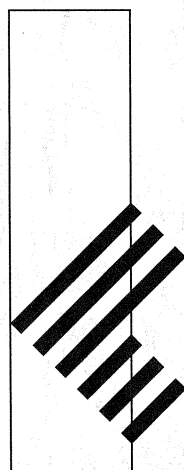


工学院大学
総合研究所年報

第20号 2012年度



平成 25 年 7 月 発行

工学院大学総合研究所

RESEARCH INSTITUTE OF SCIENCE AND TECHNOLOGY
KOGAKUIN UNIVERSITY

大学における知財について

学長 水野 明哲

ここに、総合研究所のプロジェクト研究課題の報告と科学研究費採択奨励研究費の報告がまとめられた総合研究所年報が発刊されることを皆様と共に喜びたいと思います。総合研究所が設置されたのは1993年のことで、まもなく20年になるということで、歴史を感じます。総合研究所ないし研究推進課の大きな役割のひとつとして、知的財産の管理があります。工学院大学では、知財の管理について現在曲がり角にあると言えます。このことについて少し触れておきたいと思います。

大学における教職員の活動から生まれた発明などは、職務発明と称して、大学を通じて特許出願をしていただくことになっています。2001年から始まったこの制度により、すでに120件あまりの出願がなされています。この制度が始まったのと時を同じくして、TAMA-TLOという会社が設立され、特許の申請手続きから技術移転まで支援してくれることになったので、本学ではこの会社に知財の管理をお願いすることとし、これまで順調に運営されてきました。ところが、最近になってTAMA-TLOは、特許出願手続きを代行することを主たる業務から外していったため、本学は昨年度末から、別組織の支援を受けて大学独自に出願手続きを行うことに切り替えました。ただし、職務発明を行う教職員の個々の手続きなどはこれまで通りです。

工学院大学の教職員から職務発明が生まれることは、大学の研究活動の成果であり、大学が有力な教職員を抱えていることの証でもありますので、歓迎すべきことでもあります。さらに望むらくは、その発明が実用化されることにより社会に貢献することです。そして、ロイヤルティーが入った場合には、発明者と大学で分配することになります。これは大学にとっても発明者にとっても収入になります。とはいえ、実際には出願費用など、出費の方が多く、持ち出しになっているのが、本学のみならず、どこでも多いようです。

私個人のことで恐縮ですが、2002年に直線翼縦軸風車の性能改善に関する案件を出願し、2008年に特許登録されました。これを活用した風車の実用化を目指して努力してきましたが、現時点でまだ商品化にいたっていません。技術開発にはたくさんのステップがあり、時間がかかることです。それでも、早い時期に「ひらめき」を発明として登録しておくことは将来に向けて有意義なことだと思っています。本学の教職員が、より積極的に特許出願に向けてご努力いただくことを願っています。そして、総合研究所、研究推進課ではそれをサポートすべく体制を整えています。何なりとご相談いただければ幸いです。

学長 水野明哲

研究支援の新しい制度の発足と、学生の教育について

総合研究所 所長 小野幸子

研究活動の活性化を目的とした工学院大学における研究助成の制度は 2012 年度から装いを新たにし、科研費採択奨励研究費（研究代表者個人の応募）と改定されたプロジェクト研究費（本学教員を中心とした学内外のグループによる連携研究での応募）として発足しました。本年報は 2012 年度に終了あるいは継続のプロジェクト研究と 2012 年度実施の科研費採択奨励研究費の支援を受けた研究の成果を掲載し報告するものです。科研費採択奨励研究費は科研費審査の評価点に基づき配分するもので、科研費申請書アドバイザー制度の発足とも合わせ、本学の科研費申請率が大きく上昇したことに結び付いたのではと考えております。また、2013 年度の本学の科研費採択率が大幅に上昇しましたことを喜びと共にご報告します。プロジェクト研究については、より競争的資金の色合いが強まると同時に、連携協定大学との共同研究および国際共同研究については特に申請限度額を高く設定するなど、総合研究所運営委員会における真摯な議論を経て新たな規定が制定され、再出発を果たしました。

総研への外部取材などで、「工学院大学の教育の特徴は何ですか」と聞かれるとき、「入学した学生が卒業までに大きく伸びることで、それは特に本学の高いレベルの研究を契機として学生が高いモチベーションを持つからです」とお答えします。何故学生がより高くより深いものに心を惹かれ、鼓舞されるのか、その理由の説明は簡単ではありませんが、次のようなエピソードをお伝えしたいと思います。

私は 1 年生への初めの講義で、「化学元素の話」の読み聞かせの形でメンデレーエフの周期律の発見と確立について語ります。メンデレーエフがついに周期律を見出し、困難を乗り越えて確立し認められるまでには「鋭い判断力と強固な信念」が必要でした。周期律の確立への過程は、科学の進展との関連ではありますが、不活性ガスや希土類元素の出現で何度も危機を迎える手に汗を握る波乱万丈な物語です。そして最終的に周期律の本質は「原子番号」すなわち「陽子の数」であるという所に辿り着き、ラザフォードやボーアの原子模型に至ります。この講義の後のレポートには実に 80% 以上の学生が、「自分も将来メンデレーエフのような強固な信念を持った化学（技術）者として活動し、新しい発見をしたい」と書くのです。

学生の教育を最大限の効果で進めるために研究や真理の探究といったもの、平たく言えば科学の心が、どれだけ大きな役割を果たしてくれるか、それは本学の理科（科学）教室が学生の教育に大きな力を発揮してきたことでも容易に理解できるでしょう。

目 次

学長 水野 明哲
総合研究所所長 小野 幸子

1. 総合研究所プロジェクト研究報告（2012年度研究終了）

- ・ 古代東アジアにおける学術と支配制度に関する研究
責任者 榎本 淳一…………… 11
- ・ 科学衛星搭載用放射線検出器の開発
責任者 幸村 孝由…………… 21
- ・ 氷海船舶の船体氷荷重分布推定手法の高度化
責任者 金野祥久…………… 35
- ・ シンセティックジェットの流れ特性に関する研究
責任者 佐藤光太郎…………… 45
- ・ キチンの潜在能力を化学とバイオテクノロジーで拓く
責任者 小山 文隆…………… 53
- ・ 複雑な多環性構造を有する新規抗腫瘍天然物の全合成研究
責任者 南雲 紳史…………… 61
- ・ 血液環境で使用される医療機器の生体適合性の改善
責任者 木村 雄二…………… 71
- ・ 解体を迎える半世紀供用した鉄筋コンクリート造建築物の後期健全度評価と解体排出物のゼロエミッション型再資源化モデルの構築
責任者 田村 雅紀…………… 77
- ・ 廃棄物系バイオマス由来燃料を用いたデュアルフェーゼルディーゼル発電
責任者 小林 潤…………… 85
- ・ 新規ナノ構造高熱伝導高分子の創生と熱伝導メカニズムの解析
責任者 伊藤 雄三…………… 93
- ・ 生体機能分子の固定化制御による軟組織適合性に優れた金属材料表面の創製
責任者 大家 溪…………… 99

2. 総合研究所プロジェクト研究報告（2013年度継続研究）

- ・ 細胞の増殖、分化、機能維持を制御する蛇毒因子の単離とその機能に関する研究
責任者 辛 英哲…………… 105
- ・ オーバーレイネットワークによるアプリケーションレイヤリンクアグリーケーションの研究
責任者 浅谷 耕一…………… 111
- ・ 遠隔操作する災害対応ロボットに資する動的電波マップ生成に関する研究
責任者 羽田 靖史…………… 117

・ 放射性物質の回収とリン酸塩ガラス異常現象を利用した長期安定的固定化	責任者 大倉 利典	125
・ 高品質 In 系窒化物半導体の結晶成長とデバイス製作プロセスの構築	責任者 山口 智広	137
・ 新高精度超音波距離計測法による介護環境等での動き検知システムの研究	責任者 疋田 光孝	143
3. 総合研究所科学研究費採択奨励研究報告（2012年度）		
・ 疑似 LPE 法による In 系窒化物半導体混晶成長基盤技術の確立と光デバイス製作への展開	山口 智広	153
・ 真空放電によるマイクロ部品の表面機能付与に関する研究	平尾 篤利	154
・ 特異な構造と顕著な生理活性を有するマクロライド系天然物の合成研究	南雲 紳史	155
・ 量子ドットセルオートマトン～新しい仕組みのデバイスの理論的動作解析と設計～	徳永 健	156
・ 疑似金属基板を用いた集積化 GaN 系面発光素子の製作検討	本田 徹	157
・ 身体的拡張概念に基づいた救助隊員の安全確保に関する研究	羽田 靖史	158
・ 産業コントローラのピーク電力抑制制御	濱根 洋人	159
・ 腫瘍細胞とコラーゲンとの結合を特異的に阻害する蛇毒タンパク質	辛 英哲	160
・ 気生微細藻類を利用した機能性物質生産のための生理活性物質の探索	油井 信弘	161
・ バイオメカトロニクス的手法による培養細胞の分化・組織化に関する研究	橋本 成広	162
・ 新規カリックスピロールの合成研究	安井 英子	163
・ 藍藻スピルリナ由来カロテノイドの高生産を目指した新規培養系の確立	杉山 健二郎	164
・ ナチュラルリソグラフィーに基づく半導体ナノ構造の創製とその応用	小野 幸子	165
・ 介護支援用パワーアシストスーツの開発	中荃 隆	166
・ モード損失係数の最大化を目的とした制振材のトポロジー最適化	山本崇史	167
・ ひらがな入力型 BCI と ALS 者への適用	田中 久弥	168

2013年度総合研究所運営委員

総合研究所所長	小野 幸子（応用化学科教授）
所長代理	浅谷 耕一（情報通信工学科教授）
大学院運営委員会委員長	今村 保忠（応用化学科教授）
機械系学科互選	鈴木 健司（機械システム工学科教授）
化学系学科互選	山田 昌治（応用化学科教授）
電気系学科互選	浅谷 耕一（情報通信工学科教授）
建築学部互選	吉田 倬郎（建築学科教授）
情報学部互選	椎塚 久雄（情報デザイン学科教授）
グローバル エンジニアリング学部互選	疋田 光孝（機械創造工学科教授）
基礎・教養教育部門	蔵原 清人（基礎・教養教育部門教授）
UDMセンター長	久田 嘉章（まちづくり学科教授）
ECECセンター長	鷹野 一朗（電気システム工学科教授）
FMSセンター長	鈴木 健司（機械システム工学科教授）

2012 年度総合研究所研究一覧（学内研究費）
（プロジェクト研究）

研 究 課 題	研究責任者	所属学科・職名は 2012 年度
・ 2012 年度研究終了		
古代東アジアにおける学術と支配制度に関する研究	榎本 淳一	基礎・教養教育部門教授
科学衛星搭載用放射線検出器の開発	幸村 孝由	基礎・教養教育部門准教授
氷海船舶の船体氷荷重分布推定手法の高度化	金野祥久	機械工学科准教授
シンセティックジェットの流れ特性に関する研究	佐藤光太郎	機械創造工学科教授
キッチンの潜在能力を化学とバイオテクノロジーで拓く	小山 文隆	応用化学科教授
複雑な多環性構造を有する新規抗腫瘍天然物の全合成研究	南雲 紳史	応用化学科教授
血液環境で使用される医療機器の生体適合性の改善	木村 雄二	環境エネルギー化学科教授
解体を迎える半世紀供用した鉄筋コンクリート造建築物の後期健全度評価と解体排出物のゼロエミッション型再資源化モデルの構築	田村 雅紀	建築学科准教授
廃棄物系バイオマス由来燃料を用いたデュアルフェーゼルディーゼル発電	小林 潤	機械工学科准教授
新規ナノ構造高熱伝導高分子の創生と熱伝導メカニズムの解析	伊藤 雄三	応用化学科教授
生体機能分子の固定化制御による軟組織適合性に優れた金属材料表面の創製	大家 溪	総合研究所助教
・ 2013 年度継続研究		
細胞の増殖、分化、機能維持を制御する蛇毒因子の単離とその機能に関する研究	辛 英哲	応用化学科准教授
オーバーレイネットワークによるアプリケーションレイヤリンクアグリゲーションの研究	浅谷 耕一	情報通信工学科教授
遠隔操作する災害対応ロボットに資する動的電波マップ生成に関する研究	羽田 靖史	機械システム工学科准教授
放射性物質の回収とリン酸塩ガラス異常現象を利用した長期安定的固定化	大倉 利典	環境エネルギー化学科教授
高品質 In 系窒化物半導体の結晶成長とデバイス製作プロセスの構築	山口 智広	情報通信工学科准教授
新高精度超音波距離計測法による介護環境等での動き検知システムの研究	疋田 光孝	機械創造工学科教授

(科学研究費採択奨励研究)

研 究 課 題	研究者	所属学科・職名は 2012 年度
疑似 LPE 法による In 系窒化物半導体混晶成長基盤技術の確立と光デバイス製作への展開	山口 智広	情報通信工学科准教授
真空放電によるマイクロ部品の表面機能付与に関する研究	平尾 篤利	機械創造工学科助教
特異な構造と顕著な生理活性を有するマクロライド系天然物の合成研究	南雲 紳史	応用化学科教授
量子ドットセルオートマトン～新しい仕組みのデバイスの理論的動作解析と設計～	徳永 健	基礎・教養教育部門准教授
疑似金属基板を用いた集積化 GaN 系面発光素子の製作検討	本田 徹	情報通信工学科教授
身体的拡張概念に基づいた救助隊員の安全確保に関する研究	羽田 靖史	機械システム工学科准教授
産業コントローラのピーク電力抑制制御	濱根 洋人	機械システム工学科准教授
腫瘍細胞とコラーゲンとの結合を特異的に阻害する蛇毒タンパク質	辛 英哲	応用化学科准教授
気生微細藻類を利用した機能性物質生産のための生理活性物質の探索	油井 信弘	応用化学科助教
バイオメカトロニクス的手法による培養細胞の分化・組織化に関する研究	橋本 成広	機械工学科教授
新規カリックスピロールの合成研究	安井 英子	応用化学科准教授
藍藻スピルリナ由来カロテノイドの高生産を目指した新規培養系の確立	杉山健二郎	応用化学科講師
ナチュラルリソグラフィーに基づく半導体ナノ構造の創製とその応用	小野 幸子	応用化学科教授
介護支援用パワーアシストスーツの開発	中茎 隆	機械システム工学科准教授
モード損失係数の最大化を目的とした制振材のトポロジー最適化	山本崇史	機械工学科准教授
ひらがな入力型 BCI と ALS 者への適用	田中 久弥	情報デザイン学科准教授

1. 総合研究所プロジェクト研究報告
(2012年度研究終了)

古代東アジアにおける学術と支配制度に関する研究

工学院大学 基礎・教養教育部門 榎本淳一

工学院大学 機械創造工学科 塚本剛

明治大学 文学部 河内春人

Study on Governing System and Academic in Ancient East Asia

ENOMOTO Jun'ichi, Division of Liberal Arts

TSUKAMOTO Tsuyoshi, Department of Basic Engineer in Global Environment

KOCHI Haruhito, Meiji University

ABSTRACT: It is considered that in premodern times there existed in the East Asian region an international order centered on China and a historical world known as the "East Asian world" in which various countries and peoples were structurally interconnected. Because of shared cultural phenomena such as a Sinographic culture, Confucianism, the *lu-ling* system, and Buddhism, the "East Asian world" can, it is maintained, also be understood as a sphere of Chinese culture mediated by the Chinese script.

1. はじめに

本研究は、古代東アジアにおける学術と支配制度の関係性について、多様な視点から実証的に解明することを目的とする共同研究である。研究期間は、2010～2012年の3年間であり、今回はその第3年度（最終年度）の研究成果と3年間の研究総括について報告したいと思う。

研究協力者 小林岳 東洋史 早稲田高等学院
研究協力者 濱田寛 漢文学 聖学院大学
研究協力者 野田由紀子 日本古代史 エジプト国立
アインシャムス大学日本語学科
研究協力者 吉永匡史 日本古代史 日本学術振興会
研究協力者 会田大輔 東洋史 明治大学
研究協力者 柿沼陽平 東洋史 早稲田大学

2. 研究実施体制

2.1 研究組織

本研究においては、多様な視点から実証的な検討を加えることに重要性があるため、共同研究者に加え、研究協力者を募集し、研究体制の強化を図った。本研究に関わる研究者（専門・所属）は以下の通りである。

研究責任者 榎本淳一 日本古代史
共同研究者 塚本剛 東洋史
共同研究者 河内春人 日本古代史
研究協力者 小林春樹 東洋史 大東文化大学

2.2 研究体制

研究責任者及び共同研究者による個別研究と、研究責任者・共同研究者・研究協力者による研究会によって、研究を推進する体制をとっている。次年度末には、その両方の研究成果を、研究書としてまとめ、刊行することを計画し、出版社との交渉を進めている状況である。

3. 研究の成果と途中経過

3.1 公表・刊行された研究成果(2012年度分)

(1) 著書

- ①榎本淳一編『古代中国・日本における学術と支配』
同成社 pp. 1-249

(2) 論文など

- ①榎本淳一「天平宝字元年十一月癸未勅の漢籍について」『史聚』45、pp.1-19
②榎本淳一「日本古代における金の朝貢・貿易と流通」『歴史と地理』655、pp. 31-41
③榎本淳一「隋唐朝の朝貢体制の構造と展開」『唐代史研究』15、pp.49-64
④榎本淳一「唐代法制史の「不動の定説」に挑む」『東方』385、pp.22 - 27
⑤河内春人「『晋書』に見る魏と倭の関係」『ヒストリア』233、pp.1-25
⑥河内春人「義江明子著『古代王権論』」『日本歴史』768、pp.103-105
⑦河内春人「河上麻由子著『古代アジア世界の対外交渉と仏教』」『歴史学研究』904、pp.36-39「章懐太子
⑧河内春人「フランス・シノロジーと契丹」『アジア遊学』160、pp.283-287

(3) 口頭発表

- ①榎本淳一「仏典の将来について」日本史研究会例会シンポジウム「古代における国際秩序形成と仏教」（キャンパスプラザ京都）、2013年2月24日
②塚本剛「『漢書』編纂の諸問題」日本大学文理学部学術研究発表会、2012年10月27日
③河内春人「日宋貿易における国家と海商」The 1st Asia Future Conference in Bangkok、2013年3月 日

(4) 市民講座

- ①榎本淳一「百濟文化と古代日本」
工学院大学オープンカレッジ、2012年4月13日
②榎本淳一「朝貢と貿易」
朝日カルチャーセンター新宿、2012年4月24日
③榎本淳一「百濟救援決定に至る政治過程と対外認識」
工学院大学オープンカレッジ、2012年5月11日
④榎本淳一「白村江の戦いとその後」
工学院大学オープンカレッジ、2012年6月8日
⑤榎本淳一「弘文天皇（大友皇子）」
工学院大学オープンカレッジ、2012年7月13日
⑥榎本淳一「淳仁天皇」
工学院大学オープンカレッジ、2012年8月3日
⑦榎本淳一「平城天皇」
工学院大学オープンカレッジ、2012年9月14日

- ⑧榎本淳一「平城京は国際都市か」
工学院大学オープンカレッジ、2012年10月5日
⑨榎本淳一「怨霊は平安時代から出現したのか」
工学院大学オープンカレッジ、2012年11月2日
⑩榎本淳一「奴婢は奴隸か」
工学院大学オープンカレッジ、2012年12月2日
⑪榎本淳一「古代の地震」
工学院大学オープンカレッジ、2013年1月11日
⑫榎本淳一「古代の火山噴火」
工学院大学オープンカレッジ、2013年2月15日
⑬榎本淳一「古代の疫病」
工学院大学オープンカレッジ、2013年3月8日

3. 2 研究会実施状況

第1回研究会

- 日時：2012年6月9日 15:00～18:30
場所：本学基礎・教養教育部門応接室
発表：①会田大輔氏
「『帝王略論』の編纂について」
②柿沼陽平氏
「『漢書』の読者共同体と日本」

第2回研究会

- 以下の発表を予定したが、日程調整ができず、中止となった
発表：①野田有紀子氏
「平安時代子弟の寺院生活と初等教育」
②榎本淳一氏
「『日本国見在書目録』に見える梁代の書籍について」

第3回研究会

- 日時：2012年12月28日 13:00～17:00
場所：本学基礎・教養教育部門人文・社会系研究室
内容：報告書とする『古代中国・日本における学術と支配』の校正方針について検討

3. 3 2012年度の研究概要

本研究に従事した3人の個別研究の概要を、以下に順に説明することにしたい。

(1) 榎本淳一

本年度の研究成果は大きくいって4つに分類できる。①漢籍の将来、②仏典の将来、③朝貢体制、④律令法典である。以下、順をおって概要を述べることにしたい。

①漢籍の将来

『日本国見在書目録』は、九世紀末までの日本へ将来された漢籍の目録であるが、個々の漢籍がいつ日本

にもたらされたという情報が記載されていないため、これまでは主に遣隋使・遣唐使のもたらさしたものと考えられてきていた。しかし、古代日本の文化の有り様を子細に観察してみると、隋唐文化以前の南北朝文化の影響が色濃く確認出来る。例えば、漢字の発音が漢音や唐音だけでなく、呉音という南北朝期の発音に基づいていることなどは、その端的な例であろう。そのような状況を鑑みるならば、遣隋使・遣唐使以前の中国文化流入状況について具体的に考察してみる必要がある。

