Aは神経信号ではない可能性が高い。図2で計測

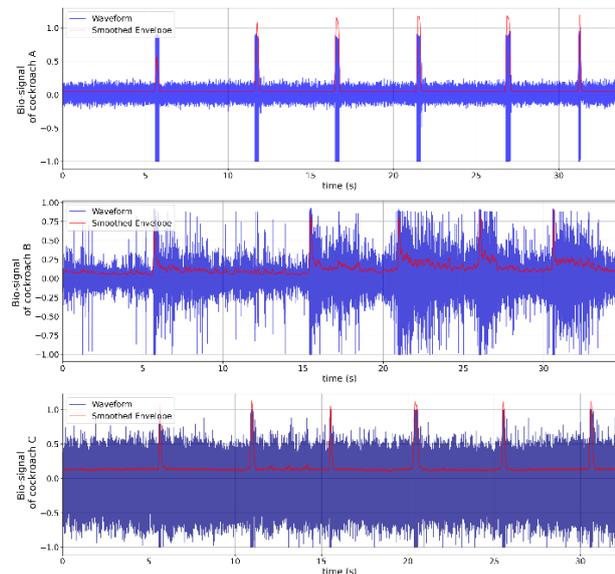


Fig.2 Bio-signal in Electrical Stimulation

した生体データには神経信号，大顎の内転筋，外転筋の筋電位，バックパックの待機電圧による入力が入混在しており，電極挿入精度が低いことにより神経信号のみを特定して抽出することが困難である。

3. 修士論文：神経マップの構築

修士研究では電極挿入精度の向上のため，神経の可視化，もとい神経マップの構築に取り組んだ。

解剖により神経を露出させ，中枢神経系の特定，神経節-神経索間の距離を計測する。全長を1として各距離を正規化することで2次元マップを得る。

解剖では深さ方向の計測が困難である。よって，X線顕微鏡を用いてマダガスカルゴキブリの断層画像を取得し，深さ方向を含めた3次元神経マップの構築を試みる。マダガスカルゴキブリを細胞固定液(1%グルタルアルデヒド)，エタノール(30%，50%，70%，99%)，ヨウ素溶液に浸漬し，観察が容易になるよう

前処理を行う。X線顕微鏡(InspeXio SMX-100CT)撮影は神戸大学理学研究科青沼研究室の協力のもと行われた。解析ソフトの3次元多断面再構成(3D MPR)機能と解剖データとの比較から中枢神経を特定する。セグメンテーション機能を用いて神経領域を抽出し，3Dモデルを作成する。

作成した3DモデルをFig.4に示す。黄土色部分は自動閾値設定(閾値 36063~65535)により抽出された外骨格及び内臓群，緑色部分(WL値 49401，WW値 30925，閾値 26239~65535)は自ら抽出した神経である。腹部外骨格直上に神経系が通っているのが確認できる。これにより，神経の深さ方向の計測が可能となる(Fig.4(b))。一方，画像データは腹部中間から途切れており，胸部神経節及び腹部第三神経節まで抽出している。また，頭部と重なっていたために食道下神経節は特定できない。神経節-神経索は透過率が他の組織と大きな差がなく，特定できなかった箇所は断線している。今後，前処理工程を改善し，サンプル数を増やすことで高精度な3次元マップの構築が見込まれる。

