

高度制御熱プラズマによるナノ粒子材料の非平衡・高速合成と完全分散構造体への応用

石垣, 隆正 / ISHIGAKI, Takamasa

(雑誌名 / Journal or Publication Title)

科学研究費補助金研究成果報告書

(開始ページ / Start Page)

1

(終了ページ / End Page)

6

(発行年 / Year)

2010-06

様式 C-19

科学研究費補助金研究成果報告書

平成 22 年 6 月 5 日現在

研究種目：基盤研究（B）
 研究期間：2007 ～ 2009
 課題番号：19360334
 研究課題名（和文） 高度制御熱プラズマによるナノ粒子材料の非平衡・高速合成と完全分散構造体への応用
 研究課題名（英文） High rate synthesis of nano-size powders at non-equilibrium conditions by controlled thermal plasma processing and the complete dispersion of the powders
 研究代表者
 石垣 隆正（ISHIGAKI TAKAMASA）
 法政大学・生命科学部・教授
 研究者番号：40343842

研究成果の概要（和文）：

大気圧近くで発生する熱プラズマは、1 万度以上の高い温度を持っている。高温熱源である熱プラズマの利点を活かすと、ナノ粒子の高速合成が可能になる。プラズマ流は尾炎部で超急冷され、非平衡相物質が生成した。また、核生成に引き続く粒子成長プロセスが高温の熱流体中で進行するので、高結晶性で、清浄な表面をもつナノ粒子が生成した。分散性の高いプラズマ合成ナノ粒子を用いて、多機能ナノ粒子構造体への応用が期待される。

研究成果の概要（英文）：

Synthesis of functional nano-structured powders has been developed through reactive thermal plasma processing. Nano-sized titanium oxide powders has been prepared by the oxidation of solid and liquid precursors. The plasma-synthesized TiO₂ nano-particles showed phase preferences different from those synthesized by conventional wet processes. Nano-sized particles of high crystallinity and non-equilibrium chemical composition were formed by one-step via reactive thermal plasma processing. Also, high dispersion behavior of plasma-synthesized nanopowders was recognized. The ultrasonically irradiated suspensions show aggregate sizes close to the primary particle sizes evaluated by an image analysis. Ultrasonic irradiation was shown to be a powerful way to disperse nanoparticles even in concentrated aqueous suspensions.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	6,600,000	1,980,000	8,580,000
2008 年度	6,000,000	1,800,000	7,800,000
2009 年度	3,000,000	900,000	3,900,000
年度			
年度			
総計	15,600,000	4,680,000	20,280,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学・材料加工・処理

キーワード：プラズマ処理・ナノ粒子・発光特性・磁気特性・粒子分散

1. 研究開始当初の背景

酸化物（ZnO, TiO₂, BaTiO₃）等のワイド

ギャップ半導体化合物に希土類元素、遷移元素をドーピングして発光体、磁性体をつくる

試みが最近大いに研究されている。

酸化チタンは約 3.2eV のバンドギャップをもち、近紫外光である 380nm 程度までの光を吸収する。酸化チタンホスト格子に吸収されたエネルギーを発光種である希土類イオンに効率的に移動させることができれば、新しい高効率発光体として利用できる可能性がある。しかしながら、チタンと希土類元素ではサイズが大きく異なり (6 配位イオン半径: Ti^{4+} ; 0.065nm、 Eu^{3+} ; 0.095 nm、 Er^{3+} ; 0.088 nm)、希土類元素は酸化チタン格子中に固溶しがたい。申請者が最近合成に成功した熱プラズマ合成 $TiO_2:Eu^{3+}$ ナノ粒子は、 TiO_2 格子に希土類元素である Eu^{3+} を均質に導入したものである。現時点では、 Eu^{3+} は最大 0.5at% まで固溶する。

