

平成 22 年度～平成 26 年度文部科学省私立大学戦略的研究基盤形成支援事業
「ナノ材料制御技術による新規太陽光エネルギー利用統合技術の創出」
研究成果の概要

プロジェクトリーダー 澤木宣彦（愛知工業大学工学部電気学科教授）

本研究プロジェクトは、本学で早くから進められてきた自然エネルギーを活用する電力技術開発の一層の発展を図ることを目的として、平成 22 年度文部科学省私立大学戦略的研究基盤形成支援事業に採択され略称「グリーンエネプロジェクト」としてスタートしたが、その直後の平成 23 年 3 月 11 日東日本大震災の発生で福島第一原子力発電所事故が誘発され、我が国の電力事情は未曾有の危機に見舞われ、再生可能エネルギーへの期待が一層高まった。しかし、エネルギー自給率が極めて低い我が国で、太陽光エネルギー等新エネルギーの活用は全供給エネルギーの 5%にも満たず、創エネルギー技術と並んで省エネルギー技術の開拓が必須とされている（エネルギー白書 2015）。

電力システムの効率的運用にはシステムと個別デバイスの特性との強調が必須であるが、ここ数年来台頭してきたワイドギャップ半導体やリチウムイオン電池などの新規デバイスの適用性については未知の部分があり、社会インフラにおける安全・安心を確保するためには一層の研究開発が求められている。本プロジェクトでは、デバイスからシステムに至る 4 つの個別テーマを設け、共同して研究を進めてきた。特に材料デバイス関連では、窒化物半導体デバイス、有機薄膜デバイスの高効率化と同時に製造コストの低減を狙った研究を進めてきた。また、再生可能エネルギーはその性質上時間変動が激しく、その有効活用には、蓄電池の高性能化と、時間変動に耐え得るシステム作りが必要不可欠である。この観点から、この 5 年間の研究開発で、照明装置や電力変換装置に必要な固体デバイス製造プロセスの低コスト化、蓄電装置の高密度化・高効率化、自然エネルギーを使う発電システムの時間変動への対応方法などに関し、研究開始当時の技術的な目標に対し、一定の貢献ができる基盤的成果が得られた。

本プロジェクトを計画した平成 21 年度時点から 5 年を経過し、前記電力事情の変化だけでなく、関連する技術分野は急速に進展し、関連学協会のロードマップにはさらに高い目標が定められている。これらに鑑み、本成果を基礎として、さらなる貢献を果たすためには、実用に供するためのデバイスの実装試験や社会インフラの中での動作環境を想定した信頼性試験など次のステップの研究開発が求められている。

本プロジェクトでは、「ナノ構造制御技術」に主たる研究の視点を置き、デバイスのための材料開発を主眼とした研究を推進してきた。本学では、エコ電力研究センターで、太陽光発電、風力発電、ジーゼル自家発電などの現行発電設備と、中部電力の配電網をつなぐスマートグリッドを構築している。今後、本研究成果をこの研究センターのプロジェクトとして、模擬的な電力網に投入するなどの実証実験を行い実システムに耐えうるデバイスの検証が行えると期待している。

（1）研究プロジェクトの目的及び研究テーマ

○目的

低炭素社会実現には、自然エネルギー活用技術と省エネルギー技術の革新が必要不可欠である。本プロジェクトでは、太陽光利用技術・省エネルギー技術の革新的発展を目指し、太陽電池ならびに蓄電池の高効率化と低コスト化、および省エネルギー形 LED、電力変換装置の革新にかかる基盤技術、並びにこれらデバイスの高効率統合システムの高度化に関する要素技術を研究開発することによりグリーンイノベーションに貢献する。当該技術分野の研究者が国際的な連携のもとに総合的な研究を推進して、俯瞰的な視野と技能を有する若手研究者の育成を図る。