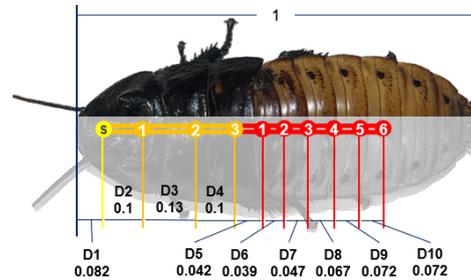


Fig.3 Construction of 2D map by anatomy

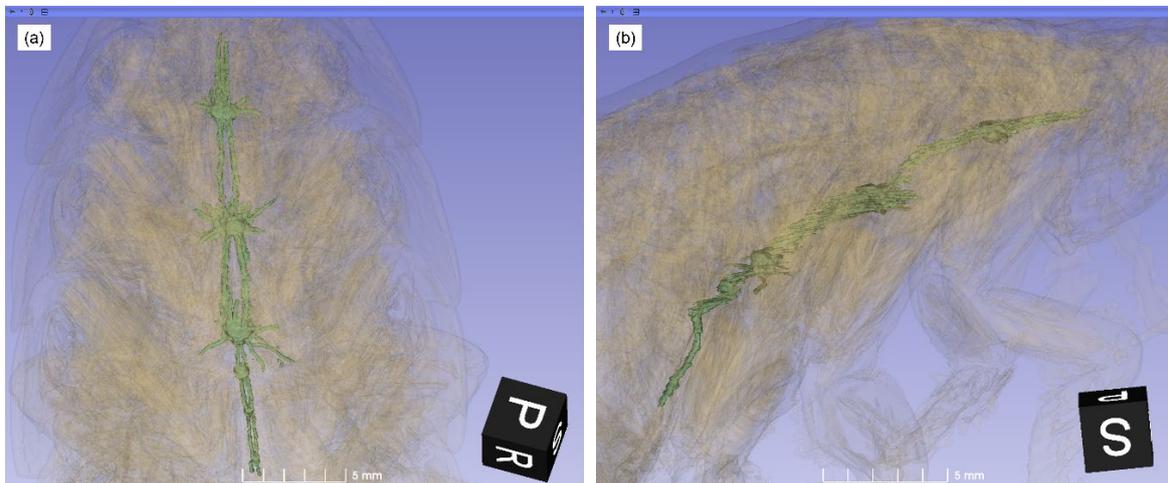


Fig.4 Construction of 3D map by X-ray imaging, (a)top view, (b)side view

4. 今後の展望

修士論文で構築した3Dマップは正規化が行われておらず個体差が考慮されていない。今後，サンプル数を増やして正規化を行う必要がある。有意な神経信号の取得には，構築した神経マップによる電極挿入精度の改善に加え，電極デザイン，電極固定法の改善が求められる。今後，前述した課題に加え，本研究の目標である神経信号を用いた制御則設計に向けて，神経計測回路のバックパック化，機械学習による神経信号パターン分類，それに基づく制御則の構築に取り組む。

高速 AFM/ラマン分光マルチモーダル計測装置の開発

物理学系専攻 応用物理学コース
バルマ研究室 楊 恵詩

1. はじめに

高速原子間力顕微鏡(高速 AFM)は、試料表面を探针で高速スキャンすることで、試料をナノスケールで動画観察できる[1]。約 1nm の空間分解能と 10 フレーム/秒の時間分解能で、生体タンパク質の構造変化をリアルタイムで観察できるため、生体分子ダイナミクスの解明に貢献してきた。近年、高速 AFM をさらに機能化する研究が進んでおり、局所光照射系を高速 AFM に複合させた装置によるナノスケールの局所光誘起反応の観察など、新たな応用が展開されている[2]。高速 AFM で観察している生体タンパク質の多くは、内部の化学結合変化に伴って構造変化が引き起こされ、機能を発現する。生体分子の構造変化を観察しながら、分子内部の化学結合がどのように変化しているのかも同時計測できれば、生体機能ダイナミクスのより詳細な解明に貢献できる。そこで本研究では、高速 AFM/ラマン分光マルチモーダル計測装置を開発した(図 1)。物質に光を照射すると発生する散乱光には、試料の分子振動情報が有するラマン散乱光が含まれている。このラマン散乱光を分光すれば、試料の化学結合情報を取得できる。高速 AFM にラマン分光法を複合化できれば、構造変化とそれに伴う化学結合変化を同時に分析でき、生体機能のより詳細な理解に繋げられる。

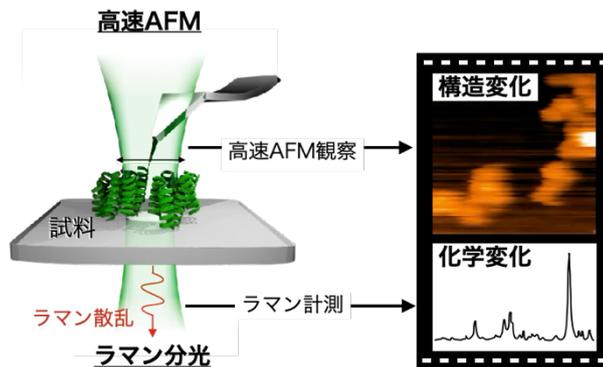


図 1: 高速 AFM/ラマンマルチモーダル計測装置の概念図

2. 高速 AFM/ラマン分光マルチモーダル計測装置

図 2 は、開発した高速 AFM/ラマンマルチモーダル計測装置である。倒立型光学顕微鏡に搭載可能なチップスキャン型高速 AFM を用い、その下にラマン分光系を構築した[3]。光学系には、カンチレバー先端の散乱光強度を検出する光検出器と、レーザー照射位置を移動させるピエゾミラーを導入した。光検出器の画像を確認しながらピエゾミラーを用いることで、ラマン計測用の励起レーザー集光位置と高速 AFM 観察している探针の位置を精密に一致させ、高速 AFM で観察する領域のラマンスペクトルを得られる。さらに、ラマン検出系に EMCCD カメラを用いることで、高感度なラマン計測を可能にし、高速 AFM 画像 1 枚につき同期してラマンスペクトルを 1 つ取得できる。