鉄ドーパナノ粒子では、熱プラズマ法を用いると鉄が 0 ~ 16.7 モル% の非常に広い範囲で TiO_2 に固溶することを見いだした。通常用いられるゾルゲル法など液相合成では、鉄ドーパ量の上限は 5 モル% 程度である。熱プラズマ法では、非常に高濃度の鉄がドーパされた酸化チタンナノ粒子が合成可能であった。酸化チタン中の Ti^{4+} の Fe^{3+} による置換は酸素空孔の生成をもたらし、さらに、5 モル% 以上の高濃度鉄含有ナノ粒子では Shear 構造があらわれた。

プラズマ合成酸化チタンナノ粒子は、分散性に優れている。申請者は、ナノ粒子の表面に吸着する分散剤の最適化と超音波照射により、酸化チタンナノ粒子を約 35Vol% 含む高濃度スラリー中でも粒子の凝集がないことを確認した。

本課題では、ナノ粒子を材料科学的見地から評価するとともに、構造化して多機能性の付与するところまで一貫して行い、発展性の高い研究をめざす。そのために、ナノ粒子の溶媒あるいは樹脂中への完全分散をキーワードとして展開する。

2. 研究の目的

従来プロセスで合成されるナノ粒子の問題点を解決し、プラズマプロセス特有の非平衡性導入を活用してバルク体、薄膜等で得られない化学組成、結晶構造をもつ高機能・多機能ナノ粒子を実用的な速度で合成し、さらに粒子同士の凝集がない完全分散ナノ粒子ナノ構造体に応用する。

(1) 高結晶性で、表面制御した非平衡組成ナノ粒子を高速に一段プロセスで合成可能なプラズマナノ粒子合成プロセス技術を確認する。具体的には、熱プラズマ中のミスト噴霧分解法により、酸化物、特に酸化チタンのナノ粒子への非平衡・均質ドーピングと高機能化を

めざす。希土類元素ドーピングによる発光特性、遷移元素ドーピングによる磁気特性を、それぞれ付与した高機能酸化チタンナノ粒子を開発する。

(2) プラズマ合成ナノ粒子の応用展開をはかるため、ナノ粒子からなる構造体の形成技術を開発して、高効率発光半導体、磁性半導体など、高機能・多機能セラミックスを実現する。

3. 研究の方法

熱プラズマ合成ナノ粒子を多機能・高機能化して、ナノ粒子を完全分散した構造体を作製するために、つぎのような研究項目について研究を進める。

(1) RF 熱プラズマ流体の温度・流速分布の均質化を目的とした数値解析をナノ粒子合成装置の設計指針にフィードバックして、均質なナノ粒子の高速合成条件を確立する。

(2) ナノ粒子の気相合成プロセスに重要な気相過飽和度の制御、原子オーダーで均質な非平衡化学組成、結晶相の制御を行うため、ミスト噴霧分解法による合成プロセスを発展させ、酸化物ナノ粒子の高機能化を目指す。

(3) ナノ粒子表面の表面修飾を検討して、溶媒中への完全分散条件を見いだす。

(4) ナノ粒子からなる構造体の形成技術を開発し、高機能・多機能化をはかる。

4. 研究成果

(1) ナノ粒子合成熱プラズマプロセスの高度化

ナノ粒子の機能化: 液体プリカーサーを用いた酸化チタンナノ粒子の熱プラズマ合成をすすめた。酸化チタンナノ粒子中へ Er ドーピングを行い、 Er^{3+} の TiO_2 への固溶限が 0.5 モル% であることを確認するとともに、励起源として波長 325nm の He-Cd レーザーを用いたフォトルミネッセンス測定により波長 1.53