そこで、『日本国見在書目録』中に見える梁代の漢籍を特定することにより、遣隋使以前の中国文化の流入の具体相を明らかにすることを試みた。従来より、百済を通じて、儒教や仏教など梁代の文化の流入があったことは知られていたが、具体的にどのような漢籍がもたらされていたかは全く未解明であった。今回の研究では、梁代の書籍の書誌情報を利用することにより、具体的な書籍の同定に成功した。同定できた梁代の書籍を以下に記す。

経部

1. 易家
『周易精微賦』1巻
4. 礼家
『三礼大義』30巻
6. 春秋家
『公羊音』1巻
7. 孝経家
『孝経集議』2巻
『孝経玄』1巻
8. 論語家
『論語義』1巻
『爾雅図讖』2巻
『爾雅音』2巻
『梁集雅義趣』1巻
9. 異説家
『孝経雄図』3巻
『孝経雌図』3巻
『孝経雄雌図』1巻
10. 小学家
『千字文』1巻
『古今篆隸文体』1巻
『百属篇』1巻

史部

20. 雑伝家
『研神記』1巻

子部

25. 道家
『莊子』33巻
30. 雑家
『袖中書』11巻
『玉苑麗文』1巻

『玉苑』5巻

『教誡』1巻

33. 兵家

『黄帝蚩尤兵法』1巻

『梁武帝勅抄要用兵法』1巻

34. 天文家

『荊州占』22巻

『日月災異図』1巻

35. 曆数家

『漏刻銘』2巻

36. 五行家

『天鏡経』1巻

『地鏡経』1巻

集部

39. 別集

『張野人集』(『張野集』)10巻

『張援集』(『張緩集』)10巻

『崔隄集』(『崔寔集』)2巻

『沈約八詠』1巻

上記の書籍以外にも梁代のものである可能性のある書籍があるが、現段階では断定できる傍証が無いため、今回は省略する。

梁代の書籍を特定することで、明らかになったことは次の二つである。

一つには、遣隋使以前にもたらされた中国の学術は、主に経部と子部が中心であり、言い換えれば、儒教と技術であったということが明らかになった。ここでは仏教を扱っていないので、実際には、これに仏教が加わることになる。史学や文学はこの段階ではあまり影響を受けていなかったことが分かる。

二つには、改めて南朝文化の影響の強さ、長さということがある。梁文化が日本(倭国)に流入したのは六世紀であったと思われるが、『日本国見在書目録』の成立した九世紀末までに三〇〇年ほど経過しているわけだが、これだけ多くの梁代の書籍が著録・残存していたことは驚異に値するだろう。梁代の文化が長く・深く我が国の古代文化に与えた影響を示すものと考えてよいだろう。

② 仏典の将来

漢籍の流入状況を相対的に捉えるために、仏典の将来状況についても研究を行った。その中で主に検討の対象としたのが、玄昉将来経と天平勝宝四年の遣唐使将来経である。

従来、玄昉将来経は、『開元釈教録』に基づく最新の一切経をそっくり持ち帰ったものであり、極めて質の高いテキストとされてきているが、今回の研究ではそうした通説を批判的に再検討した。その結果、玄昉将来経は、『開元釈教録』掲載の經典のうち7割程度しか持ち帰っておらず、その写本の質も全てが優れているわけではなく、粗悪なもの、欠けているものもあり、通説が大きな誤解に基づいていることを明かにすることができた。

また、天平勝宝四年の遣唐使は、玄昉らがもたらすこ

とのできなかつた経典を日本に持ち帰ることを使命にしていたが、彼らにしても目的にした経典を半分も持ち帰ることができなかつたことが判明した。

上記の検討により、仏典においても、唐から日本に持ち帰る際には、様々な制限や障害があったことが考えられ、漢籍と同様な状況があったことが確認できたことは大きな成果である。仏典も漢籍と同じく、唐朝の外交政策に利用され、諸外国を引きつけ、コントロールするための道具として利用されたことは明らかである。

③朝貢体制

漢籍・仏典ともに、唐朝の外交政策によって、その流入に影響があることが分かったので、隋唐朝の朝貢体制という外交体制について研究を行った。

朝貢体制は、冊封体制と混同されることが多く、正確な理解が求められることから、その制度的な構造・機能、そして歴史的な展開・意義について考察を行った。

制度的な構造として、出入国規制、輸出入規制について検討を加え、明朝の朝貢体制との類似性を指摘した。従来、唐朝は開放的な外交政策をとったとされるが、実際には海禁政策をとった明朝と基本的には同じ制度的構造をもっていたことが分かり、これが漢籍・仏典の流出制限に結びつくことを解明することができた。

また、唐朝は仏教というアジア広域の共通の価値観を利用して諸外国と友好的な関係を形成していたが、朝貢体制が崩壊する九世紀半ばには、仏教など外来思想・宗教を弾圧するナショナリズムが強まったことを明らかにすることができた。朝貢体制下の仏典の流出制限だけでなく、ある程度仏典を諸外国に流布させることで、共通の価値観を共有するシステムを形作っていたことが明らかになったことも重要な成果である。

隋唐時代の東アジアにおける文化共有と隋唐の文化的な優越性の問題を考える上で、朝貢体制という外交体制の理解が不可欠であることを示すことができたと思われる。

④律令法典

「東アジア文化圏」の共通指標として、漢字・儒教・漢訳仏教と律令制がある。律令制は、日本（倭国）には主に律令法典によりもたらされたが、今回は日本の律令法典の藍本となった唐の律令法典について研究を行った。

検討の対象として、中村裕一『唐令の基礎的研究』（汲古書院、2012年）を取り上げ、開皇令・大業令などの隋令と唐令との関係、それから『大唐六典』所引の唐令の性格、井真成への贈官などについて考察した。

その結論として、隋令と唐令の具体的な継承関係や、『大唐六典』所引唐令の現行法としての性格などについて明らかにすることができた。とりわけ、著令という唐令の改正手続きについて考察を深めることができたことは有意義であったと考える。

なお、律令法典の日本への将来については、「東アジア世界」における日本律令制として、昨年、研究をまとめている。

(2) 塚本剛

班固の「國史改作」と『漢書』成立、『漢書』編纂の諸問題をめぐる問題について論究を重ねた。それをまとめると次のようになる。

一 「國史改作」とは当該王朝の正統観を批判し否定する歴史叙述を行うことであり、班彪の場合、嫌疑は受けたものの、それには該当せず、むしろ漢王朝の正統観と一致していたことから國史篇纂を任された。福井氏は明帝に認められた班固の立場を「班固が自由に國史を改作できる自由を得たとしている。」としているがこれは逆であるということができよう。

二 所謂儒教国教化の問題で『漢書』では前漢時代のかかなり早い時期に儒教が支配的な思想になり、武帝期には国教化がなされたように書かれるが、それは「正史」というものは王朝側にとってあるべき歴史を叙述するものであり、客観的に正しい歴史事象を描くものではないからであって、儒教を正統観のよりどころとしている後漢王朝によって「公刊」された『漢書』では至極自然なことである。これによって撰者である班固を異端とすることはできず、むしろ正統と言えよう。

三 『漢書』に見いだされる「漢堯後説」、「漢火徳説」、「圖讖」はすべて漢王朝を正統化するのに不可欠なものであり、班固によって編纂された『漢書』はこれらの思想が貫徹している。「漢堯後説」、「漢火徳説」は『左傳』を典拠として、「圖讖」は公羊学を典拠としている。

以上のようになるが、課題が一つ残されている。それは『漢書』王莽傳の異常な分量についてである。

また、「なぜ、班固の史書は未だどこにも提出されておらず誰も実見していないのにも関わらず國史を改作したと嫌疑を受け逮捕投獄されたのか」という問題も依然として謎が残る。これについて見通しを述べておきたい。

まず、誰も実見していないのにも関わらず、嫌疑を受けるだけでも尋常ではないが、それで逮捕投獄となると、「あいつならやるだろう」という決定的予断があり、それが広範囲に認知されていたことをうかがわせる。

ここで注目すべきは、稲葉氏の「班固が國史を改作しているとして密告されるのも、班氏が王莽政権と深い関係にあったことから嫌疑を招いたとみることができる」という指摘である。さらに稲葉氏は、班彪は終始一貫、王莽を否定していたのではなく、一時王莽の天下を認めていたという事実がある、としている。

また班固が嫌疑を受けた事件では、先に検討したとおり「圖讖」との関係があったことを踏まえれば、安居香山氏の「今日現存する緯書の中には王莽に関連するものが見あたらない」という指摘も重要と言えよう。班固が許されたのは「圖讖」の解釈が漢王朝の正統観と一致していたからである。もしそうではない別の解釈をとっていたらそれは新解釈として別のものを正統化するわけであるから許されないのである。漢王朝では同じく圖讖の予

言によって王朝を成立させた王莽の新王朝は絶対に認められない立場にあった。よって圖讖の王莽を正統化する予言・解釈(以下煩瑣になるので王莽の解釈と表記する)は許されないのである。そうであるならば稲葉氏の指摘するように王莽政権と深い関係にあった班氏に属する班固は、圖讖の王莽的解釈をやっているに違いないと睨まれていたのではないだろうか。圖讖の強烈な支持者としては劉向・劉歆父子も存在するが、劉向・劉歆は、『史記』続編も作り、民間にも広く流布した。特に劉歆は王莽政権で枢要な地位を占めたことよりも、王莽を正統化したであろうことは容易に類推される。しかし劉歆は王莽の時代に自殺して死んでいるので、(その父である劉向はそれ以前に亡くなっている)当然、後漢時代に逮捕投獄されることもなかったのである。班彪以前に存在した『史記』の続編十六家の中で、広く通行したのは、やはり劉歆のものと、それから揚雄のものであったという。

『史通』卷十二古今正史

至建武中、司徒掾班彪以爲其言鄙俗、不足以踵前史、又雄、歆褒美偽新、誤後惑衆、不當垂之後代者也。於是採其舊事、旁貫異聞、作後傳六十五篇。

これを見れば、劉歆、揚雄が「偽新」を賛美していた様子がうかがえる。「偽」は「正」と対になる言葉であることを考えれば、「正」なる漢王朝を正統化せず王莽の新を正統化していたことが、後世に過ちを流し民衆を惑わすものである、と班彪が判断していたと理解することができよう。そうすると、班彪の『後傳』叙述の最終的な目的は王莽の新を正統化する叙述を改めて、漢を正統化するように訂正することにあつたと言える。そしてその立場は当然、班固にも継承されたのである。

劉歆の『史記』続編と班固の『漢書』については以下に見える。

『西京雜記』卷上の序

洪家世有劉子駿漢書一百卷。無首尾題目、但以甲乙丙丁、紀其卷數。先公傳云。歆欲撰漢書、編録漢事、未得締構而亡。故書無宗本、止雜記而已。失前後之次、無事類之辨。好事者、以意次第之、始甲終癸、爲十帙。帙十卷、合爲百卷。洪家具有其書。試以此記、考校班固所作、殆是全取劉書、有小異同耳。併固所不取、不過二萬許言。

『西京雜記』の記述を全面的に信ずるわけにはいれないが、班固の『漢書』と劉歆の『漢書』の関係を暗示するものと言えるだろう。稲葉氏によれば班彪以前の劉歆や揚雄の作った王莽の記録は帝紀の形をとっていたとされる。

これらのことを総合的に勘案すれば、以下のような推論が成立しよう。王莽政権との関係が深く、一時王莽の天下すら認めていた班彪は、一転、漢王朝の再興を確信するにいたつたため、『後傳』を執筆する上で、早急にその立場を鮮明にする必要があつた。すなわち漢王朝を正統とする史書を叙述することにしたのである。そこにはそうすることによって、王莽色を払拭しようとする狙い

もあつたと言えよう。そのためにははじめから全てを叙述するには余りに時間がかかりすぎるので、劉歆の『漢書』を利用してその王莽を正統化した箇所を中心に改訂し、漢王朝を正統化する史書に再編集した。このため王莽傳は、劉歆の『漢書』では帝紀として編纂されていた形式がそのまま残り、列伝の体裁とはおよそ異なるものとして成立した。またその分量も列伝のものとは思えない大部なものとして『漢書』中最大の量を誇ることになった。そしてその執筆姿勢や史書の状態は班固の時にも継承されたのであろう。王莽傳ははじめは王莽の天下を認めていたが、それを後から否定する立場となった班彪・班固父子の中途半端さを反映するのと、又、漢の正統化を急がねばならなかったため急造仕立てにならざるを得なかったという、言わば妥協の産物と言えるだろう。つまり王莽傳の異常な分量は恐らく抜本的な再編集が上記の理由でできなかったために正統化に関係する部分以外は残存記録をそのままに利用するという班彪・班固父子による一種の処世術のなれの果てとは考えられないだろうか。しかしそうまでしたが、当時の班氏と王莽政権との親近性は天下に周知されていたため、嫌疑を受け、逮捕投獄されることになった。しかし実際に没収した史書は王朝側からすると意外なことに漢の正統観と一致していたから國史篇纂をゆだねることになったのであろう。

この推論は現時点では蓋然性が高いと確信するが、この問題については王莽政権と班氏との親近性からはじめ、さらなるそして詳細な検討を加えねばなるまい。これについてはいずれ別に考察を期したい。

(3) 河内春人

2012年度は、2010・2011年度の研究成果をふまえて、それまでの研究を総括するべく課題に取り組んだ。特に律令国家成立以前の対外関係と学術の流通という点を軸にして、主として3-7世紀を中心に研究を進め、2本の論文を公表した。また、研究を進めるための土台として研究の現代的状況の整理についても引き続き努め、7-8世紀の日本古代史の専著に対する書評を執筆した。

これまで研究を進めてきた七世紀以前の学術の流通については、交流の実体を明らかにする必要性を認め、特に古代日本が本格的な対外的交流を開始して中国の文物を受容するようになった三世紀を起点として検討した。その結果、史料読解上の重要な問題について指摘することができた。すなわち、従来当該期の研究において文献史料としては魏志倭人伝に依拠していた。しかし、それは同書への過度の重視という結果をもたらし、三世紀に対する正確な理解を阻害する結果へとつながるものであった。そこで魏志倭人伝以外への文献史料への注目と、魏志倭人伝の史料批判が研究上の急務の課題であると考え、これの追究に努めた。その結果、いわゆる魏志倭人伝は『三国志』編纂以前における魏の歴史書の影響が大きく反映しており、魏志倭人伝は三世紀前半の魏の時代の歴史を全体的に記すのではなく、夷狄との外交につい

ては240年代で記録を止めており、250年代以降については夷狄伝のなかに収録されていないという事実を明らかにした。そして、それは当時の魏において権勢を振るい、後に西晋王朝を樹立した司馬氏に対して『三国志』の著者・陳寿が配慮したものであり、そこに魏志倭人伝の史料的限界を見て取ることができる。これに対して、『晋書』倭人伝において魏志倭人伝が記さない、250年代以降の遣使があったことを窺わせる記述がある。これまでこの記述は見過ごされていたが、『三国志』の史料的限界をふまえて考えると、三世紀半ばの外交関係を掘り起こすものとして重要な意味を持つものであることを指摘できる。特に倭と魏の外交は卑弥呼という女王の特質として捉えられがちであるが、卑弥呼の死後も継続して外交関係があったことが判明するのであり、三世紀の倭国の対中国外交を卑弥呼のみの特殊性に帰することはできなくなる。すなわち、魏との外交こそが倭国の文明化の端緒であり、学術の受容の起源として理解することができるのである。

三世紀の対中国外交は魏の滅亡によっていったん途絶し、四世紀には停滞することになる。しかし、五世紀以降に学術の流通が本格化するようになる。それは外交関係を有する二国間の政治的関係のなかで限定的に成り立つものではなく、より広域的な文化圏のなかで流通するようになるという特色を挙げることができる。すでに四世紀末頃には東晋を発信源として、さらに百済を媒介しながら倭国に学術が伝わるという文化圏が成立していたことが確認できる。それは七支刀において確認できる。百済が倭国に贈った七支刀には東晋の年号が記されており、東晋と百済の政治的関係、刀の贈与というかたちでの百済と倭国の関係が重層的に集約されている。ここに東晋 - 百済 - 倭国という連関的關係が析出できる。当時の中国は南北朝に分裂していた時代であり、その政治的対立は文化においても反映していた。学術の受容も、いかなる学説を採用するかという点において政治性を帯びるものであり、百済や倭国は南朝の学術を意識的に取り入れたといえる。このように南朝との関係からその学術文化を採用した国々によって構成された世界を「南朝文化圏」と位置づけて、当該期における倭国の文明化を理解することを提起した。なお、南朝文化圏における中国と倭国の関係は常に直接的な交渉があるとは限らない。中国と倭国に外交交渉がない時代においても百済を媒介として間接的な交流が成立しているのであり、それゆえ文化圏として複合的な関係を設定しなければならない。

南朝文化圏は五世紀には倭の五王の対中国外交が進められたことにより、政治と文化が連動しながら学術が取り入れられた。それは外交文書の文言に漢籍が引用されるというかたちでもっとも端的に表れている（「倭王武の上表文と文字表記」『國史学』181、2003）。五世紀の倭国は百済経由で南朝（宋）に朝貢しており、南朝 - 百済 - 倭国という南朝文化圏が成り立っていることが確認できる。

五世紀後半に宋の滅亡とともに倭国の対中国外交はなくなる。しかし、六世紀にも倭国における学術の受容は百済を通じて継続している。『日本書紀』には五経博士が百済から到来したという伝承を載せており、学術の流入を窺わせる。ただし、「五経博士」という人材を通じた学術受容については慎重を期する必要がある。五経博士とは中国では漢代に成立した学術教授の制度であるが、魏晋以降は儒教の低調化によって五経博士の制度は衰退する。それが復興するのは六世紀に入ってから梁の武帝の学術振興政策によるものである。『日本書紀』に記す五経博士はそうした中国の五経博士の制度を意識したものであろうが、一方で梁の五経博士復興との時期的整合性を考える時、『書紀』の記述は時期的に早すぎるといわざるを得ない。それゆえ『書紀』の記述は潤色であると指摘できる。ただし、学術の流通においては、梁と百済の間に密接な関係があることは史料上明らかであり、百済と倭国の間も同様である。六世紀前半には、梁 - 百済 - 倭国という南朝文化圏が機能していたことが確認できるのである。

なお、六世紀には重要な変化が現れる。仏教の東伝である。世界宗教としての仏教は国境を越えて伝播するという性質のゆえに、国家を越えた文明の交流に大きな役割を果たした。特に僧侶は越境性・非帰属性という性格を有するものであり（「入唐僧と海外情報」『専修大学東アジア世界史研究センター年報』3、2010）、学術の交流においてもそれを媒介するようになる。仏教は六世紀末頃には倭国においても学術のみならず政治の規範として機能するようになり、越境性を有する僧侶が王権に奉仕するようになる（「遣隋使の「致書」国書と仏教」『遣隋使のみた風景』2012）。こうした状況下において倭国の対外姿勢も変化が生じる。それまで学術の流通は中国乃至百済からの一方向的なベクトルであったが、遣隋使及びそれに付随する留学生・僧の派遣というもう一つのベクトルが発生することになったのである。さらに北朝系の王朝である隋が南朝の陳を滅ぼして中国を統一するという政治的変動が起っている。ただし、隋は南朝の学術を継承する政策をとっており、南朝文化圏は南朝の滅亡という重大な状況変化にも拘らず、隋 - 百済 - 倭国という複合的かつ重層的な学術的世界を作り上げていたのである。

当該期の王権の性質を追究することは、対外関係の考察を補完するものとして重要である。そこで古代王権に関する最新の研究に対して書評を行ない、本研究に王権論の成果をフィードバックさせた。

四世紀末 - 七世紀に至るまで南朝 - 百済 - 倭国で構成されていた南朝文化圏は、朝鮮三国の対立と唐の介入によって終焉を迎える。唐と新羅による百済・高句麗の滅亡は倭国にとっても朝鮮半島政策を転換させることとなる。特に学術を供給してきた百済の滅亡によって、倭国は学術の受容手段を、朝鮮半島を媒介とするルートから遣唐使という直接的なルートによる継受に変更した。さ

らに唐の北方文化の受容を積極的に図ることになる。これによって南朝文化圏は解体されるのである。

本年度は七世紀以前を中心に研究を進めたが、学術の流通は通時代的に行なわれているものである。奈良平安期における学術の流通も大きな課題であり、それを媒介する階層として商人が新しく出現する。そこで平安中期における商人と国家の関係について検討した口頭報告を国際会議において行なった。

以上のように本年度は2010年・2011年における成果をもとに、日本古代における学術の受容のあり方とそれを取りまく世界について明らかにした。

4. 研究の総括

本研究の報告書として、榎本淳一編『古代中国・日本における学術と支配』(同成社、2012年2月)を刊行した。詳細は、同書を参照して頂きたいと思うが、その目次を以下に示す。

序

第一部 中国における史書の成立と展開

『漢書』「董仲舒伝」における董仲舒像について

・・・・・・・・小林春樹

班固の「国史改作」と『漢書』成立をめぐる問題について

・・・・・・・・塚本剛

『帝王略論』の正統観—南北朝の皇帝評価を中心に—

・・・・・・・・会田大輔

『漢書』をめぐる読書行為と読者共同体—顔師古注以後を中心に—

・・・・・・・・柿沼陽平

唐宋における『後漢書』の合綴と合刻について—李賢『後漢書注』に劉昭『集注後漢』八志を補うこと—

・・・・・・・・小林岳

第二部 日本における学術の受容と展開

『日本国見在書目録』に見える梁代の書籍について

・・・・・・・・榎本淳一

五—七世紀における学術の流通と南朝文化圏

・・・・・・・・河内春人

『日本国見在書目録』刑法家と『律附釈』—律受容の一断面—

・・・・・・・・吉永匡史

『世俗諺文』注文の構成について—『蒙求』を媒介とする施注を巡って—

・・・・・・・・濱田寛

平安貴族子弟の寺院生活と初等教育—藤原為房一家の書状を中心に—

・・・・・・・・野田有紀子

跋

以上の構成の意図を説明するために、次に序文を掲載することにした。

「本書は、工学院大学総合研究所の平成二十二年度プロジェクト研究に採択された「古代東アジアにおける学術と支配制度に関する研究」(研究代表=榎本淳一、研究期間=平成二十二~二十四年度)の研究成果報告書とし

