



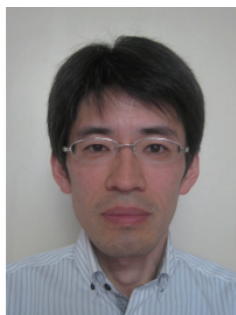
<第1回>

寒冷地におけるディーゼル PM 低減への挑戦 ～ナノテクノロジープラットフォームの異分野若手研究者支援～

北見工業大学 工学部 機械工学科 林田 和宏

北海道大学・NPJ 微細構造解析 PF 坂口 紀史, 吉田 裕 (現, 北見工業大学), 松尾 保孝

ナノテクノロジープラットフォームセンター 産学官連携推進マネージャー 北海道担当 科学技術振興機構 (JST) 東 陽介



(左から) 北見工業大学 林田 和宏, 北海道大学 坂口 紀史, 吉田 裕, 松尾 保孝, JST 東 陽介



1. はじめに

ナノテクノロジープラットフォーム事業 (以下, NPJ 事業) では, 新たな試みとして, 全国 5 地域に科学技術振興機構 (以下 JST) 所属の産学官連携推進マネージャーを配置し, ナノテク先端機器共用施設の新規利用者支援に努めてきた [1]. マネージャーの一員として地域の企業や大学研究者の皆様と直接対話する中で「大学の設備は敷居が高く感じる (中小企業)」, 「先端機器は操作を習得するのに時間がかかり, 分野外の人間には利用する勇氣も時間もない (異分野研究者)」, 「あの大先生の機器をお借りするのは恐れ多くてとてもとても・・・ (若手研究者)」, 「共用機器はメンテナンスが十分じゃないから使いにくい」等々の誤解に多く突き当たってきた。

そういった一昔前の大学共用設備に対する印象を変え, 日本の研究・開発環境に「共用文化」を生み出そうと, 全国 25 の NPJ 事業実施機関の皆様は日夜奮闘されている。NPJ 事業ではナノテク関連先端機器の利用はもちろん, 実施機関の方々がこれまで蓄積してきたノウハウを提供する事により効率的な利用を実現する人的支援の部分に力を入れている。運営側も多くの労力がかかる中で, 前向きに取り組んでいただいている実施機関の方々には頭が下がる思いである。

マネージャーの重要な使命として企業や異分野研究者の NPJ 事業新規利用増進がある。本稿では, 北海道地域

において, 大学工学部・機械工学科のご所属でナノテクには縁のなかった若手研究者への支援活動を例に示す。NPJ 事業を有効活用する事で, アイデアさえあれば誰でも多様な挑戦や問題解決ができる事を少しでも感じていただければ幸いである。



2. 研究・開発現場を歩く

--- 北見工業大学 林田氏との出会い ---

マネージャーとして研究・開発現場を歩く中で, 北海道地区では NPJ がその事業名から半導体等の微細加工関連技術を連想される方が多く, 利用分野が限定されていて自分には関係ないものと感じる方が多かった。ナノテクノロジー関連技術はライフサイエンスから材料, 電気電子まで非常に多様な分野で活用され, ICT や環境技術と並んで産業競争力強化に資する分野横断技術としてイノベーションの源泉と期待されている [2]. そのため, 本分野における各国の投資が年々増えているが [3], 日本において, この認識はすそ野までは十分行き渡っていない印象を受けた。

そこで北海道地区では, 活動の一環として, JST がこれまで蓄積してきた独自の情報と地域大学の産学官連携部門との協力関係を活かし, 企業の開発担当者や企業との連携に関連しそうな課題を実施している研究者, 企業連携のきっかけとなる知財を検討されている先生に, で

きるだけ Face to Face で NPJ 事業を紹介する機会を設け NPJ の利用促進活動を行ってきた。

今回紹介する林田氏もその活動の中で出会った一人である。自動車会社と共同研究の経験をお持ちで、ディーゼル機関から排出される粒子状物質（PM：Particulate Matter）の研究をされていた。



