

[010]九州大学産学連携センター年報 : 10

<https://doi.org/10.15017/15510>

出版情報 : 九州大学産学連携センター年報. 10, 2004-11-30. 九州大学産学連携センター
バージョン :
権利関係 :



5. プロジェクト部門事業

5.1 プロジェクト部門の目標

本センターには平成11年度からプロジェクト部門が新設された。この部門は、九州大学の中に大きな研究シーズがあり、また九州地域あるいは西日本地域の企業に多くのニーズがある先端科学技術領域として、1) 先端機能デバイス 2) 先端機能材料 3) 環境・新エネルギー 4) 電離気体・レーザー の4つを重点領域として定めた点に特長がある。

九州地域からの新産業技術のシーズ創出を大学主導で行う場合、九州地域で充実ニーズの高い産業分野において、プロジェクト研究を推進することが不可欠となる。そのために、プロジェクト部門客員教授にプロジェクトの企画・推進に対して企業側からの適切なニーズに関する助言を行う役割を果たして頂き、学内の部局間・企業間を横断的に連携した大学主導の先端プロジェクト研究を強力に推進することが必要となる。また、プロジェクト推進には大学院の学生はもとより国内外の優秀な博士研究員を積極的に招いてプロジェクト研究に投入する。

従って、本プロジェクト部門は

- 先端的プロジェクト研究による高度な産業技術シーズの創出

を目標に掲げて、以下の3つの項目を実施する。

- 1) 産官学の研究者等からなる研究チームの結成
- 2) 先端研究領域における国内外の博士研究者の招へい
- 3) 横断型プロジェクトの企画と推進

更に、リエゾン部門及びデザイン総合部門との協力により、

- 産官学交流による地域社会等への貢献

を達成できるように活動を展開している。具体的には以下の3つの項目を実施する。

- 1) 民間企業等との共同研究・受託研究の推進
- 2) 産官学交流の場の提供と研究シーズの発信
- 3) 産業ニーズの発掘と産官学研究プロジェクトのコーディネートと推進

5.2 プロジェクト部門の活動状況

5.2.1 先端機能デバイス領域（中島 寛教授）

① 目的

本領域においては、産学連携プロジェクトチームを組織することにより、次世代半導体産業の要求に応える基板材料、薄膜材料、新規プロセス技術、新機能デバイスに関する研究を行うとともに、高度情報社会の実現に貢献できる先端的、独創的な半導体関連のプロジェクト研究を企画・推進することを目的としている。センターにはクリーンルームが設置されており、半導体研究を実施する環境は整っている。

② プロジェクト研究（概要については後述）

- (a) 高速 LSI 用歪 SOI ウェーハの研究開発
- (b) 次世代 LSI 用高誘電率ゲート絶縁膜の低温形成と機能評価
- (c) ガラス基板上への多結晶 Si 薄膜の低温形成
- (d) 重金属ゲッターリングによる単結晶太陽電池の高効率化

③ 外部資金導入実績（平成 15 年度）

<プロジェクト>

- ・ 文部科学省 科学技術振興調整費

プログラム名：先導的研究等の推進

研究課題名：「高速 L S I 用歪 S O I ウェーハの研究開発」

研究代表者：中島 寛

研究組織：三菱住友シリコン(株)、福菱セミコンエンジニアリング(株)、(独) 産業技術総合研究所新炭素系材料開発研究センター、九州大学産学連携センター、九州大学大学院システム情報科学研究院、九州工業大学、(財) 福岡県産業・科学技術振興財団

研究期間：平成 13～15 年度

<科学研究費>

- ・ 基盤研究 (B) (2) (課題番号：13450130)

研究代表者：中島 寛

課題名：「次世代 LSI 用高誘電率ゲート絶縁膜の低温形成と機能評価」

研究期間：平成 13～15 年度

<民間との共同研究>

- ・ 研究題目：「シリコン中の格子欠陥評価と制御」

民間機関：イーエヌジー（株）電子材料研究所

<奨学寄付金>

- ・ 受入数：2 件（平成 15 年度）

④ 研究業績（平成 15 年度）

- (a) 論文発表等：計 10 件

-
- ・ 原著論文： 8 件
 - ・ 著書、総説： 1 件
 - ・ 国際会議プロシーディング等： 1 件
- (b) 学会発表：計 11 件
- ・ 国内学会： 11 件
- (d) 論文リスト（平成 15 年度発表の 10 件以内）
- ・ Effect of Ion Mass and Ion Energy on Low-Temperature Deposition of Polycrystalline-Si Thin Film on SiO₂ Layer by Using Sputtering-Type Electron Cyclotron Resonance Plasma
J. L. Wang, T. Saitou, Y. Sugimoto, D. Wang, L. Zhao, and H. Nakashima
Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 42, No. 5B, pp. L511 – L513 (2003)
 - ・ Benefit of Flat Polymer Dielectric Surface Loading Organic Semiconductors in Field-Effect Transistors Prepared by the Electrode-Peeling Transfer
T. Yasuda, K. Fujita, H. Nakashima and T. Tsutsui
Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 42, No. 8A, pp. L967–L969 (2003)
 - ・ Low-Temperature Boron Gettering for Improving the Carrier Lifetime in Fe-Contaminated Bifacial Silicon Solar Cells with n⁺pp⁺ Back-Surface-Field Structure
T. Joge, I. Araki, T. Uematsu, T. Warabisako, H. Nakashima and K. Matsukuma
Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 42, No. 9A, pp. 5397–5404 (2003)
 - ・ Growth Kinetics and Electrical Properties of Ultrathin Si Oxide Film Fabricated Using Krypton-Diluted Oxygen Plasma Excited by Electron Cyclotron Resonance
J. L. Wang, L. Zhao, N. H. Luu, K. Makiyama, D. Wang and H. Nakashima
Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 42, No. 10, pp. 6496–6501 (2003)
 - ・ Organic Field-Effect Transistors with Gate Dielectric Films of Poly-p-Xylylene Derivatives Prepared by Chemical Vapor Deposition
T. Yasuda, K. Fujita, H. Nakashima and T. Tsutsui
Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 42, No. 10, pp. 6614–6618 (2003)
 - ・ Evaluation and control of electrically active defect in strained-silicon wafer
H. Nakashima, D. Wang, K. Itani, M. Ninomiya and M. Nakamae
Proceedings of the Forum on the Science and Technology of Silicon Materials 2003, pp. 293–298 (2003)
 - ・ Low-Temperature Growth of Thin Silicon Nitride Film by Electron Cyclotron Resonance Plasma Irradiation
-

L. Zhao, N. H. Luu, D. Wang, Y. Sugimoto, K. Ikeda, H. Nakashima and H. Nakashima

Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 43, No. 1A/B, pp. L 47-L 49 (2004)

- ・ Control of sizes and densities of nano catalysts for nanotube synthesis by plasma breaking method

J.S. Gao, K. Umeda, K. Uchino, H. Nakashima and K. Muraoka

Materials Science and Engineering B107, pp. 113-118 (2004)

- ・ Structural and electrical properties of Zr oxide film for high-K gate dielectrics by using electron cyclotron resonance plasma sputtering

Appl. Phys. A (Materials Science and Processing) (2004)

J. Wang, L. Zhao, N. H. Luu, D. Wang, and H. Nakashima

⑤ 学会活動等実績（平成15年度）

- ・ 応用物理学会九州支部理事
- ・ 文部科学省・科学技術振興調整費「高速LSI用歪SOIウェーハの研究開発」研究運営委員会委員長
- ・ 科学技術振興事業団研究成果活用プラザ・技術評価委員会 委員長
- ・ 九州地域産学半導体イノベーション研究会 委員
- ・ 独立法人物質・材料研究機構：研究開発課題「電子・光極微応答の解明と半導体機能の発現に関する研究」評価委員

⑥ 研究員等受け入れ実績（平成15年度）

- ・ 氏名（国籍）：王 冬（中国）
受入れ身分：訪問研究員
研究テーマ：「歪Si及び歪SOIウェーハの欠陥評価に関する研究」
受入れ期間：平成15年4月～平成16年3月
- ・ 氏名（国籍）：趙 麗巍（中国）
受入れ身分：訪問研究員
研究テーマ：「高誘電率ゲート絶縁膜の低温形成に関する研究」
受入れ期間：平成15年4月～平成16年3月

⑦ 代表的プロジェクト研究内容

(a) 「高速LSI用歪SOIウェーハの研究開発」

研究体制：KASTEC 先端機能デバイス領域、システム情報科学研究院電子デバイス工学部門、九州工業大学マイクロ化総合技術センター、（独）産業技術総合研究所新炭素系材料開発研究センター、三菱住友シリコン（株）、福菱セミコンエンジニアリング
研究経過：平成13年度に採択された文部科学省科学技術振興調整費、プログラム名（先導的研究の推進）の「高速LSI用歪SOIウェーハの研究開発」プロジェクト（研究代表者：九州大学 中島 寛、開発期間：3年間）を最終年度として実施した。