て刊行されるものである。

古代日本は中国・朝鮮諸国から学術・文化を摂取することにより発展したことは、周知の事実である。しかし、中国の学術・文化がどのように生成され、それがどのようにして日本に流入し、日本にどのような影響を及ぼしたかという問題については、まだまだ実証的な研究が少なく、またその全体を見通す研究も殆ど無い状況である。本研究では、古代東アジアにおける学術書の生成・伝播・影響の実態を明らかにし、さらに学術と支配制度との関連性について全体的な見通しを得ることを目的とした。しかしながら、概観的な叙述を意図するものではなく、あくまでも当該研究の基礎となる実証的な検討・考察を行うことを企図した。

具体的には、以下の三つを研究課題とした。

(一) 古代東アジアにおける学術書(特に中国における儒学・史学)の生成と政治支配との関係を明らかにする。

(二) 中国・朝鮮から、古代日本に学術書がどのように流入したかを政治支配・国際関係との関連から解明し、そのメカニズムを明らかにする。

(三) 古代日本に流入した学術書がどのように受容されたか、また日本古代の学術の展開や政治・支配制度に与えた影響について明らかにする。

本書の構成は二部構成となっているが、第一部「中国における史書の成立と展開」は課題の(一)に対応し、第二部「日本における学術の受容と展開」は課題の(二)

(三)に対応するものである。

学術と支配制度との関わりから、古代における中国・朝鮮・日本三国の関係を捉え直そうとしたこの試みが、古代東アジアの総体的な歴史像の構築に些かでも貢献できればと願うものである。」

なお、本書は研究成果の公開という観点から、出版社から刊行し、そのうち研究費により100部買い上げ、関係研究機関や研究者に寄贈した。

本書の研究的価値については、2013年中にいくつかの学術雑誌で書評が掲載される予定であり、本研究の最終的な総括はその書評を吟味することにより行うつもりである。

5. 今後の研究について

3年間のプロジェクト研究は終了したが、本研究のテーマを更に発展・深化させる必要があると考えるが、幸い共同研究メンバーも同じ考えの者が多いことから、今後も共同研究を継続させることになった。

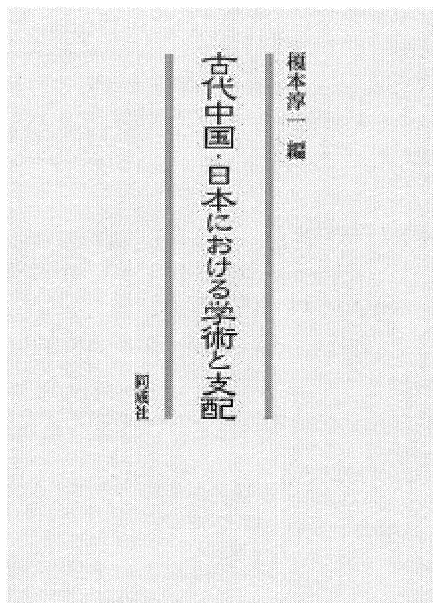
研究の進め方は、これまでと同じように、「東アジア古代の学術と支配」に関わるテーマで、個別研究の発表・討議を中核に末、定期的に研究会を開く形で行いたいと思う。また、ある程度、研究成果が蓄積したならば、論文集にまとめて世に問うこともしたい。さらに、これまでではなかったが、史料調査なども行い、研究活動の幅を広げたいと考える。メンバーも固定する

ことは考えず、新たなメンバーの参加も積極的に認めることにしたい。

しかし、共同研究を継続させるための研究資金の確保が必要であり、科学研究費補助金など外部資金の獲得が大きな課題である。

参考文献

- (1) 榎本淳一『唐王朝と古代日本』吉川弘文館, (2008) pp. 1-286.
- (2) 石井正敏ほか編『日本の対外関係2 律令国家と東アジア』吉川弘文館, (2011) pp. 172-195.
- (3) 大山誠一編『日本書紀の謎と聖徳太子』平凡社, (2011) pp. 119-137.
- (4) 大津透編『律令制研究入門』名著刊行会, (2011) pp. 2-23.
- (5) 遣唐使船再現シンポジウム編『時空を駆けた超人たち 遣唐使船の時代』角川学芸出版, (2011) pp. 126-147
- (6) 武光誠編『古代国家と天皇』同成社

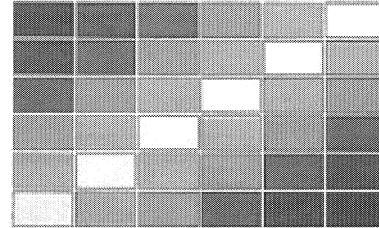


編訳序言

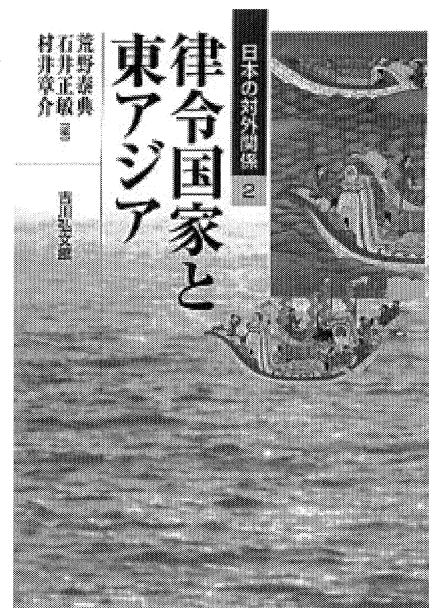
律令制研究入門

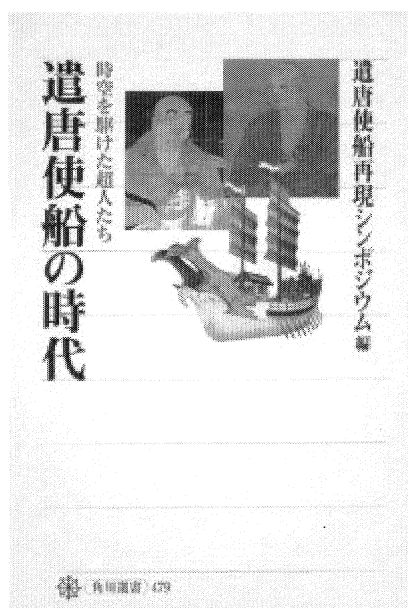
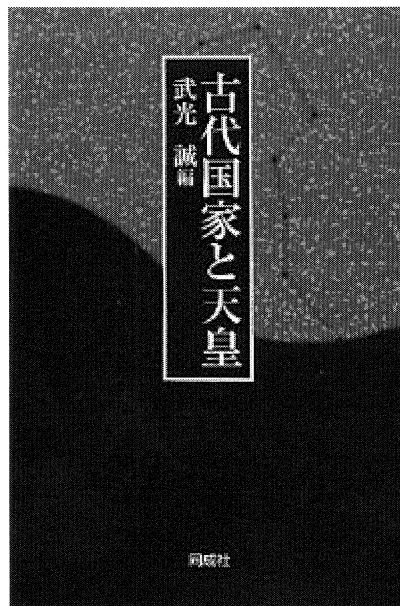
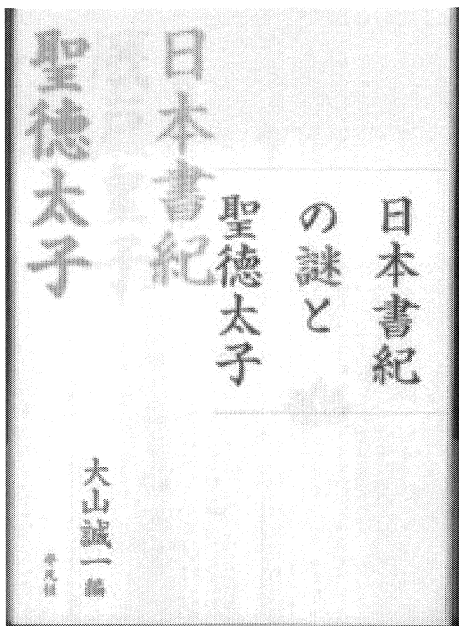
律令制は、歴史的に日本古代国家の中心的研究テーマであり、とりわけ日清律令史研究の中心テーマである。2009年の天皇令の発布、2008年の合併は、この研究に新しい展開をもたらした。本書は、この新しい時代に立ち、第一編では、東アジア世界の中心に日本を位置づけ、律令制の特色、漢字の活用、律令制の成立、律令制の発展とそれ以上の、律令制の発展を説明する。第二編では、律令制・律令史・律令制史の付随領域を提示し、第三編では日本史の律令研究史を概観し、本書の目的と意義について説明している。

※大津透編



名著刊行会





科学衛星搭載用放射線検出器の開発

工学院大学 基礎・教養教育部門 幸村孝由

立教大学 理学部物理学科 村上弘志

Development of the radiation detector on board science satellite

Takayoshi Kohmura , Kogakuin University, Department of Architecture

Hiroshi Murakami, Rikkyo University, Department of Physics

ABSTRACT : We have developed the radiation detector on board science satellite to observe X-ray from universe. In this the first year for this study, we have developed both X-ray CCD for ASTRO-H mission and GEM for GEMS and XACT mission.

1. はじめに

電波、可視光、X線、ガンマ線といった電磁波や、 α 線、 β 線、ニュートリノといった粒子線を検出するための放射線・粒子線検出器の検出原理は、様々な種類のものに区別できる。例えば、電磁波の中でもエネルギーが高いX線、ガンマ線の検出原理は光電吸収である。光電吸収を検出原理として利用している検出器の場合、検出器中の物質の中で生じる光電子を取得することによって、放射線・粒子線を検出することになる。また、検出器の区分の1つに、電磁波や粒子線と相互作用を起こす物質が、固体のものを固体(型)検出器、気体のものをガス型検出器などと呼ぶ。さらに、ニュートリノの検出には、固体や気体でもなく液体の水を用いているように、放射線・粒子線を検出するには、あらゆる相の物質を用いている。

固体検出器で使用する物質の代表例が、シリコンやカドミウムといった半導体であり、これらを半導体検出器と呼ぶ。半導体中の空乏層にX線が入射し光電吸収が起こると、価電子帯の電子がエネルギーを獲得しバンドギャップを超え伝導帯に達することで電子-正孔対が形成される。入射X線エネルギーに比例した個数だけ電子-正孔対が生成されるため、X線エネルギー測定が可能である。またガス型放射線検出器に比べ生成される電子

の個数が多いので、相対的な揺らぎが小さく抑えられエネルギー分解能は格段に良くなる。この半導体検出器をarray状に分割し、位置分解能を持たせた検出器がCCD (Charge Coupled Device) である。CCDは、可視光からX線にわたる広いエネルギー帯域の電磁波に感度があり、ビデオカメラや胃カメラなどに利用されるほか、宇宙望遠鏡の焦点面カメラとしても利用されている。特にX線用のCCDは、X線入射により空乏層内で生じた電子・正孔対を内部に印加した電場で電極に集め、順次転送して電子(あるいは正孔)の情報を読み出すことで、X線の入射位置とエネルギーの両方の情報と、時間情報とを得ることができる。我々が本研究において開発するX線CCDは、2014年に種子島宇宙センターからHIIAで打ち上げ予定の日本の科学衛星「Astro-H」に搭載することを目標としている。「Astro-H」は、宇宙X線 γ 線を観測し、ブラックホールの周辺や超新星爆発など高エネルギーの現象に満ちた極限宇宙の探査を通して、宇宙の進化を探ることを目的としており、4種類の放射線検出器を搭載する。X線CCDはそのうちの1台であり、主に広い視野でX線の撮像ならびに分光観測を行う。

一方、ガス型検出器は、金属製の容器中に充填したArなどの不活性ガスに入射したX線と光電吸収を起こした際に生ずる電子、イオン対の量を計測する放射線検出器である。ガス型検出器は、吸収体にガスを使っている

ため軽量かつ大面積化が容易で、また安定した動作が保証されるため初期の X 線天文衛星から現在軌道上の国際宇宙ステーション ISS の X 線全天モニター MAXI に搭載している GSC 至るまでよく用いられている。ガス型検出器は、高い増幅率を持つ一方で、ガス増幅率の不安定性から固体検出器に比べエネルギー分解能は悪く、それ自身では位置分解能を持たなかった。しかし、近年の微細加工技術の進歩に伴い、ガス型検出器も固体検出器のように位置分解能を持つように改良が進み、その 1 つが本研究で研究開発を行う GEM (Gas Electron Multiplier) である。GEM は、両面を数 μm 厚の金属で被覆した $50\mu\text{m}$ 厚の絶縁体フォイルに直径 $100\mu\text{m}$ 程度、ピッチが $100\mu\text{m}$ 程度の孔を 2 次元に配置した構造を持つ。両面の金属層が電極として働き、この電極間に電圧を印加すると GEM の穴の中に強い電場が生じ、ガス中で生じた光電子がこの孔を通過すると、強い電場により電子がなだれを起し、これを 2 次元に配置した読み出しパッドで読み出すことで、位置分解能を持つことができる。また、10000 万倍を超える増幅率をもち、大型化が容易で、高い解像度の 2 次元イメージングが可能なることから、医療機器、宇宙観測、物質の構造解析など、様々な分野への応用が期待されている。しかし、放射線の検出は検出器内に満たされたガスで行われるため、エネルギーの高い放射線に対して感度が低い。そこで本研究では、高いエネルギーの X 線にも感度を持つ新しいタイプの GEM の開発研究を進める。

また、GEM は、2014 年に打ち上げ予定の米国の小型ロケット「XACT」と、2014 年以降に打ち上げを目指す米国の科学衛星「GEMS」への搭載も決まっている。本研究では、製造パラメーターを変えた GEMS の、X 線に対するエネルギー分解能、ゲイン、ゲインの長期安定性などの基本性能を調べ、より高性能の GEM の開発を行う。また XACT や GEMS の計画に参画し、GEM による X 線偏光観測を目指す。

本研究では、主として宇宙観測利用を目的とした、半導体検出器の 1 つである X 線 CCD と、MPGD の一種であるガス電子増幅器 (GEM) の研究開発を行う。研究の 3 年目である 2012 年度は、表面処理を改良した新型の X 線 CCD の研究開発と、開発をスタートした GEM の基礎特性の研究結果について報告する。

2. X 線 CCD の研究開発

X 線 CCD 開発の主目的は、宇宙 X 線観測用 CCD (以下 X 線 CCD) の宇宙紫外線の遮断方法を確立するために、EUV 遮断フィルムを直接 CCD 素子にコートした X 線 CCD の研究開発を行うことである。X 線 CCD は、X 線以外の電磁波 (可視光、紫外線など) にも感度がある。特に、表面照射型 CCD (FI-CCD) に比べ、1 keV 以下の低いエネルギー帯域における X 線の検出感度が格段に優れている裏面照射型 CCD (BI-CCD) は、紫外線の検出効率も格段に高

い。そのため、BI-CCD を使って宇宙空間で天体からの X 線を測定する時は、主に地球大気が放射する EUV (He からの 20eV や 41eV の紫外線) を遮断する必要がある。X 線天文衛星「すざく」と同等の、X 線望遠鏡のデザイン (焦点距離、反射率など)、サーマルシールドの素材と膜厚、CCD のサイズを想定すると、何らかの方法で BI-CCD に入射する紫外線透過率を 1% 程度に抑える必要がある。従来の紫外線遮断方法は、X 線 CCD の前面に、厚みが 2600 Å 程度の薄膜 (OBF: Optical Blocking Filter; アルミニウムとポリイミドの 2 層構造) を装備し、紫外線を遮断していた。しかし、OBF は薄膜であるため、製造も難しく、また地上での取り扱いも破損の危険性がつきまとい難しかった。そこで、我々は、本研究において、OBF に替わる新技術として、アルミニウムとポリイミドからなる EUV 遮断フィルム (OBL: Optical Blocking Layer) を、直接 BI-CCD の表面に最適の厚さでコートする方法を確立する。

2.1 研究成果

昨年度 (2011 年度) は、単層のアルミニウムを X 線 CCD の素子の表面のコーティングする技術の確立に注力した。試作品として 1000 Å の厚みのアルミニウムをコーティングした X 線 CCD を製作し、その可視光透過率の評価から、可視光透過率が 10^{-5} という設計値から期待した通りの可視光の遮光性能を有することを確認することができた。

今年度は前年度に試作した X 線 CCD を用いて、① OBL の X 線透過率の測定、② 宇宙環境での利用を視野に、主にプロトン起源の宇宙放射線に対する耐久性能の検証、の 2 点について重点をおいて研究を遂行した。

2.2 単層アルミニウムからなる OBL の X 線透過率の測定

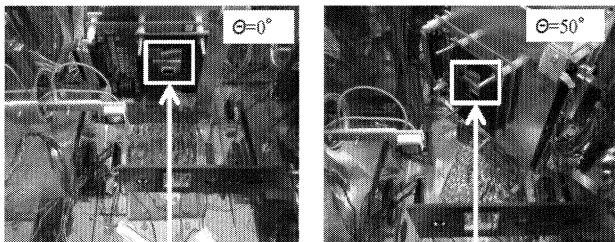
X 線透過率の測定に使用した X 線 CCD は、前年度製作したものを使用した。前年度報告したように、可視光透過率の測定結果は、設計値である厚み 1000 Å のアルミニウムから予想した通りの可視光透過率 ($\sim 10^{-5}$) であり、我々は、設計値通りのアルミニウムを CCD 素子の表面にコーティングできる技術を確立したと考えている。

今年度は、同一の素子を用いて、茨城県つくば市にある高エネルギー加速器研究機構のフォトンファクトリー (KEK-PF) のビームライン BL-11A において、軟 X 線照射実験を行い、アルミニウムの X 線透過率を測定し、X 線の透過率の結果からコーティングしたアルミニウムの厚みを評価した。ビームライン BL-11A では、200eV-2000eV の軟 X 線帯域の単色の X 線を照射することができる。

X 線を使って OBL のような薄膜の厚みを求めるには、OBL へ入射する X 線の絶対強度 I_0 に対する、薄膜を透

過した後の透過X線の強度 I_1 の比、つまりX線の透過率を求める必要がある。ただし、入射X線の絶対強度を求めることは非常に難しく、既に検出効率が分かっている比例計数管などをレファレンス検出器として用いて、入射X線の絶対強度を求める方法など採ることが多い。ただし、レファレンス検出器自身の検出効率の測定誤差などが不確定要素として残る点が短所である。

そこで、我々はX線 CCD の表面にコーティングしたOBLの厚みを求めるために、OBLへ照射するX線の角度を 0° 、 50° と変えて、角度毎にX線の強度を測定する斜入射法実験を用いてOBL、ならびに CCD 表面の不感層（以降、不感層とする）の厚みを決定した。斜入射法から得られる 0° 、 50° 入射時の X 線強度比 ($I_{50^\circ}(E)/I_{0^\circ}(E)$) が、図1の式に示すように、照射X線の絶対強度 I_0 に依らないことが分かる。



$$\frac{I_{\theta}(E)}{I_{0^\circ}(E)} = \exp\left\{-\left(1 - \frac{1}{\cos\theta}\right)d_1k_1\right\} \times \left[1 - \exp\left\{-\left(1 - \frac{1}{\cos\theta}\right)d_2k_2\right\}\right]$$

θ	X線の入射角	E	X線のエネルギー
I_0	入射角 0° 時のX線の強度	d_1, d_2	CCD表面のAlと空乏層(Si)の厚み

図1. 入射角度 0° (左図)、 50° (右図) 時の真空槽内の X 線 CCD のセットアップ写真。CCD 素子の表面にコーティングした単層アルミニウムからなる OBL の厚みは 1000 \AA である。写真中の白棒が BI-CCD になり、真空槽内に直立した状態で設置した。真空槽内の真空度は $\sim 10^{-7}$ Torr、BI-CCD は -80°C に冷却した状態で実験を実施した。X 線のビームは、写真下側から BI-CCD に照射する $200\text{eV}-1700\text{eV}$ の帯域の単色の X 線を、入射角度を 0° と 50° に変えて照射した。

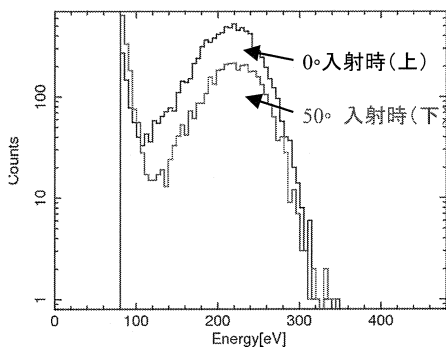


図2. 入射角度 0° 、 50° の条件下で取得したエネルギースペクトル。縦軸は X 線の強度を、横軸が照射 X 線のエネルギー [eV] を表す。 0° と 50° 入射時のスペクトルを比較すると、 50° 入射時の方が、入射 X 線にとって不感層とある Al の厚みが厚くなるため、空乏層で検出する X 線の強度が下がっていることが分かる。

