(解説)

車両電動化に資する分析・評価技術

坪田隆之^{*1}(博士(理学))・阿知波 敬^{*1}(博士(工学))・西村 学^{*1}・高梨泰幸^{*1}・常石英雅^{*2}・小川 稜^{*2}

Analysis and Evaluation Technologies Contributing to Vehicle Electrification

Dr. Takayuki TSUBOTA · Dr. Takashi ACHIHA · Manabu NISHIMURA · Yasuyuki TAKANASHI · Hidemasa TSUNEISHI · Ryo OGAWA

要旨

走行中CO₂削減のために,自動車の電動化が世界的に進行している。電動パワートレインは電池パック,インバー タ,モータで構成されるが,環境負荷低減に加えて航続距離の延長や急速充電対応,エネルギー効率の向上など の観点で開発が進められており,これらの開発には分析・評価技術が不可欠である。本稿では車両電動化を支援し, 脱炭素社会の実現に貢献するためのリチウムイオン電池,全固体電池の試作・評価技術,Cs-STEMによる原子分 解能観察やSEMによるデバイス動作中の動的挙動観察などの先端観察分析技術,電池リサイクル支援技術,パワー 半導体の評価技術を概説する。

Abstract

Vehicle electrification is progressing worldwide to reduce CO_2 emissions while driving. An electric powertrain comprises a battery pack, an inverter, and a motor, and this development aims at reducing the environmental burden, extending the cruising distance, enabling rapid charging, and improving energy efficiency. For this development, analysis and evaluation technologies are essential. This paper provides an overview of prototyping and evaluation technologies for lithium-ion batteries and all-solid-state batteries, which support vehicle electrification and contribute to the realization of a carbon-free society, advanced observation and analysis technologies. These steps include atomic resolution observation by Cs-STEM and dynamic behavior observation during device operation by SEM, battery-recycling support technologies, and evaluation technologies for power semiconductors.

検索用キーワード

脱炭素,カーボンニュートラル,電気自動車(BEV),電動パワートレイン,リチウムイオン電池,全固体電池,モータ, インバータ,Cs-STEM, in situ SEM,パワー半導体,パワーサイクル試験,リサイクル

まえがき=地球温暖化・気候変動は国境を越えた共通課 題である。脱炭素に向けて各国で環境規制強化が進んで おり,我が国においては、「2050年カーボンニュートラ ル,脱炭素社会の実現」が宣言され、2021年4月には温 室効果ガス削減目標について、「2030年度の排出量を、 13年度比で46%削減」と大幅に引き上げられている。

脱炭素の世界的な潮流は日本経済を支える重要な基幹 産業である自動車産業に大きな影響を与える。国土交通 省の「2020年度温室効果ガス排出量(確報値)概要」 によると,我が国における運輸部門からのCO₂排出量は 18%と産業部門に次ぐ多さであり,さらに運輸部門にお ける自家用車貨物車からの排出量は80%を超えている ことから車両の電動化が急務となっている。

電動車両は、ハイブリッド車(HEV:Hybrid Electric Vehicle)、プラグインハイブリッド車(PHEV:Plug in Hybrid Electric Vehicle)、電気自動車(BEV:Battery Electric Vehicle)、燃料電池車(FCV:Fuel Cell Vehicle)の4種類に分類される。このうち、電池パックの電力のみで走行するBEV、水素と酸素を反応させて発電する電力で走行するFCVは走行中のCO₂排出が無く、環境負荷が低い。

BEVには従来のICE車(Internal Combustion Engine: 内燃機関)には無かった,強電の電池パック,インバー タ,モータから構成される電動パワートレインが搭載さ れている¹⁾。電池パックを構成する二次電池は,航続距 離や加速などの走行性能に大きく影響を与える基幹部品 である。航続距離の延長には高エネルギー密度化,急速 充電対応や加速など車両運動性能向上に必要な高入出力 化,さらなる安全性向上など,研究開発が盛んに行われ ている。

インバータはモータを回転させるために電池パックか らの直流電流を交流に変換する電力変換装置である。こ の電力変換回路にはSi半導体が搭載されたパワーMOSFET (Metal-Oxide Semiconductor Field-Effect Transistor) や IGBT (Insulated Gate Bipolar Transistor: 絶縁ゲート型 バイポーラトランジスタ)が用いられているが、エネル ギー損失の低減に向けて、近年ではワイドギャップ半導 体である炭化ケイ素 (SiC), 窒化ガリウム (GaN)の実 用化が進められている。