このプロジェクトでは、LSI の物理的微細化限界（デバイス最小寸法：0.1 μm 以下）に起因する高速・低消費電力化限界をウェーハ側から革新することを目的とし、歪 Si/ SiGe/ SOI 構造からなる高品質・低コスト歪 SOI ウェーハを開発し、デバイスで 2 倍の高性能化を実現することを最終目標としている。このプロジェクトは LSI 製造メーカに供給できる量産性に富んだ歪 Si 並びに歪 SOI ウェーハを実用化することを狙いとして研究開発を行った。本年度はプロジェクト全体として以下のような成果を得ることができ、当初掲げた目標は完全に達成した。

- (1) Ge 濃度の多段ステップ法及び Si 直上のみを δ 関数的に高濃度化する手法等の独自技術により結晶性に優れた直径 8 インチの歪 Si および歪 SOI ウェーハを実現し、ウェーハのサンプル出荷を開始した。歪 Si ウェーハが供給できるメーカは世界中で三菱シリコン（株）と米国メーカのみである。
- (2) 歪 Si、歪 SOI ウェーハの欠陥評価として、EBIC、CL、DLTS、少数キャリア生成寿命測定等の手法を構築した。これらの欠陥評価手法を提供された各種歪 Si ウェーハの欠陥マッピングに適用し、歪 Si 層厚および Ge 濃度と結晶性との相関を示し、結晶性向上の指針を示した。
- (3) 歪 Si に適用できるデバイスプロセス技術を確立し、歪 Si ウェーハ上に回路を試作して 1.6 倍の高速性を実証した。更に、歪 Si-SOI ウェーハによって不要な漏れ電流を 2 桁低減できることを実証した。
- (4) 薄膜形の歪 SOI 技術も次々世代の歪 Si ウェーハ技術に重要との認識の基、平成 14 年度よりテーマを拡大して薄膜形歪 SOI ウェーハの基礎技術を探索した。SOI 基板上の単結晶 SiGe における歪緩和率の向上を目指し、水素イオン照射による SiGe/SiO₂ 界面の結合変調を検討した結果、水素イオンを照射すると酸化濃縮時に界面滑りが均一に発生し、歪緩和率が向上することを見出した。

(b) 次世代 LSI 用高誘電率ゲート絶縁膜の低温形成と機能評価

研究体制：KASTEC 先端機能デバイス領域

研究経過：平成 13 年度に採択された日本学術振興会（JSPS）科学研究費補助金 基盤研究（B）（2）基盤研究「次世代 LSI 用高誘電率ゲート絶縁膜の低温形成と機能評価」（研究代表者：九州大学 中島 寛、研究期間：3 年間）を最終年度として実施した。

本研究では、高活性なプラズマ生成が可能な電子サイクロトロン共鳴（ECR）プラズマによる Si の低温酸化・窒化および ECR プラズマからのスパッタリングによる ZrO₂ の高誘電率絶縁膜の低温堆積により、酸化膜（SiO₂： $\epsilon_s=3.7$ ）換算で 2 nm 以下の ZrO₂/SiN/SiO₂/Si 積層構造ゲート絶縁膜形成の技術基盤を確立することを目的とした。全体として得られた成果は以下の通りである。

- (1) Kr 希釈 O₂ プラズマ照射により絶縁破壊電界 12MV/cm、界面準位 $3.2 \times 10^{10} \text{ eV}^{-1}\text{cm}^{-2}$ の特性を有する高品質酸化膜を 130 °C の低温で達成した。
- (2) 希釈 N₂ プラズマ照射〔最適条件：N₂/(Ar+N₂) = 0.6〕により SiO₂ 換算で 2.46 nm の SiN 膜を形成し、SiO₂ と較べて約 2 桁リーク電流が低減した窒化膜形成を 400 °C の低温で実現した。
- (3) (2) の方法で SiN 膜を形成後、Al を堆積して 450 °C で 30 分間熱処理すると、

SiO₂ 換算膜厚が 1.8 nm まで減少することを見出した。その特性は、リーク電流および界面特性が著しく向上する。原因を解明中である。

- (4) Ar/O₂ プラズマスパッタにより誘電率 20.5、絶縁破壊電界 4MV/cm の特性を有する ZrO₂ 形成を実現した。
- (5) ZrO₂/SiN/Si 積層構造を用いて SiO₂ 換算 1.8 nm の絶縁膜を形成し、SiO₂ と較べて約 3 桁のリーク電流低減、1.5 倍の絶縁破壊電圧向上を実現した。

(c) 「ガラス基板上への多結晶 Si 薄膜の低温形成」

研究体制：KASTEC 先端機能デバイス領域、総合理工学研究院物質理工学専攻

研究経過：ディスプレイ（液晶や有機 EL）用ドライバーの TFT にはアモルファス Si が用いられているが、キャリア移動度が低いために高速動作に問題がある。この課題を解決するために、移動度の大きい多結晶 Si が注目されている。コストを低減するためには、安価なガラス基板上へ 500 °C 以下での多結晶形成が不可欠となる。本領域では、Si 低温エピタキシーのシーズを用いて、ガラス上への多結晶 Si 形成に取り組んでいる。本年度は、ガラス基板上への Si の堆積として、AIC（Aluminum Induced Crystallization: アルミニウム誘起結晶化）プロセスに注目した。得られた成果は以下の通りである。

- (1) 400 °C-3 時間で粒径 10 μm の多結晶 Si が形成できる。熱処理時間が短い時には多結晶 Si 中への Al の混入は少ないが、時間が長くなると Al の混入量が増加する。
- (2) 膜厚が 20 nm の薄い時には (111) 方位が優勢であるが、100 nm の厚い時には (100) 方位が優勢となる。

(d) 「重金属ゲッターリングによる単結晶太陽電池の高効率化」

研究体制：KASTEC 先端機能デバイス領域、日立製作所

研究経過：両面受光太陽電池は両面からの受光で発電する太陽電池で、高い総合変換効率が期待できることから高効率太陽電池として注目され、その研究・開発が行われてきた。日立製作所では、この両面受光太陽電池セル製造およびその産業応用を目的として、セル製造法ならびに太陽光集光方式を検討して発電効率を大幅に向上できる量産プロセスでの製造技術、および両面受光太陽電池の利点が生かせる垂直設置方式に関して開発を行っている。しかしながら、製造には素子活性領域（p 領域）が Fe 汚染され、少数キャリアライフタイムが 1 桁以上低下する問題を抱えていた。本領域では、Fe を活性領域から除去することを目的として、鉄のゲッターリングに関する研究を平成 15 年度より開始した。本年度得られた成果は以下の通りである。

- (1) Fe のゲッターリングに有効な低温ゲッターリングの条件を明らかにし、バルク中で 10¹¹ cm⁻³ まで Fe を除去できることを示した。
- (2) Fe がゲッターリングされるサイトは、高濃度 B 層ではなく、表面であることを示した。従って、Fe の除去には、低温熱処理後の RCA クリーニングが有効であることを示した。

⑧ 今後の研究計画

- ① 文部科学省 科学技術振興調整費 「産学官共同研究の効果的な推進」の制度に「次世代LSI 用高機能Si ウェーハの開発」（研究代表者：九州大学大学院システム情報科学研究院宮尾正信、研究期間：2年間）が平成16年度に採択された。平成15年度に終了した歪SOI プロジェクトで構築した技術基盤をさらに発展させ、超高速回路向けに特化した超薄型の歪SOI ウェーハ開発を実施する予定である。当該グループは、共同研究機関として「電氣的欠陥の高感度評価とマッピング」を担当する計画である。
- ② 経済産業省 地域新生コンソーシアム研究開発事業に「省電力LSI 用高機能Si ウェーハの開発」（研究代表者：中島 寛、研究期間：2年間）が平成16年度に採択された。低電力回路用途の歪SOI ウェーハ開発を実施する予定である。
- ③ 日本学術振興会（JSPS）科学研究費補助金 基盤研究（B）（2）「省電力LSI 用高誘電率ゲート絶縁膜の自己整合プロセス開発」（研究代表者：九州大学 中島 寛、研究期間：2年間）が平成16年度に採択された。平成15年度に終了した高誘電率絶縁膜形成の課題をさらに発展させ、酸化膜換算で1.0 nm の絶縁膜形成に取り組む予定である。
- ④ 「多結晶Si 薄膜の低温形成」は引き続き継続する。この課題に対しては、予算措置がなされていないので、予算獲得に努力する。
- ⑤ 平成15年度より推進している日立製作所との研究「重金属ゲッターリングによる単結晶太陽電池の高効率化」は、次年度も引き続き実施する予定である。
- ⑥ 平成15年度より推進しているENG（株）との共同研究（B）「シリコン中の格子欠陥評価と制御」の研究も引き続き実施する予定である。

5.2.2 先端機能材料領域（桑野範之教授）

① 目的

合金、セラミックス、半導体材料などの機能特性の発現と効率向上には微構造制御が共通のキーテクノロジーである。本領域においては、主に光・電子・磁性に関わる次世代機能材料を対象として研究を行う。具体的には、透過型電子顕微鏡（TEM）、走査型電子顕微鏡（SEM）、およびそれらに付随した解析技法（EDS, CBED, EELS, EBSD など）を駆使して、結晶の成長過程、微細組織形成機構、欠陥発生原因を明らかにし、それらの結果を材料設計や製造プロセスにフィードバックさせることにより、新規機能材料の開発を図る。また、TEM および SEM 解析技術の改善にも力を入れるとともに、デバイス開発・研究の現場における解析技術の浸透およびステップアップを図る活動を推進する。