図2に 0° 、 50° 入射時に取得したエネルギースペクトルを示す。このスペクトルの面積比が、X線 CCD で検出した X 線の強度比であり、この 220eV の X 線に対しては、強度比が 50% とわかった。

このような X 線の強度比を、 $200-1700\text{eV}$ の間のエネルギー帯域で求めた結果を図3に示す。

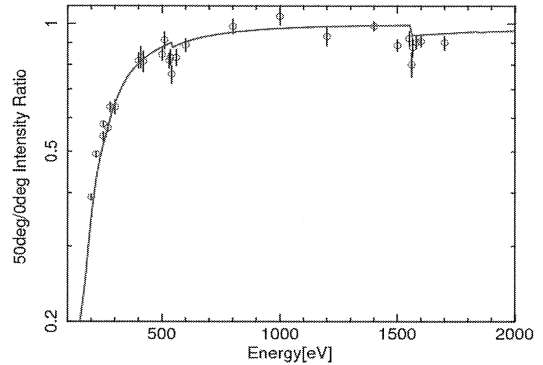


図3. X線の強度比 ($I_{50^\circ}(E)/I_{0^\circ}(E)$) のエネルギー依存性。縦軸は $I_{50^\circ}(E)/I_{0^\circ}(E)$ の比 (OBL の X 線透過率に相当する)、横軸は BI-CCD へ照射した X 線のエネルギーを表す。図中の \circ は測定点、実線は OBL の設計値から予想した X 線の強度比を表す。

図3に示すように、斜入射法を用いることで、OBLを構成する単層のアルミニウムによる Al-K 吸収端に加えて、CCD 素子表面の SiO_2 の不感層による O-K 吸収端のような詳細な吸収構造も測定することができた。

各 K 吸収端の深さから、Al、 SiO_2 については、設計値通り 1000 \AA 、 400 \AA 程度の厚みであることが分かった。ただし、本実験では、照射した X 線のエネルギーが低いこともあり、図1の式にある空乏層の厚みは設計値通り $200\mu\text{m}$ とした。

2. 3 X線 CCD のレスポンスの測定

2. 2 で説明したように、KEK-PF において、アルミニウムをコーティングした X 線 CCD に対して $200-1700\text{eV}$ の単色の X 線を照射した。その際取得したエネルギースペクトルを図4に示す。

このエネルギースペクトルを再現するために、2 個の Gaussian と定数を組み合わせた関数を用いて fitting を行い、その結果から、2 個の Gaussian の内、Normalization の大きい方の Gaussian の中心値、並びに、半値幅 (Full Width Half Maximum) を求め、この 2 つのパラメータの X 線のエネルギー依存性を調べた。結果を図5に示す。図5に示した結果は、KEK-PF で取得した 1700eV 以下の軟 X 線の照射実験の結果と、工学院大学で取得した放射性同位体 ^{55}Fe からの Mn-K_α 、 K_β の特性 X 線の照射実験の結果を加えたものである。

なお, Gaussian の中心値のエネルギー依存性のことをエネルギースケール (エネルギー線形性), Gaussian の半値幅のエネルギー依存性のことをエネルギー分解能と呼び, X線 CCD の性能を示す指針として用いている。

エネルギー線形性からは, 0.2-6keV の X線帯域では, X線 CCD から得られる出力が入射 X線のエネルギーに対して線形であることが分かる。この結果を, 直線で近似し, その直線の傾きから, X線 CCD のゲインが 4.5[eV/ch] であることが分かった。

また, エネルギー分解能については, 全てのエネルギー帯域で 150eV 以下であることが分かった。

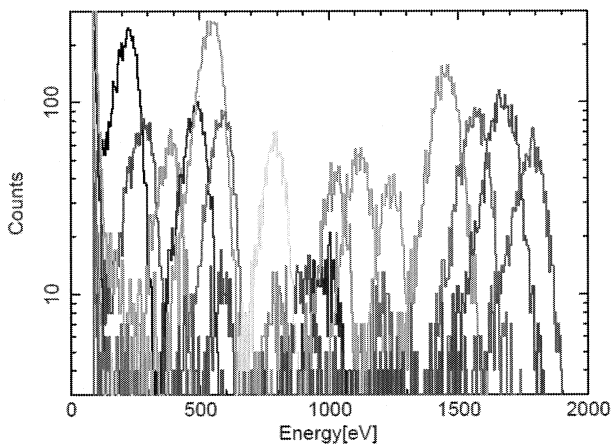


図4. 200-1700eV の単色の X線 を照射した際に得られた X線 CCD のレスポンス。横軸: X線 CCD に照射した X線のエネルギー[eV]。縦軸: X線 CCD で検出した X線光子のカウント数。500eV の X線に対するレスポンスは, 500eV 付近の最もカウント数が高い Main Peak 部と, 300eV 以下の Tail component 部からなることが分かる。

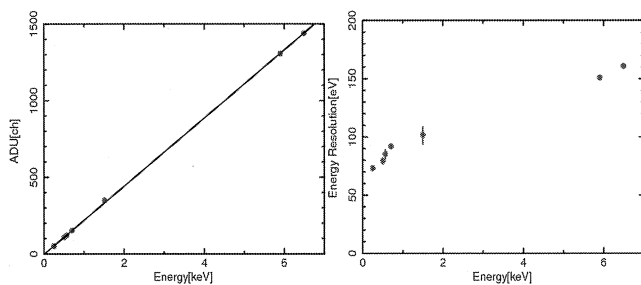


図5. 上図: X線 CCD のエネルギー線形性。縦軸: X線 CCD から得られたエネルギースペクトルの中心値を表す。単位は [Channel]。横軸: X線 CCD に照射した X線のエネルギー。単位は [eV]。

下図: エネルギー分解能。横軸: X線 CCD に照射した X線のエネルギー。縦軸: X線 CCD から得られたエネルギースペクトルの FWHM を表す。単位は [eV]。

2. 4 X線 CCD の放射線耐久試験

地球周囲の宇宙空間は, 太陽風や銀河宇宙線と呼ぶ放射線に満ちている。その正体は, 高速で飛び交う陽子, 電子, 酸素, 鉄である。その陽子・電子が地球の磁場で捕捉されている領域をバンアレン帯と呼ぶ。このバンアレン帯を衛星が通過するとき, 衛星に搭載した電子機器は高い線量の放射線にさらされることになり, 半導体の場合は, イオン損傷やバルク損傷と呼ばれる影響を受ける。シリコンからなる半導体の内部でバルク損傷が起ると, シリコン原子が結晶格子位置からはじき飛ばされ, シリコン結晶中に格子欠陥ができる。この格子欠陥は禁制帯にエネルギー準位を作り, この準位は信号電荷を捕捉するトラップとして働く。このような宇宙線による損傷によって, シリコンの半導体からなる X線 CCD は, 空乏層内で生成した光電子を, CCD に付随した電極に印加する電圧をクロッキングさせながら電荷転送をして読み出す際の電荷転送の効率 (CTE; Charge Transfer Efficiency) が低下したり (あるいは電荷転送非効率 (CTI; Charge Transfer Inefficiency) が増加するとも言える), 暗電流が増加するというように, X線検出器としての性能が劣化する。この CTI と暗電流は X線 CCD の性能の指針の 1 つである。

本研究で開発する X線 CCD は, 衛星搭載を目的としており, 宇宙放射線に対する耐久性能について検証実験を行った。この検証実験は, 九州大学のタンデム加速器を利用して行い, バルク損傷を引き起こす陽子を X線 CCD へ照射した。照射した陽子のエネルギーは 6.7MeV で, 線量は衛星軌道上でそれぞれ 2日, 0.5ヶ月, 2.2ヶ月, 6.6ヶ月, 1.1年, 2.2年, 3.3年, 12年にわたって照射する線量と同等のものを順に照射した。

図6に放射線損傷させる前後で取得したエネルギースペクトルを示す。放射線損傷前のエネルギー分解能がスペクトルの FWHM の値で 145eV であった。一方, 損傷後は 220eV となり, 分光性能が劣化していることが分かる。

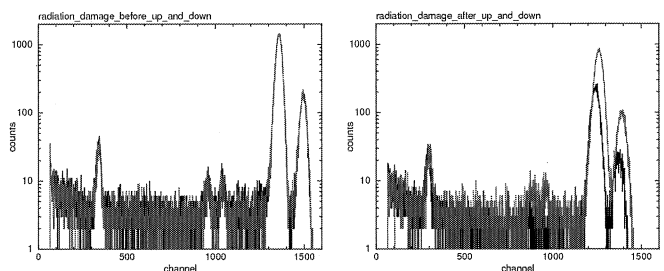


図6. 放射性同位体 ^{55}Fe からの X線 を照射して取得したエネルギースペクトル。左図が放射線損傷前。右図が損傷後。各図とも, 横軸は CCD の出力値 (検出した X線のエネルギーに相当) で単位は [Channel], 縦軸は検出した X線の光子数。各図とも, 左から順に, 2keV, 5.9keV, 6.4keV のシリコンのエスケープ, Mn-K α K β による X線イベントに対応するピークになる。中間 (800-1000 Channel 付近) にある 2山のピークは, 実験装置起源の Ti のラインになる。左右の図とも, スペクトルが 2重に重なっており, 山が低い方が, それぞれ CCD の電荷転送の回数が多く, 放射線損傷の影響を受けていることを表す。

図6では、左図の放射線損傷前に比べて、右図の放射線損傷後のデータの方が、スペクトルの形状がなまされておき、分光性能が劣化していることがわかる。

図7に照射線量に応じたCTIの変化を示す。現在開発しているX線CCDのCTIに関しては、現在軌道上で稼働している宇宙X線望遠鏡 *Suzaku* に搭載したX線CCDカメラ (XIS; X-ray Imaging Spectrometer) のCTIの悪化の度合いと同程度であることが分かり、十分、宇宙利用可能であることが分かった。

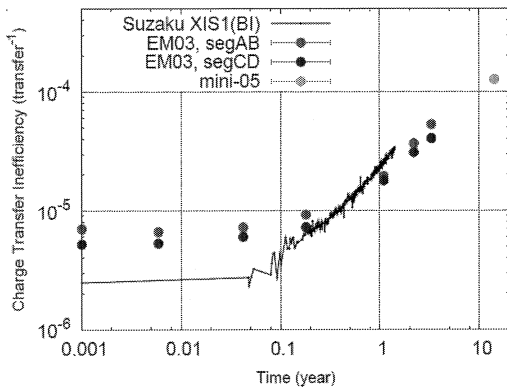


図7. CTI (性能の劣化状態の指針の1つ)の吸収線量依存性。横軸：陽子の照射量を、宇宙の軌道上の照射年数に換算したものである。単位は[年]。縦軸：CTIを表す。○は測定データ点。実線が *Suzaku* 衛星に搭載したX線CCD (XIS) の実績値を表す。

図8に照射線量に応じた暗電流の変化を示す。上記CTIと異なり、暗電流については、XISに比べ、ファクターで3~4倍高い(悪い)値ではあった。ただし、読み出しノイズと呼ばれる回路起源のノイズと同程度であり、エネルギー分解能への影響は少なく問題ないと考えられる。

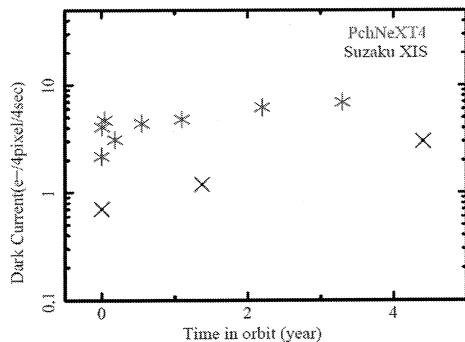


図8. 暗電流 (性能の劣化状態の指針の1つ)の吸収線量依存性。横軸：陽子の照射量を、宇宙の軌道上の照射年数に換算したものである。単位は[年]。縦軸：暗電流。×が XIS の実績値。*が、本研究で開発しているX線CCDの今回の測定データ点。

3. GEMの基礎特性の研究

GEMは、希ガスを充填した容器(チェンバー)中に入射したX線が生成する光電子を増幅するためのものである。つ

まり、X線の吸収物質はガスである。よって、ガスの種類によってGEMを用いたX線検出器の性能は全く異なる。ガス検出器で用いられるガスは、一般的にはHe, Ne, Ar, Xeなどの希ガスである。希ガス以外のガスでも電磁増幅は可能だが、希ガス以外のガスは電子吸着を起こし、エネルギーに対する比例性や安定した増幅率、エネルギー分解能を得ることができないことがある。中でもAr系のガスは、ガス検出器で最も一般的に使われるガスである。ただし、実際のガスは純度が100%のArガスが使われている訳ではなく、クエンチャーガスと呼ぶCH₄やCO₂といったガスを少量(く~10%)混ぜる。このクエンチャーガスを混ぜることで、ガス中の電子のドリフト速度を上げて電子の吸着を抑えたり、光電効果によって励起した分子から発生する紫外線を吸収することで、よけいな二次電子の発生によるエネルギー比例性の悪化を防いだり、励起エネルギーを持った光子の吸収によって、それ以上の電離が起きず放電を抑える効果がある。よって、同じAr系ガスでもクエンチャーガスの違いによって性能が異なる。以上より、Ar系ガスとして代表的な3種類のガスによる検出器の性能の違いを調べた。

さらに、宇宙空間でGEMを用いて偏光したX線を観測することを見据えた場合、GEMに求められる性能は、電子の位置分解能と高い電子増幅率である。偏光計用GEMは、銅極板を化学処理によってエッチングするが、絶縁体のエッチングにはレーザーを用いている。化学処理された両面の銅極板は、レーザーのマスクの役割を果たす。また、片面ずつレーザーを照射することで、孔形状が円筒形になるようにしている。円筒形状に近づけることのメリットは、絶縁体層へのチャージアップ対策である。GEMの電子増幅率が変動する原因として主に考えられているのが、絶縁体へのチャージアップである。チャージアップは絶縁体の表面に電荷が付着することで、増幅された電荷が拡散することなどによっておこる。チャージアップが起こると、付着した電荷によって穴内部の電場がゆがみ、電子増幅率が変動すると考えられている。そこで、本研究では、GEMのガス増幅率の時間安定性についても調べた。

3. 1 ガスの種類とGEMの電子増幅率の関係

この実験は、工学院大学で構築したGEM開発用の実験システムを用いた(実験システムについては昨年度報告しており、詳細は省略する)。使用したGEMは、サイズが3cm×3cmの誘電体であるポリイミドを2枚の銅板で挟み込んだ通常のGEMで、1cmの読み出しパッド、ドリフトプレーンのサイズも3cm×3cmのものを使用した。チェンバー内に、読み出しパッド、GEM、ドリフトプレーンを格納し、チェンバー内にガスを充填させた。使用したガスはP10ガス(Ar90% CH₄10%)、P5ガス(Ar95% CH₄5%)、Ar+CO₂ガス(Ar70% CO₂30%)の3種類である。

実験は、放射性同位体の⁵⁵FeからのX線を照射し、1つの電圧あたり180秒間X線イベントを積分した。データ

は各ガスで実験中にオシロスコープ上もしくは音で連続的な放電が発生したと判断した時点まで取得を行なった。結果を図9に示す。

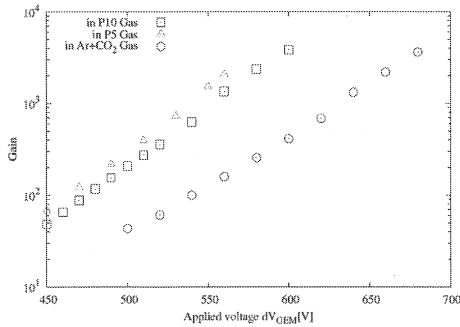


図9. GEMに印加する電圧と、GEMの電子増幅率の関係。横軸はGEMに印加した電圧(単位は[V])を、縦軸はGEMの電子増幅率を表す。グラフの傾きが大きいものほど、印加電圧が低くても高い電子増幅率を得られることを表す。△、□、○はガスがP5、P10、Ar+CO₂の時に取得したデータである。

図9に示すように、ガスをフローした環境下では、P10ガスとP5ガスの結果から、電子増幅率はCH₄の濃度に依らずほぼ同程度であることが分かった。一方、P10ガスとP5ガスで明らかに異なる点は放電が発生した電圧である。P10ガスは600Vまで安定して電圧を印加できたのに対し、P5ガスは550V程度で連続放電が発生した。これは、クエンチャーガスの量の違いによって放電の起きやすさに影響が出ていると考えることができる。一方、Ar+CO₂ガスの場合、P10ガスやP5ガスの時よりも同じ電圧で比較したときのgainは低くなるが、680Vまで放電することなく安全に電圧を印加することができる。P10ガスやP5ガスに比べてクエンチャーガスの量が多いため、より放電の起きにくい環境下になっていることがわかる。

3. 2 宇宙 X 線偏光計用 GEM の電子増幅率の長期安定性

宇宙X線偏光計用に開発したGEMの性能を評価するために、従来の実験環境下であるAr+CO₂のガスをフローさせる環境下と、実際の衛星運用環境である高純度のジメチルエーテル(DME)を圧力190Torrで封入した環境の2つの環境下でGEMの電子増幅率の時間安定性の評価を行なった。軌道上では24時間ごとに宇宙X線偏光計であるGEMの電源をON/OFFすることから、本実験の測定時間は24時間とした。

衛星搭載用に開発したGEMは、孔ピッチが140 μ m、孔径が70 μ m、絶縁体厚さが100 μ m、有効面積が3.0cm \times 7.8cmのものである。読み出しパッド、ドリフトプレーンのサイズもGEMのサイズと同じものを使用した。また、照射するX線は、Ar+CO₂をフローさせる実験では放射性同位体である⁵⁵Fe線源からのX線を使用した。また、DMEを用いた実験では、X線発生装置を用いて8.0keVのX線を照射した。

図10にGEMに印加する電圧とGEMの電子増幅率の関係を

示す。また、GEMの電子増幅率の時間安定性について、DMEガスを封入した環境下で取得した結果を図11に示す。

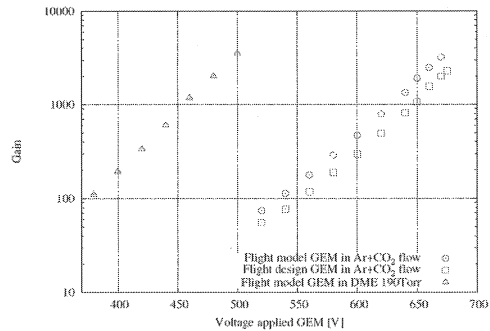


図10. GEMに印加する電圧と、GEMの電子増幅率の関係。横軸はGEMに印加した電圧(単位は[V])を、縦軸はGEMの電子増幅率を表す。△と□、○はガスがそれぞれDMEとAr+CO₂の時に取得したデータである。△と○は同じ衛星搭載用のGEMで、□は衛星搭載品と同等のGEMで取得した結果である。

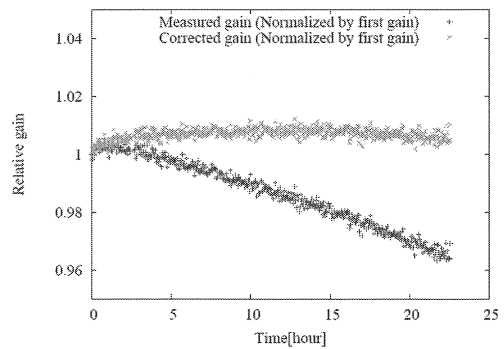


図11. GEMの電子増幅率の時間安定性。横軸はGEMに印加した電圧(単位は[V])を、縦軸は測定開始を基準とした電子増幅率の相対値を表す。縦軸の値が1というのは、測定開始から電子増幅率が変化していないことを表す。データ点は、図中に上(×)下(+)2種類プロットしており、それぞれ電子付着の影響を考慮し補正した後(×)と、補正前(+)の結果である。

図11に示した結果から、電子付着の影響を考慮しない(補正しない)場合は、測定開始から終了まで、電子増幅率が実験経過時間とともに単調に低下し続けることが分かった。一方、電子付着の影響を考慮し補正した場合、測定開始から2時間ほどは開始時の電子増幅率に比べ1%上昇するが、2時間以降の変動幅は平均の0.5%の範囲内で安定することが分かった。

4. まとめ

ASTRO-H衛星に搭載する目的で開発しているX線CCDに関しては、基本的な特性であるエネルギー線形性、エネルギー分解能、検出感度の3項目の評価を行い、これまで衛星に搭載しているX線CCDと同等の性能を有することが分かった。さらに、X線CCDが実際に軌道上で受

ける放射線損傷を開発中の X 線 CCD に加え、CTI ならびに暗電流を評価した結果、宇宙放射線に対する耐久性に問題がないことが分かった。

GEMについては、3種類のクエンチャーガスによる電子増幅率違いを評価し、P10, P5が低い電圧で高い電子増幅率を得られること、CO₂を用いることで印加電圧に対して緩やかに電子増幅率が変化することが分かった。この結果から、今後継続して開発するGEMを用いた新型放射線検出器では、放電対策が重要となるため、クエンチャーガスとして、印加電圧に対して電子増幅率が緩やかに変化させるCO₂を使用することに決定した。また、衛星搭載用のGEMの開発に関しては、圧力190Torr のDMEガスを封入したチェンバー中で、GEMに500Vの電圧を印加すれば、宇宙偏光計の目標としている電子増幅率3,000倍を安全に達成することがわかった。また電子増幅率の時間安定性については、変動の幅が、GEMのエネルギー分解能の10%以下の範囲に収まっていることがわかり、衛星搭載品として十分な性能を持ち合わせていることがわかった。