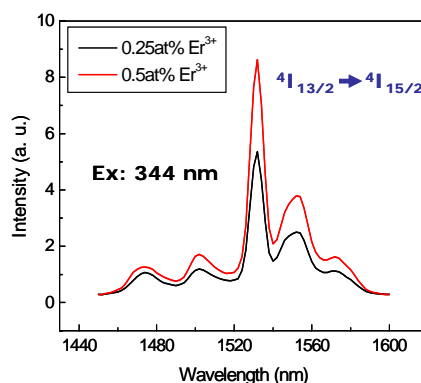


図 1 Er^{3+} ドープ TiO_2 ナノ粒子からの近赤外発光

μm にピークを持つシャープな近赤外発光を確認した。この近赤外発光の起源として、 Er^{3+} の直接励起とともに、 TiO_2 ホストに吸収されてから Er^{3+} へ移動したエネルギーの寄与が大きいことを見いだした(図1)。Co ドープ TiO_2 では2価のコバルトドープにともない酸素空孔が生成しルチル相選択性が高くなった。 Co^{2+} の TiO_2 への固溶限は約3モル%であり、室温で弱い強磁性を観測した。

均質・高濃度ドーピング、粒子径制御の高度化。希土類元素の高濃度ドーピング、ナノ粒子の小サイズ化のため、気相からの核生成、粒子成長領域の温度を低下させて冷却速度を上昇させるため、プラズマフレームに逆向するガス供給用水冷プローブを取り付け、逆向ガス流の効果を最適化した。プラズマの温度・流れの分布を数値解析によりもとめ(図2)急冷プロセスの高度化でナノ粒子径を減少させるとともに酸化チタンナノ粒子中へ Eu ドーピング固溶限が0.5モル%から1.0モル%まで上昇する結果を得た。

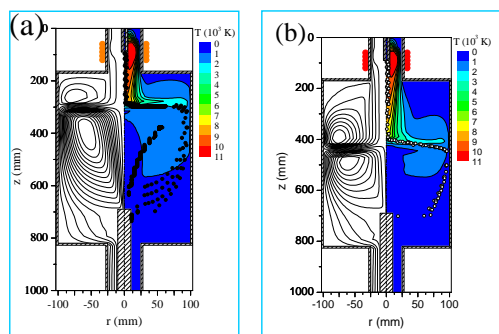


図2 (a)アルゴンおよび(b)ヘリウムガスを対向流として用いた時のプラズマ尾炎部の冷却、プラズマ流の変化

5 価の Nb と 3 価の Fe を共ドープした TiO_2 ナノ粒子を合成した。Nb の共存により Fe ドープ TiO_2 の相選択性がルチルからアナターゼに変化した。また、Fe 単独ドープより強い強磁性が室温で認められた。

5 価の Nb と 3 価の Eu を共ドープした TiO_2 ナノ粒子を合成した。Nb の共存により Eu ドープ TiO_2 の相選択性がルチルからアナターゼに変化した。Eu 単独ドープナノ粒子同様、約 617nm に鋭いピークをもつ赤色発光が観測された。また、この発光は、主として、 TiO_2 ホストに吸収されたエネルギーが Eu に移動するメカニズムによることを確認した。

BaTiO_3 - SrTiO_3 系全領域で、不純物相を含まない高結晶性固溶体ナノ粒子を一段プロセスで合成した(図3)。3つの金属元素を含む固溶系の化学組成の精密制御を図るため、液

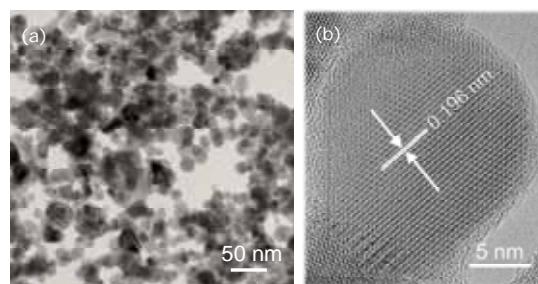


図3 プラズマ合成高結晶性 BaTiO_3 ナノ粒子

体プリカーサーの熱プラズマ中の噴霧熱分解法を用いた。比表面積測定から求めた粒径と、画像解析によりもとめた一次粒子径を比較して、本熱プラズマ法によるナノ粒子は、高結晶性ととも、固結凝集の少ない易分散性ナノ粒子であることがわかった。