② プロジェクト研究（概要については後述）

- (a) III-族半導体薄膜結晶の成長機構と欠陥構造の制御
- (b) 相変化を利用した機能性材料の組織制御
- (c) 異相界面を有する機能材料
- (d) 電子材料・エネルギー機能材料
- (e) 微構造の定量的解析法の確立

③ 外部資金導入実績（平成15年度）

<科学研究費>

- ・ 基盤研究 (B) (2) (課題番号：14350342)
研究代表者：桑野範之
課題名：「希土類磁石材料の表面収着処理による微構造制御と磁気特性の改善」
研究期間：平成14～16年度
- ・ 基盤研究 (C) (1) 企画調査 (課題番号：15631005)
研究代表者：桑野範之
課題名：「電子プローブによる光・電子デバイス材料および実装素子のナノ組織解析技術の進展」
研究期間：平成15年度

<民間との共同研究>

- ・ 研究題目：「化合物半導体結晶の転位挙動」
民間機関：住友電気工業（株）
- ・ 研究題目：「異種材料接合界面の研究」
民間機関：三菱マテリアル（株）

<奨学寄付金>

- ・ 受入数：2件（平成15年度）

④ 研究業績（平成15年度）

(a) 論文発表等：計12件

- ・ 原著論文：7件
- ・ 著書、総説：4件
- ・ 国際会議プロシーディング等：1件
- ・ その他：1件

(c) 学会発表：計50件

- ・ 国内学会：34件
- ・ 国際学会：16件

(c) 特許等：

- ・ 国内特許出願数：1件
- ・ 米国特許出願数：1件

(d) 論文リスト（平成15年度発表の10件以内）

- ・ Quantitative basis for the rocking-curve measurement of preferred orientation in polycrystalline thin films
H. Toraya, H. Hobino, H. Ida and N. Kuwano
J. Appl. Cryst. Vol.36, p.890-897 (2003).
- ・ 窒化物薄膜のエピタキシャル成長における基板とバッファ層の役割
桑野範之
日本結晶成長学会誌 Vol. 30, p.62-67 (2003).
- ・ Semi-Quantitative HRTEM for Partially Ordered Materials: Application to Al-rich TiAl Alloys
S. Hata, T. Nakano, K. Higuchi, Y. Nagasawa, N. Kuwano, M. Itakura, Y. Tomokiyo and Y. Umakoshi
Materials Science Forum, Vol. 426-432, p.1721-1726. (2003).
- ・ Semiconducting nanocrystalline iron disilicide thin films prepared by pulsed-laser ablation
T. Yoshitake, M. Yatabe, M. Itakura, N. Kuwano, Y. Tomokiyo and K. Nagayama
Appl. Phys. Lett., Vol.83, P.3057-3059. (2003).
- ・ ハイドロキシアパタイト (HAp)/Ti 接合界面組織
小林千吾、喜多下幸太郎、青野宏通、仲井清眞、桑野範之
バウンダリー Vol.19, p. 31-34 (2003).
- ・ 電子顕微鏡で見るTiAl金属間化合物のナノ組織形成 — Al_5Ti_3 規則化過程で発見された逆位相構造の新しい形成プロセス—
波多 聡、中野貴由、樋口 潔、長澤洋介、友清芳二、桑野範之、馬越佑吉
バウンダリー Vol.19, p. 22-25 (2003).
- ・ TEM analysis of threading dislocations in crack-free $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ grown on an $\text{AlN}(0001)$ template
N. Kuwano, T. Tsuruda, Y. Kida, H. Miyake, K. Hiramatsu and T. Shibata

Phys. Stat. Sol. (c)0, p. 2444-2447 (2003).

- ・ HRTEM image contrast and atomistic microstructures of long-period ordered Al-rich TiAl alloys
S. Hata, K. Higuchi, T. Mitate, M. Itakura, Y. Tomokiyo, N. Kuwano, T. Nakano, Y. Nagasawa and Y. Umakoshi
Journal of Electron Microscopy, Vol. 53. p 1-9 (2004).

⑤ 学会活動等実績（平成15年度）

- ・ 日本金属学会評議員
- ・ 日本金属学会九州支部理事
- ・ 日本金属学会九州支部材料科学談話会世話人
- ・ 日本顕微鏡学会評議員
- ・ 日本顕微鏡学会研究部会（デバイス解析）代表世話人
- ・ 日本結晶成長学会評議員
- ・ “JJAP” 編集委員
- ・ 第5回窒化物半導体に関する国際ワークショップ“IWNS-5” 実行委員・論文委員
- ・ 第8回アジア太平洋電子顕微鏡会議（2004）プログラム委員・セッションオーガナイザー
- ・ 第16回国際顕微鏡学会（2006）組織委員
- ・ 日本学術振興会第172委員会（合金状態図）委員

⑥ 研究員等受け入れ実績（平成15年度）

- ・ 氏名（国籍）：Harini SOSIATI（インドネシア）
受入れ身分：技術補佐員（文部科学省ナノテクノロジー支援プロジェクト）
研究テーマ：「ナノマテリアル開発のための超顕微解析支援」
受入れ期間：平成15年4月～平成16年3月

⑦ 代表的プロジェクト研究内容

(a) 「III-V族半導体薄膜結晶の成長機構と欠陥構造の制御」

- ・ 「クラックフリー AlGaIn 薄膜の成長」

研究体制：先端機能材料領域、三重大学工学部、名城大学

研究経過：紫外線領域にはいる短波長レーザダイオードを目的として、AlGaIn 薄膜が注目されている。しかしながら、AlGaIn 薄膜はクラックが発生しやすく良質結晶性を得るのは困難である。しかし、GaIn/sapphire テンプレート上に AlN 中間層を挟むとクラックの発生を抑えることが出来ることを見出された。詳細な TEM 解析を行い、AlN 中間層において格子定数差による引っ張り応力が界面転位を形成させ AlGaIn 層内の残留応力を緩和することが、クラック発生抑制の原因であることを解明した。これは、異種界面での貫通転位密度の変更は格子ミスマッチの量と方向により制御できることを示している。言い換えれば、基板側に貫通転位が多くても、その転位のもつ歪場を打ち消すような応力があるとその転位は消滅でき、しかも成長層の応力は低減する。これは、他の薄膜成長においても基板の選択の指針となる。たと

例えば、AlN テンプレート上の GaN 膜には、AlN テンプレート中には 10^{10} cm^{-2} 以上の転位密度があるにも拘わらず GaN には転位は伝播しない現象はこの低減機構が働いている。ところが、AlGaIn/AlN テンプレートにはこの低減機構はうまく働かない。そこで、AlN テンプレート中の貫通転位が AlGaIn 中で集合して消滅することを助けるために AlGaIn/AlN 界面において湾曲するように AlN テンプレート表面をリソグラフィ加工によって斜面を作製したその結果、貫通転位は斜面に垂直方向に湾曲し、低転位密度の領域を形成させることに成功した。

(b) 「相変化を利用した機能性材料の組織制御」

・「希土類磁石材料の表面収着処理による微構造制御と磁気特性の改善」

研究体制：先端機能材料領域、九州大学大学院総合理工学研究院、大阪大学先端科学技術共同研究センター、

研究経過：本研究プロジェクト研究は主に科学研究費補助金研究・基盤研究（B）において進められたものである。NdFeB 系希土類磁石材料は、水素処理（HDDR）により得られる微結晶化と結晶方位が制御された高性能ボンド磁石用原料合金の開発により発展した。しかしながら、耐食性に難点がある。そこで、ボンド磁石用 NdFeB 磁石合金粉末に亜鉛（Zn）で被覆することにより耐食性の向上を図った。また同時に磁化の経時変化特性も大きく向上することが明らかになった。詳細な TEM 解析により、Zn 皮膜が無い場合に酸化は急速に進み Nd 酸化物と Fe を発生するが、Zn 皮膜がある場合は Zn-Fe 化合物が生成されることが判明した。Fe が形成されないことが Zn 収着材料における磁化の経時変化特性向上に寄与したものである。さらに、NdFeB 材料のリサイクルとして、NdFeB 合金を酸化して（Fe+Fe₃O₄）を含む複合材を作製し、高周波域用電波吸収剤への応用を目指した。

・「キッシュグラファイトの活用に関する研究」

研究体制：先端機能材料領域、九州大学大学院工学研究院、九州大学先導化学研究所、日本磁力選鉱（株）

研究経過：キッシュグラファイトは製鋼過程や鑄造操業において発生する片状黒鉛であり、多量に排出してしばしば公害の原因にもなる。もしこれが何か別の原料になればきわめて有益である。キッシュグラファイトには生成過程で熔融鉄を挟み込むことがあり、そのため Fe あるいは Fe₃C の微細粒が分布している。すなわち、キッシュグラファイトはカーボンナノファイバー製造のための基板材料としての応用が期待される。しかしながら、製造されるカーボンナノファイバーの径、形状および長さが揃わないという難点がある。これはキッシュグラファイト中の Fe あるいは Fe₃C の粒度分布の広がり大きいことが原因である。そこで粒度分布制御を目指してキッシュグラファイト生成条件の最適化を図った。その結果、熔融状態からやや緩やかに冷却し、（融鉄＋グラファイト）領域で保持した方がキッシュグラファイトの収量は多く、しかも Fe あるいは Fe₃C の粒度分布も均一になる傾向にあることが判明した。