モータはインバータを介した電池パックの電気エネル ギーを運動エネルギーに変換する。加えて、制御回路や ギアでのエネルギー損失を抑え、モータの発熱を制御す

*1株式会社コベルコ科研 技術本部 EV・電池ソリューションセンター *2株式会社コベルコ科研 技術本部 物理解析センター

る熱マネジメントが必要となる²⁾。従来はモータ, ギア, インバータが独立して構成されていたが, 近年では小型 化・軽量化のために, これらを一体化した「e-Axle(イ ーアクスル)」の搭載が進められている。

コベルコ科研ではこれら電動パワートレインの各コン ポーネントについて評価解析を行っている。二次電池に 対しては、電池試作・電池特性評価、電池解体調査・分 析、計算科学、安全性試験のトータルソリューションを 展開している³⁾。またインバータについてはパワー半導 体の評価や、コンタクタ、ヒューズなどのジャンクショ ンボックス搭載部品の通電試験,モータやギア, e-Axle の回転試験を行っている。加えて海外製のBEVを中心 に,走行性能試験,解体・構造調査を行っている。車両 には種々の電流センサや熱電対、冷却流路への圧力セン サなどを取り付け、テストコースやシャシーダイナモメ ータ上で走行試験を行い、取り付けたセンサとCANデ ータの取得と解析から、走行中の電動パワートレインの 制御機構、熱マネジメント制御機構を明らかにしてい る。また、車両を解体し、電動パワートレインや電池パ ック、ボデーの構造調査を行っている。

電動パワートレインのうち,最新のモータ評価技術に ついては本号に掲載されている別稿(本号 p.38~44, 「Back to Back型モータ評価ベンチ」参照)に譲り,本 稿では,電池パックに搭載されるリチウムイオン電池や 次世代電池として期待される全固体電池の試作評価技 術,最新の分析技術,電池リサイクル支援技術,インバ ータに搭載されるパワー半導体モジュールの評価技術に ついて述べる。

1. 二次電池の試作・評価技術

1.1 液系リチウムイオン電池の試作技術

リチウムイオン電池は従来の水系電池と比較して高い エネルギー密度が特徴であり,BEVをはじめとする電動 車両へ搭載されている。現在は、有機溶媒の電解液を用 いた液系リチウムイオン電池が主流である。当社では電 池試作評価を行っており、開発品を含む種々の材料を用いた電極試作、電池試作が可能である。図1に示す円筒電池、ラミネート型電池、角型電池の試作を行っており、繰り返し充放電によるサイクル劣化、充電状態のまま長時間保持することによる保存劣化のデータを取得するとともに、新たな評価・解析手法の開発を行っている。

1.2 全固体電池の試作評価技術

さらなる高エネルギー密度、高入出力特性となる次世 代電池が検討されている中で、近年は有機電解液を固体 電解質に置き換えた全固体電池の開発が盛んに行われて いる^{4),5)}。とくに硫化物系固体電解質はイオン伝導率の 高さ,活物質/固体電解質界面形成の容易さから,有力 な固体電解質として着目されている。現在、大型全固体 電池の製造は、従来の液系リチウムイオン電池の製造プ ロセスをベースに開発が進められているが確立した製造 プロセスは無く、全固体電池に最適化された製造プロセ スの検討が行われている。いっぽうで、硫化物系固体電 解質は大気中の水分と反応し容易に変質することから. 塗工機やロールプレスといった大型試作設備の露点制御 が必要である。当社の塗工型全固体電池試作プロセスを 図2に示す。室内露点が-50℃以下に調整されたスーパ ードライルームにて、露点-80℃以下に管理したAr雰 囲気のグローブボックス内で、合材スラリーを混練し集 電箔に塗工することで大面積の全固体電極シートの作製 を行う。その後、作製した電極シートは低露点環境を維



図1 評価用試作電池 Fig.1 Battery cell for testing



図2 塗工型全固体電池の試作プロセス Fig.2 Coating all solid-state battery prototyping process



図3 塗工型全固体ラミネートセルの電池特性 Fig.3 Battery characteristics of coating all solid-state battery