図 2: 実際に開発した高速 AFM/ラマンマルチモーダル計測装置

3. グラフェンを用いた高速AFM/ラマン分光マルチモーダル計測

開発した装置を用いて、グラフェンの高速AFM/ラマンマルチモーダル計測を行った(図3)。ラマン計測用レーザーは高速AFM観察箇所を照射している。高速AFM走査速度は2フレーム/秒であり、ラマン計測のための露光時間は0.5秒と同じ速度であるため、高速AFM画像取得と同時にラマンスペクトルを検出できる。計測中、高速AFMははじめグラフェンの外を観察しており、ラマンスペクトルにはピークが現れていない。測定中にグラフェンが高速AFM観察範囲内に入ると、高速AFM観察視野内にグラフェンのエッジが現れ、同時にラマンスペクトルではグラフェンのメインピークであるGバンド部分と2Dバンド部分にピークを検出できた。グラフェンのさらに内部箇所を走査している間もグラフェンピークは検出され続けていたが、グラフェンが高速AFM観察箇所から外れると、グラフェンのラマンピークも同時に検出されなくなった。この結果から、高速AFMの観察範囲内に存在する試料のラマンピークを取得していることを確認できた。

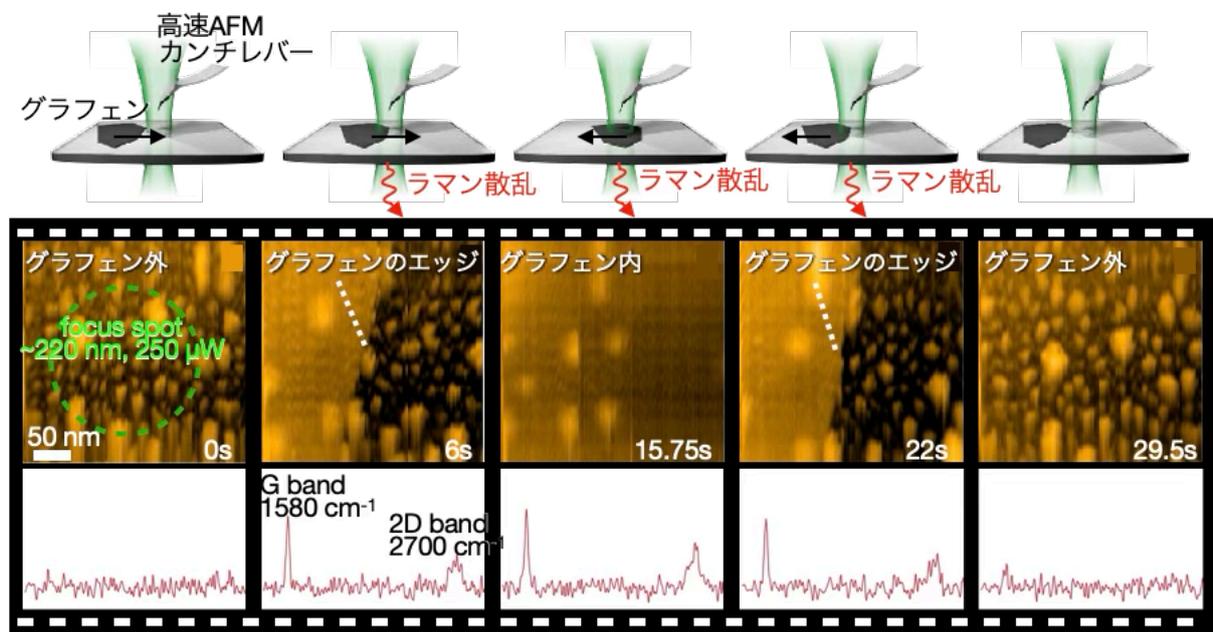


図3: グラフェンの高速AFM/ラマンマルチモーダル計測

4. まとめ

本研究では、高速AFM/ラマンマルチモーダル計測装置を開発し、本装置を用いたグラフェンの高速AFM/ラマンマルチモーダル計測に成功した。高速AFM観察箇所をレーザー集光位置を精密に調整し、高速AFM観察に対応するラマンスペクトルを取得できることを確認できた。今後は、本装置を用いた生体試料計測に注力していきたい。本装置を用いて生体分子の構造変化/化学結合変化を同時計測することで、生体分子ダイナミクスの解明への貢献が期待できる。

参考文献

- [1] T.Ando et al., *Proc. Nat. Acad. Sci. U. S. A.*, **98**, 12468 (2001).
- [2] K.Yang et al., *Nano Letters*, **24**, 2805 (2024).
- [3] S.Fukuda et al., *Rev. Sci. Instrum.*, **84**, 073706 (2013).