(c) 「異相界面を有する機能材料」

・「化合物半導体結晶の転位挙動」、「異種材料接合界面の研究」

研究体制：先端機能材料領域、住友電気工業（株）、三菱マテリアル（株）

研究経過：本プロジェクト研究はそれぞれ共同研究（C）で行われたものである。いずれのデバイス材料も単独の結晶相で用いられることはほとんど無く、ほとんどはいくつかの異なる相からなる組織をもっている。従って、そこに発生する異相界面がデバイス特性に大きな影響を与える。すなわち、界面における転位等の欠陥の挙動や微構造変化の解析がきわめて重要である。詳細な解析の結果、それぞれのデバイスの作製条件と微細構造の相違、およびデバイス寿命との関連を明らかにすることができた。また、デバイス材料中の転位密度が 10^5 cm^{-2} 程度以下になった場合の欠陥評価方法に改善の必要があることを指摘した。

（d）「電子材料・エネルギー機能材料」

・「スズめっき上に発生するウィスカー」

研究体制：先端機能材料領域、熊本大学工学部

研究経過：2007 年からのヨーロッパでの鉛使用制限に対応するために鉛フリーハンダの研究が進められている。これに伴って電子回路の端子のめっき材料においても鉛フリーとする必要がある。ところがスズ（Sn）めっきにはウィスカー発生という問題が残されており、早急に解決する必要がある。ところが、ウィスカー発生機構についてさえ明らかにされていないのが現状である。これは、スズが極めて柔らかく欠陥が入りやすいことと融点が低く従って再結晶温度が常温近くに下がるために微細組織観察試料の作製が容易でないため、これに関する研究が進んでいないことが原因である。そこで、まず集束イオンビーム装置（FIB）およびマイクロサンプリング装置により TEM 観察用試料を作製するとともに走査イオン像によってスズめっき膜内の 3 次元組織観察を試みた。その結果、Fe-Ni 基板から Ni が急速に Sn 膜内に拡散してきて Ni_3Sn_4 が Sn 結晶粒内と粒界に生成することが判明した。 Ni_3Sn_4 の形成がウィスカー発生機構に何らかの寄与を及ぼしていると思われる。

（e）「微構造の定量的解析法の確立」

・ナノマテリアル開発のための超顕微解析支援

研究体制：先端機能材料領域、九州大学超高压電子顕微鏡室、九州大学大学院総合理工学研究院

研究経過：本研究は、文部科学省ナノテクノロジー支援プロジェクト「超高压透過型電子顕微鏡を活用した解析支援」（平成 14 ～ 18 年度）の一環として行っている。本プロジェクトは、九州大学超高压電子顕微鏡室および関連する施設とが、企業および他大学の研究者・技術者に対して透過型電子顕微鏡を主とする実験設備の利用、実験実施の協力、実験技術および解析技術の援助を行うことにより、研究開発の発展を促進するとともにデバイス解析技術の向上に資するものである。本領域では、産学連携センターに設置されている「集束イオンビーム装置（FIB）（日立製作所（株）：FB-2000K）」にマイクロサンプリング機器を装着し、これまでは透過型電子顕微鏡用サンプルの作製が極めて困難であった試料についても詳細な微構造解析が可能になった。さらに、本支援プロジェクトにより導入された最新のデジタル電顕（FEI 社製：Tecnai-G2-

F20) の稼動開始と相俟って、ナノレベルでの組織解析や化学組成マッピングができるようになった。これらの技術を応用して、いくつもの新事実が明らかになった。たとえば、Fe-42%Ni インバー合金基板上の Sn メッキ材では、低温の熱サイクル処理により Sn 内に Ni が急速に拡散し、 Ni_3Sn_4 相が形成することが確認された。これは、Sn のような低融点の柔らかい合金材料では観察ができなかったもので、初めて観察された例である。また、FIB + マイクロサンプリング技術に関する「産学連携センター 高度技術研修」を開催した。

・「電子プローブによる光・電子デバイス材料および実装素子のナノ組織解析技術の進展」

研究体制：先端機能材料領域、九州大学大学院総合理工学研究院、(株)富士通研究所 他
研究経過：本プロジェクトは主に、科学研究費補助金研究・基盤研究 (C) (1) 企画調査により行った。日本顕微鏡学会研究分科会「デバイス解析」のメンバーを中心に組織したものである。ここでは、主に企業サイドからデバイス開発研究の現場において必要とする解析技術あるいは解析実績を、大学側からデバイス研究に応用可能な解析技術の発展を、解析機器製造メーカー側から分析機器の進展を出し合うことにより、互いに問題の解決を図るとともに解析技術の向上に資することが出来た。これによりまとめられた解析技術に関する解決策は、前出研究分科会「デバイス解析」の活動に引き継がれる。

このほか、「 MgB_2 薄膜の微細構造」、「Ti-Al 合金の規則構造」「ハイドロキルアパタイト/チタン合金」「 FeSi_2/Si 」「Ni による Si-Ge の結晶化」などの研究を推進している。

⑧ 今後の研究計画

(a) III-族半導体薄膜結晶の成長機構と欠陥構造の制御

AlGaIn 薄膜の良質化については、AlN テンプレートの形状を工夫することにより貫通転位密度のさらなる低減を図る。さらに、研究テーマとして、種々の基板上に成長させた InN 薄膜にや InP 系薄膜におけるスピントロク材料に発展させる。

(b) 相変化を利用した機能性材料の組織制御

NdFeB 材料に関しては、これまでの研究成果をまとめる方向に進める。キッシュグラファイトに関しては、日本磁力選鉱(株)とともにカーボンナノファイバー(CNF)の形状制御を目指した研究を進めるとともに、CNF の新たな活用の探索を進める。

(c) 異相界面を有する機能材料

住友電気工業(株)および三菱マテリアル(株)との共同研究を継続して進める。特に、低転位密度材料に解析技術の改善では新規解析装置の開発に発展させる。

(d) 電子材料・エネルギー機能材料

スズめっきでのウィスカーに関する研究では、スズめっき層内に発生する内部応力の効果、Sn 結晶粒の結晶方位、 Ni_3Sn_4 相形成の効果を明らかにする実験研究を進める。とくに、Fe-Ni 基板と Sn 層の界面に注目し、Ni の拡散がどのように影響しているか

を解明していく。

(e) 微構造の定量的解析法の確立

文部科学省ナノテクノロジー支援プロジェクト「超高压透過型電子顕微鏡を活用した解析支援」は引き続き進行させる。この活動の中で新たに提議された解析技術の改善案をさらに発展させて、新規解析機器・解析手法の提案としていく。

平成16年度に九州大学超高压電子顕微鏡室の1000kV 超高压電子顕微鏡の更新が文部科学省により認められたので、世界で初めての1000 kV オメガ電子分光顕微鏡を設置する。これに伴い、超高压であるが故に発生する種々の問題点や改善策、たとえば超高压用イメージングプレートの開発、スロースキャンCCD カメラの照射損傷からの保全、テレプレゼンスへの対応、広い試料室の新たな利用方法、TEM モードとSTEM モードの併用化、など、当該電子顕微鏡のメーカーである日本電子(株)とともに超高压電子顕微鏡のスタンダードを構築する。

5.2.3 環境・新エネルギー領域（三浦則雄教授）

① 目的

本領域においては、産学連携プロジェクトチームを組織することにより、「環境・エネルギー産業」に関する技術シーズの創出、およびそれに基づく新産業創生を行うことを目的としている。具体的には、環境保全、環境計測、環境浄化、さらに新エネルギー開発、省エネルギー技術などに関連した高性能で実用性の高い最先端デバイス、装置、プロセスの設計・開発、および従来になかった新規な機能性材料の探索・創製といった「エナコロジー社会」の実現に貢献できる先端的、創造的プロジェクト研究を企画、推進している。

② プロジェクト研究（概要については後述）

- (a) 自動車触媒の性能監視用排ガスセンサの開発
- (b) 環境浄化／物質変換を同時に行う新規な電気化学的メンブレンリアクターシステムの構築
- (c) 大気環境計測用高感度 NO_x センサの開発
- (d) ナノ構造物質を電極材料として用いた高性能電気化学キャパシタの開発
- (e) 爆薬類の超高感度検出用光学式免疫センサの開発

③ 外部資金導入実績（平成15年度）

<プロジェクト>

- ・ 文部科学省 科学技術振興調整費
プログラム名：産学官共同研究の効果的な推進
研究課題名：「自動車触媒の性能監視用排ガスセンサの開発」
研究代表者：三浦則雄
研究組織：九州大学、(株)リケン
研究期間：平成15～17年度

<科学研究費>

- ・ 基盤研究 (A) (1) 展開研究（課題番号：13355032）
研究代表者：三浦則雄
課題名：「環境浄化／物質変換を同時に行う新規な電気化学メンブレンリアクターシステムの構築」
研究期間：平成13～15年度