持したまま,ロールプレスによる密度調整や積層・パッ キングを行う。活物質/固体電解質の接合界面形成にお いては,等方圧加圧装置(CIP: Cold Isostatic Pressing, WIP: Warm Isostatic Pressing)を使用することで,高 圧かつ加熱下での処理が可能となり,良好な接合界面を 有した塗工型全固体電池を作製する。

電池試作事例として,正極活物質にLiNbO₃コーティ ングを施したLiNi_{1/3}Mn_{1/3}Co_{1/3}O₂,負極活物質にグラフ ァイト,固体電解質にアルジェロダイト型Li₆PS₅Cl,導 電助剤にアセチレンブラックを用いて作製した塗工型全 固体ラミネートセルの外観および電池特性評価結果を 図3に示す。0.1C,25℃の充放電において1.2 mAh程度 の放電容量を示す塗工型全固体電池の作製が可能であ る。塗工型全固体ラミネートセルにより材料特性の評価 や電極構造の最適化,劣化メカニズム調査を行ってい る。

2. 最新の二次電池分析技術

2.1 低ダメージ原子分解能観察・分析技術

車載用電池では長期使用が想定されることから,長寿 命化に向けた電池の劣化機構解明に関する多くの報告が ある。高エネルギー密度となる電池では,正極活物質に LiNi_xCo_yMn_{1-xy}O₂など層状岩塩構造を用いることが多い が,近年ではさらなるエネルギー密度向上のためNi比 率を高めた材料が使用されている。いっぽうで,Ni比率 を高めるとサイクル特性が低下する問題がある。

正極の劣化機構解明のためには、サイクル劣化による 正極活物質の結晶構造変化の解析が重要となる^{6).7)}。一 般的な結晶構造の解析方法としてX線回折や電子回折な どがあるが、結晶構造を直接観察することが可能な、球 面収差補正機能付き走査透過電子顕微鏡(Cs-STEM: Cs-corrected Scanning Transmission Electron Microscope)を用いた原子分解能観察を紹介する。観 察はFEI社製の最新鋭のCs-STEMであるSpectra Ultra を用いた。本装置の特徴は、高い空間分解能と高検出効 率のエネルギー分散型X線分光(EDS:Energy Dispersive X-ray Spectroscopy)に加え、加速電圧可変 時の高いビーム安定性であり、短時間で最適な条件の観 察・分析が可能となる。試料はハイニッケルタイプの正 極活物質であるLiNi_{0.8}Co_{0.05}Al_{0.15}O₂(NCA)を用いた。

正極活物質の断面STEM観察結果とその結晶構造モ デルを図4(a)に示す。正極活物質の結晶構造は六方



図4 (a) HAADF像 (200 kV) とNCAの結晶構造 (b) 原子分解能EDSマップ (60 kV) Fig.4 (a) HAADF image (200 kV) and layered rocksalt structure of

(a) INTEDT image (200 kV) and layered rocksaft structure of NCA compound
(b) Atomic-resolution EDS maps (60 kV) of Ni (red), O (blue) and Overlay

晶系の層状岩塩構造であり、<100>結晶方位から観察を 行うことで、Ni, Coおよび Al 周囲の酸素分布状況を確 認できる。加速電圧 60 kV での原子分解能 EDS マッピ ング分析結果を図4(b)に示す。STEM像で確認され た層状岩塩構造がEDSマッピングの結果からも確認で きており、とくに注目すべき点は、加速電圧60kVの分 析結果においてNiやCoの遷移金属の周囲に配位してい る酸素が明瞭に分離して可視化できている点である。従 来の装置では、低加速電圧時の空間分解能、EDSの検出 効率から、軽元素の原子分解能EDSマッピングは困難 であったが、本装置の特徴である高分解能、高検出効率 のEDSにより分析可能である。また、通常のEDSマッ ピングでは、長時間の電子線照射により試料の構造が破 壊されてしまうことがあり、今回のNCAもまた、電子 線照射によるカチオンミキシングを起こしやすい材料の 一つである。このような電子線にセンシティブな材料の 分析には、低加速、低電流での観察・分析が必要となる。 今回の加速電圧60kVでのEDSマッピングでは、照射 電流量も10pAと低電流であり、結晶構造の損傷が無い 状態でEDSマッピングを得ることができる。この低ダ メージ観察は、液系の電池材料のみならず、さらに電子 線にセンシティブとなる全固体電池材料の観察・分析に も有効である。とくに全固体電池の正極活物質と固体電 解質の界面反応は原子分解能レベルでの観察および分析 は高難度である。今回報告した低ダメージ観察に加え, 大気非暴露かつクライオ冷却加工・観察を組み合わせ, 現在解明できていない界面反応に伴う結晶構造変化を可 視化していく。