(2) プラズマ合成ナノ粒子の水系溶媒への分散

酸化チタンナノ粒子を高度に分散した水系溶媒を作成した。ナノ粒子の水系溶媒への完全分散条件を見いだすため、高分子分散剤をナノ粒子表面に吸着させた分散系の評価を行った。高分子分散剤の分子量、溶媒の pH を最適化して、粒子濃度 15 体積%以上でナノ粒子分散系の粘度を $5\text{mPa}\cdot\text{s}$ 以下にすることができた。また、コロイドプローブ AFM 法による粒子間相互作用力、動的光散乱法による粒径測定により、高分子分散剤の作用機構を調べた

超音波照射により、液中クラスターサイズが 1 次粒子径に近いナノ粒子の高度分散手法を開発した。数種類の分子量を有する分散剤を添加して、酸化チタンナノ粒子サスペンションを作製し、サスペンション安定性および沈降物からサスペンションへの再生、再分散性を比較した。ボールミル混合で作成したサスペンションに比較して、超音波照射する手法で作製したサスペンションは、水中分散安定性に優れ、たとえ沈降したとしても、容易に再分散させることが可能であることが分かった。

マイクロエマルジョン法を用いて、高度に液中分散した鉄ナノ粒子に耐酸化被覆し、耐酸化特性、磁気特性の向上を観測した。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 32 件)

小林法夫, 石垣隆正, 渡辺隆行, 李継光,
Synthesis of Pure, Crystalline $(\text{Ba},\text{Sr})\text{TiO}_3$

Nano-Sized Powders in RF Induction Thermal Plasma, International Journal of Applied Ceramic Technology, 査読有、vol.7、2010、印刷中

冷永華, 佐藤仁俊, 李繼光, 石垣隆正, 吉田貴行, 神谷秀博, Oxidation-Resistant Silica Coating on Gas-Phase-Reduced Iron Nanoparticles and Influence on Magnetic Properties, Journal of Physical Chemistry C, 査読有、vol.113、2009、16681-16685

冷永華, 佐藤仁俊, 李繼光, 石垣隆正, 飯島志行, 神谷秀博, 吉田貴行, Iron nanoparticles Dispersible in Both Ethanol and Water for Direct Silica Coating, Powder Technology, 査読有、vol.196、2009、80-84

佐藤仁俊, 飯島志行, 冷永華, 李繼光, 倉嶋敬二, 吉田貴行, 神谷秀博, 石垣隆正, 針状鉄コバルトナノ粒子の耐酸化シリカ被覆, 粉体および粉末冶金, 査読有、56巻、2009、232-235

李繼光, Robert Buechel, 磯部雅朗, 森孝雄, 石垣隆正, Cobalt-Doped TiO₂ Nanocrystallites: Radio-Frequency Thermal Plasma Processing, Phase Structure, and Magnetic Properties, Journal of Physical Chemistry C, 査読有、vol.113、2009、8009-8015

石垣隆正, 李繼光, Synthesis of Functional TiO₂-Based Nanoparticles in RF Induction Thermal Plasma, Pure and Applied Chemistry, 査読有、vol.80、2008、1971-1979

佐藤仁俊, 李繼光, 神谷秀博, 石垣隆正, Ultrasonic Dispersion of TiO₂ Nanoparticles in Aqueous Suspension, Journal of the American Ceramic Society, 査読有、vol.91、2008、2481-2487

池田征史, 李繼光, 小林法夫, 守吉佑介, 浜中廣見, 石垣隆正, Phase formation and luminescence properties in Eu³⁺-doped TiO₂ nanoparticles prepared by thermal plasma pyrolysis of aqueous solutions, Thin Solid Films, 査読有、vol.516、2008、6640-6644