<受託研究>

- ・ 委託者：(財)福岡県産業・科学技術振興財団
文部科学省 地域研究開発促進拠点支援業務（研究成果育成型）
研究題目：「複数インピーダンス応答方式による新規トータル NO_x センサの開発」
- ・ 委託者：独立行政法人国立環境研究所
研究題目：「固体素子型 NO_x センサの研究」

<民間との共同研究>

- ・ 研究題目：「省電力型ガスセンサの研究開発」
民間機関：北陸電気工業（株）
- ・ 研究題目：「自動車触媒の性能監視用排ガスセンサの開発」
民間機関：（株）リケン

<奨学寄付金>

- ・ 受入数：3 件（平成 15 年度）

③ 研究業績（平成 15 年度）

- (a) 論文発表等：計 24 件
 - ・ 原著論文：14 件
 - ・ 著書、総説：3 件
 - ・ 国際会議プロシーディング等：6 件
 - ・ その他：1 件
- (d) 学会発表：計 17 件
 - ・ 国内学会：9 件
 - ・ 国際学会：8 件
- (c) 特許等：
 - ・ 国内特許出願数：3 件
 - ・ 公開特許公報：4 件
- (d) 論文リスト（平成 15 年度発表の 10 件以内）
 - ・ 固体電池型ガスセンシングデバイスの開発状況
三浦則雄
粉体と工業、Vol. 35, No. 4, p. 53-60 (2003).
 - ・ 排ガス監視用高温作動型固体電解質 NO_x センサ
三浦則雄、中藤充伸
未来材料、第 3 巻、第 8 号、p. 44-51 (2003) .
 - ・ Highly Sensitive and Selective Surface Plasmon Resonance Sensor for Detection of Sub-ppb Levels of Benzo(a)pyrene by Indirect Competitive Immunoreaction Method
N. Miura, M. Sasaki, K. V. Gobi, C. Kataoka, Y. Shoyama
Biosensors & Bioelectronics, Vol. 18, p. 953-959 (2003) .
 - ・ Sensing Performances of Mixed-potential Type NO_x Sensor Attached with Oxidation-catalyst Electrode
T. Ono, M. Hasei, A. Kunimoto, N. Miura
Electrochemistry, Vol. 71, No. 6, p. 405-407 (2003) .
 - ・ Impedancemetric Gas Sensor Based on Zirconia Solid Electrolyte and Oxide Sensing Electrode for Detecting Total NO_x at High Temperature
N. Miura, M. Nakatou, S. Zhuiykov
Sensors & Actuators B, Vol. 93, p. 221-228 (2003) .
 - ・ SPR 免疫センサとマイクロチャネルセルを用いた環境ホルモン類の多成分同時検出システムの開発

三浦則雄、正山征洋、河津博文、カウベリ・ゴビ、前田英明、岩坂博之
電気学会論文誌 E, Vol. 123, No. 7, p.217-223 (2003) .

- ・ Preparation of a Polyclonal Antibody and a Bioassay for Nitroaromatic Compounds by an Enzyme-Linked Immunosorbent Assay Technique and a Surface Plasmon Resonance Biosensor
T. Sakai, A. Torimaru, K. Shinahara, N. Miura, T. Imato, K. Toko, K. Matsumoto
Sensors and Materials, Vol. 15, No. 8, p.439-452 (2003) .
- ・ Highly Sensitive Detection of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) and Association Constants of the Interaction between PAHs and Antibodies Using Surface Plasmon Resonance Immunosensor
K. V. Gobi, M. Sasaki, Y. Shoyama, N. Miura
Sensors & Actuators B, Vol. 89, p.137-143 (2003).
- ・ NASICON Devices Attached with Li₂CO₃-BaCO₃ Auxiliary Phase for CO₂ Sensing Under Ambient Conditions
K. Obata, K. Shimanoe, N. Miura, N. Yamazoe
Journal of Materials Science, Vol. 38, p.4283-4288 (2003) .
- ・ Preparation of Anti-2,4-dichlorophenol and 2,4-dichlorophenoxyacetic Acid Monoclonal Antibodies
H. Tanaka, S. Yan, N. Miura, Y. Shoyama
Cytotechnology, Vol. 42, p.101-107 (2003) .

④ 学会活動等実績（平成15年度）

- ・ 電気化学会化学センサ研究会役員（庶務幹事、事務局）
- ・ 第10回化学センサ国際会議総務委員長（事務局、組織委員）
- ・ 電気化学会九州支部幹事常議員
- ・ 固体イオニクス学会役員
- ・ 国際学術専門誌“IONICS”, Coeditor
- ・ Sensors Update, Editorial Advisory Board
- ・ イオニックヘテロジャンクションを利用した電気化学デバイスの開発研究会委員

⑤ 研究員等受け入れ実績（平成15年度）

- ・ 氏名（国籍）：Kauveri GOBI （インド）
受入れ身分：外国人特別研究員（学振）
研究テーマ：「光学式免疫センサを用いた環境ホルモンの同時検出システムの開発」
受入れ期間：平成15年4月～平成16年3月
- ・ 氏名（国籍）：Dhesingh RAVI Shankaran （インド）
受入れ身分：訪問研究員（JST博士研究員）
研究テーマ：「爆薬類検出用高感度バイオセンサの研究」
受入れ期間：平成15年5月～平成16年3月

-
- ・ 氏名（国籍）：王 健（中国）
受入れ身分：科学技術振興研究員
研究テーマ：「自動車触媒の性能監視用排ガスセンサの開発」
受入れ期間：平成 15 年 7 月～平成 16 年 3 月
 - ・ 氏名（国籍）：竹林 優（日本）
受入れ身分：共同研究員
研究テーマ：「省電力型ガスセンサ素子の研究」
受入れ期間：平成 15 年 4 月～平成 16 年 3 月
 - ・ 氏名（国籍）：Kalakodimi Rajendra PRASAD （インド）
受入れ身分：訪問研究員（J S T 博士研究員）
研究テーマ：「高性能電気化学キャパシタ用電極材料の開発」
受入れ期間：平成 15 年 8 月～平成 16 年 3 月
 - ・ 氏名（国籍）：島本 洋一（日本）
受入れ身分：科学技術振興研究員
研究テーマ：「自動車触媒の性能監視用排ガスセンサの開発」
受入れ期間：平成 15 年 9 月～平成 16 年 3 月
 - ・ 氏名（国籍）：ELUMALAI Perumal （インド）
受入れ身分：学術研究員
研究テーマ：「排ガス監視用ガスセンサの開発」
受入れ期間：平成 15 年 10 月～平成 16 年 3 月
 - ・ 氏名（国籍）：Serge ZHUIYKOV （オーストラリア）
受入れ身分：訪問研究員
研究テーマ：「排ガス監視用ガスセンサの研究」
受入れ期間：平成 15 年 10 月～平成 15 年 12 月
 - ・ 氏名（国籍）：Jeffrey W. FERGUS （米国）
受入れ身分：訪問研究員
研究テーマ：「自動車触媒の性能監視用排ガスセンサ」
受入れ期間：平成 16 年 1 月～平成 16 年 1 月
 - ・ 氏名（国籍）：Chong Ook PARK （韓国）
受入れ身分：訪問研究員
研究テーマ：「排ガス監視用ガスセンサの研究」
受入れ期間：平成 16 年 1 月～平成 16 年 2 月
 - ・ 氏名（国籍）：今川 耕治（日本）
受入れ身分：科学技術振興研究員
研究テーマ：「自動車触媒の性能監視用排ガスセンサの開発」
受入れ期間：平成 16 年 1 月～平成 16 年 3 月
-

⑥ 代表的プロジェクト研究内容

(a) 「自動車触媒の性能監視用排ガスセンサの開発」

研究体制：KASTEC環境・新エネルギー領域、(株)リケン

研究経過：平成15年度に採択された文部科学省科学技術振興調整費、プログラム名（産学官共同研究の効果的な推進）の「自動車触媒の性能監視用排ガスセンサの開発」プロジェクト（研究代表者：九州大学 三浦則雄、開発期間：3年間）を初年度として実施した。

自動車用排ガス除去触媒を適正に作動させて、排ガス浄化率と燃費を改善するためには、触媒の前後に数十ppm程度のNO_x濃度の検知ができる高性能排ガスセンサが必要である。本プロジェクトでは、大学におけるセンサ工学の専門的研究者と先端的センサ開発技術を有する企業とが、これまでの共同研究をベースにして、より緊密な共同研究体制を構築することにより、実用化にかなり近い段階にある独創的な自動車触媒性能監視用排ガスセンサについての基礎的事項の検討と開発研究を連携して行うことにより、この排ガスセンサの早期実用化を目指している。

本年度はプロジェクト全体として以下に示すような成果を得た。

（九州大学）センサ電極材料の検討・評価については、種々の酸化物系についての検討を行った結果、酸化亜鉛や酸化ニッケル系が高温でも相当な感度を与えるという結果を得た。また、センサ特性発現、劣化機構については、気相反応触媒活性や電気化学活性の測定をもとに解明の手がかりをつかむことができた。さらに、新規検知法による特性改善については、複合酸化物系材料を検知極に用いることにより、複素インピーダンス応答型センサにおいて良好なトータルNO_xの検出が可能ながわかった。（リケン）イットリア安定化ジルコニアグリーンシートに各構成部位を形成して、積層型のセンサ構造とした。その際、NO変換部とNO₂検出部を所定の間隔で対向させ、検出性能に優れた電極配置とすることにより、トータルNO_x濃度に対応した混成電位出力を検出できた。また、酸化触媒電極を用いたセンサ構成を提案し、雑ガス、特に還元性ガスの影響を受けないセンサ構成の最適化を行った。さらに、エンジンガス組成をモデル化したガスを用いて、目的とする影響抑制を達成した。