2.2 マイクロプローブ SEM による in-situ 観察技術

全固体電池では高エネルギー密度化のために,金属Li を負極として用いることが検討されている。しかしなが ら金属Liは充放電中にリチウムデンドライトが析出し 短絡する課題がある。そのため,金属Li析出の挙動を 可視化し,その抑制のための対策が必要となる⁸⁾。走査 電子顕微鏡(SEM: Scanning Electron Microscope)の 試料室で充放電を行いながらその場観察を行う「in-situ SEM」による高分解能観察が望まれるが、リチウム析 出は電極面上のごく一部にスポット的に発生する傾向に あり、その観察が困難とされてきた。これらの問題を解 決するためSEMに可動式のマイクロプローブを組み込 み、プローブ先端から局所的に電圧を印加することによ ってSEM観察領域にリチウム析出させ、その析出形態 や破壊挙動の詳細調査を行った。

固体電解質にはLi₆PS₅Clを用いた。CIPにより高密度 化し、さらに対極として金属リチウム箔を圧着してその 場観察用の試料とした。大気非暴露のまま固体電解質露 出面を観察面としてSEMに導入し、任意の位置にタン グステン製プローブで触れ、プローブ-固体電解質-対 極間に負方向の電圧掃引することによってプローブ直下 に金属リチウムを析出させ、その様子をSEMによって in-situ観察した。観察は試料の温度を制御して行い、室 温と80℃の2種で比較した。

室温および80℃での電圧掃引時のin-situ SEM観察結 果を図5に示す。室温では-0.13 V付近よりプローブ直 下での金属リチウムの析出が見られた。-0.17 V付近で は固体電解質に亀裂が生じて内部から析出が見られ,同 時に生じた電流値の急増により設定した上限電流 (0.2 mA)に達し停止した。80℃では-0.05 V付近より プローブ直下での金属Li析出が見られ,-0.18 V付近よ り析出が周囲の領域に拡大,電流値30 µA以下のまま設 定した上限電圧(-0.5 V)に達し停止した。昇温によ り明確な析出開始電圧の低下が見られ,室温では亀裂進 展し深部からの析出が急増したいっぽうで,80℃では表 面近傍の欠陥より析出しているものと予想される。固体 電解質の特性を評価した結果を**表1**に示す。機械特性



Crack initiation site marked by arrows

図5 リチウム析出のIn-situ SEM 観察 Fig.5 In-situ SEM observation of Li deposition の違いに加え,電気伝導率およびイオン伝導率に顕著な 差が確認された。低温であるほど電子伝導性が高く,よ り深部に電子が到達することによって深部からの析出が 増加しているものと考えられる。これらの技術により全 固体電池の動作中の動的挙動を把握することが可能とな る。

3. 二次電池のリサイクル支援技術

近年,需要が拡大する電池材料に対して,鉱物資源は 産出国が限定しており,特定国へ依存するリスクの低 減,鉱山開発による環境破壊の抑制のため,電池のリサ イクルによる資源の確保が進められている⁹⁾。欧州では 2023年に発効された欧州電池規則においてリサイクル 材の一定量以上の使用を求めており,我が国では経済産 業省の蓄電池戦略においてリサイクルシステムの確立を 目標とする計画が示されている。NEDO(新エネルギー・ 産業技術総合開発機構)においてはグリーンイノベーシ ョン基金が設立され,蓄電池のリサイクル関連としてプ ロセスの検証・高度化から,操業を目指した開発が進め られている。

ここで、リチウムイオン電池における資源の循環を原 料から電池の製造・利用・リサイクルの観点で示した概 略図を図6に示す。この資源循環において、破砕・選 別後の材料を原料に戻すプロセスの最適化と、正極板よ り正極活物質を破壊せずに取り出し、活物質として電池 の製造に使用する「ダイレクトリサイクル」と呼ばれる プロセスの実現が、クローズドループを成立させるうえ で重要となる¹⁰⁾。