○計画の概要

上記目的を達成するため、内外の研究者グループにより下記の4つの研究テーマを掲げ研究を進める。5年計画の前期3年はそれぞれの要素技術の開発を行い、後期2年間は、グループ相互の連携により、得られた成果を発展統合させグリーンエネルギー活用技術の高度化を図る。

テーマ①：窒化物系電子・光デバイスの低コスト化・高度化

窒化物半導体による白色LEDの更なる信頼性の確保と低価格化、同材料混晶による高効率太陽電池や電気自動車用電力制御トランジスタ開発に必要な低コストで高品質結晶の得られる育成技術を開発する。

研究者：澤木宣彦（電気学科教授・グループリーダー）、徳田 豊（電気学科教授）、岩田博之（電気学科准教授）の3名。他学外9名、PD 1名。

テーマ②：有機薄膜太陽電池の電力変換効率の向上

電力変換効率の向上をめざし、有機薄膜の表面ならびにドナー/アクセプター界面の改質と新規電極材料の開発を行うと共に積層型構造の開発に関する研究を実施する。

研究者：落合鎮康（電気学科教授・グループリーダー（H22～25））、古橋秀夫（電気学科教授）、山田諄（電気学科教授）、津田紀生（電気学科教授・H26グループリーダー）、森 竜雄（電気学科教授）の5名。他学外2名、PD 延べ5名。

テーマ③：高機能蓄電池の開発と実用化

リチウムイオン電池について、電解液への不燃性フッ素含有有機化合物添加、表面修飾による電極材料の表面ナノ構造制御を試み、各不燃性電解液に最適の電極材料表面構造を創製する。

研究者：大澤善美（応用化学科教授・グループリーダー）、中島 剛（応用化学科教授）、山田英介（応用化学科教授）、糸井弘行（応用化学科講師）の4名。他学外6名。

テーマ④：太陽電池用電力変換回路と電動機システムの開発

太陽電池等の低電圧直流電力をモーター等の電動機に適用するために必要な損失の少ない電力変換システムに関する研究を実施する。

研究者：鳥井昭宏（電気学科教授・グループリーダー）、村瀬 洋（電気学科教授）、雪田和人（電気学科教授）、水野勝教（情報科学科准教授）の4名。他学外3名、PD 1名、RA 1名。

○共同研究機関との連携

外部機関の内、名古屋大学、韓国海洋大学、韓国仁荷大学、豊田中央研究所とは特に緊密な連携をとり、研究者交流の他、本学教員との共同研究を実施した。信州大学、東京都市大学、ドイツ、アメリカ、フランス、中国、インド等の研究機関とは、主として個別の研究内容について専門的・先進的な研究機関としての助言を仰いだほか、本学において、当該分野の大学院特別講義等のセミナー実施を依頼した。