3. ディーゼル機関における PM 生成過程の研究に対する出口

PM とはあの大気汚染で報道される PM2.5 の PM のことで、読者の方々もニュース等で耳にされた事があるだろう。PM の排出源は石油燃焼や廃棄物処理、自動車排気などがあるが、林田氏の対象はディーゼルエンジンの自動車排気に含まれる PM である（図 1）。

ディーゼル機関の排気ガスに含まれる PM は、燃料の不完全燃焼により生成する有害物質である。PM が大気へ排出されると生体に悪影響を及ぼすと同時に地球温暖化の原因となることから、排出量の更なる低減がもとめられている [4]。ディーゼル機関は主に拡散燃焼により燃焼が進行するため、火炎内部では空気と燃料の混合が不十分となり、PM が生成されやすい。

しかしながら、PM におけるナノ構造については未だ不明な点が多く、様々の運転条件で排出される PM のナノ構造が明らかにできれば、ディーゼル機関のシリンダ内における燃焼特性が PM のナノ構造に及ぼす影響の明確化が可能となり、以下の研究開発への寄与が期待されている。

- ①高効率な PM 除去技術
- ② PM の特性を制御する新しいエンジン燃焼技術開発
- ③近い将来実用化が期待される次世代直噴ガソリンエンジンや排出規制の強化が見込まれる船舶用内燃機関開発



4. 寒冷地における PM 問題

林田氏は北海道の東部に位置する北見工業大学の所属という事もあり、寒冷地における PM 問題について基礎から応用まで幅広く研究されている。ディーゼル車の PM 排出量を低減する技術の一つに、ディーゼル微粒子除去フィルター（DPF）がある。DPF は PM をフィルターに捕集し、排気ガスに含まれる酸素あるいは二酸化窒素によって酸化除去を行うもので、これにより PM 排出量は大幅に低減する事が可能である。しかしながら、長時間にわたる暖機運転や外気による DPF の冷却で十分な排気温度が得られない寒冷地条件下では、酸化が促進されずフィルターに PM が堆積する。そのため、DPF に一定の PM が堆積すると、DPF を加熱してフィルター中の PM を酸化させ、フィルターを再生させる必要がある。この工程において、DPF は動力に寄与しないエネルギーを消費するため、ディーゼル車の燃費に悪影響を及ぼす。

DPF の再生に必要なエネルギー量は、PM に含まれるすす粒子の酸化反応性に影響を受ける。すす粒子は質量の大部分を炭素が占め、結晶構造のグラファイトと、不定形であるアモルファス構造の炭素が混在した構造となっている。この 2 種類の構造は酸化反応性が異なり、その