当社では化学分析・物理解析技術を活用した状態評価 と計算科学を活用したシミュレーション評価を駆使し、 リサイクルプロセスの検証・最適化の支援を行っている。

評価事例として,電気炉での電池失活処理後に破砕選 別された,活物質を含む「ブラックマス」の断面SEM 観察,EDSマッピング分析結果を図7に示す。加熱処理 条件により元素分布や活物質の変質状態が異なるため, 金属抽出処理前に状態を把握しておくことは重要であ る。ダイレクトリサイクルにおいては電極の合材層から 活物質を分離・選別する必要がある。粒子の選別方法と しては,浮遊選別や比重選別などがあるが,今回,比重 選別法の一つであるハイドロサイクロンにおける活物質 の分離についてシミュレーションにより検討を行っ た¹¹⁾。ハイドロサイクロンは,粒子を含む溶液を円周方 向に高速で供給することにより,比重の重い粒子は下部 へ,比重の軽い粒子はサイクロン内の上昇流により上部 に排出されることにより分離される。粒子径による分離

表1 実験に用いた電解質の各種物性値の評価結果 Table 1 Results of evaluation of various properties of electrolytes used in experiments

| Measurement method | Properties | Unit | RT | 80°C |
|--------------------------------|-------------------------|------|-----------------------|-------------------------|
| AC impedance | Ionic conductivity | S/cm | 2.42×10 ⁻³ | 2.22×10 ⁻² * |
| High-resistance measurement | Electrical conductivity | S/cm | 1.86×10 ⁻⁷ | 6.07×10 ⁻⁸ |
| Nanoindentation | Indentation hardness | GPa | 6.0×10 ⁻¹ | 4.1×10 ⁻¹ |
| | Young's modulus | GPa | 1.3×10 | 1.1×10 |

*The values at 80°C are extrapolated from the values at 0, 25, 50 and 70°C.



図6 資源循環とリサイクル処理の流れ Fig.6 Resource circulation and recycling process flow



図7 リサイクル材料であるブラックマスの断面 SEM 観察と EDS による成分分析

Fig.7 Example of evaluation of recycled materials: Cross-sectional SEM observation and EDS analysis of black mass



図8 ハイドロサイクロンにおける活物質の軌跡 Fig.8 Path followed by the active materal particles inside the hydrocyclone

状況の違いを図8に示す。粒径10µmでは上下に分離 されるが、大粒径50µmでは下部の容器に全量が集ま っている。シミュレーションを活用することで、実機試 験が難しい条件での検討を行うことができる。実測とシ ミュレーションを組み合わせ、リサイクルプロセス開発 支援を行っている。

4. パワー半導体モジュールの技術動向と評価技術

BEV の電力変換を担うパワーモジュールは,電費向上のため小型化,高密度化や急速充電に対応した高出力 化が進んでおり,電流を制御しているスイッチング素子 の発熱密度が増大している¹²⁾。そのため素子周辺部材へ 与える熱の影響も大きくなり,熱的な観点からの信頼性 試験が重要となっている。

パワーサイクル試験(P/C試験)は、素子への通電 On/Offを繰り返し、素子の発熱と冷却によって周辺部 材との線膨張係数差に起因するせん断ひずみを発生さ せ、接合部の劣化を加速させて寿命を評価することを目 的とした試験である。1 サイクルの通電時間が数秒~数 十秒と短い場合、素子上面や底面の接合部の寿命評価が 主となる ΔT_j -P/C試験、通電On時間が数分と長い場合 は素子下に配置された絶縁基板周囲の接合部の寿命評価 が主となる ΔT_c -P/C試験といった分類がされている。ま た通電時の制御パラメータとして T_j (ジャンクション温 度)、 T_c (ケース温度)や電流値、電力などを一定に制御 する条件が存在する。

当社にて設計・製作したP/C試験機を用いた ΔT_j -P/C試験と、劣化解析として電気特性測定と超音波顕微鏡観 察(SAT: Scanning Acoustic Tomography)により劣 化状態を評価した事例を紹介する。