(2) 研究成果の概要

テーマ① 「窒化物半導体デバイスの低コスト化・高度化」

プロセスコストの低いシリコン基板利用法とHVPE法の活用、並びに窒化物半導体デバイス高度化に必須の不純物ドーピングと欠陥制御法について検討した。

- 1) シリコン基板上への GaN ヘテロエピタキシにおける GaN と Si との化学反応抑制のため新たに AlInN 緩衝層を提案し、その妥当性を TEM 観察により検証した。GaN との疑似格子整合が得られ、単一緩衝層でも転位密度が 1 桁低い GaN 成長層が得られることを明らかにした。また、加工基板上に作製した半極性試料では積層欠陥が成長と共に変性し密度が減少することを見いだした。さらに、本手法によって得られた試料の深い準位による黄色帯の発光強度が 2~3 桁抑制され、Ga 空孔の形成を防いでいることが明らかになった。この結果、本手法によるシリコン基板上への高品質な窒化物半導体形成技術は当初目標である「プロセスコストの低減」に大きく寄与できることが明らかになった（名古屋大学との共同研究）。
- 2) HVPE 法では混合原料法により混晶膜のヘテロエピタキシが可能であることを明らかにし、InGa_N 混晶による紫外線から可視光領域の広い波長範囲で LED の試作に成功した。単素子としては世界初で、低価格なプロセスで実用に耐える LED の作製が可能であることを明らかにした（韓国海洋大学との共同研究）。
- 3) p 形ドーピング元素として炭素の可能性を FTIR（赤外反射吸収分光法）により評価し、窒素サイトを置換した炭素が存在していることを明らかにした。さらに、半極性面試料では深い準位の形成が著しく抑制され、p 形伝導が得られることを見だし、炭素ドーピングによる p 形伝導の実現には Ga 空孔の形成を押さえることが必須であることを実証した（名古屋大学との共同研究）。
- 4) DLTS 法による GaN の点欠陥評価で 9 個の電子トラップ E1 (Ec-0.24 eV)、E2 (Ec-0.31 eV)、E3 (Ec-0.57 eV)、E4 (Ec-0.1 eV)、E5 (Ec-1.3 eV)、E6 (Ec-0.40 eV)、E7 (Ec-0.73 eV)、E8 (Ec-0.89 eV)、および E9 (Ec-1.22 eV) を同定した。そのうち E1、E6 は転位関連欠陥、E6 は SiC 基板及び Si 基板上 n-GaN での主トラップであることを明らかにした（豊田中央研究所との共同研究）。
- 5) MCTS（少数キャリア過渡応答）法により 5 個の正孔トラップ H1 (Ev+0.86 eV)、H2 (Ev+0.25 eV)、H3 (Ev+0.25 eV)、H4 (Ev+1.19 eV)、および H5 (Ev+1.76 eV) を同定した。炭素ドープした n-GaN では H1 トラップが高濃度で観測され、H1 が炭素関連欠陥であることが示唆された（豊田中央研究所との共同研究）。
- 6) イオン注入を主体とした nm オーダの精度と制御性を持つナノ構造立体加工法により、Si 試料表面に波形畝状と矩形隆起を精密に形成する手法および薄膜短冊形状に表面を剥離させる新たな技術を開発した。
- 7) 高密度格子欠陥を有する InGa_N 系太陽電池において傾斜組成 pn 接合を提案し、シミュレーションにより電力変換効率が数倍に増加する可能性を明らかにした。理論上は当初目標とした効率 30% に達すると予想されたが、テストデバイスの効率は 1% 以下であった。+C 面基板上では内部分極効果が強いので p 形トップ層が n 型に変性されるためと判った。今後、傾斜組成の最適化と半極性面あるいは -C 面上での実験を試みる予定である（韓国海洋大学との共同研究）。