(b) 「環境浄化/物質変換を同時に行う新規な電気化学的メンブレンリアクターシステムの構築」

研究体制：KASTEC環境・新エネルギー領域、大学院総合理工学研究院物質科学部門、大学院工学研究院物質科学工学部門群、三菱重工業(株)長崎研究所

研究経過：平成13年度に採択された日本学術振興会(JSPS)科学研究費補助金 基盤研究(A)(1)展開研究「環境浄化/物質変換を同時に行う新規な電気化学的メンブレンリアクターシステムの構築」(研究代表者：九州大学 三浦則雄、研究期間：3年間)を、最終年度として実施した。

本年度はプロジェクト全体として以下のような成果を得ることができた。

1) Ba-Fe系ペロブスカイト型酸化物のAサイトの一部をCaで置換した試料が高い酸素透過能を示すことを見出した。また、AサイトCa置換系のBサイトをNi, Mg, Znで約10%置換したところ、酸素透過能の向上が見られ、Zn, Mg, Niの順で高い

酸素透過能を示すことがわかった。2) シュウ酸塩前駆体法による多孔質支持体の調製方法について検討したところ、金属硝酸塩および酢酸塩を出発原料に用いれば約 $1\ \mu\text{m}$ の均一な孔を有し、十分な窒素透過能を示す多孔質支持体が得られた。また、硝酸塩を出発原料として調製した粒子は棒状構造をとっており、機械的強度の向上も期待できることがわかった。3) Mn-Fe 系ペロブスカイトは、La-Sr-Co-Fe 系と比較して、同等かそれ以上の酸素透過能を示すとともに、極めて高い耐還元性を示した。これらは、メタン部分酸化およびメタン-NO メンブレン形反応に優れた特性と安定性を示し、メタンを反応ガスとする新しいメンブレンリアクター材料であることを見出した。4) La(Sr)Ga(Fe)O₃ 系酸化物中の Fe の平均価数を酸化還元滴定法で測定し、Fe は 2 価と 3 価の中間的な価数を広い酸素分圧で示すことを見出した。また、新規な材料として、Pr₂NiO₄ 系酸化物が大きな酸素透過能を有することを見出した。さらに、LaFeO₃ 系において Sc の添加効果を検討し、30mol%Sc 添加で最も大きな酸素透過性能が得られた。5) 混合導電体による酸素分離能力に着目し、分離した窒素の用途および競合技術について調査を行った。窒素の用途は半導体製造分野 (99.99% 以上) から防爆の保安用途 (90% ~ 99%) までであるが、高純度ガスは深冷分離法、中低純度ガスは PSA 及び膜分離法が競合技術となることがわかった。

(c) 「大気環境計測用高感度 NO_x センサの開発」

研究体制：KASTEC 環境・新エネルギー領域、大学院総合理工学研究院物質科学部門、グリーンプルー（株）、フィガロ技研（株）、小糸工業（株）

研究経過：平成 12 年度から開始している科学技術振興機構（JST）「委託開発事業開発費返済特別枠」委託開発課題「大気環境計測用高性能 NO_x 測定システム」（開発期間：3 年 9 ヶ月）に関する研究開発プロジェクトを 9 ヶ月間延長して推進した。上記の 5 グループが協力して、計測システムの高性能化、耐久性の改善、センサ素子製造工程の検討などを行った。

NASICON (Na⁺ 導電体) を用いた限界電流式 NO₂ センサの出力の長期安定化を図るため、パルス駆動法を採用したセンサ素子の実環境大気下での長期応答データを取り、実用化のための性能試験を行った。その結果、本方式で測定した電流応答値は 15 ~ 90ppb の NO₂ 濃度範囲において良好な直線性が得られ、感度は 0.16 nA/ppb を示した。この設定条件における大気環境中での連続測定では、測定を行った 5 ヶ月間は化学発光式 NO_x 計と良い相関が得られた。さらに逆バイアス印加方式を付加することにより、出力の下降現象を改善できることを見出した。

(d) 「ナノ構造物質を電極材料として用いた高性能電気化学キャパシタの開発」

研究体制：KASTEC 環境・新エネルギー領域、先端物質化学研究所先端素子材料部門、先端物質化学研究所融合材料部門

研究経過：平成 14 年度から開始している科学技術振興機構（JST）戦略的創造研究推進事業（CREST）、研究領域「エネルギーの高度利用に向けたナノ構造材料・システムの創製」の「ナノ構造単位材料から構成される電力貯蔵デバイスの構築」（研究代表者：先端研 山木準一教授、研究期間：5 年間）なるプロジェクトを研究分担

して推進している。平成15年度は以下のような成果を得た。

硝酸塩分解法で得られた粒径が40 – 50 nm のITO (In_2O_3 に SnO_2 を 5 wt% 固溶) を添加した場合には、容量は小さく 200 F/g 程度であった。一方、逆沈殿法で得られたITO ナノ粒子を用いた場合には、1000 °C 焼成した約 36 nm の粒径の試料で 269 F/g 、600 °C で焼成した約 19 nm の粒径の試料では 305 F/g もの容量が得られた。このことは、カーボン単独電極の 174 F/g と比較して、75 % もの容量増加効果が得られたことを示している。また、この電極を用いたコイン型キャパシタの長期充放電特性を検討した結果、500 サイクル後でも、カーボン単独電極を用いた場合と比べて、約 60 % の容量増加が見られることを確かめた。

(e)「爆薬類の超高感度検出用光学式免疫センサの開発」

研究体制：KASTE C 環境・新エネルギー領域、システム情報科学研究院、大学院農学研究院、大学院工学研究院、九州計測器（株）、インテリジェントセンサーテクノロジー（株）ほか

研究経過：平成14年度から開始している科学技術振興機構（JST）戦略的創造研究推進事業（CREST）、研究領域「人道的観点からの対人地雷の探知・除去活動を支援するセンシング技術、アクセス・制御技術の研究開発」の「爆薬分子を超高感度で認識するバイオセンサの開発」（研究代表者：システム情報科学研究院 都甲潔教授、研究期間：5年間）なるプロジェクトを研究分担して推進している。平成15年度は以下のような成果を得た。

爆薬類である TNT の類縁化合物のトリニトロフェノール（TNP）および TNT、ジニトロトルエン（DNT）を検知対象物質として、表面プラズモン共鳴センサを用いた間接競合法による高感度検出を試みた。間接競合法はコンジュゲート抗原を金薄膜上に固定する手法であり、直接測定法よりもはるかに高感度で低分子量の抗原を検出できる。まず、コンジュゲート抗原を金薄膜上に固定した後、非特異吸着をつぶすためにウシ血清アルブミン（BSA）を流した。その後、各濃度に調整したサンプル溶液を素子に流通させた。このとき、各サンプル溶液には 20 ppm のモノクローナル抗体を混合した。その結果、TNP は 10 ppt から 100 ppb、TNT は 60 ppt から 1000 ppb の広範囲で高感度検出できることがわかった。

⑨ 今後の研究計画

- ① 文部科学省の「自動車触媒の性能監視用排ガスセンサの開発」については、平成16年度以降も（株）リケンとの産学連携をさらに推し進めることにより、高性能排ガスセンサの早期実用化を目指す予定である。
- ② 文部科学省 科学研究費「特定領域研究」(2)「異種接合ナノ界面の特異ガス認識機能を用いた高性能センシングデバイスの構築」（課題番号：16079208、研究代表者：三浦則雄、研究期間：5年間）が平成16年度から採択されたため、特異検知特性を示す高性能固体電解質センシングデバイスの設計、構築について検討する予定である。
- ③ 科学技術振興機構の「ナノ構造単位材料から構成される電力貯蔵デバイスの構

築」に関するプロジェクトについては、平成１６年度以降も電気化学レドックスキャパシタ用の高性能電極材料、特に酸化物系や導電性ポリマー系の開発を引き続き進める予定である。

- ④ 科学技術振興機構の「爆薬分子を超高感度で認識するバイオセンサの開発」に関するプロジェクトについては、プロジェクト内の各グループが連携し、実際の地雷から漏れ出る極微量の爆薬類分子の検出が可能なセンシングシステムに適用するために、超高感度光学式免疫センサの開発を引き続き行う予定である。
- ⑤ 平成１５年度より採択されている国立環境研究所からの受託研究である「固体素子型 NOx センサの研究」については、ベース材料として安定化ジルコニア固体電解質を用いることにより、ppb レベルの低濃度 NOx の検知が可能な環境計測用高感度ガスセンサの開発を進めている。今後は、さらなるセンシング特性の改善を目指して、素子構造の設計、検知極材料の探索、応答メカニズムの検討などを進める予定である。
- ⑥ 科学技術振興機構の「大気環境計測用高感度 NOx センサの開発」プロジェクトについては、当初の終了予定を９ヶ月延長して、平成１５年度に開発終了した。今後は、本センシングシステムの商品化に向けた努力を行う予定である。
- ⑦ 平成１３年度より推進している北陸電気工業（株）との共同研究（Ｂ）「省電力型ガスセンサ素子の研究」では、生活環境空間の監視・制御が可能な省電力型高性能マイクロガスセンサの開発を目指している。平成１５年度には、酸化物系の高感度、高選択的検知材料を探索・開発できた。平成１６年度は、さらなるセンシング特性の改善と実用素子としての検討を行う予定である。