PM（Particulate Matter）：粒子状物質

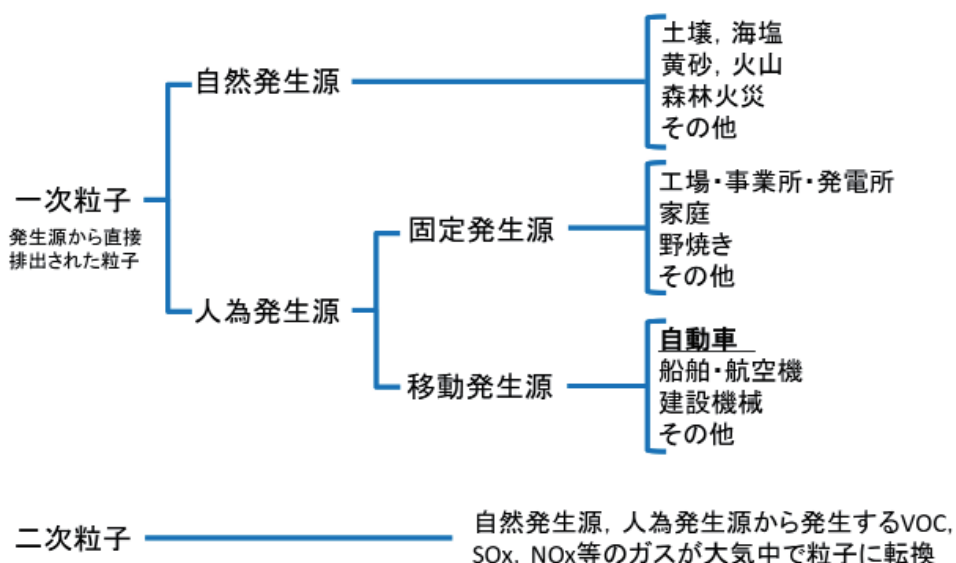


図 1 PM の発生源

存在割合ですす粒子の酸化反応性も変化する。一般に、グラファイト化の進んだサイズの大きな結晶で構成されるすす粒子ほど酸化反応性が低く、酸化に高い温度を要する。これまでに、すす粒子のナノ構造についてはいくつかの報告があるものの、運転条件がすす粒子のナノ構造に及ぼす影響については未だ不明な点が多い。



5. 林田氏の分析手法

--- レーザーラマン分光測定システム ---

林田氏はディーゼル機関から排出されるすす粒子を採取し、レーザーラマン分光測定システムを用いてすす粒子のナノ構造分析を行っている（図 2a, 2b）。試料のすす粒子にレーザーを照射して得られるラマンスペクトルは、すす粒子を構成する炭素系物質の振動モードの違いによる 5 つのバンド（G バンド、D バンド、D2 ～ D4 バ

ンド）から構成され则认为られている [5]（図 3）。G バンドと D バンドのピーク強度比（ I_d/I_g ）は炭素材料を構成する結晶サイズを示すとされており、これを求める事でグラファイト化度の評価を行ってきた。上記システムを用いてディーゼル機関における燃焼噴射時期がすす粒子のナノ構造に及ぼす影響をラマンスペクトルで解析した。

その結果、① I_d/I_g は燃料噴射時期が上死点前 6° 付近で低い値を示し、② I_d/I_g は機関の負荷の上昇に伴い高くなる事が明らかになった（図 4）。