5. 謝辞

本研究の遂行にあたり、大阪大学の常深博教授、林田清准教授、立教大学の北本教授、理化学研究所の玉川徹准主任研究員には多くの御助言、御支援を賜りました。KEK-PF のビームライン BL-11A, 20A の責任者である伊藤健二教授、北島義典助教には多くの御助言を頂きました。工学院大学の池田翔馬氏、金子健太氏（機械工学専攻博士前期課程2年）、立教大学の清水裕貴氏、吉田佑輔氏（物理学専攻博士前期課程2年）、京都大学の内田裕之氏（日本学術振興会特別研究員）、上田周太郎氏（宇宙地球科学専攻博士後期課程2年）には研究の協力を頂いた。また、本研究は、東京大学、ISAS/JAXA、理化学研究所、京都大学、大阪大学、宮崎大学、MIT、浜松ホトニクス、三菱重工など国内外の大学・研究機関、メーカーとの共同研究がベースとなっている。ここに申し上げます。

研究成果

以下に3年間の研究成果をまとめる。

① 発表論文

- (1) Kaneko, K., Kohmura, T., “Soft X-ray response of Au-GEM”, *Journal of Instrumentation*, Vol 7, Issue 07, pp. C07001 (2012)
- (2) Takahashi, T., et al., “The ASTRO-H X-ray Observatory”, *Space Telescopes and Instrumentation 2012: Ultraviolet to Gamma Ray. Proceedings of the SPIE*, Vol 8443, 84431Z-84431Z-22 (2012)
- (3) Hayashida, K., et al, “Soft x-ray imager (SXI) onboard ASTRO-H”, *Space Telescopes and Instrumentation 2012: Ultraviolet to Gamma Ray. Proceedings of the SPIE*, Vol 8443, pp. 844323-844323-9 (2012)
- (4) Gendreau, K., et al, “The x-ray advanced concepts testbed (XACT) sounding rocket payload”, *Space Telescopes and Instrumentation 2012: Ultraviolet to Gamma Ray. Proceedings of the SPIE*, Vol 8443, pp. 84434V-84434V-7 (2012)
- (5) Kohmura, T., et al, “Infrared AKARI observations of magnetars 4U 0142+61 and 1E 2259+586”, *Proceedings of the International Astronomical Union*, Volume 291, pp. 422-424 (2013)
- (6) Ueda, S., et al, “Measurement of the soft X-ray response of P-channel back-illuminated CCD”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, Volume 704, p. 140-146 (2013)
- (7) Ishida, M., Tsujimoto, M., Kohmura, T., et al “Cross Spectral Calibration of Suzaku, XMM-Newton, and Chandra with PKS 2155-304 as an Activity of IACHEC”, *Publications of the Astronomical Society of Japan*, 63, 657-668(2011)
- (8) Hakayshida, K., et al., “Development of the soft x-ray imager (SXI) for ASTRO-H”, *UV, X-Ray, and Gamma-Ray Space Instrumentation for Astronomy XVII. Edited by Tsakalagos, Loucas. Proceedings of the SPIE*, Vol 8145, 814505-814505-9 (2011)
- (9) Ueda, S., et al, “Development of the x-ray CCD for SXI on board ASTROH”, *UV, X-Ray, and Gamma-Ray Space Instrumentation for Astronomy XVII. Edited by Tsakalagos, Loucas. Proceedings of the SPIE*, Vol 8145, pp. 814504-814504-9 (2011)
- (10) Kawai, K., Kohmura, T., et al, “Optical, UV and soft x-ray transmission of optical blocking layer for the x-ray CCD”, *SUZAKU 2011: Exploring the X-ray Universe: Suzaku and Beyond. AIP Conference Proceedings*, 1427, 255-256 (2012)
- (11) Ikeda, S., Kohmura, T., et al, “Soft X-ray response of the x-ray CCD camera directly coated with optical blocking layer”, *SUZAKU 2011: Exploring the X-ray Universe: Suzaku and Beyond. AIP Conference Proceedings*, 1427, 253-254 (2012)
- (12) Kohmura, T., Kawai, K., et al, “The calibration status of P-sum mode for XIS on board Suzaku”, *SUZAKU 2011: Exploring the X-ray Universe: Suzaku and Beyond. AIP Conference Proceedings*, 1427, 247-248 (2012)

- (13) Kaneko, K and Kohmura, T., “Developments of gas electron multiplier for use hard X-ray detector”, SUZAKU 2011: Exploring the X-ray Universe: Suzaku and Beyond. AIP Conference Proceedings, 1427, 257-258 (2012)
- (14) Kohmura, T., et al “Measuring the EUV and optical transmission of optical blocking layer for x-ray CCD camera”, Space Telescopes and Instrumentation 2010: Ultraviolet to Gamma Ray. Edited by Arnaud, Monique; Murray, Stephen S.; Takahashi, Tadayuki. Proceedings of the SPIE, Volume 7732, pp. 77323D-77323D-8 (2010)
- (15) Tsunemi, H., et al., “Soft x-ray imager (SXI) onboard ASTRO-H”, Space Telescopes and Instrumentation 2010: Ultraviolet to Gamma Ray. Edited by Arnaud, Monique; Murray, Stephen S.; Takahashi, Tadayuki. Proceedings of the SPIE, Volume 7732, pp. 773210-773210-11 (2010)
- (17) Takahashi, T., et al, “The ASTRO-H Mission”, Space Telescopes and Instrumentation 2010: Ultraviolet to Gamma Ray. Edited by Arnaud, Monique; Murray, Stephen S.; Takahashi, Tadayuki. Proceedings of the SPIE, Volume 7732, pp. 77320Z-77320Z-18 (2010)
- (18) Morii, M., et al., “Suzaku Observation of the Anomalous X-Ray Pulsar 1E 1841-045”, Publications of the Astronomical Society of Japan, Vol. 62, No. 5, pp. 1249-1259, 2010
- ② 学会発表
- (1) K. Kaneko, T. Kohmura, S. Ikeda. (Kogakuin Univ), M. Morii, K. Asano (Tokyo Institute of Technology), M. Shirahata (ISAS/JAXA), & N. Shibazaki (Rikkyo Univ), “Observation of AXP 4U 0142+61 by infrared astronomical satellite AKARI”, 39th COSPAR Scientific Assembly 2012, Mysore, India, 7月19日
- (2) T. Kohmura, K. Kaneko, S. Ikeda (Kogakuin Univ), M. Morii, K. Asano (Tokyo Institute of Technology), M. Shirahata (ISAS/JAXA), & N. Shibazaki (Rikkyo Univ), “Infrared AKARI observations of magnetars 4U 0142+61 and 1E 2259+586”, IAU Symposium 291, Beijing, China, 8月19日
- (3) S. Ikeda, T. Kohmura, K. Kawai, K. Kaneko, T. Watanabe (Kogakuin University) et al “Performance of the X-ray CCD coated with Optical Blocking Layer for SXI onboard ASTRO-H”, 6th International Workshop on Semiconductor Pixel Detectors for Particles and Imaging, Fukushima, Japan, 9月4日
- (4) T. Kohmura., S. Ikeda, K. Kawai, K. Kaneko, T. Watanabe (Kogakuin University) et al, “Development of the Optical Blocking Layer for the X-ray CCD”, 6th International Workshop on Semiconductor Pixel Detectors for Particles and Imaging, Fukushima, Japan, 9月4日
- (5) 西岡祐介, 森浩二, 大浦智史, 小浦祐明, 山内誠 (宮崎大学), 中嶋大, 上田周太郎, 菅裕哲, 林田清, 穴吹直久, 常深博 (大阪大学), 幸村孝由, 池田翔馬 (工学院大学), 村上弘志 (立教大学), 前田幸重, 相良建至 (九州大学), “ASTRO-H 衛星搭載 X 線 CCD カメラ SXI で用いる P チャンネル CCD の放射線耐性試験”, 日本物理学会, 2012 年秋季大会, 京都産業大学, 9月14日
- (9) 鶴剛, 田中孝明, 信川正順, 内田裕之 (京都大学), 常深博, 林田清, 中嶋大, 穴吹直久, 薙野綾, 木村公 (大阪大学), 堂谷忠靖, 尾崎正伸, 夏莉権, 富田洋 (ISAS/JAXA), 幸村孝由 (工学院大学), 村上弘志 (立教大学), 平賀純子 (東京大学), 森浩二, 廿日出勇, 山内誠, 西岡祐介 (宮崎大学), 馬場彩 (青山学院大学), John Doty (Noqsi LTD), 他 SXI チーム, “X 線天文衛星 ASTRO-H 搭載 X 線 CCD カメラ SXI の開発の現状 IV”, 日本物理学会, 2012 年秋季大会, 京都産業大学, 9月14日
- (10) 幸村孝由, 池田翔馬, 金子健太, 矢部一成 (工学院大学), 常深博, 林田清, 中嶋大, 穴吹直久, 上田周太郎, 菅裕哲 (大阪大学), 鶴剛, 内田裕之, 大西隆雄 (京都大学), 堂谷忠靖, 尾崎正伸, 富田洋 (ISAS/JAXA), 北本俊二, 村上弘志, 梅津里香, 小松飛斗 (立教大学), 他 ASTRO-H SXI チーム, “ASTRO-H 衛星搭載 X 線 CCD カメラ (SXI) の軟 X 線検出効率の測定”, 日本物理学会, 2012 年秋季大会, 京都産業大学, 9月14日
- (11) 田中孝明, 鶴剛, 信川正順, 内田裕之 (京大理), 常深博, 林田清, 中嶋大, 穴吹直久, 薙野綾, 木村公 (阪大理), 堂谷忠靖, 尾崎正伸, 夏莉権, 富田洋 (JAXA), 幸村孝由 (工学院大), 村上弘志 (立教大理), 平賀純子 (東大理), 森浩二, 廿日出勇, 山内誠, 西岡祐介 (宮崎大工), 馬場彩 (青山学院大理工), John Doty (Noqsi Aerospace), 他 SXI チーム, “ASTRO-H 搭載 X 線 CCD カメラ (SXI) の開発の現状”, 日本天文学会, 2012 年秋季年会, 大分大学, 9月19日
- (12) 池田翔馬, 幸村孝由, 金子健太, 矢部一成 (工学院大学), 常深博, 林田清, 穴吹直久, 中嶋大, 薙野綾, 上田周太郎, 菅裕哲, 米森愛美 (大阪大学), 鶴剛, 内田裕之, 大西隆雄 (京都大学), 堂谷忠靖, 尾崎正伸, 富田洋 (ISAS/JAXA), 北本俊二, 村上弘志, 梅津里香, 小松飛斗, 杉本樹理 (立教大学), 他 SXI チーム, “ASTRO-H 搭載 X 線 CCD カメラ (SXI) の軟 X 線に対する検出効率の測定”, 日本天文学会, 2012 年秋季年会, 大分大学, 9月19日
- (13) 薙野綾, 林田清, 中嶋大, 穴吹直久, 上田周太郎, 菅裕哲, 常深博 (大阪大), 尾崎正伸, 夏莉権, 富田洋, 堂谷忠靖 (JAXA), John Doty (Noqsi Aerospace), 鶴剛, 田中孝明, 信川正順, 内田裕之 (京都大), 幸村孝由 (工学院大), 村上弘志 (立教大), 平賀純子 (東京大), 森浩二, 廿日出勇, 山内誠 (宮崎大), 他 SXI チーム, “ASTRO-H 搭載 SXI 用アナログエレクトロニクス

- の開発”, 日本天文学会, 2012 年秋季年会, 大分大学, 9月19日
- (14) 磯部 直樹 (ISAS/JAXA), 増田 充宏, 養王田一尚, 若林 祐介, 佐原宏典, 江副 祐一郎, 大橋 隆哉 (首都大学), 幸村 孝由 (工学院大), ORBIS チーム, “巨大バイナリブラックホール探査超小型衛星 ORBIS の基礎設計”, 日本天文学会, 2012 年秋季年会, 大分大学, 9月19日
- (15) 北口 貴雄, 玉川 徹, 早藤 麻美, 榎戸 輝揚, 山田 真也 (理研), 岩橋 孝典, 阿佐美 ふみ, 吉川 瑛文, 武内 陽子 (理研/東理大), 岩切 涉 (埼玉大), 幸村 孝由, 金子 健太 (工学院), ほか GEMS 衛星チーム, “X線偏光観測衛星 GEMS に搭載するガス検出器の宇宙環境でのバックグラウンドの見積り”, 日本天文学会, 2012 年秋季年会, 大分大学, 9月19日
- (16) 金子健太 (工学院大学/理研), 幸村孝由, 池田翔馬 (工学院大学), 森井幹雄, 浅野勝晃 (東京工業大学), 白旗麻衣 (ISAS/JAXA), 柴崎徳明 (立教大学), “超強磁場中性子星マグネターの赤外線による観測的研究”, 日本天文学会, 2012 年秋季年会, 大分大学, 9月20日
- (17) 平賀純子 (東京大学), 常深博, 林田清, 穴吹直久, 中嶋大, 薙野綾 (大阪大学), 堂谷忠靖, 尾崎正伸, 富田洋, 夏莉権, 木村公 (ISAS/JAXA), 鶴剛, 田中孝明, 内田裕之, 信川正順 (京都大学), 廿日出勇, 山内誠, 森浩二, 西岡佑介 (宮崎大), 幸村孝由 (工学院), 村上弘志 (立教大), 馬場彩 (青山学院大) 他 SXI チーム, “ASTRO-H 衛星搭載 軟 X 線撮像検出器 (SXI) の開発”, 第 13 回宇宙科学シンポジウム, ISAS/JAXA, 1月8, 9日
- (18) 金子健太, 幸村孝由, 池田翔馬, 矢部一成 (工学院大学), 常深博, 林田清, 穴吹直久, 中嶋大, 薙野綾, 上田周太朗, 菅裕哲, 米森愛美 (大阪大学), 鶴剛, 内田裕之, 大西隆雄 (京都大学), 堂谷忠靖, 尾崎正伸, 富田洋 (ISAS/JAXA), 北本俊二, 村上弘志, 梅津里香, 小松飛斗, 杉本樹理 (立教大学), 他 SXI チーム, “斜入射法による可視光遮断膜の軟 X 線透過率の測定”, 第 13 回宇宙科学シンポジウム, ISAS/JAXA, 1月8, 9日
- (19) 北口貴雄, 早藤麻美, 榎戸輝揚, 玉川 徹, 山田真也, 岩橋孝典, 阿佐美ふみ, 吉川瑛文, 武内陽子 (理化学井研究所), 岩切 涉 (埼玉大学), 幸村孝由, 金子健太 (工学院大学), 田原 譲 (名古屋大学), 高橋忠幸 (ISAS/JAXA), 牧島一夫 (東京大学), Jean Swank, Keith Jahoda (NASA/GSFC), ほか GEMS チーム, “X 線偏光観測衛星 GEMS”, 第 13 回宇宙科学シンポジウム, ISAS/JAXA, 1月8, 9日
- (20) 佐々木将軍, 常深博, 林田清, 中嶋大, 穴吹直久, 薙野綾, 上田周太朗, 菅裕哲, 定本真明 (大阪大学), 堂谷忠靖, 尾崎正伸, 夏莉権, 富田洋, 井澤正治, 近藤恵介 (ISAS/JAXA), 幸村孝由, 池田翔馬, 金子健太, 矢部一成 (工学院大学), 鶴剛, 内田裕之, 大西隆雄 (京都大学), 村上弘志 (立教大学), 山内誠, 森浩二, 廿日出勇 (宮崎大), 平賀純子 (東京大), 他 ASTRO-H/SXI チーム, “チャンネル裏面照射型 CCD の軟 X 線に対する応答”, 第 13 回宇宙科学シンポジウム, ISAS/JAXA, 1月8, 9日
- (21) 幸村孝由, 池田翔馬, 金子健太, 矢部一成 (工学院大学), 常深博, 林田清, 中嶋大, 穴吹直久, 上田周太朗, 菅裕哲 (大阪大学), 鶴剛, 内田裕之, 大西隆雄 (京都大学), 堂谷忠靖, 尾崎正伸, 富田洋 (ISAS/JAXA), 北本俊二, 村上弘志, 梅津里香, 小松飛斗 (立教大学), 他 ASTRO-H SXI チーム, “ASTRO-H 衛星搭載 X 線 CCD カメラ (SXI) の軟 X 線帯域の較正”, 第 26 回日本放射光学学会年会, 放射光科学合同シンポジウム, 名古屋大学, 1月14日
- (22) 幸村孝由, 池田翔馬, 金子健太, 矢部一成 (工学院大学), 常深博, 林田清, 中嶋大, 穴吹直久, 薙野綾 (大阪大学), 鶴剛, 田中孝明, 内田裕之, 信川正順 (京都大学), 堂谷忠靖, 尾崎正伸, 富田洋, 夏莉権 (ISAS/JAXA), 村上弘志 (立教大学), 廿日出勇, 山内誠, 森浩二 (宮崎大), 他 SXI チーム, “ASTRO-H 搭載軟 X 線撮像検出器 (SXI) の可視光遮断対策”, 日本天文学会 2013 年春季年会, 埼玉大学, 3月22日
- (23) 河合誠之, 谷津陽一 (東工大), 富田洋, 上野史郎, 木村公 (JAXA), 三原 建弘, 芹野素子 (理研), 常深博 (阪大), 吉田篤正, 坂本貴紀 (青学大), 幸村孝由 (工学院大), 根來 均 (日大), 上田佳宏 (京大), ほか WF-MAXI チーム, “広天域 X 線監視観測実験: Wide-Field MAXI 計画”, 日本天文学会 2013 年春季年会, 埼玉大学, 3月22日
- (24) 佐々木将軍, 常深博, 林田清, 中嶋大, 穴吹直久, 薙野綾, 上田周太朗, 菅裕哲, 定本真明 (大阪大学), 堂谷忠靖, 尾崎正伸, 夏莉権, 富田洋, 井澤正治, 近藤恵介 (ISAS/JAXA), 幸村孝由, 池田翔馬, 金子健太, 矢部一成 (工学院大学), 鶴剛, 田中孝明, 内田裕之, 信川正順, 大西隆雄 (京都大学), 村上弘志 (立教大学), 廿日出勇, 山内誠, 森浩二 (宮崎大), 平賀純子 (東京大), 他 ASTRO-H/SXI チーム, “ASTRO-H 搭載 X 線 CCD カメラ (SXI) の軟 X 線応答の測定”, 日本天文学会 2013 年春季年会, 埼玉大学, 3月22日
- (25) 信川久実子, 鶴剛, 田中孝明, 内田裕之, 信川正順, 大西隆雄, 中島真也, 菅原隆介, 八隅真人 (京都大学), 常深博, 林田清, 中嶋大, 穴吹直久, 薙野綾 (大阪大学), 堂谷忠靖, 尾崎正伸, 夏莉権, 富田洋 (ISAS/JAXA), 廿日出勇, 山内誠, 森浩二 (宮崎大), 幸村孝由 (工学院), 村上弘志 (立教大), 平賀純子 (東京大学), 他 SXI チーム, “ASTRO-H 搭載軟 X 線撮像検出器 (SXI): EM システムを用いた性能評価と機能試験”, 日本天文学会 2013 年春季年会, 埼玉大学, 3月22日
- (26) 平賀純子 (東京大学), 常深博, 林田清, 穴吹直久, 中嶋大, 薙野綾 (大阪大学), 堂谷忠靖, 尾崎正伸, 富田洋, 夏莉権, 木村公 (ISAS/JAXA), 鶴剛, 田中孝明, 内田裕之, 信川正順 (京都大学), 廿日出勇, 山内誠, 森浩二, 西岡佑介 (宮崎大), 幸村孝由 (工学院), 村上弘志 (立教大), 馬場彩 (青山学院), John Doty (Noqsi Aerospace), 他 SXI チーム, “Astro-H 搭載軟 X 線撮像検出器 SXI の開発の現状”, 日本天文学会 2013 年春季年会, 埼玉大学, 3月22日
- (27) 幸村孝由, 金子健太, 池田翔馬 (工学院大学),