R. Ye, 石垣隆正, Nonequilibrium Situations in a Pulse-Modulated Ar-H₂ Inductively Coupled Thermal Plasma for Hydrogen Doping, Thin Solid Films, 査読有、vol.516、2008、4407-4414

小林法夫, 川上裕二, 鎌田啓嗣, 李繼光, R. Ye, 渡辺隆行, 石垣隆正, Spherical Submicron-Size Copper Powders Coagulated from a Vapor Phase in RF Induction Thermal Plasma, Thin Solid Films, 査読有、vol.516、2008、4402-4406

立川貴士, 石垣隆正, 李繼光, 藤塚守, 真嶋哲朗, Defect-Mediated Photoluminescence Dynamics of Eu³⁺-Doped TiO₂ Nanocrystals Revealed at the Single-Particle or Single-Aggregate Level, Angewandte

Chemie International Edition, 査読有、vol.47、2008、5348-5352

佐藤仁俊, 李繼光, 神谷秀博, 石垣隆正, 超音波分散した酸化チタンナノ粒子スラリーの安定性, 粉体および粉末冶金, 55巻, 査読有、2008、263-269

李繼光, X.H. Wang, C.C. Tang, 石垣隆正 and S. Tanaka, Energy Transfer Enables 1.53 μm Photoluminescence from Erbium-Doped TiO₂ Semiconductor Nanocrystals Synthesized by Ar/O₂ RF Thermal Plasma, Journal of the American Ceramic Society, 査読有、vol.91、2008、2032-2035

石垣隆正, Synthesis of Ceramic Nanoparticles with Non-Equilibrium Crystal Structures and Chemical Compositions by Controlled Thermal Plasma Processing, Journal of the Ceramic Society of Japan, 査読有、vol.116、2008、462-470

佐藤仁俊, S.Kondo, M. Tsukada, 石垣隆正, 神谷秀博, Influence of Solid Fraction on the Optimum Molecular Weight of Polymer Dispersants in Aqueous TiO₂ Nanoparticle Suspensions, Journal of the American Ceramic Society, 査読有、vol.90、2007、3401-3406

李繼光, 池田征史, C.Tang, 守吉佑介, 浜中廣見, 石垣隆正, Chlorinated nanocrystalline TiO₂ Powders via One-Step Ar/O₂ Radio Frequency Thermal Plasma Oxidizing Mists of TiCl₃ Solution: Phase Structure and Photocatalytic Performance, Journal of Physical Chemistry C, 査読有、vol.111、2007、18018-18024

石垣隆正, 李繼光, 他3名, Size Control of TiO₂ Nanoparticles Prepared by Oxidative Pyrolysis of Liquid-Mist Precursors in RF Thermal Plasma, Key Engineering Materials, 査読有、vol.352、2007、119-124

石垣隆正, 李繼光, Synthesis of Functional Nanocrystallites through Reactive Thermal Plasma Processing, Science and Technology of Advanced Materials, 査読有、vol.8、2007、617-623

R. Ye, Anthony B. Murphy, 石垣隆正, Numerical Modeling of an Ar-H₂ Radio-Frequency Plasma Reactor under Thermal and Chemical Nonequilibrium Conditions, Plasma Chemistry and Plasma Processing, 査読有、vol.27、2007、189-204

李繼光, 池田征史, R.Ye, 守吉佑介, 石垣隆正, Control of Particle Size and Phase Formation of TiO₂ Nanoparticles Synthesized in RF Induction Plasma, Journal of Physics D-Applied Physics, 査読有、vol.40、2007、2348-2353

他12件(査読有8件、査読無4件)

[学会発表](計51件)

石垣隆正、Oxidation-resistant silica coating on iron nanoparticles (招待講演)、The 18th International Symposium on Processing and Fabrication of Advanced Materials、2009.12.14、東北大学、仙台市