試験体は市販の定格150 AのSi MOS-FETを用い,20 Cの冷却水を通水したCu製プレート上に伝熱グリスを 介して設置した。通電電流値は定格の150 Aに加え,定 格を超える180 A,185 Aとした。試験中は電流値一定 条件にてOn/Off=1 sec/9 secで繰り返し通電し,ドレ イン・ソース間電EV_{ds}が初期安定値±10%となった際 に試験停止とした。

P/C試験結果を図9に示す。定格の150Aの条件では 30万サイクル程度で試験停止したが、定格を超える 180A,185Aでは1,000サイクル以下で試験停止となっ た。電気特性評価結果を図10に示す。ゲート特性を表 す I_d - V_{gs} 特性は試験前後で変化はみられなかった。いっ ぼうで出力特性を表す I_d - V_{ds} 特性は試験後にドレイン電







図10 I_d-V_{ss}特性(a), I_d-V_{ds}特性(b) のP/C試験電流との関係 Fig.10 Relationship between P/C test current and both the I_d-V_{gs} characteristics (a) and I_d-V_{ds} characteristics (b)



図11 ワイヤボンディング接合界面のSAT評価結果 Fig.11 SAT evaluation of wire bonding interface

流が30A以上でV_{ds}が増加する挙動がみられた。接合部 の剥離状況を,SATにより評価した結果を図11に示す。 未試験品と比較して,試験後は通電電流が大きくなるに つれて,ワイヤボンディング接合部の剥離領域が大きく なっており,185Aでは樹脂部の剥離も見られた。これ らの結果より,P/C試験で生じた繰り返し熱応力によ り,ワイヤボンディング接合部の剥離が進行したため抵 抗が増加し、I_d-V_{ds}特性におけるV_{ds}の増大として確認されたと考えられる。

当社では今回紹介した評価手法以外にも断面SEM による剥離状況の観察,EBSD (Electron Backscatter Diffraction)を用いたはんだ組織の評価など多様な解析 が可能である。今後,電力効率向上や小型・軽量化に向 けてSiCやGaNを使用したデバイスの適用が進むと発熱 密度が上がり,周辺部材との線膨張率の違いによる剥離 が進行する懸念がある。今回紹介した評価技術と手法を 用いてパワーモジュールの課題解決に貢献していく。

むすび=国際社会における脱炭素の取り組みは急務であ る。加えて国際情勢が不安定化する中,エネルギーの多 様化や資源の確保は重要度を増しており,従来のガソリ ンに加えて水素の利用や電動化,合成燃料などの新燃料 の検討が進められている。

二次電池は電動化にとって重要な技術であり,現行の 液系リチウムイオン電池の高エネルギー密度化や高安全 化の取り組みが進められるとともに,全固体電池などの 新型電池に大きな期待が寄せられている。また電力効率 の向上のためにSiCやGaNなどの次世代パワー半導体へ の期待も高まっている。

当社はBEVの評価に関する電池パック開発支援とし て,熱マネジメント試験や振動・衝突など構造体の試験 を行っている。これらの分析評価・解析技術を駆使した 総合評価技術により電動化を支援し,脱炭素社会の実現 に貢献していく。

参考文献

- 1) B. Wang et al. Energy Conv. Manag., 2014, Vol.86, p.916-926.
- S. Madhavan et al. Sci. Rep. 2023, Vol.13, 10125. https://doi.org/10.1038/s41598-023-36989-2.
- 3) 坪田隆之ほか. R&D神戸製鋼技報. 2022, Vol.71, No.2, p.64-69.
- 4) N. Kamaya et al. Nature Mater. 2011, Vol.10, p.682-686.
- A. Hayashi et al. Electrochem. Commun. 2003, Vol.5, No.8, p.701-705.
- 6) C. R. Birkl et al. J. Power Sources. 2017, Vol.341, p.373-386.
- 7) 坪田隆之ほか. R&D神戸製鋼技報. 2015, Vol.65, No.2, p.92-97.
- C. Hogrefe et al. J. Power Sources. 2023, Vol.556, p.232391. https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2022.232391.
- G. Harper et al. Nature. 2019, Vol.575, p.75-86. https://doi.org/10.1038/s41586-019-1682-5.
- 10) G. Wei et al. iScience. 2023, Vol.26, p.1-12.
- 竹田陽亮ほか.日本船舶海洋工学会講演会論文集.2015, Vol.20, p.549-552.
- 12) 岩室憲幸. 表面技術. 2023, Vol.74, No.6, p.296-300.