6. PM のナノ構造を直接観察することができないか？

レーザーラマン分光測定システムにより PM の生成条件とナノ構造の関係についての分析は可能となったが、

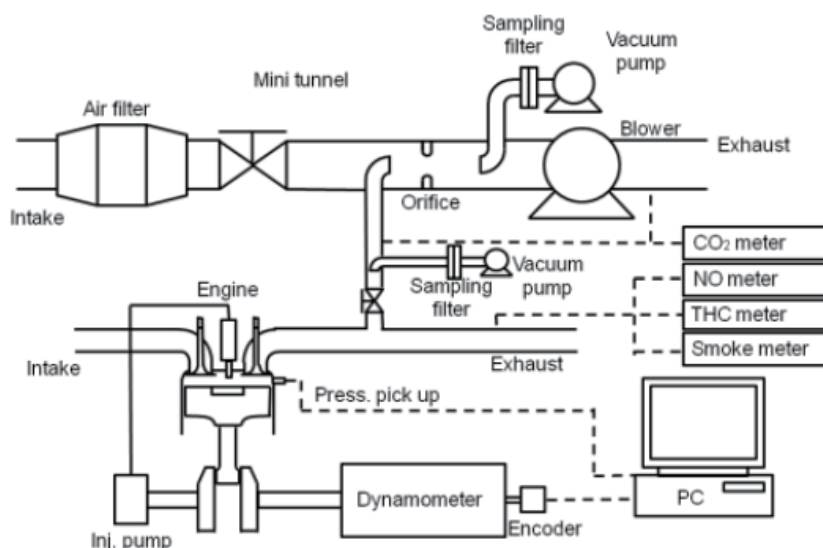


図 2a 代表的な供試機関の例

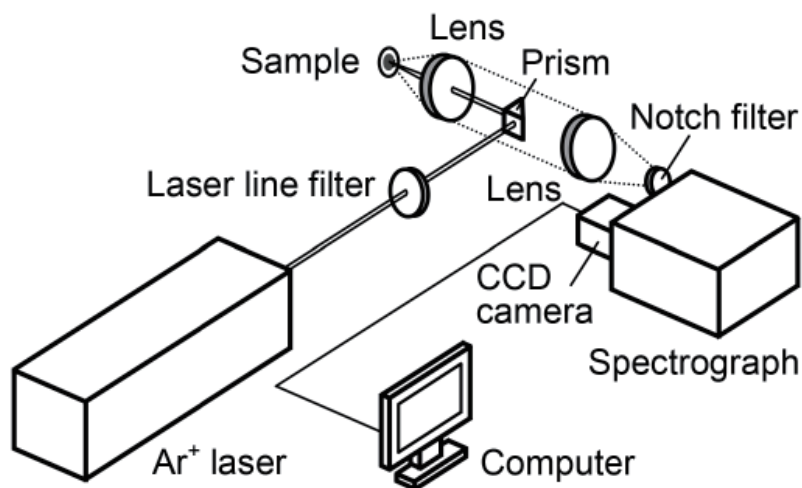


図 2b レーザーラマン分光測定システム

Gバンド

理想的なグラファイト格子の振動 (E_{2g})

Dバンド

格子乱れに起因するグラファイト格子の振動 (A_{1g})

D2バンド

格子乱れのあるグラファイト格子の振動 (E_{2g})

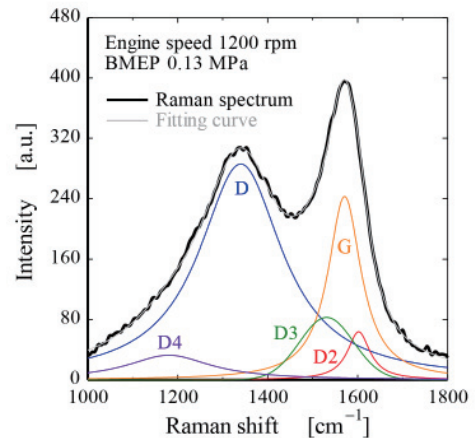
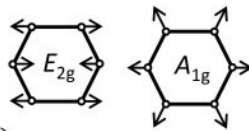
D3バンド

アモルファス炭素由来

D4バンド

帰属不明

(sp^2 - sp^3 結合混在炭素 and/or ポリエン由来?)



すすのラマンスペクトル

図3 レーザーラマンスペクトルのカーブフィッティング

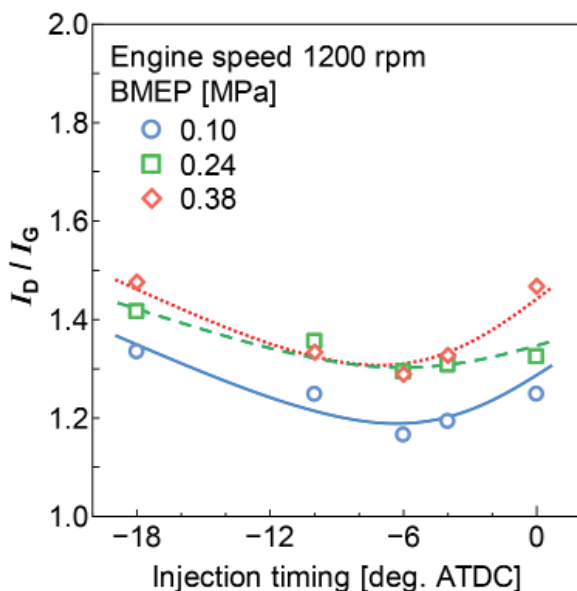


図4 燃料噴射時期による I_D/I_G の変化

文情報から HRTEM で観察したいとは思っていたのですが、工学部の人間でも材料科の人間と違って機械科の人間には電子顕微鏡に馴染みがないのです。すごく敷居の高いものと感じ、素人では利用は難しいものと考えていました。」とは林田氏の弁である。