- 森井幹雄, 浅野勝 (東京工業大学), 白旗麻衣 (ISAS/JAXA), 柴崎徳明 (立教大学), “マグネター-4U0142+61 の 2009 年のフレアの X 線・赤外線 の観測”, 日本物理学会 2013 年春季大会, 広島大学, 3月27日
- (28) 林田清, 常深博, 中嶋大, 穴吹直久, 薙野綾 (大阪大学), 鶴剛, 田中孝明, 信川正順, 内田裕之 (京都大学), 堂谷忠靖, 尾崎正伸, 夏苺権, 富田洋, 木村公 (ISAS/JAXA), 幸村孝由 (工学院大学), 村上弘志 (立教大学), 平賀純子 (東京大学), 森浩二, 廿日出勇, 山内誠, 西岡祐介 (宮崎大学), 馬場彩 (青山学院大学), John Doty (Noqsi LTD), 他 SXI チーム, “X 線天文衛星 ASTRO-H 搭載 X 線 CCD カメラ SXI の開発の現状 V”, 日本物理学会 2013 年春季大会, 広島大学, 3月27日
- (29) Kohmura, T., Kawai, K., et al. “The calibration status of P-sum mode for XIS on board Suzaku”, SUZAKU 2011: Exploring the X-ray Universe: Suzaku and Beyond. Kavli Institute for Particle Astrophysics and Cosmology, SLAC National Accelerator Laboratory, California, USA, 7月20日
- (30) S. Ikeda, T. Kohmura, K. Kawai, K. Kaneko, T. Watanabe. et al “Soft X-ray response of the X-ray CCD camera directly coated with Optical Blocking Layer”, SUZAKU 2011: Exploring the X-ray Universe: Suzaku and Beyond. Kavli Institute for Particle Astrophysics and Cosmology, SLAC National Accelerator Laboratory, California, USA, 7月20日
- (31) K. Kawai, T. Kohmura, S. Ikeda, K. Kaneko, T. Watanabe. et al. “Optical, UV and soft X-ray transmission of optical blocking layer for the X-ray CCD”, SUZAKU 2011: Exploring the X-ray Universe: Suzaku and Beyond. Kavli Institute for Particle Astrophysics and Cosmology, SLAC National Accelerator Laboratory, California, USA, 7月20日
- (32) K. Kaneko., T. Kohmura., “Developments of Gas Electron Multiplier for use hard X-ray detector”, SUZAKU 2011: Exploring the X-ray Universe: Suzaku and Beyond. Kavli Institute for Particle Astrophysics and Cosmology, SLAC National Accelerator Laboratory, California, USA, 7月20日
- (33) M. Ishida, M. Tsujimoto (ISAS/JAXA), T. Kohmura (Kogakuin University) et al. “Cross Spectral Calibration of Suzaku, Chandra and XMM-Newton with PKS2155-304”, SZAKU 2011: Exploring the X-ray Universe: Suzaku and Beyond. Kavli Institute for Particle Astrophysics and Cosmology, SLAC National Accelerator Laboratory, California, USA, 7月20日
- (34) K. Hayashida, H. Tsunemi, T.G. Tsuru, T. Dotani, H. Nakajima, N. Anabuki, M. Ozaki, C. Natsukari, J.S. Hiraga, H. Tomida, T. Kohmura. et al, “Development of the soft x-ray imager (SXI) for ASTRO-H”, SPIE Optics+ Photonics 2011, San Diego Convention Center, USA, 8月21日
- (35) S. Ueda, K. Hayashida, H. Nakajima, N. Anabuki, H. Uchida, H. Tsunemi, M. Fujikawa, H. Mori, T. Kohmura, et al. “Development of the x-ray CCD for SXI on board ASTRO-H”, SPIE Optics+ Photonics 2011, San Diego Convention Center, USA, 8月21日
- (36) K. Kaneko., T. Kohmura., “Developments of X-ray detector with a Gas Electron Multiplier”, 2nd International Conference on Micro Pattern Gaseous Detectors, Seaside Hotel MAIKO VILLA Kobe, Kobe, Japan, 8月29日
- (37) 玉川徹, 山田真也, 岩橋孝典, 阿佐美ふみ, 吉川瑛文, 武内陽子 (理化学研究所), 早藤麻美, Jean Swank, Keith Jahoda, Keith Gendreau (NASA/GSFC), 岩切渉 (埼玉大学), 幸村孝由, 金子健太 (工学院大学), 田原譲 (名古屋大学), 高橋忠幸 (ISAS/JAXA), 牧島一夫 (東京大学), “X 線偏光観測衛星 GEMS と偏光観測ロケット実験 XACT の現状 II”, 日本物理学会, 2011 年秋季大会, 弘前大学, 9月17日
- (38) 林田清, 常深博, 中嶋大, 穴吹直久 (大阪大学), 鶴剛, 信川正順, 内田裕之 (京都大学), 堂谷忠靖, 尾崎正伸, 夏苺権, 富田洋 (ISAS/JAXA), 幸村孝由 (工学院大学), 村上弘志 (立教大学), 平賀純子 (東京大学), 森浩二, 廿日出勇, 山内誠 (宮崎大学), 馬場彩 (青山学院大学), John Doty (Noqsi Aerospace), “X 線天文衛星 ASTRO-H 搭載 X 線 CCD カメラ SXI の開発の現状 II”, 日本物理学会, 2011 年秋季大会, 弘前大学, 9月18日
- (39) 上田周太朗, 林田清, 中嶋大, 森秀樹, 藤川真里, 小松聖児, 穴吹直久, 常深博 (大阪大学), 幸村孝由 (工学院大学), 堂谷忠靖, 尾崎正伸, 夏苺権, 藤永貴久, 松田桂子 (ISAS/JAXA), 鶴剛 (京都大学), “ASTRO-H 搭載軟 X 線 CCD カメラ (SXI) 用素子の性能評価 (III): 低エネルギー応答の改善とフライトモデル CCD の開発”, 日本物理学会, 2011 年秋季大会, 弘前大学, 9月18日
- (40) 幸村孝由, 河合耕平, 池田翔馬, 金子健太, 渡辺辰雄 (工学院大学), 北本俊二, 村上弘志, 八木橋伸佳, 水野瑛己, 轟章太郎, 坂田和也 (立教大学), 常深博, 林田清, 中嶋大, 穴吹直久, 上田周太朗 (大阪大学), 鶴剛 (京都大学), 堂谷忠靖, 尾崎正伸, 富田洋, 藤永貴久 (ISAS/JAXA), 森浩二 (宮崎大学), 平賀純子 (東京大学), 馬場彩 (青山学院大学), “ASTRO-H 衛星搭載 X 線 CCD カメラ (SXI) の可視光遮断用フィルムの開発”, 日本物理学会, 2011 年秋季大会, 弘前大学, 9月18日
- (41) 常深博, 林田清, 中嶋大, 穴吹直久 (大阪大学), 鶴剛 (京都大学), 堂谷忠靖, 尾崎正伸, 夏苺権, 富田洋 (ISAS/JAXA), 馬場彩 (青山学院大学), 幸村孝由 (工学院大学), 村上弘志 (立教大学), 平賀純子 (東京大学), 森浩二, 廿日出勇, 山内誠 (宮崎大学), “X 線天文衛星 ASTRO-H 搭載 X 線 CCD カメラ (SXI) の開発

- の現状”, 日本天文学会 2011 年秋季年会, 鹿児島大学, 9 月 21 日
- (4 2) 林田 清、中嶋 大、穴吹直久、常深 博、小松聖児、上田周太郎 (大阪大学)、尾崎正伸、夏苺 権、堂谷忠靖 (ISAS/JAXA)、John Doty (Noqsi Aerospace)、幸村孝由 (工学院学)、森 浩二 (宮崎大学)、“ASTRO-H 搭載 SXI 用 FE(Front End Electronics)の開発”, 日本天文学会 2011 年秋季年会, 鹿児島大学, 9 月 21 日
- (4 3) 上田周太郎、中嶋大、林田清、穴吹直久、森秀樹、小松聖児、藤川真里、常深博(大阪大学)幸村孝由(工学院大学)、鶴剛(京都大学)、堂谷忠靖、尾崎正伸、夏苺権、藤永貴久、松田桂子 (ISAS/JAXA)、森浩二(宮崎大学)、平賀純子(東京大学)、“ASTRO-H 搭載軟 X 線 CCD カメラ(SXI)用素子エンジニアリングモデルの開発と性能評価”, 日本天文学会 2011 年秋季年会, 鹿児島大学, 9 月 21 日
- (4 4) 池田翔馬, 幸村孝由, 河合耕平, 渡辺辰雄, 金子健太 (工学院大学), 常深博, 林田清, 穴吹直久, 中嶋大, 上田周太郎 (大阪大学), 鶴剛 (京都大学), 堂谷忠靖, 尾崎正伸, 藤永貴久, 松田桂子 (ISAS/JAXA), 北本俊二, 村上弘志 (立教大学), 平賀純子 (東京大学), 森浩二 (宮崎大学), “X 線天文衛星 ASTRO-H 搭載 CCD (SXI) 用可視光遮断膜の性能評価”, 日本天文学会 2011 年秋季年会, 鹿児島大学, 9 月 21 日
- (4 5) 河合耕平, 幸村孝由, 池田翔馬, 金子健太 (工学院大学), 常深博, 林田清, 穴吹直久, 中嶋大, 上田周太郎 (大阪大学), 鶴剛 (京都大学), 堂谷忠靖, 尾崎正伸, 藤永貴久, 松田桂子 (ISAS/JAXA), 北本俊二, 村上弘志 (立教大学), 平賀純子 (東京大学), 森浩二 (宮崎大学), “ASTRO-H 搭載 X 線 CCD(SXI)の可視光遮断膜の X 線透過率測定”, 日本天文学会 2011 年秋季年会, 鹿児島大学, 9 月 21 日
- (4 6) 海田亮平、森浩二(宮崎大学)、林田清、常深博(大阪大学)、鶴剛、内田裕之、信川正順(京都大学)、松本浩典(名古屋大学)、堂谷忠靖、尾崎正伸、辻本匡弘 (ISAS)、馬場彩(青山学院大学)、村上弘志(立教大学)、幸村孝由(工学院大学)、“すざく衛星搭載 XIS における「Si edge 問題」の解決にむけての取組”, 日本天文学会 2011 年秋季年会, 鹿児島大学, 9 月 22 日
- (4 7) 金子 健太、幸村 孝由(工学院大)、玉川 徹、山田 真也、岩橋 孝典、阿佐美ふみ、吉川 瑛文、武内 陽子(理研)、岩切 渉(埼玉大)、早藤 麻美 (NASA/GSFC)、“X 線偏光観測衛星 GEMS 搭載のガス電子増幅器 (GEM) の電子増幅度の時間変動調査”, 日本天文学会 2011 年秋季年会, 鹿児島大学, 9 月 22 日
- (4 8) 上田周太郎, 中嶋大, 林田清, 穴吹直久, 森秀樹, 小松聖児, 藤川真里, 常深博(大阪大), 幸村孝由(工学院大), 鶴剛(京大), 堂谷忠靖, 尾崎正伸, 夏苺権, 藤永貴久, 松田桂子 (ISAS/JAXA), 森浩二(宮崎大), 平賀純子(東大)“次期 X 線天文衛星 ASTRO-H 搭載軟 X 線 CCD カメラ用素子の性能評価とエンジニアリングモデル CCD の開発”, 第 11 回 X 線結像光学シンポジウム, 東北大学, 11 月 14 日
- (4 9) 上田周太郎, 常深博, 林田清, 穴吹直久, 中嶋大(阪大), 堂谷忠靖, 尾崎正伸, 富田洋, 夏苺権, 藤永貴久, 松田桂子 (ISAS/JAXA), 鶴剛, 内田裕之, 信川正順, 大西隆雄(京大), 幸村孝由(工学院大), 馬場彩(青山学院大), 村上弘志(立教大), 森浩二, 廿日出勇, 山内誠(宮崎大), 平賀純子(東大)、“ASTRO-H 搭載軟 X 線 CCD カメラ(SXI) のシステム開発の現状”, 第 12 回宇宙科学シンポジウム, 宇宙科学研究所, 2012 年 1 月 5 日
- (5 0) 池田翔馬, 幸村孝由, 河合耕平, 金子健太(工学院大学), 常深博, 林田清, 穴吹直久, 中嶋大, 上田周太郎, 菅裕哲(大阪大学), 鶴剛(京都大学), 堂谷忠靖, 尾崎正伸, 藤永貴久, 松田桂子, 富田洋 (ISAS/JAXA), 北本俊二, 村上弘志, 清水佑輔, 吉田裕貴, 梅津里香, 小松飛斗(立教大学), 平賀純子(東京大学), 森浩二(宮崎大学), “X 線天文衛星 ASTRO-H 搭載 X 線 CCD(SXI) 用可視光遮断膜(OBL)の性能評価”, 第 12 回宇宙科学シンポジウム, 宇宙科学研究所, 2012 年 1 月 5 日
- (5 1) 金子健太, 幸村孝由, 河合耕平, 池田翔馬(工学院大学), 常深博, 林田清, 穴吹直久, 中嶋大, 上田周太郎, 菅裕哲(大阪大学), 鶴剛(京都大学), 堂谷忠靖, 尾崎正伸, 藤永貴久, 松田桂子, 富田洋 (ISAS/JAXA), 北本俊二, 村上弘志, 清水佑輔, 吉田裕貴, 梅津里香, 小松飛斗(立教大学), 平賀純子(東京大学), 森浩二(宮崎大学), “ASTRO-H 搭載の X 線 CCD(SXI) の可視光遮断膜の軟 X 線透過率測定”, 第 12 回宇宙科学シンポジウム, 宇宙科学研究所, 2012 年 1 月 5 日
- (5 2) 菅裕哲, 森秀樹, 上田周太郎, 中嶋大, 林田清, 穴吹直久, 常深博(大阪大学), 堂谷忠靖, 尾崎正伸, 夏苺権 (ISAS/JAXA), 鶴剛(京都大学), 森浩二, 廿日出勇, 山内誠(宮崎大学), 平賀純子 (東京大学), 幸村孝由(工学院大学), 村上弘志(立教大学), “ASTRO-H 搭載 SXI 用 CCD 素子エンジニアリングモデルの開発と性能評価”, 第 12 回宇宙科学シンポジウム, 宇宙科学研究所, 2012 年 1 月 5 日
- (5 3) 玉川徹 (理化学研究所/東京理科大), 早藤麻美 (NASA/GSFC), 北口貴雄, 山田真也 (理化学研究所), 岩橋孝典, 阿佐美ふみ, 吉川瑛文, 武内陽子 (理化学研究所/東京理科大), 岩切渉 (埼玉大学), 幸村孝由, 金子健太 (工学院大学), 田原譲 (名古屋大学), 高橋忠幸 (ISAS/JAXA), 牧島一夫 (東京大学/理化学研究所), Jean Swank, Keith Jahoda (NASA/GSFC), “X 線偏光観測衛星 GEMS”, 第 12 回宇宙科学シンポジウム, 宇宙科学研究所, 2012 年 1 月 5 日
- (5 4) 河合耕平, 幸村孝由, 池田翔馬, 金子健太(工学院大学), 常深博, 林田清, 穴吹直久, 中嶋大, 上田周太郎 (大阪大学), 鶴剛 (京都大学), 堂谷忠靖, 尾崎正伸, 藤永貴久, 松田桂子 (ISAS/JAXA), 北本俊二, 村上弘志 (立教大学), 平賀純子 (東京大学), 森浩二 (宮崎大学), “ASTRO-H 搭載 X 線 CCD(SXI)の可視光遮断膜の X 線透過率測定”, 第 25 回日本放射光学学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 鳥栖文化会館, 2012 年 1 月 7 日
- (5 5) 林田清、常深博、中嶋大、穴吹直久 (大阪大学)、堂谷忠靖、尾崎正伸、夏苺権、富田洋

- (JAXA/ISAS)、鶴剛、信川正順、内田裕之(京都大学)、幸村孝由(工学院大学)、村上弘志(立教大学)、平賀純子(東京大学)、森浩二、廿日出勇、山内誠(宮崎大学)、馬場彩(青山学院大学)、John Doty (Noqsi Aerospace)、他 SXI チーム、“X線天文衛星 ASTRO-H 搭載 X線 CCD カメラ (SXI) の開発の現状”, 日本天文学会 2012 年春季年会, 龍谷大学, 2012 年 3 月 19 日
- (56) 菅裕哲、森秀樹、上田周太朗、小松聖児、藤川真里、米森愛美、中嶋大、林田清、穴吹直久、常深博(大阪大学) 堂谷忠靖、尾崎正伸、富田洋、夏莉権、藤永貴久 (ISAS/JAXA)、鶴剛、大西隆雄(京都大学)、森浩二(宮崎大学)、幸村孝由(工学院大学)、村上弘志(立教大学)、他 ASTRO-H/SXI チーム、“X 線衛星 ASTRO-H 搭載 X 線 CCD カメラ SXI 用 CCD 素子の開発—スクリーニングシステムを用いた CCD 性能評価”, 日本天文学会 2012 年春季年会, 龍谷大学, 2012 年 3 月 19 日
- (57) 北口 貴雄(理研)、玉川 徹、岩橋 孝典(理研/東理大)、山田 真也(理研)、阿佐美 ふみ、吉川 瑛文、武内 陽子、飯高 陽介、宮川 健太(理研/東理大)、岩切 渉(埼玉大)、幸村 孝由、金子 健太(工学院)、早藤 麻美(NASA/GSFC)、ほか GEMS 衛星チーム、“X線偏光観測衛星 GEMS に搭載するガス検出器の偏光応答モンテカルロシミュレータの開発”, 日本天文学会 2012 年春季年会, 龍谷大学, 2012 年 3 月 19 日
- (58) 海田亮平、森浩二(宮崎大学)、林田清、常深博(大阪大学)、鶴剛、内田裕之、信川正順(京都大学)、松本浩典(名古屋大学)、堂谷忠靖、尾崎正伸、辻本匡弘(ISAS)、馬場彩(青山学院大学)、村上弘志(立教大学)、幸村孝由(工学院大学)、他 XIS チーム、“すざく衛星搭載 XIS における「Si edge 問題」の解決にむけての取組(2)”, 日本天文学会 2012 年春季年会, 龍谷大学, 2012 年 3 月 19 日
- (59) 金子 健太、幸村 孝由、池田 翔馬(工学院大学)、森井 幹雄、浅野 勝晃(東京工業大学)、白旗 麻衣(国立天文台)、柴崎 徳明(立教大学)、“赤外線天文衛星あかりによるマグネター 4U0142+61 の観測的研究”, 日本天文学会 2012 年春季年会, 龍谷大学, 2012 年 3 月 21 日
- (60) 鶴剛、信川正順、内田裕之(京都大学)、林田清、常深博、中嶋大、穴吹直久(大阪大学)、堂谷忠靖、尾崎正伸、夏莉権、富田洋 (ISAS/JAXA)、幸村孝由(工学院大学)、村上弘志(立教大学)、平賀純子(東京大学)、森浩二、廿日出勇、山内誠(宮崎大学)、馬場彩(青山学院大学)、John Doty、他 SXI チーム、“X 線衛星 ASTRO-H 搭載 X 線 CCD カメラ SXI の開発の現状 III”, 日本物理学会第 67 回年次大会, 関西学院大学, 2012 年 3 月 26 日
- (61) 阿佐美ふみ、玉川徹、飯高陽介、宮川健太、北口貴雄、山田真也、岩橋孝典、吉川瑛文、武内陽子、小波さおり(理化学研究所)、岩切渉(埼玉大学)、幸村孝由、金子健太(工学院大学)、早藤麻美(GSFC/NASA)、“ジメチルエーテル中の不純物ガスによる電子吸着の GEM 動作への影響調査”, 日本物理学会第 67 回年次大会, 関西学院大学, 2012 年 3 月 26 日
- (62) M. Ishida, M. Tsujimoto, T. Kohmura, M. Stuehlinger, M. Smith, H. Marshall, M. “Cross calibration of Suzaku/XMM/ Chandra with PKS2155-304”, International Astronomical Consortium for High Energy Calibration, Massachusetts, USA, 4 月 12 日
- (63) 藤永貴久、穴吹直久、尾崎正伸、堂谷忠靖、中嶋大、林田清、常深博、松田桂子、馬場彩、青山翔一、森浩二、幸村孝由、鶴剛、湯浅孝行 “SpaceWire を利用した ASTRO-H 衛星搭載 X 線 CCD カメラデータ取得系の開発”, 日本地球惑星科学連合 2011 年大会, 千葉市幕張メッセ国際会議場, 5 月 26 日
- (64) H. Tsunemi, T. Dotani., T.G. Tsuru., K. Hayashida., J. Hiraga., N. Anabuki., A. Bamba., I. Hatsukade., T. Kohmura. et al, “Soft X-ray Imager (SXI) onboard ASTRO-H” SPIE, Space Telescopes and Instrumentation 2010, San Diego, USA, 6 月 30 日
- (65) T. Kohmura., T. Watanabe., K. Kawai., S. Kitamoto., H. Murakami., E. Takenaka., K. Nagasaki., K. Higashi., M. Yoshida., H. Tsunemi., K. Hayasida, et al, “Measuring the EUV and optical transmission of optical blocking layer for x-ray CCD camera” SPIE, Space Telescopes and Instrumentation 2010, San Diego, USA, 7 月 1 日
- (66) 河合耕平、幸村孝由、渡辺辰雄、小川大樹、池田翔馬、牛山薫、金子健太、川島成輝(工学院大学)、北本俊二、村上弘志(立教大学)、常深博、林田清、中嶋大、穴吹直久(大阪大学)、鶴剛(京都大学)、堂谷忠靖、尾崎正伸 (ISAS/JAXA)、森浩二(宮崎大学)、平賀純子(東京大学)、他 SXI チーム、“薄膜フィルムをコーティングした新型 X 線 CCD の研究開発”, 第 40 回天文・天体物理若手夏の学校, ホテル日航豊橋, 8 月 3 日
- (67) 小川大樹、金子健太、幸村孝由(工学院大)、本田章浩(東京大学)、“GEM(Gas Electron Multipulier)を用いた高エネルギー帯の X 線検出”, 第 40 回天文・天体物理若手夏の学校, ホテル日航豊橋, 8 月 3 日
- (68) 幸村孝由、河合耕平、渡辺辰雄、池田翔馬、牛山薫、北本俊二、村上弘志、八木橋伸佳、水野瑛己、轟章太郎、坂田和也、常深博、林田清、中嶋大、穴吹直久、内田裕之、上田周太朗、鶴剛、堂谷忠靖、尾崎正伸、馬場彩、藤永貴久、森浩二、平賀純子、“ASTRO-H 衛星搭載 X 線 CCD カメラ (SXI) の可視光・紫外線遮断用フィルムの開発”, 日本物理学会 2010 年秋季年会, 九州工業大学, 9 月 10 日
- (69) 轟章太郎、北本俊二、村上弘志(立教大理)、松本浩典(名古屋大理)、林田清、常深博、中嶋大(大阪大理)、幸村孝由(工学院大) 小山勝二、鶴剛(京大理)、森浩二(宮崎大工) 堂谷忠靖、尾崎正伸、辻本匡弘、馬場彩 (ISAS/JAXA)、他すざく XIS チーム、“すざく衛星搭載 XIS の OBF の破れの評価”, 日本天文学会 2010 年秋季年会, 金沢大学, 9 月 22 日
- (70) 小川大樹、幸村孝由、河合耕平、渡辺辰雄、池田翔馬、牛山薫、金子健太、川島成輝、高橋泰樹、工藤幸寛(工学院大)、常深博、林田清、中嶋