テーマ② 「有機薄膜太陽電池の電力変換効率向上」

溶液法による高効率有機、有機／無機太陽電池の作製とそれらの性能向上、低損失有機太陽電池モジュールの開発を目標に、有機薄膜太陽電池の電力変換効率向上策を検討した。

- 1) スプレーコート法を用いた活性層の作製手法を確立し、ホール輸送層の導電率の制御により電子輸送層を持たないバルクヘテロ接合構造 (BHJ) を有する有機薄膜太陽電池を作製し、電力変換効率 6% を達成した (Bharathidasan 大学、SH College との共同研究)。
- 2) 超音波照射処理法による有機色素材料の精製法を確立すると共に、スプレーコート法で電子輸送層なしで 6%、スピコート法で電子輸送層なしで 6.2% の電力変換効率を達成した (SHCollege、仁荷大学との共同研究)。
- 3) 有機薄膜太陽電池の効率改善に必須の電子とホール移動度の整合確保のため、活性層への添加剤により電子・ホールのネットワーク改善と高効率化の可能性を明らかにした。
- 4) ホール輸送層の修飾が電力変換効率の向上に有効であることを明らかにした。
- 5) 活性層をホール輸送層と電子輸送層でサンドイッチした構造を検討した。電子輸送層と活性層に PC71BM を使用することで電力変換効率 10.27% が得られた。今後さらに、電子輸送層をナノ構造化することにより 15% の高効率化を目指す。
- 6) TiO_x を電子輸送層に用い、ITO/PEDOT:PSS/PCDTBT:PC71BM/ TiO_x /Al からなる OSC 素子を作製した。電子輸送層を用いない素子の変換効率は 4.16% にとどまったが、電子輸送層を用いると効率が 5.06% に向上した。
- 7) 有機薄膜の二次加工法としてテラワットフェムト秒レーザー光を集光照射する手法を開発し、YAG レーザー光照射法より優れていることを明らかにした。
- 8) 有機薄膜デバイスの高効率化のためフッ素化シロール系自己組織化単分子膜 (FSAM) の効果を検証し、負極の仕事関数制御により太陽電池の開放電圧が 0.5V 上昇、陽極の正孔注入効率が増加することを見いだした。
- 9) パリレン薄膜の高電界電流特性は金属と同様な負の温度依存性を示すが、パリレン N にパリレン C を積層した複合薄膜が 200K 以下の温度で 2 桁以上と金属の値を超える温度変化を示すことを見いだした。
- 10) 有機ペロブスカイト太陽電池で、正孔輸送材料である NPD と酸化モリブデン MoO_3 を共蒸着した薄膜を利用することにより、可溶性の Spiro-OMeTAD と同程度の変換効率が見出された。

テーマ③ 「高機能蓄電池の開発と実用化」

太陽光発電などの自然エネルギー系統や電気自動車 (EV) の高度化に必要な安全で高容量のリチウムイオン電池開発のための電極材料を検討した。

- 1) リチウムイオン電池の安全性向上を目的として、含フッ素カーボネートを混合した電解液の電気化学的耐酸化性を調べ、含フッ素カーボネート、含フッ素エーテルを 22 ~ 33vol.% 混合した電解液が耐酸化性に優れることを明らかにした。また、含フッ素カーボネートと含フッ素エーテルは黒鉛負電極

上に表面保護被膜を形成し不可逆容量も小さいことから実用化が可能であると結論された。(ダイキン工業(株)との共同研究)

- 2) 電解液に使用されるエチレンカーボネートは金属リチウムと反応して容易に有機リチウム塩を生成するが、低融点のプロピレンカーボネートは有機リチウム塩を生成しにくく、金属リチウムとの反応性が低いことが明らかとなった。
- 3) 含フッ素カーボネートおよび含フッ素エーテルは電解液の高温耐熱性の向上に効果的な溶媒であることを見出した。これは含フッ素カーボネートおよび含フッ素エーテルと金属リチウムとの反応性が低いことに由来することが明らかとなった。また、既存の黒鉛負極を用いて、これら含フッ素有機化合物を添加した電解液中で電気化学的特性を評価したところ、無添加の電解液と同等の性能を示すことを確認した(ダイキン工業(株)との共同研究)。
- 4) リチウムイオン電池負極の高容量化を目的として、導電剤に繊維状の気相成長炭素繊維とアセチレンブラックの混合物を用いたところ、高電流密度における負極容量が増加すること、また、NF₃でチタン酸リチウムの表面フッ素化を行うと高電流密度における負極容量が増加することを見いだした。今後、最適条件を得る実験が必要である(Jozef Stefan Institute、信州大学との共同研究)
- 5) リチウムイオン電池黒鉛負極のCl₂による表面塩素化を行うと表面格子欠陥が減少することを見いだした。黒鉛電極上では分解しやすい低融点のプロピレンカーボネートを電池溶媒として使用できることを明らかにした。本手法により電池の低温作動の可能性が見られた。今後、-10℃を狙った低温化を探る(Jozef Stefan Institute との共同研究)。
- 6) 新規なりチウムイオン電池正極材料であるリン酸鉄リチウム正極にカーボンコーティングと導電助剤として気相成長炭素繊維を添加することで、高い電流密度下での高速放電特性が向上し、充放電サイクルに伴う容量低下を抑制できることを明らかにした(信州大学との共同研究)
- 7) リチウムイオン電池負極用黒鉛粉体にカーボン薄膜を均一コーティングし、表面結晶性を低下させることで、低融点のプロピレンカーボネートが電池溶媒として使用可能となることを明らかにした。
- 8) 黒鉛に代わる負極材料として期待される低温焼成難黒鉛化性炭素およびシリコンの負極特性向上を目的としてカーボン薄膜のコーティングによる表面修飾を行った。800℃で炭素化した難黒鉛化性炭素にカーボン薄膜をコーティングし表面結晶性を向上させることで、既存の黒鉛負極の約 1.7 倍の 600 mAh/g の容量を有し、容量ロスが少ない炭素を得ることができ、又、粒径 20-30 nm のナノシリコンを用いてカーボン薄膜をコーティングすることで、既存の黒鉛負極の約 4 倍の 1,500 mAh/g の容量を有する負極材料を創製した。シリコン粒子の場合は目標の 1,000 mAh/g を超える値であったが、さらに、充放電サイクル特性の改善が必要である(Pierre and Marie Curie 大学との共同研究)
- 9) リチウムイオン電池負極材料の高容量化を目的として、既存の負極用黒鉛粒子、あるいは炭素繊維表面に数十 nm 厚のシリコン薄膜層を形成し、さらにカーボン薄膜をコーティングすることで、既存の黒鉛負極の約 1.8 倍の 630 mAh/g の容量を有し、良好な充放電サイクルを示す負極材料を創製した。シリコン層の厚みを増加させることで、1,000 mAh/g を超える容量の増加が可能であることを見出した(Pierre and Marie Curie 大学との共同研究)