HRTEM で得られる情報は、レーザーラマン分光法では得ることのできない PM ナノ構造に関する情報を補完すると同時に、観察倍率を落として PM の全体像を撮影する事で PM の一次粒子径の測定やフラクタル次元の解析等も行いう事ができ、当初得られた情報の信頼性が飛躍的に向上する事が期待された。これはまさに NPJ 事業の得意とする所である。林田氏に情報開示の了承を得た上で札幌に持ち帰り、利用可能な装置が近隣にないか調査を開始した。



7. 北海道大学微細構造解析 PF との連携と試行的利用の活用

データの信頼性を増すためにはより多角的な分析が必要である。特に電子顕微鏡等による PM の直接観察が望まれる。数 μm しかない PM の微細構造を把握するには高分解能透過型電子顕微鏡 (HRTEM) を使用した数 nm レベルの高解像度解析が必要となるが、エンジンを扱う機械科で経験を積んだ林田氏は HRTEM 解析についての知識や伝手もなく、同装置を大変敷居の高いものと感じて困っていた。

「NPJ 事業については学科内の回覧資料でその存在を認識していたのですが、自分には無関係と思い、詳細な内容は把握していなかったんです。そこへ産学官連携推進マネージャーの東さんが研究室を訪問してくださり、現在行っている研究を紹介する中で、NPJ 事業の活用をお勧めいただき HRTEM の利用を考えだしました。他の論

本課題は利用したい機器や撮影したい像がはっきりしていたので、まずは NPJ 事業の共用設備利用案内サイト (通称イエローページ [6]) で登録機器リストを検索し、同じ道内の北海道大学に類似機器がある事を確認した。そこで NPJ 北海道大学・微細構造解析 PF の窓口を担当されている松尾氏に相談に行き、最終的に同大の坂口氏が管理されている FEG-TEM (JEM-2010F) での実施を提案いただいた。余談ではあるが、利用したい装置名等がわからなくても、「こんな解析ができないか?」といった問い合わせをいただければ、マネージャーが可能性のある機器を実施機関と相談しながら見つける活動も行っているので気軽に相談していただきたい [1]。

一方、林田氏は、初めての場所に行き、初めて利用する装置を全く知らない先生のもとでお金を払って利用

する事に不安を感じていらっしやるようであった。そこでNPJ事業が新しく制度として取り入れた「試行的利用(以下FS)」[7]を紹介した。FSは、初めてのユーザーの方に利用内容を提案していただき、実施機関の了解を得て第三者審査委員会の審査をパスすれば、旅費や機器利用料が補助されるシステムである。ユーザーは実質無料で使い勝手を体感することができ、納得のいく利用ができると実感できれば、それ以降の利用は自身の研究費を払って利用する形になっている。資金面で潤沢でない若手研究者や地域企業にとっては非常にありがたい制度である。本件は、坂口氏や利用をサポートしてくれる吉田氏と共同で実施計画書を作成し、無事試行的利用に採択されて実施の運びとなった。FSは応募から3週間程度で可否がでるので、課題に対して迅速に対応可能な事もユーザーから好評を得ている。



8. 初めての HRTEM. HRTEM 像はラマンスペクトルデータの解釈と一致するか?

FS 採択後、林田氏に北海道大学に来ていただき、メンバーで顔合わせと打合せを行ったあと実験に入った。実験は、吉田氏と坂口氏の細やかな対応でスムーズに TEM による観察に移る事ができた。また、得られたデータについても専門的な視点から議論を行うことができた。共用施設は兎角ユーザーがほったらかしにされる印象があるが、NPJ 事業では実施時の人的サポートの充実に努めている。普段から十分メンテナンスされた装置を利用できるため、短時間で目的の画像を得る事ができた。また、装置の立ち上げ時間等を利用して北海道大学の他の装置についても見学会が組まれ、非常に好評であった。これら実施機関の活動も外部ユーザーにとって極めて有益であると思われる。