5.2.4 電離気体・レーザー領域（間瀬 淳教授）

① 目的

プラズマの物理と工学的応用、ミリ波デバイスおよびシステムの研究とその応用に
関連した研究・教育を行う。特に、民間企業や他大学および公的研究機関との共同研
究も含めたプロジェクト研究を推進していくことを目的としている。

② プロジェクト研究（内容については後述）

- (a) 磁場核融合のための先進的プラズマ計測法の開発
- (b) プロセス用プラズマの生成と制御
- (c) マイクロ波・ミリ波デバイスおよびシステムの開発とその応用

③ 外部資金導入実績

<プロジェクト>

- ・ 文部科学省 科学技術振興調整費
プログラム名：産学官共同研究の効果的な推進
課題名：「新方式マイクロ波プロフィールメータの開発」
研究代表者：間瀬 淳
組織：九州大学、九州日立マクセル(株)、(株)松島機械研究所
研究期間：平成14～16年度
- ・ 経済産業省
プログラム名：地域新規産業創造技術開発事業
課題名：「高性能異物検出装置の開発」
研究代表者：園川真隆
組織：九州大学、三重津田電器産業(株)
研究期間：平成15～16年度
- ・ 核融合科学研究所
プログラム名：一般共同研究
課題名：「LHD におけるECE イメージング」
研究代表者：間瀬 淳
組織：九州大学、筑波大学、核融合科学研究所
研究期間：平成15年度
プログラム名：LHD 計画共同研究
課題名：「超短パルスマイクロ波によるプラズマ診断」
組織：九州大学、東京大学、筑波大学、宇都宮大学、新潟大学、核融合科学研究所
研究期間：平成12～15年度
- ・ 日本学術振興会
プログラム名：日米科学技術協力事業（核融合分野）
課題名：「先端的ミリ波プラズマ診断法の開発」
研究代表者：間瀬 淳

組織：九州大学、東北大学、東京大学、筑波大学、核融合科学研究所
カリフォルニア大学デービス校、プリンストン大学

研究期間：平成 11 年度～

プログラム名：テキサトル共同研究

課題名：「マイクロ波画像計測」

研究代表者：間瀬 淳

組織：九州大学、FOM プラズマ物理研究所（オランダ）、ユーリッヒ総合研究
機構（ドイツ）

研究期間：平成 13 年度～

<科学研究費>

- ・ 萌芽研究（課題番号 14658133）

研究代表者：間瀬 淳

課題名：「Cavity Ring Down Interferometer によるプラズマ密度の高分解測定」

研究期間：平成 14～15 年度

- ・ 基盤研究（A）（課題番号 14208055）

研究代表者：長山好夫

課題名：LHD におけるマイクロ波イメージング計測

研究期間：平成 14～16 年度

<受託研究>

- ・ 委託者：九州日立マクセル(株)

研究題目：「マイクロ波・ミリ波デバイスおよびシステムの開発と応用」

<民間との共同研究>

- ・ 研究題目：「新方式マイクロ波プロフィールメータの開発」

民間機関：九州日立マクセル(株)

- ・ 研究題目：「新方式マイクロ波プロフィールメータの開発」

民間機関：(株)松島機械研究所

- ・ 研究題目：「高性能非破壊検査装置の開発」

民間機関：三重津田電器産業(株)

<奨学寄付金>

- ・ 受入数：1 件（平成 15 年度）

③ 研究業績（平成 15 年度）

- (a) 論文発表等：計 15 件

- ・ 原著論文：7 件
- ・ 著書、総説：1 件
- ・ 国際会議プロシーディング等：7 件

- (b) 学会発表：計 21 件

- ・ 国内学会：8 件
- ・ 国際学会：13 件

(e) 論文リスト (平成15年度発表の10件以内)

- Progress in Millimeter-Wave Imaging Diagnostics
A. Mase, Y. Kogi, K. Kawahata, Y. Nagayama, B. H. Deng, C. W. Domier, N. C. Luhmann, Jr., E. Mazzucato, T. Munsat, H. K. Park
Trans. Fusion Sci. Tech., Vol. 43, pp. 237-242 (2003) .
- Recent Diagnostics Development on LHD
S. Sudo et al.
Plasma Phys. Control. Fusion, Vol. 45, No. 7, pp. 1127-1142 (2003) .
- Reflectometry Study of Mode Coupling in Fusion Plasma Turbulence
L. G. Bruskin, A. Mase, N. Oyama, K. Ghinohara, Y. Miura
Plasma Phys. Control. Fusion, Vol. 45, No. 7, pp. 1222-1245 (2003) .
- Observation of the Phase Coupling in Tokamak Plasma Using Microwave Reflectometer
L. G. Bruskin, N. Oyama, A. Mase, K. Shinohara, Y. Miura
Conf. Digest of 28th Int. Conf. on Infrared and Millimeter Waves, Ohtsu, pp. 43-44 (2003). (invited talk)
- Advancement of Millimeter-Wave Imaging Diagnostics on LHD
Mase, Y. Kogi, L. Bruskin, M. Ignatenko, T. Yasuda, K. Uchida, K. Nishiyori, K. Kawahata, Y. Nagayama, H. Hojo, M. Matsukuma, S. Aoi, E. Sakata
Conf. Digest of 28th Int. Conf. on Infrared and Millimeter Waves, Ohtsu, pp. 83-84 (2003). (invited talk)
- Recent Advancements in Microwave Imaging Plasma Diagnostics
H. Park, C. C. Chang, B. H. Deng, C. W. Domier, A. J. H. Donne, K. Kawahata, C. Liang, X. P. Liang, H. J. Lu, N. C. Luhmann, Jr., A. Mase, H. Matsuura, E. Mazzucato, A. Miura, K. Mizuno, T. Munsat, Y. Nagayama, M. J. van de Pol, J. Wang, Z. G. Xia, W-K. Zhang
Rev. Sci. Instrum., Vol. 74, No. 10, pp. 4239-4262 (2003) .
- Recent Diagnostic Developments on LHD
S. Sudo et al.
Plasma Phys. Control. Fusion Vol. 45, No. 12A, pp. A425-A443 (2004) .
- Recent Advance in LHD Experiment
O. Motojima et al.
Nucl. Fusion Vol. 43, No. 12, pp. 1674-1683 (2004) .
- Dispersion Relation of Electromagnetic Waves in One-Dimensional Plasma Photonic Crystals
H. Hojo, A. Mase
J. Plasma Fusion Res. Vol. 80, No. 2, pp. 89-90 (2004) .
- Microwave Imaging Reflectometry of Corrugated Metal Target
M. Ignatenko, A. Mase, L. Bruskin, Y. Kogi, H. Hojo
J. Plasma Fusion Res. Vol. 80, No. 2, pp. 87-89 (2004) .

④ 学会活動等実績（平成15年度）

- ・教科書「プラズマ診断の基礎と応用」責任編集
- ・マイクロ波プラズマ計測国際シンポジウム開催，九州大学産学連携センター
2004 年3月20日～25日

⑤ 研究員等受け入れ実績（平成15年度）

- ・氏名（国籍）：Neville C. Luhmann, Jr. （アメリカ合衆国）
受入れ身分：訪問研究員
研究テーマ：「先端的ミリ波計測システムに関する国際研究拠点形成」「大学間協力協定準備」
受入れ期間：平成15年6月，平成15年9月～平成15年10月，平成16年3月
- ・氏名（国籍）：Hyeon K. Park （アメリカ合衆国）
受入れ身分：研究員
研究テーマ：「マイクロ波イメージング計測の研究」
受入れ期間：平成16年3月
- ・氏名（国籍）：Myeon Kwon （韓国）
受入れ身分：研究員
研究テーマ：「プラズマ計測に関する日韓協力打合せ」
受入れ期間：平成16年3月
- ・氏名（国籍）：Anthony J. H. Donne （オランダ）
受入れ身分：研究員
研究テーマ：「マイクロ波イメージング計測の研究」
受入れ期間：平成16年3月
- ・氏名（国籍）：Leonid G. Bruskin （ニュージーランド）
受入れ身分：科学技術振興研究員
研究テーマ：「新方式マイクロ波プロフィールメータの開発」
受入れ期間：平成15年7月～平成16年3月
- ・氏名（国籍）：近木祐一郎（日本）
受入れ身分：研究機関研究員
研究テーマ：「ミリ波デバイスおよびシステムの開発」
受入れ期間：平成15年4月～平成16年3月
- ・氏名（国籍）：松隈正明（日本）
受入れ身分：受託研究員
研究テーマ：「ミリ波平面アンテナアレイの開発」
受入れ期間：平成15年5月～平成16年3月