- 大 (大阪大)、鶴剛 (京都大)、堂谷忠靖、尾崎正伸 (ISAS/JAXA)、北本俊二、村上弘志 (立教大)、鎌田有紀子 (国立天文台)、SXI チーム, “宇宙 X 線用 CCD の赤外線遮光対策”, 日本天文学会 2010 年秋季年会, 金沢大学, 9 月 22 日
- (71) 河合耕平、幸村孝由、渡辺辰雄、小川大樹、池田翔馬、牛山薫 (工学院大)、常深博、林田清、中嶋大、穴吹直久、上田周太郎 (大阪大)、鶴剛 (京都大)、堂谷忠靖、尾崎正伸 (ISAS/JAXA)、北本俊二、村上弘志 (立教大)、SXI チーム, “X 線天文衛星 ASTRO-H 搭載 X 線 CCD カメラ (SXI) の可視光遮断対策”, 日本天文学会 2010 年秋季年会, 金沢大学, 9 月 22 日
- (72) 藤川真里、中嶋大、上田周太郎、小松聖児、森秀樹、内田裕之、穴吹直久、林田清、常深博 (大阪大学)、尾崎正伸、池田博一 (JAXA 宇宙研)、John P. Doty (Noqsi Aerospace Ltd.)、鶴剛 (京都大学)、幸村孝由 (工学院大学)、他 ASTRO-H SXI チーム, “ASTRO-H 搭載用軟 X 線撮像検出器 (SXI) 信号処理用 ASIC の開発の現状”, 日本天文学会 2010 年秋季年会, 金沢大学, 9 月 22 日
- (73) 金子健太、小川大樹、幸村孝由 (工学院大学)、本田章浩 (東京大学), “工学院大学における GEM 研究の現状”, 第 7 回 Micro Pattern Gas Detector 研究会, 山形大学, 11 月 27 日
- (74) 河合耕平、渡辺辰雄、池田翔馬、牛山薫、金子健太、幸村孝由 (工学院大学)、北本俊二、村上弘志 (立教大学)、常深博、林田清、穴吹直久、中嶋大、上田周太郎 (大阪大学)、鶴剛 (京都大学)、堂谷忠靖、尾崎正伸、馬場彩、藤永貴久、松田桂子 (ISAS/JAXA)、平賀純子 (東京大学)、森浩二 (宮崎大学), 第 11 回宇宙科学シンポジウム, JAXA 宇宙科学研究所 相模原キャンパス, 1 月 6 日
- (75) 金子健太、小川大樹、幸村孝由 (工学院大学)、本田章浩 (東京大学), “ガス電子増幅器 (GEM) の硬 X 線検出器への応用”, 第 11 回宇宙科学シンポジウム, JAXA 宇宙科学研究所 相模原キャンパス, 1 月 6 日
- (76) 渡辺辰雄、幸村孝由、河合耕平、池田翔馬、牛山薫、金子健太 (工学院大学)、北本俊二、村上弘志 (立教大学)、常深博、林田清、穴吹直久、中嶋大、上田周太郎 (大阪大学)、鶴剛 (京都大学)、堂谷忠靖、尾崎正伸、馬場彩、藤永貴久、松田桂子 (ISAS/JAXA)、平賀純子 (東京大学)、森浩二 (宮崎大学), “X 線天文衛星 ASTRO-H 搭載 X 線 CCD (SXI) の紫外線対策”, 第 24 回日本放射光学会・放射光科学合同シンポジウム, つくば国際会議, 1 月 10 日
- (77) 河合耕平、渡辺辰雄、池田翔馬、牛山薫、金子健太、幸村孝由 (工学院大学)、北本俊二、村上弘志 (立教大学)、常深博、林田清、穴吹直久、中嶋大、上田周太郎 (大阪大学)、鶴剛 (京都大学)、堂谷忠靖、尾崎正伸、馬場彩、藤永貴久、松田桂子 (ISAS/JAXA)、平賀純子 (東京大学)、森浩二 (宮崎大学), “可視光・紫外線遮光用フィルムをコートした裏面照射型 CCD の軟 X 線に対する応答の研究”, 第 28 回 PF シンポジウム, つくば国際会議場, 3 月 14 日
- (78) 幸村孝由、河合耕平、渡辺辰雄、池田翔馬、牛山薫、金子健太 (工学院大学)、北本俊二、村上弘志 (立教大学)、常深博、林田清、穴吹直久、中嶋大、上田周太郎 (大阪大学)、鶴剛 (京都大学)、堂谷忠靖、尾崎正伸、馬場彩、藤永貴久、松田桂子 (ISAS/JAXA)、平賀純子 (東京大学)、森浩二 (宮崎大学), “ASTRO-H 衛星搭載 X 線用 CCD の可視光・紫外線遮光対策”, 第 28 回 PF シンポジウム, つくば国際会議, 3 月 14 日
- (79) 上田周太郎、中嶋大、林田清、森秀樹、藤川真里、穴吹直久、常深博、幸村孝由、他 ASTRO-H/SXI チーム, “ASTRO-H 搭載軟 X 線カメラ (SXI) 用 CCD 素子の性能評価 (II): SXI プロトモデル素子の低エネルギー応答の改善”, 日本物理学会 2011 年春季年会, 新潟大学
- (80) 鶴剛、常深博、林田清、中嶋大、穴吹直久、堂谷忠靖、尾崎正伸、馬場彩、幸村孝由、村上弘志、平賀純子、森浩二、廿日出勇、山内誠、他 SXI チーム, “X 線天文衛星 ASTRO-H 搭載 X 線 CCD カメラ SXI の開発の現状”, 日本物理学会 2011 年春季年会, 新潟大学

氷海船舶の船体氷荷重分布推定手法の高度化

工学院大学 工学部機械工学科 金野 祥久

海上技術安全研究所 流体設計系 松澤 孝俊

Enhancement of Estimation Method for Distribution of Ice Loads on Ship in Ice

Akihisa Konno, Department of Mechanical Engineering
Takatoshi Matsuzawa, National Maritime Research Institute

ABSTRACT: Finnish-Swedish ice class rules (FSICR) require resistance estimation of ship navigation in a brash ice channel with a certain condition. The resistance is often evaluated by model experiments. We have been developing a numerical estimation method on the basis of physically-based modelling. The developed method can evaluate ship resistance qualitatively, but quantitative estimation and validation were insufficient. To validate the numerical evaluation method, we conduct model tests in National Maritime Research Institute, Japan and numerical simulations that correspond to the model tests. Numerical simulations with different keel angles and with CCGS Terry Fox are also conducted. As a result, the behaviors of ice pieces are close each other. Resistances with different keel angle agree with those of FSICR rule formula when the channel filled with spherical ice pieces is used. With the ship model of CCGS Terry Fox, resistances agree with experimental results by Wang et al. (IJOPE (19), 2009, 206-213). Issues with numerical simulations are discussed.

1. はじめに

近年の原油価格の高騰や 2010 年のロシア・ノルウェー間大陸棚海域境界画定等を契機として、氷海域でのエネルギー資源開発が活発化している。我が国近郊でも、1999 年にオホーツク海北部のサハリン沖で石油・天然ガスの商業生産がはじまっている。また地球温暖化の影響で北極海の海氷が減少しているため、北極海航路を通航する船舶がここ数年で大幅に増えている[1]。これに伴い砕氷型あるいは耐氷型船舶への関心が高まり、アイスクラスを保有する船舶も年々増加している。

砕氷船または耐氷型海洋構造物を設計するに際してその砕氷・耐氷性能を予測するためには、現時点では氷海試験水槽での模型試験がもっとも有効で現実的な方法だと考えられる。特に設計の最終段階では、船型模型を作成して実験し、その設計の有効性を確認する必要がある。しかし設計の初期の段階で、多くの設計パラメータに対して最適な値を見つけようとするときには、氷海試験

水槽での模型試験は安易に実施できる方法ではない。現在、日本で稼動している氷海試験水槽は独立行政法人海上技術安全研究所が所有する水槽およびジャパンマリニュナイテッド（株）が所有する水槽のみである。また氷海水槽の実験では氷を張る必要があり、1 枚の氷に対して実施可能な実験内容は限定されるなどの理由から、多数の実験を行うには時間的・予算的な制約を受ける。

開水中を航行する船舶の抵抗等の評価では数値解析が利用されるようになってきている。氷海を航行する船舶では上記のような実験上の制約があることから、数値解析による抵抗等の評価は開水中船舶以上に意義があると考えられる。しかし実際には氷海を航行する船舶の性能解析手法は、開水中での解析ほどに信頼できるとは言い難い。

このような数値解析による性能評価が求められている状況のひとつに、水路中に砕氷片が密集した小氷片密集水路 (brash ice channel) を航行する船舶の性能解析が挙げられる。北極海やバルト海では、砕氷船が先行して形成した水路を商船 (必ずしも砕氷船型ではない) が航

行することが頻繁にある。brash ice channel 中を航行するときの抵抗は平坦氷中砕氷抵抗の約 80%となる場合があることが知られている[2]。バルト海航行船舶の認証規則 (Finnish-Swedish Ice Class Rules[3], 以下 FSICR) では brash ice channel を航行する際の抵抗と必要機関動力の評価を義務づけている。

このルールでは数値解析での評価により認証を受けることも可能であるが、brash ice channel 中の抵抗評価手法の研究はほとんど行われていないのが現状である。これは brash ice channel 中の航行では、多数の氷片が周囲の氷片、氷板や船体および流体と相互干渉しながら並進・回転する現象が本質なので、これまで研究されてきた開水中での船体抵抗評価手法、または平坦氷砕氷時の評価手法が応用できないことが大きな要因である。

著者らのグループでは 2003 年から、船体周りの氷片運動の解析手法を研究・開発してきた。物理ベースモデリングと呼ばれる解析手法を適用し、船体まわりでの複数氷片の衝突と摩擦を伴う運動の解析を可能とした。これまでの成果として、単純形状船型模型を用いた水槽試験との比較によりその正当性を確認しているほか、この解析手法に基づく船体抵抗の評価にも取り組み一定の成果を挙げている。2009 年度からは科学研究費 (若手研究 (B), 2009~2010 年度, 21760671 および基盤研究 (C), 2011 年度~2013 年度, 23560974) および造船学術研究推進機構 (2009 年度) の補助を受けて研究しており、計算規模の拡大への対処や解析条件の確立などの成果を得ている。またこれまで船体全体に作用する氷荷重を船体抵抗として捉えて解析してきたが、各氷片の衝突・接触を追跡することにより、船体に作用する局所氷荷重を評価することができるようになってきている。これにより、FSICR が求める船舶の安全性評価に対応する解析を行う見通しが得られたと考えている。

局所氷荷重評価の研究の弱点として、実験結果を用いた解析結果の検証が不十分であることが挙げられる。これは適切な比較対象となる実験データや文献が少なく、特に船型と氷片の初期条件を明記している研究報告が非常に限られることが大きな要因である。

本プロジェクト研究では、この弱点を海上技術安全研究所の所有する氷海試験水槽を用いた実験によって補い、氷荷重分布を数値解析によって予測する手法を確立することを具体的な目標とする。数値解析を工学院大学で行い、対応する水槽試験を海上技術安全研究所で行う。

2011 年度までに、数値解析により水路中抵抗の解析条件への依存性を詳細に調査し、氷片配置の影響はわずかにあるものの顕著ではないこと、水路遠方での氷片運動の拘束 (先詰まり) は水路中抵抗にほとんど影響しないこと、流れ場が各氷片に与える流体力の評価手法は水路中抵抗に影響するが、流れ場の解析手法はあまり影響しないこと、氷片の形状分布の影響は顕著であり、適切な形状分布を選択することで予測精度を向上できる可能性があることなどを見いだした。また数値解析に供する水

路モデルの作成方法を再検討し、任意の密接度での解析を実現したほか、consolidated layer (水路中の結氷層) の影響を数値解析に取り入れた。

2012 年度には、これまで開発してきた解析手法の妥当性を 3 つの方法で検証している。はじめに単純形状船型模型を用いた水槽試験と対応する数値解析により、氷片の挙動を比較し、妥当性を示す。次にこの解析で用いた単純形状船型模型の船首形状を変え、それに伴う抵抗変化が FSICR の評価式と同様の傾向にあることを示す。最後に、実船船型模型を用いた水槽試験データ (文献値) を用いて、実船船型での解析の妥当性を定量的に評価し、よく一致することを示す。

2. 実験・解析手法および条件

2.1 氷片挙動と氷荷重の解析手法—物理ベースモデリング

氷片運動および氷荷重の解析のためには、氷片と船体、および氷片同士の衝突、摩擦を取り扱う必要がある。特に brash ice channel の解析を行うことを考えると、氷片の大きさは船幅の 1/10~1/100 のオーダーでありこれが水路中に密集しているため、多数の小物体同士の衝突、摩擦を伴った運動を取り扱う手法が必要である。

本研究では、先行する研究[4]~[9]と同様に物理ベースモデリング (Physically Based Modeling) と呼ばれる手法[10][11]を氷片運動の解析に適用している。物理ベースモデリングとは、物体の衝突、摩擦を含めた運動を解くための手法の一つである。本研究では、主として物理ベースモデリングのライブラリである Open Dynamics Engine (ODE) [12]を利用して氷片運動を解析するプログラムを作成し、解析に供する。解析手法の詳細は著者らの論文[5]で報告している。本研究では ODE バージョン 0.11.1 および 0.12 を改造し多数氷片を扱えるようにしたものを利用した。

2.2 水槽試験および対応する数値解析

水槽試験を海上技術安全研究所氷海試験水槽において実施している。この実験ではポリプロピレン製の模擬氷を廃した水路を作成し、この水路に模型船舶を曳航して、作用する水路中抵抗を解析するとともに、模擬氷の挙動を撮影し観察した。これに対応する数値解析を実施し、その結果を比較して解析の妥当性を評価する。

実験における模擬氷は直径 0.040 m の球形で、密度は実測で 840~850 kg/m³であった。氷片数は 7000 個である。氷片の初期配置の一例を Fig. 1 に示す。

模型船型には、海上技術安全研究所で用いられている単純形状船型模型 B-063 を用いた。B-063 の形状および映像を Fig. 2 に示す。

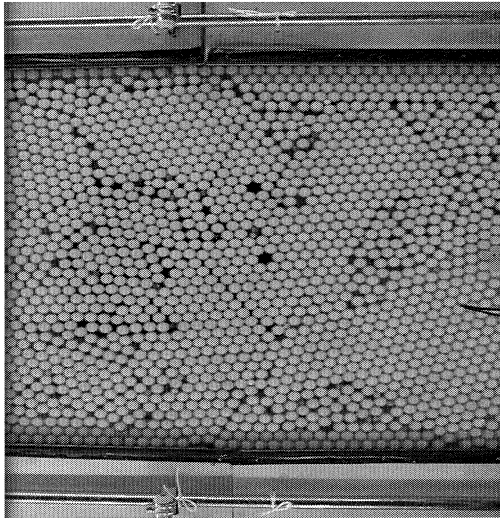


Fig. 1 Initial arrangement of PP balls

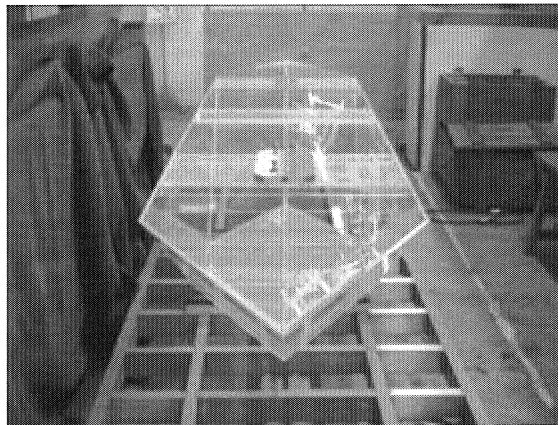
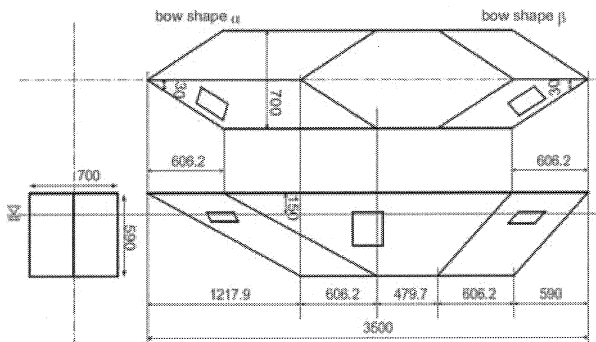


Fig. 2 Model ship B-063

Table 1 Analytical conditions

Case name	Average ice size	Number of ice pieces	Ratio of spherical and cubic ice pieces
RA1-01	0.041m	10000	3:7
RA1-02	0.041m	10000	5:5
RA1-03	0.041m	10000	7:3
RA1-04	0.041m	10000	8:2
RA1-05	0.041m	10000	9:1
RA1-06	0.041m	10000	10:0
RB1-01	0.0205m	80000	3:7
RB1-02	0.0205m	80000	5:5
RB1-03	0.0205m	80000	7:3
RB1-04	0.0205m	80000	8:2
RB1-05	0.0205m	80000	9:1
RB1-06	0.0205m	80000	10:0

数値解析では水槽試験に合わせて、すべて球形氷片で直径 0.040 m の球形、密度は 800 kg/m^3 および 840 kg/m^3 の条件で解析した。また、流れ場の与え方として、オープンソース流れ場解析ソフトウェア OpenFOAM を用いて船体周りの流れ場（開水中の流れ場であり氷片は考慮していない）を与えた場合と、静水場を考慮した場合との 2 種類の解析を実施した。このほか、水路周囲壁面と氷片との摩擦係数が不明だったため、これもパラメタとして複数解析した。

2.3 船首角度の変化に起因する氷荷重変化の妥当性検証

FSICR では水槽試験や実船試験に基づく抵抗評価式を定めている。この評価式は船首形状等を入力パラメタとし、比較的簡単な数式で抵抗を評価する。FSICR ではこの評価式、またはより精度の高い計算方法または模型試験により、船舶の小氷片密集水路中抵抗を評価することが求められている。現時点では、より精度の高い計算方法として確立されたものがなく、また模型実験は評価式よりも低い抵抗を示すことが多いことから[14]、実船の認証プロセスではこの評価式を使うことはほとんど無い。しかし単純形状船型模型を用いた場合の抵抗値、および船首形状を変化させたときの抵抗変化の傾向は数値解析と一致することが期待できると考え、この評価式と数値解析結果との比較を試みる。

解析には、単純形状船型模型 B-063 をベースに船首角を変え、4 種類の船舶モデルを作成、使用する。船首角は 30° 、 45° 、 60° 、 75° の 4 種類とした。また解析対象とした水路幅は 1.394 m とした。

氷片のサイズおよび個数、球形氷片と立方体氷片の割合を変えて解析した。Table 1 に解析条件の一覧を示す。水路の初期氷片配置作成には著者らが開発した方法[18]を用いている。

2.4 実船型模型を用いた水槽実験結果との比較

これまでの解析では単純形状船型模型およびそれから派生した形状のみを用いてきたが、解析の妥当性を示すためには実船型での解析と結果表かが不可欠である。

本研究の範囲内では実船船型を用いた模型実験を実施できなかったため、文献データとの比較を試みる。

船型データは造船会社の機密であることが多く、船型データ、氷片の初期配置および計測された抵抗値のすべてを記述した論文は少ない。本研究では Wang らが行った CCGS Terry Fox 模型による実験結果[15]を比較対象とした。船型データは O'Brien and Lau[16]に示された線図から得る。Fig. 3に作成した船型を示す。

解析条件は、Wang らの論文[15]に示されている”one-layer brash ice experiments”の実験条件に合わせる。解析の初期状態をFig. 4に示す。氷片は 99 mm × 99 mm で厚さ 23 mm である。これを 96000 個配置する。船速は実験に合わせて 0.10 m/s, 0.30 m/s, 0.55 m/s, 0.71 m/s とした。

模型船と氷片との摩擦係数は 0 と設定した。FSICR のガイドライン[17]では摩擦係数を 0.05~0.1 と設定するように求めている。本研究で 0 と設定した理由は、摩擦係数を 0 以外に設定した場合に、シミュレーション内で Fig. 5のように氷片が船体に付着するという現象が観察されたためである。これは非物理的な付着であり、何らかのエラーが原因だと考えられるが、現時点ではその原因を特定できていない。氷片の摩擦の船体抵抗に対する寄与は低いと考え、摩擦係数を 0 と設定することでこの不具合を回避した。

氷片-氷片間の摩擦係数は論文やガイドラインには記されていないため、氷片-船体間摩擦係数の最大値である 0.1 を採用した。ないクーロン摩擦を想定している。

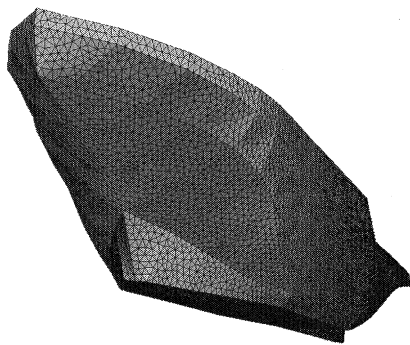


Fig. 3 Numerical model of CCGS Terry Fox

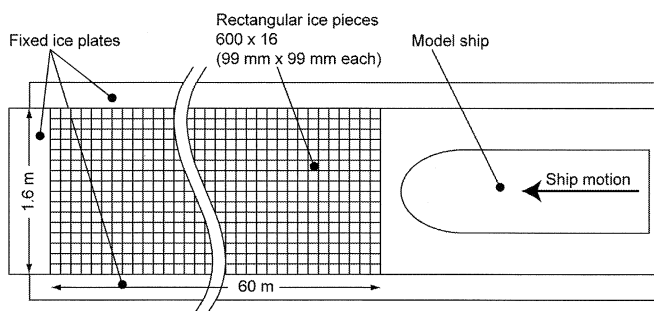


Fig. 4 Initial arrangement of ice pieces. Top view

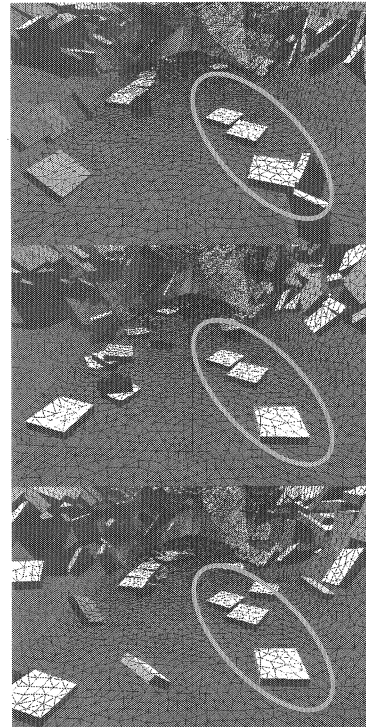


Fig. 5 Unphysical adhesion of ice pieces at the ship bottom. Carriage velocity 0.71 m/s, ice-ship friction coefficient 0.1. View from inside the ship toward the ship bow.