林田氏からは「HRTEM についてはほとんど知識がなかったものの、NPJ 支援チームの専門家によるサポートにより、思いのほかすんなりと欲しかったデータを得ることができました。今回の利用で NPJ 支援チームと顔見知りになり、また、機器の操作方法も教えていただき、基本的な操作を自身で行えるようになったので、次回の利用に向けての敷居がだいぶ低くなりました。馴染みのない新たな機器を使用することで、新規的なデータを得ることができ、論文の質が向上するとともに、今後の研究に HRTEM を含めることができるようになり、研究の幅が広がったと感じています。また、他の共用機器で研究に活用できそうなものがあれば、NPJ 事業を通して利用したいと考えています。」との感想をいただいた。

一方、支援側の坂口氏からも「普段は観察する事の無いようなサンプルを解析する機会を得られ、支援者のスキルアップにつながると同時に他の研究分野や社会にお

ける最新ニーズを把握できる良い機会となりました。」との意見をいただいた。利用者と実施機関が共に刺激を受け合いながら新しい展開が生まれる機会が増える事を期待したい。

解析結果に戻ろう。燃焼噴射時期と機関負荷の違いによって排出されたすす粒子の HRTEM 像は図 5 が示す結果となった。すす粒子の中心部には、アモルファス的な構造が存在し、その周辺には折り重なるようにグラフェン結晶が存在する事が分かる。負荷の高い条件程、外層部のグラフェン結晶のサイズが大きくなり、グラファイト化が進行している事が示唆された。これらの結果はレーザーラマンの解析で得られたデータ解釈と一致し、これまでの結果を補完し後押しする結果となった [8]。

さらに解析を進め、図 5 の HRTEM 像に画像処理を行うことでグラフェン結晶のサイズ(フリンジ長さ)を求めた(図 6)。その結果、平均結晶サイズはレーザーラマンによる解析と類似の変化傾向を示すことが確認された(図 7)。

これらの結果は、ディーゼル機関の運転条件が PM のナノ構造に及ぼす影響を従来よりも明確にするものである。得られた知見は PM の特性(生成量、粒径、グラファイト化度など)を制御する新しいエンジン燃焼技術の開発に活用することができ、DPF の負荷低減や高効率な PM 除去技術の開発に寄与することが期待される。



9. 今後の展望 ～迅速な論文化と産学官連携への足掛かり～

取得したデータの一部を利用した論文は、その年の内に *International Journal* に受理された [9]。レーザー計測技術に構造解析技術を加える事で迅速な論文化に寄与できた。

林田氏からは「当初、この論文はレーザー計測のデータのみで構成していたのですが、査読の段階でその信頼性についての担保が求められ HRTEM のデータを追加したところ、すんなりとアクセプトされました。HRTEM 像で PM のナノ構造を直接的に示すことにより、論文の信頼性が高まったためと考えています。研究者にとって研究成果の迅速な論文化は、研究競争力強化や研究費獲得、キャリアアップ等に重要であり、今後も NPJ の有する最先端の微細構造解析技術を活用していきたいです。」との感想をいただいている。JST のマネージャーとしては、JST のマッチング制度やファンドへの応募等を活用し、これらの成果が自動車会社等の関心を引き、さらなる共同研究に発展するようサポートしていきたい。