- 10) 電気二重層キャパシタの電極材料となる活性炭をはじめとする多孔質炭素に、酸化還元反応を示すフェロセンなどの有機金属錯体を吸着させるだけで、イオンの吸脱着による二重層容量に加えて錯体の酸化還元反応に由来する疑似容量が加わり、高容量化することを見出した（東北大学との共同研究）
- 11) 多孔質炭素に吸着した有機金属錯体の酸化還元電位は、錯体本来の酸化還元電位を異なることを見出した。錯体の酸化還元電位は測定する溶媒によって変化することはないため、多孔質炭素のミクロ孔に強く吸着することで錯体の電子状態に変化が起こることが示唆された（東北大学との共同研究）

テーマ④ 「太陽電池用電力変換回路と電動機システムの開発」

- 1) 太陽光発電装置（直流）を電力系統（交流）に接続する直流交流変換装置において、タップ切替変圧器を提案し、太陽光強度が弱い場合でも定格交流電力が得られることをシミュレーションで明らかにした。
- 2) 時間変動の激しい自然エネルギー発電システムに適した極数可変発電機を開発した。2層の3相アキシャル型発電機で16極とすることで、低速域から高速域まで運用が可能であることを実証した。
- 3) 太陽電池を含む系では直流送配電システムが優位であるとの認識から、スマートグリッド内での直流電力消費と交流電力消費相関と制御法、直流送電における帯電電荷変動要因を明らかにした。今後、低電圧システムに対する適用性を検討する。
- 4) 太陽光発電パネルを用いた圧電アクチュエータ駆動特性を評価し、その制御には圧電アクチュエータの電荷の制御が必要であることを示した。
- 5) 直流・交流混在給配電ネットワークに通信ネットワークを検討し、降雨量や気象レーダデータを使ったニューラルネットワークによる太陽電池発生電力推定法を提案した。
- 6) 電気・ガス・熱を考慮した複合的なスマートグリッドのモデルを用い、電気だけでなくガス・熱を複合的に使用することによる一次エネルギーの削減効果を明らかにした。
- 7) 太陽光パネルに部分的な陰があり入射する光量が均一でない場合には、太陽電池の動作電圧を低下させて最大電力を得る。そこで、太陽光パネルに入射する光量を用いて最大電力時の出力電圧を求める方法を提案した。
- 8) 既存の大規模発電所からマイクログリッドに供給する電力を計測し、電力供給点を通過する電力の特徴を明らかにした上で、その通過電力を一定にすることにより生じる利点を明らかにし、その運用方法を提案した。
- 9) マイクログリッド内に電気自動車（EV）やプラグインハイブリッド自動車（PHV）を導入し、搭載した電池の充放電制御を行うことによってピークカット・ピークシフトの効果が得られることを明らかにした。
- 10) グリッド内における、化学反応を用いた蓄熱システムや水素とアンモニアを燃料に用いた燃焼シス