⑥ 代表的プロジェクト研究内容

(a) 磁場核融合のための先進的プラズマ計測法の開発

研究体制：九州大学、核融合科学研究所、筑波大学、東京大学、日本原子力研究所、カリフォルニア大学デービス校、プリンストン大学、オランダ基礎物理研究所

研究経過：主として、平成12年度から開始している核融合科学研究所LHD 計画共同研究、また、日本学術振興会日米科学技術協力事業（核融合分野）、およびテキサトール共同研究による研究者相互派遣により、核燃焼プラズマを対象とした磁場核融合実験における先進的ミリ波診断法の開発研究を国際協力で進めている。

本年度は以下の成果が得られた。

(1) 昨年度に引き続き、ボウタイアンテナを用いたMMIC 検出器をイメージングアレイに適用し、核融合科学研究所大型ヘリカル装置（LHD）の電子サイクロトロン放射測定を行なった。特に検出器間の相互相関スペクトルを評価し、電子温度揺動スペクトルの導出に成功した。また、イメージングアレイの高性能化を目的とした改良型ダイポールアンテナの設計と製作を行ない、アンテナ指向性、検出器としての変換損失の評価を行なった。

(2) パルス幅22ピコ秒のインパルス発生器を入射波とした超短パルス反射計をLHD装置に設置した。LHD の高密度プラズマに適用するため、パルス発生器出力を導波管によりチャープ化した信号（周波数8-18 GHz）を低損失同軸ケーブルでLHD 本体近傍まで伝送した後、アクティブダブラーを通して高周波化（周波数26.5-40 GHz）し、高利得円錐ホーンによりプラズマに照射している。同形ホーンにより受信された反射波は、マイクロ波増幅された後低損失同軸ケーブルにて50 GHz の高速サンプリングスコープで構成される信号収集系に送られる。LHD プラズマが生成される時間以前に真空容器内対向壁からの反射波を観測し、プラズマ発生後には、周辺部プラズマからの反射波とみなされる信号を観測することができた。

(3) 超高速ネットワーク（スーパーSINET）を用いた核融合科学研究所大型ヘリカル装置への遠隔実験参加システムの構築を行った。スーパーSINET は、先端的学術研究機関間の連携を強化して、日本の学術研究を飛躍的に発展・増進させることを目的とする、10ギガビットの光通信技術を用いる世界最高速の研究用のインターネットで、文部科学省国立情報学研究所が平成14年始めから運用しているものである。平成14年度、核融合科学研究所と九州大学産学連携センター当プロジェクトの間でこのスーパーSINET を利用した遠隔実験参加システムの整備が認められ、平成15年3月31日にその設置が行われた。平成15年度中には、本グループによりLHD に取付けられた計測装置—電子サイクロトロン放射イメージングおよび超短パルス反射計—の九州大学からの完全遠隔操作および収集データのオンライン転送を実現した。

(b) プロセス用プラズマの生成と制御

研究体制：九州大学、東京大学、(株)日立機械研究所

研究経過：半導体デバイスの分野において、次世代のエッチングリアクタにはプラズマプロセスの利用が不可欠と考えられ、高密度かつ大口径（直径300 mm）で一様なプラズマの生成が望まれている。本研究では、電磁波を用いた非摂動プラズマ計測システムを適用することにより、プラズマの生成条件を左右するパラメータの空間的振舞いを調べ、生成の最適化を図っていくことを目的としている。本年度は、平成14年度から継続している超短パルス反射計と、当グループにより開発された、新しい密度分布再構成アルゴリズム（SRA-Signal Record Analysis）を組み合わせた手法

の改良を進めた。また、プロセスプラズマとして利用されている誘導結合型高周波プラズマを対象として、プラズマ吸収プローブにより得られた密度分布と比較することにより計測システムとしての信頼度の向上につとめた。

(c) ミリ波デバイスおよびシステムの開発と応用

研究体制：九州大学、筑波大学、九州日立マクセル(株)、(株)松島機械研究所、三重津田電器産業(株)

研究経過：本課題は平成12年度日本学術振興会とNEDOによるマッチングファンド方式産学連携事業に端を発しており、現在は平成14年度から開始された文部科学省科学技術振興調整費・産官学共同研究の効果的な推進「新方式マイクロ波プロフィールメータの開発」に基づき研究を進めている。平成15年度の研究成果は以下の通りである。

(1) プロフィールメータのシステム設計と評価：平成14年度から行なってきた、周波数10 GHzの周波数変調連続波(FM-CW)レーダーに対する発振部、伝送線路、および信号検出部の設計と評価については、基板加工システムおよびベクトルネットワークアナライザを用いることにより効率良く進めることができ、最適化設計までもって行くことができた。これらを組み合わせたプロトタイプ品が、新型マイクロ波レベル計として(株)松島機械研究所において製品化されている。

(2) 送受信部の設計・製作に関する研究：送受信アンテナの内、導波管形アンテナについては、ガウスビーム伝播特性に優れたコルゲートホーンと集光レンズを種々の工作方式(一体型、二分割、縦割り二分割)で製作し、周波数70-80 GHzについて指向性および利得の評価を行ない設計値とほぼ一致する値が得られた。また、前2者については実用上遜色がない結果が得られた。平面形アンテナでは、従来のボウタイアンテナとともに、新しくパッチアンテナ、改良型ダイポールアンテナの設計・製作を行ないアンテナ特性の比較を行なった。特に後者では、軸対称に優れた指向性を得ることができた。

(3) 電磁波伝播の計算機シミュレーション：ミリ波帯電磁波の種々の媒質中の、二次元および三次元伝播特性の計算機シミュレーションを様々な分野への適用した。例としては、食品中の異物検査、プラズマディスプレイパネルで代表されるマイクロプラズマに対する新計測法の提案、ミリ波帯でのプラズマフォトリック結晶などの新しい概念の提案などを行なった。また、プラズマ計測では、従来型反射計とイメージング反射計の比較を行ない、イメージング方式の優位性を実証した。

(4) 試作品の性能評価：マイクロ波プロフィールメータシステムとして、食品中の微小異物の評価に適用した。一例としてカップ麺を対象とし、相互相関解析等の信号処理を施し、入射波長と同程度の半径2-3 mmの異物の評価を行なった。

(5) MICおよびMMICマスクの試作とその改良：プロフィールメータの重要部分となる平面形アンテナのIE3Dソフトによる設計およびシミュレーションと、超精密加工技術を利用した試作を進めた。アンテナの種類としては、周波数76 GHzを対象としたパッチアンテナ、周波数8-24 GHz UWB(Ultra Wide Band)用ログペリオディックアンテナおよびログスパイラルアンテナがある。パッチアンテナについては

アレイ設計を行ない、銅泊を施したテフロン基板を用い基板加工システムで製作したもの、テフロン基板に銅あるいはニッケルをスパッタリングし九州日立マクセル(株)の保有する超精密加工技術（EF2）で試作したものの両者について性能評価を行なった。評価は、九州大学産学連携センターにおいて、ベクトル・ネットワークアナライザーシステムおよび電波暗室を用いた遠方界測定で行なった。

⑦ 今後の研究計画

1. 文部科学省科学技術振興調整費・産官学共同研究の効果的な推進「新方式マイクロ波プロフィールメータの開発」については、平成16年度も、九州日立マクセル(株)、および、(株)松島機械研究所との共同研究をさらに推進することにより、その開発と実用化を目指す予定である。
2. 文部科学省科学研究費・特定領域研究「核燃焼プラズマのための先進的ミリ波診断法の開発」（課題番号：16082205、研究代表者：間瀬 淳、研究期間：4年間）が平成16年度から採択されたため、従来から進めている、反射計およびイメージング計測を中心としたミリ波診断法の開発をさらに進めるとともに、国際熱核融合実験炉（ITER）プラズマへの適用上の課題の解決を図って行き、燃焼プラズマにおける揺動輸送解明を目的とした研究を推進して行く予定である。
3. 経済産業省地域新規産業創造技術開発事業による「高性能異物検出装置の開発」については、平成16年度も継続し、三重津田電器産業(株)との研究協力で、周波数50 GHz ～ 70 GHz のミリ波を用いた食品中異物検査装置の最適設計と実用化試験を進め、プロトタイプ品の製作を実現して行く。
4. 平成13年度より進めている(株)松島機械研究所との共同研究「新型マイクロ波レベル計の開発」では、平成15年度中に周波数変調形（FM-CW）レーダーを原理とした装置についての集積回路設計の最適化、および実用化試験が行なわれ、製品化が実現している。現在販売実績も上がっている。平成16年度は、パルスレーダーを原理としたレベル計システムの設計・製作を共同研究で進めて行く。
5. 平成16年度より新たに九州電力(株)総合研究所との共同研究「マイクロ波を用いた乾燥・殺菌技術とその応用に関する研究」が開始される。周波数1～10 GHzのマイクロ波電力は、誘電損失の大きい媒質に吸収され熱に変わることを利用し加熱に利用されてきた。本研究では、特に誘電損失が大きく、マイクロ波加熱に最適とされている水分を多量に含んだ媒質について、その加熱蒸発による乾燥効果、内部加熱による殺菌効果の二点に着目し、これが有効とされている廃棄物処理、污泥処理等の分野に適用するべく実証実験を行なっていく。