10. NPJ の連携推進マネージャーとしての感想

現場で若手の先生方の話を伺うと、自分と違う分野で

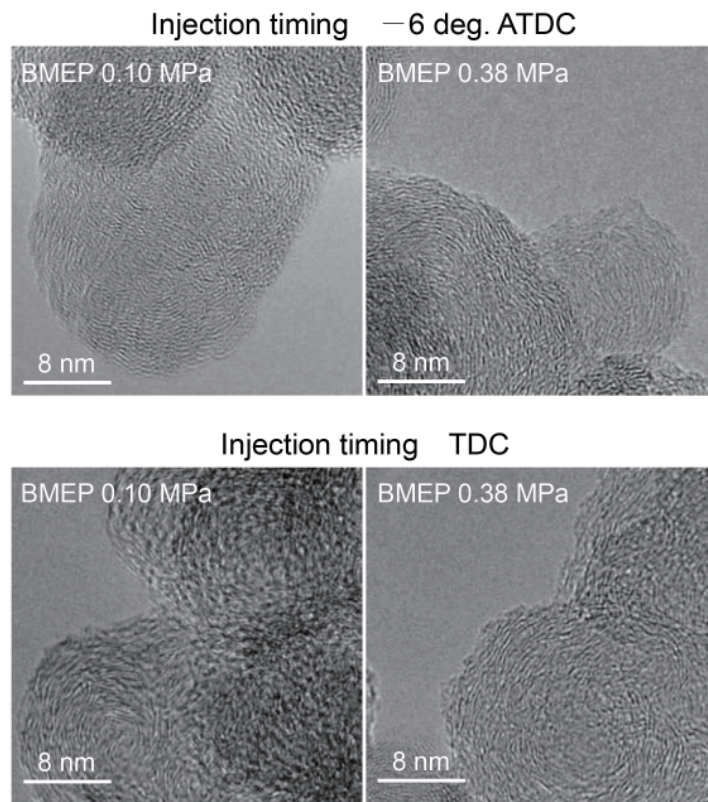


図5 すずの HRTEM 画像

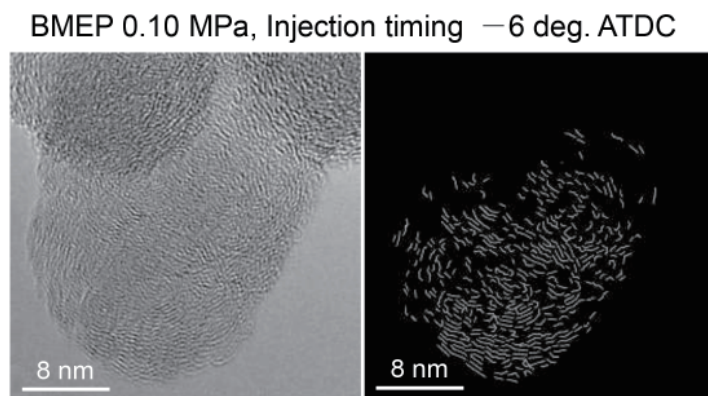


図6 画像処理によるグラフェン結晶子の抽出

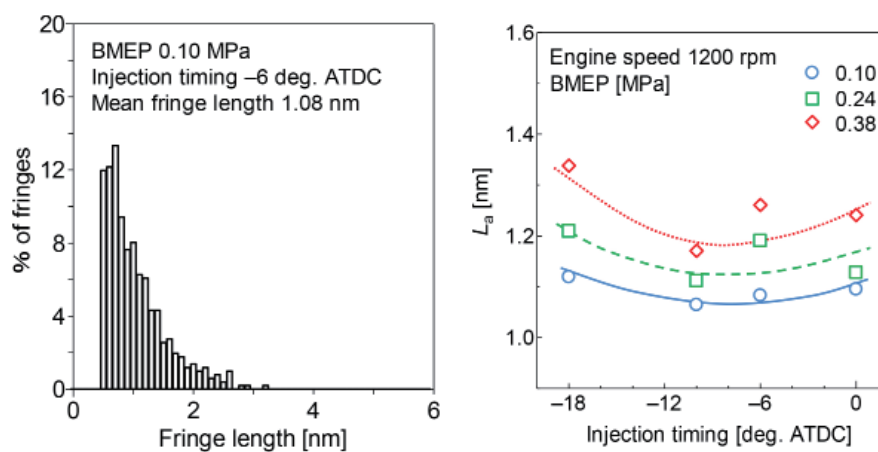


図7 燃料噴射時期による平均結晶子サイズの変化

あったり、権威と言われる先生方の装置を利用する事に対するためらいが伝わってくる。また、安易に相談をして自分のアイデアがとられてしまうのではないかと不安もあるのではなからうか。そういった心理的な壁があるため、共同研究がうまく組めない場合は、あるもので済ませる形になり、研究の幅が広がらない傾向を感じる。