テムに関する検討を行い、それらを組み合わせることによってエネルギーの効率的な利用が可能であることを明らかにした。

- 11) 直流送電では帯電や残留電荷の問題がある。低周波送電における電力損失と変圧システムの大型化への対応策を検討した。送電周波数 5Hz ではインピーダンスによる損失を 1/12 に低減でき、変圧システムの体積が 12 倍になるものの実現可能であることを明らかにした。

(3) 成果の公開および論文等の発表

- (1) 国際シンポジウム 3 回開催 (H22 年、H24 年、H26 年)

講演件数 延べ 27 件 (内招待講演 17 件)、ポスターセッション発表延べ 37 件、

参加者数 延べ 408 名

- (2) 進捗状況報告会 4 回開催 (H23 年、H24 年、H25 年、H26 年)

講演件数 延べ 33 件 (内基調講演 1 件)、参加者数 延べ 538 名

- (3) 論文等の発表 (単位：件)

	学術論文	著書	国際会議発表	国内学会発表	特許
グループ①	33	1	73	49	1
グループ②	44	2	57	84	2
グループ③	19	17	19	40	0
グループ④	28	5	34	117	1
合計	124	25	183	290	4

(4) 大学院生向け特別講義「グリーンエネ特別講義」(電気電子工学特別講義Ⅱ)

本プロジェクトの目的の一つは、本分野の若手研究者・技術者を養成することである。そのためには、本プロジェクトに関わる広い範囲の技術の現状を正確に認識させる必要がある。プロジェクトに協力頂いている国内外の研究者等から講師を選定することで一連の連続講義を企画し、広い立場からの講義を依頼した。各年度の延べ聴講者数は以下の通りである。

- (1) グリーンエネ特別講義 H23 年度、13 コマ 聴講者 延べ 372 名

- (2) グリーンエネ特別講義 H24 年度、15 コマ 聴講者 延べ 519 名

- (3) グリーンエネ特別講義 H25 年度、「電気工学特別講義Ⅱ」として実施、聴講者 延べ 577 名

- (4) グリーンエネ特別講義 H26 年度、「電気工学特別講義Ⅱ」として実施、聴講者 延べ 1054 名

(4 回目はノーベル賞受賞者特別公開)

(5) 国際交流

- (1) 研究交流協定

本プロジェクト参画の外国研究機関を通じて連携が派生し研究交流を行った。

- (ア) 大韓民国国立釜慶大学校海洋 LED 研究室 代表者：劉永文教授

- (イ) 大韓民国韓国電子通信研究院 GaN 電力半導体研究室 代表者：南銀洙 副所長
- (2) 韓国海洋大学との研究交流と院生発表会

本プロジェクト共同研究先である韓国海洋大学とは大学間学術交流協定を締結している。平成 25 年 8 月韓国海洋大学校工科大学学長ならびに副学長と本プロジェクト研究協力教員を招き、今後の大学間交流等の意見交換を行うと共に、本プロジェクトに深く関わっているナノ半導体材料学科（学科長 Ming Yang 教授）の院生と本学学生との交流と研究発表会を開催した。

(以上 詳細は本プロジェクト「研究成果報告書」をご覧ください)