石垣隆正、高周波熱プラズマの無機材料合成への応用(招待講演)、電気学会北陸支部学術講演会、2009.12.2、金沢大学、金沢市

張晨寧、李繼光、冷永華、打越哲郎、渡辺隆行、石垣隆正、Phase Structure and Photoluminescent Properties of TiO_2 : (Eu^{3+} - Nb^{5+}) Nanopowders Synthesized via Ar/ O_2 Radio Frequency Thermal Plasma、The 26th International Japan-Korea Seminar on Ceramics、2009.11.24、つくば国際会議場、つくば市

石垣隆正、Synthesis of functional TiO_2 nanoparticles in RF induction thermal plasma and their dispersion behavior (Invited lecture)、6th China International Conference on High-Performance Ceramics、2009.8.17、Victories Hotel、Harbin、China

石垣隆正、Synthesis of TiO_2 Nano-Size Powders in Reactive Thermal Plasma and Their Dispersion Behavior (招待講演)、NIMS Symposium on the Social Acceptance of Nanomaterials、2009.7.24、つくば国際会議場、つくば市

張晨寧、李繼光、打越哲郎、渡辺隆行、石垣隆正、(Eu^{3+} - Nb^{5+})-Codoped TiO_2 Nanopowders Synthesized via Ar/ O_2 Radio Frequency Thermal Plasma Oxidation Processing: Phase composition and Photoluminescence Properties through energy transfer、第22回プラズマ材料科学シンポジウム、2009.6.16、東京大学、文京区

石垣隆正、Non-Equilibrium Conditions in Plasma-Synthesized TiO_2 Nanoparticles and Their Excellent Dispersion Properties (招待講演)、The 1st International Symposium on Advanced Synthesis and Processing Technology for Materials (ASPT08)、2008.11.14-11.17、武漢、中国

小林法夫、李繼光、渡辺隆行、石垣隆正、Synthesis of Barium Titanate Nano-Size Powders in RF Thermal Plasma from Liquid Precursor、2nd International Conference on Science and Technology for Advanced Ceramics、2008.5.30-6.1、OVTA、千葉

石垣隆正、高度制御熱プラズマによるセラミック材料の非平衡・高速合成(招待講演)、日本セラミックス協会2008年年会、2008.3.22、長岡技術科学大学、長岡市

李繼光、石垣隆正、他2名、Room temperature magnetic properties of thermal plasma synthesized cobalt-doped TiO_2

nanopowders、第46回セラミックス基礎科学討論会、2008.1.11、名古屋国際会議場、名古屋

石垣隆正、佐藤仁俊、李繼光、神谷秀博、他1名、高分散した鉄ナノ粒子への耐酸化シリカ被覆(招待講演)、粉体粉末冶金協会平成19年度秋季大会、2007.11.19、京都工芸繊維大学、京都市

石垣隆正、Non-Equilibrium Doping, Phase Selection and Functionalization in TiO_2 Nanoparticles Prepared by RF Thermal Plasma Methods (招待講演) IUPAC 3rd International Symposium on Novel Materials and Synthesis、2007.11.18、Tianyi Hotel、上海、中国

佐藤仁俊、李繼光、石垣隆正、神谷秀博、Dispersion stability under ultrasonication of TiO_2 nanoparticles in water、7th Pacific Rim International Conference on Ceramic and Glass Technology、2007.11.13、Shanghai International Convention Center、上海、中国

李繼光、石垣隆正、他2名、Phase structure and photocatalytic properties of TiO_2 nanopowders synthesized by Ar/ O_2 RF thermal plasma oxidization of atomized TiCl_3 solution、7th Pacific Rim International Conference on Ceramic and Glass Technology、2007.11.12、Shanghai International Convention Center、上海、中国