NPJ 事業が従来の機器共用と一線を画するのは、「人」ではないだろうか。共用事業で初めて中立な立場の JST マネージャーが現場をサポートする事になった点、実施現場で技術員等の人的支援が手厚くなった点などである。JST マネージャーとして中立な立場で仲立ちする事で、利用者が抱く心の敷居を少しでも下げて相談しやすい環境を整え、良い組み合わせでの利用に繋がれば幸いである。名探偵シャーロックホームズになぞらえれば、多種多様な難題に立ち向かう研究者や開発者の皆様のホームズとすると、NPJ 事業には最新の秘密兵器を携えて皆様のピンチを救いに行くワトソンのようなメンバーがそろっている。どうぞ気軽にお声掛けを。そしてどこにいても、誰でも、アイデアさえあれば最高の挑戦ができる機器共用文化が育つ一助になれば幸いである。



参考文献

- [1] ナノテクノロジープラットフォーム JST 産学官連携推進マネージャー 紹介ホームページ <http://www.jst.go.jp/nanotechpf/manager.html>
- [2] 内閣府 科学イノベーション総合戦略 2014 <http://www8.cao.go.jp/cstp/sogosenryaku/>
- [3] 科学技術振興機構 研究開発戦略センター 物質・材料 / ナノテクノロジーユニット 戦略プロポーザル
- [4] 林田和宏, 石谷博美, 宇野昌行, 「ディーゼル機関の運転条件がすすり粒子のナノ構造と酸化反応性に及ぼす影響」 日本機械学会論文集 B 編, Vol.79, No.806(2013), pp. 354-364.
- [5] Sadezky, A., Muckenhuber, H., Grothe, H., Niessner, R., and Pöschl, U., "Raman Microspectroscopy of Soot and Related Carbonaceous Materials: Spectral Analysis and Structural Information", Carbon, Vol.43, No.8(2005), pp. 1731-1742.
- [6] ナノテクノロジープラットフォーム事業 共用設備利用案内 イエローページ <http://nanonet.mext.go.jp/yp/>
- [7] ナノテクノロジープラットフォーム事業 研究設備の“試行的利用”事業 <http://nanonet.mext.go.jp/shikou/h27/> (注: 年度により HP の URL が変わります)
- [8] 板橋翔, 林田和宏, 石谷博美, 今野陽介 「小型 DI ディーゼル機関における燃料噴射時期がすすり粒子のナノ構造に及ぼす影響」 第 25 回内燃機関シンポジウム (2014), 講演 No.86
- [9] Hayashida, K., Nagaoka, S., Ishitani, H., "Growth and oxidation of graphitic crystallites in soot particles within a laminar diffusion flame", Fuel, Vol. 128(2014), pp. 148-154.

(東 陽介)

お問い合わせ

ナノテクノロジープラットフォーム事業では、産学官による先端共用設備の利用促進を図るため、全国の5地域（北海道、東北・関東甲信越、東海・北陸、関西・四国、中国・九州）に産学官連携推進マネージャーを配置しています。設備利用や技術相談など、お近くの産学官連携推進マネージャーにお気軽にご相談ください。

 お電話での問合せはこちら
➡ **03-5214-8475 (共通)**

産学官連携推進マネージャー

北海道	東北・関東甲信越	東海・北陸	関西・四国	中国・九州	分野融合連携推進 マネージャー
					
東 陽介 yousuke.higashi @jst.go.jp	戸田 秀夫 hideo.toda @jst.go.jp	松山 豊 yutaka.matsuyama @pb.jst.jp	吉川 昭男 akio.yoshikawa @jst.go.jp	坂本 哲雄 tetsuo.sakamoto @pb.jst.jp	吉原 邦夫 NPJ_koubo @nanonet.go.jp