石垣隆正、李繼光、Phase Formation and Magnetic Properties of TiO_2 Nanoparticles Doped with Transient Metals Prepared in Thermal Plasma(招待講演)、6th Pacific Rim International Conference on Advanced Materials、2007.11.8、ICC Jeju、Jeju Island、韓国

池田征史、李繼光、他3名、石垣隆正、Influence of Quenching Condition on the Phase Formation and Luminescence Property of Eu^{3+} -Doped TiO_2 Prepared in Thermal Plasma、6th Pacific Rim International Conference on Advanced Materials、2007.11.6、ICC Jeju、Jeju Island、韓国

佐藤仁俊、李繼光、他1名、石垣隆正、神谷秀博、高分散した針状鉄ナノ粒子への耐酸化シリカ被覆、日本セラミックス協会第20回秋季シンポジウム、2007.9.12、名古屋工業大学、名古屋市

李繼光、石垣隆正、他2名、RF thermal plasma processing and room temperature ferromagnetic properties of cobalt doped TiO_2 nanopowders、18th International Symposium on Plasma Chemistry、2007.8.28、京都大学、京都市

石垣隆正、李繼光、Synthesis of functional TiO_2 -based nanoparticles in RF induction thermal plasma(招待講演)、18th International Symposium on Plasma Chemistry、2007.8.27、京都大学、京都市

石垣隆正、光熱プラズマによる高結晶性酸化チタンナノ粒子の一段プロセス合成（招待講演）粉体工学会第42回技術討論会、2007.6.19、アルカディア市ヶ谷、千代田区

他 31 件

〔図書〕(計 1 件)

佐藤仁俊、神谷秀博、石垣隆正、技術情報協会、最新ファイラー技術全集（分担執筆；超音波照射による酸化チタンナノ粒子の液中への分散技術）2008、227-233

〔産業財産権〕

出願状況（計 3 件）

名称：磁性超微粒子及びその製造方法

発明者：神谷秀博、飯島志行、石垣隆正、佐藤仁俊

権利者：国立大学法人東京農工大学、独立行政法人物質・材料研究機構

種類：特許、特願

番号：2007-1559

出願年月日：2007.6.13

国内外の別：国内

他 2 件（国内 1 件、国外 1 件）

取得状況（計 3 件）

名称：Zinc oxide phosphor, process for producing the same and light emitting device

発明者：大橋直樹、石垣隆正、田口広之、羽田肇、関口孝司

権利者：独立行政法人物質・材料研究機構

種類：US

番号：7,535,162 B2

取得年月日：2009.5.19

国内外の別：外国（米国）

名称：ブルッカイト型二酸化チタンを製造する方法、単分散ブルッカイト型二酸化チタン団粒、光触媒及びフォトニック結晶

発明者：李継光、石垣隆正

権利者：独立行政法人物質・材料研究機構

種類：特許

番号：第 4411385 号

取得年月日：2009.11.29

国内外の別：国内

名称：炭素被覆形強磁性金属球形粒子及びその製造方法

発明者：石垣隆正、シュー・ジアヤン、田中秀樹

権利者：独立行政法人物質・材料研究機構

種類：特許

番号：第 4457227 号

取得年月日：2010.2.19

国内外の別：国内

6. 研究組織

(1)研究代表者

石垣 隆正 (ISHIGAKI TAKAMASA)

法政大学・生命科学部・教授

研究者番号：40343842

(2)研究分担者

李 継光 (LI JIGUANG)

独立行政法人物質・材料研究機構・ナノセラミックスセンター・主任研究員

研究者番号：90354381

(H20 H21：連携研究者)

研究分担者 (H19)

佐藤 仁俊 (SATO KIMITOSHI)

独立行政法人物質・材料研究機構・ナノセラミックスセンター・NIMS ポスドク研究員

研究者番号：40421408

研究分担者

神谷 秀博 (KAMIYA HIDEHIRO)

東京農工大学・大学院共生科学技術研究院・教授

研究者番号：20183783

(H20 H21：連携研究者)