3. 実験・解析結果

3.1 水槽試験および対応する数値解析

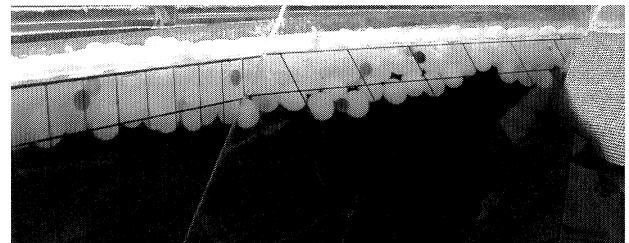


Fig. 6 Motion of PP balls (ice pieces) in model experiment, view from inside the ship

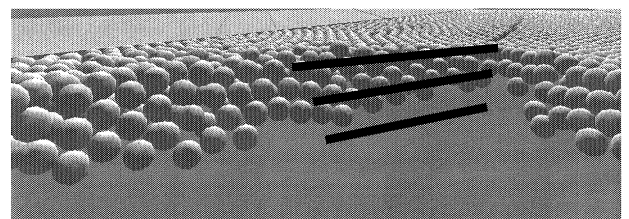


Fig. 7 Motion of PP balls (ice pieces) in numerical simulation, view from inside the ship

水槽試験および対応する数値解析における氷片 (PP 球) の挙動をFig. 6およびFig. 7にそれぞれ示す。いずれも船首付近で、船体模型内部からの視点で表示されている。

数値解析では、氷片と壁面との摩擦係数、流れ場の有無、浮力などのパラメータを振って解析した。その結果、

OpenFOAMによって解析された流れ場を用い、密度 800 kg/m³、氷片一壁面間摩擦係数 1.0 とした解析結果の氷片挙動が最も実験と近かった。Fig. 7は上記の条件での解析結果である。氷片挙動を実験と一致させるには流れ場の与え方が重要であることが分かる。

3.2 船首角度の変化に起因する氷荷重変化の妥当性検証

Fig. 8～Fig. 15に、数値解析による水路中抵抗の時間変化を示す。いずれの場合も、球体の氷片割合が多いほど抵抗値が小さいことが分かる。球体の氷片の方が立方体の氷片よりも引っかかりが少ないため小さい抵抗で水路を航行できることを示しており、妥当な結果である。

解析結果を基に算出した実船スケールの抵抗値とFSICRの公式より算出した抵抗値を比較したのがFig. 16 (氷片数 10,000 個) およびFig. 17 (同 80,000 個) である。氷片数が 10,000 個の場合は氷片割合が 9 : 1 のときに抵抗値が FSICR 評価式に最も近づいた。また氷片数 80,000 個の場合は氷片割合が 10 : 0 のときに最も近づいた。

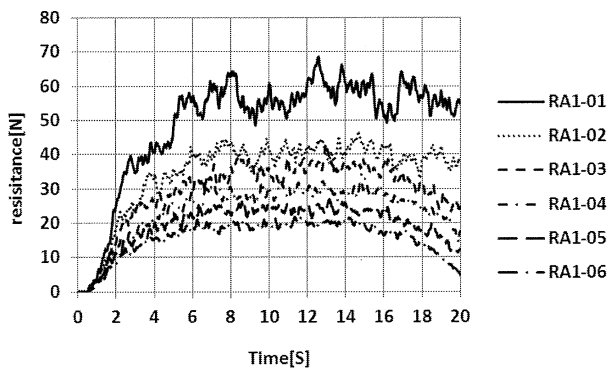


Fig. 8 Time histories of channel resistances, keel angle 30 deg., number of ice pieces 10000.

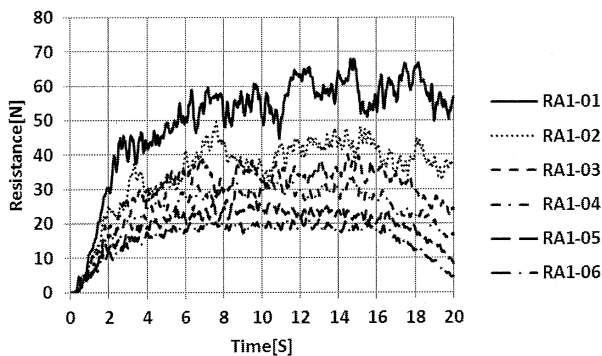


Fig. 9 Time histories of channel resistances, keel angle 45 deg., number of ice pieces 10000.

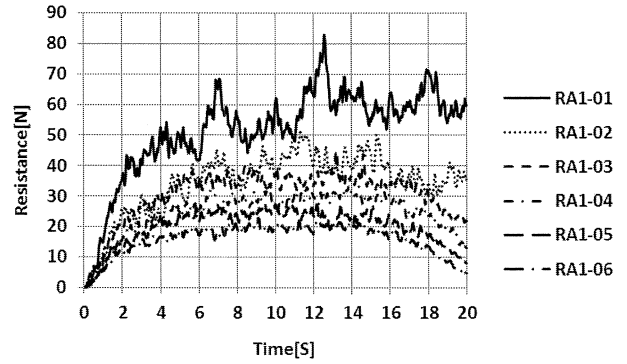


Fig. 10 Time histories of channel resistances, keel angle 60 deg., number of ice pieces 10000.

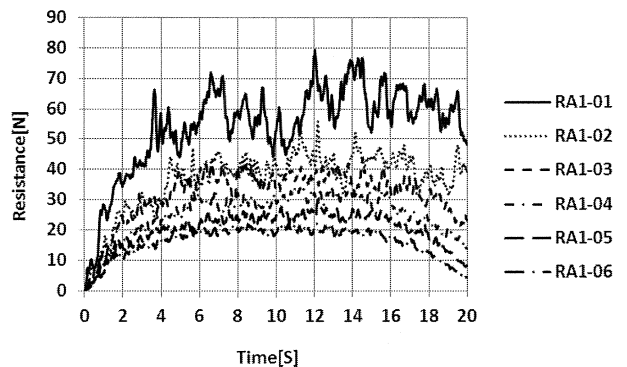


Fig. 11 Time histories of channel resistances, keel angle 75 deg., number of ice pieces 10000.

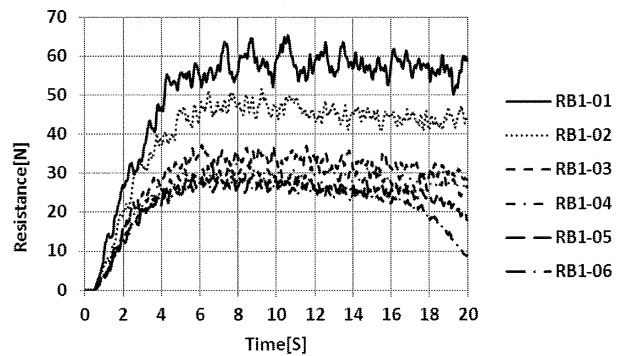


Fig. 12 Time histories of channel resistances, keel angle 30 deg., number of ice pieces 80000.

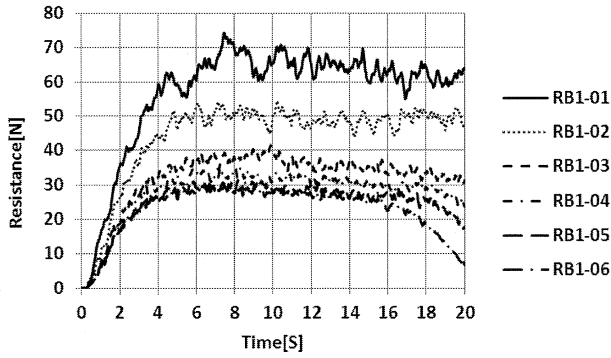


Fig. 13 Time histories of channel resistances, keel angle 45 deg., number of ice pieces 80000.

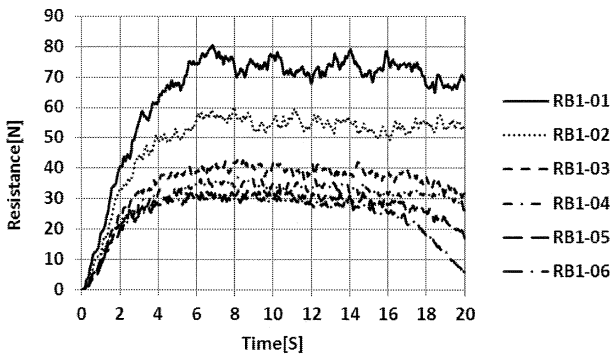


Fig. 14 Time histories of channel resistances, keel angle 60 deg., number of ice pieces 80000.

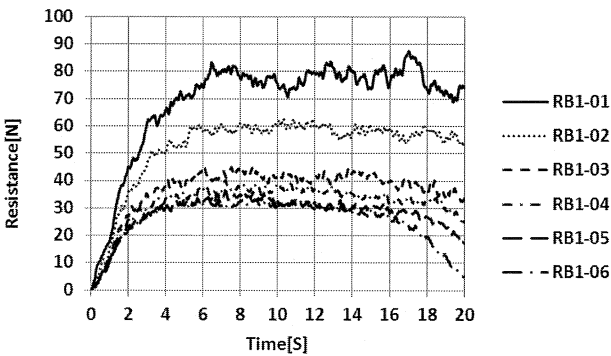


Fig. 15 Time histories of channel resistances, keel angle 75 deg., number of ice pieces 80000.

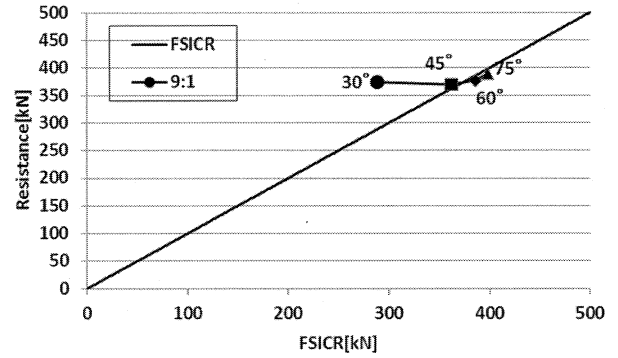


Fig. 16 Comparison of channel resistances calculated with numerical simulations against those with FSICR rule formula; number of ice pieces 10000.

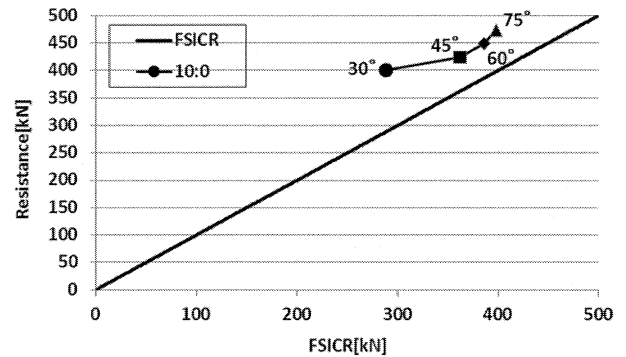


Fig. 17 Comparison of channel resistances calculated with numerical simulations against those with FSICR rule formula; number of ice pieces 80000.

3.3 実船船型模型を用いた水槽実験結果との比較

Fig. 18に実船船型模型を用いた水槽実験を再現した数値解析の一例を示す。船速は0.71 m/sである。氷片は船首部で左右に押し分けられた後、船首の傾斜に沿って沈むが、多くの氷片は船底まで潜り込まずに再び浮上する。船速が遅いケース (0.10 m/s, 0.30 m/s, 0.55 m/s) では、船底部に潜り込む氷片は観察されないが、船速0.71 m/sの場合は複数の氷片が船底まで潜り込む様子が観察された。

氷片は水路を敷き詰めており隙間がほとんど無いため、氷片の運動は周囲氷片の制約を受ける。このため、氷片は船首部に押し分けられたあとも周囲氷片と同様の動きを見せる場合が多い。特に縦方向 (進行方向) の列を崩さずに運動する様子が見て取れる。

Table 2およびFig. 19に、比較対象としたWangらの実験結果[15]による水路抵抗およびその標準偏差と、本解析で求められた水路抵抗とを示す。Fig. 19のエラーバーは±1標準偏差を表している。船速0.10 m/s, 0.55 m/sおよび0.71 m/sにおいて、数値解析結果は模型実験での抵抗値±1標準偏差内に収まっている。船速0.30 m/sでは、数値解析結果は模型実験での抵抗値±1標準偏差よりわずかに低い値となった。

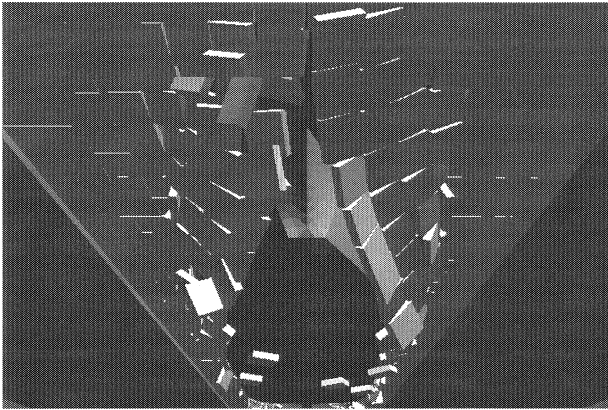


Fig. 18 A snapshot of the simulation (carriage velocity 0.71 m/s)

Table 2 Resistances in experiments by Wang et al. (2009) and present simulations

Carriage velocity [m/s]	Experiments (Wang et al., 2009)		Present simulation
	Resistance [N]	Standard deviation [N]	Resistance [N]
0.10	7.5	3.9	4.99
0.30	14.3	4.2	9.18
0.55	23.9	9.3	24.29
0.71	32.0	10.8	41.04

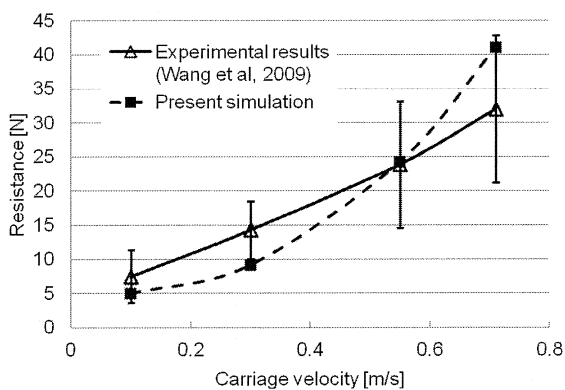


Fig. 19 Comparison of numerically estimated resistance with experimental results by Wang et al. (2009) with error bar ($\pm 1SD$)

4. 考察

単純形状船型模型を用いた水槽試験との比較において、船舶周りの流れ場を与えた場合に、氷片の運動がおおよそ一致した。本研究では流れ場を開水中・乱流・定常解析で与えており、氷片の存在による流れの変化や、氷片まわりの流れ場の詳細な解析は行っていない。このことから、適切な流れ場を与えることにより氷片の挙動をある程度まで再現できることが示唆される。一方で氷片の挙動が得に問題になるような現象、例えばプロペラへの氷

片の流れ込みや干渉を議論するためには、流れ場の詳細な解析方法が必要になると考えられる。

解析結果を基に算出した実船スケールの抵抗値とFSICRの公式より算出した抵抗値との比較では、球形氷片の割合が多い場合に、FSICRと近い解析結果を得ることが分かった。

第1章で述べたように、FSICRの評価式は抵抗を過大評価する傾向があるため、評価式と数値解析結果の値が一致したから妥当であるとは言えない。しかし今回用いている船型が単純形状船型であること、船首角を変えた解析でも同様の結果を得ていることから、球形氷片を用いた解析で、水路抵抗を定量的にも評価できていると予想される。

一方、立方体氷片の割合が多い場合には抵抗を過大評価する。今回の解析に用いた氷片-氷片間摩擦係数は1.35と設定しているが、これは氷片が密集して形成されるridge-keelの打ち抜き試験によって求められた摩擦係数を基にしている[19][20]。この摩擦係数には、氷片間の引っかかりや付着による抵抗成分を含んでいると考えられる。従って立方体氷片を入れて解析すると、氷片間の引っかかりによる抵抗成分を二重に入れて解析していることになっており、このため抵抗を過大に評価していると考えられる。

実船船型模型による水槽試験との比較では、船速0.30 m/sで数値解析結果が模型実験での抵抗値 ± 1 標準偏差よりわずかに低い値となったもののおおよそ一致し、本研究で開発した解析結果が定量的にも水槽試験結果を再現できることが分かった。ただし船速の増加に対する抵抗の増加傾向は異なっているように見える。船速が今回の解析範囲よりも大きい場合、例えば0.8 m/sでも定量的に合うのか疑問が残る。この点は今後の課題であり、より広い範囲で水槽試験と数値解析との比較解析を行うことが望ましいと考えている。

この解析では、船底部に氷片が付着するという問題があったため、氷片-船体間摩擦係数をゼロと設定している。氷片の運動はまわりの氷片との位置関係に強く制約され、船体との摩擦の影響は小さいと考えられること、また氷片-船体間摩擦の抵抗への寄与は船首部に作用する氷片の浮力成分や流体力成分に比べて小さいと考えられることから、氷片-船体間摩擦係数をゼロと設定したことによる影響は小さいと考えている。しかし実際の摩擦係数は0.05であり(Wangらの論文[15]の共著者からの情報)、これを入れられなかったのはプログラムの不具合で、修正が必要である。

今回の数値解析では氷片-船体間摩擦係数をゼロ以外に設定した場合の非物理的な付着のほかに、船体の非物理的振動が観察された。数値解析内では、船体は大きな質量(10²⁴ kg)を持った仮想台車に仮想ジョイントを用いて取り付けられ、この台車に初速度を与えることにより、船体を動かしている。このため船体が振動するような復原力は働いていない。にもかかわらず船体の振動が

観測されたことは、数値解析上の不具合であると考えられる。仮想的なジョイントによる接続が振動の原因だと推測しているが、詳細な原因究明および対策には至っていない。

5. まとめ

本研究は、数値シミュレーションの抵抗評価の信頼性向上を目指し、2011年度までに開発した **brash ice channel** を航行する船舶の運動の解析手法の妥当性を3つの方法で検証している。

はじめに単純形状船型模型を用いた水槽試験と対応する数値解析により、氷片の挙動を比較し、船体周り流れ場を適切に取り入れることにより、氷片挙動がおおよそ一致することを示した。

次に単純形状船型模型の船首形状を変え、それに伴う抵抗変化を **FSICR** の評価式と比較したところ、球形氷片の割合が多い場合に、評価式と解析結果が定量的に一致することが分かった。この理由として、用いている氷片—氷片間の摩擦係数には氷片の形状に起因する引っかかりや付着の成分がすでに含まれており、立方体氷片などを用いると氷片どうしの引っかかりによる抵抗成分が二重に取り入れられていると考えられる。

最後に、実船船型模型を用いた水槽試験データ（文献値）を用いて、実船船型での解析の妥当性を定量的に評価した。その結果、実験結果と解析結果がよく一致することを示した。

現時点で残された課題として、数値解析においては船体に対する氷片の非物理的な付着が見られること、船体の非物理的振動などが挙げられる。また、氷荷重の分布については、解析は行えるものの、妥当性の評価が不十分である。

本研究は工学院大学総合研究所プロジェクト研究費（2010年度～2012年度）のほか、科学研究費補助金（若手研究(B), 2009～2010年度, 21760671 および基盤研究(C), 2011年度～2013年度, 23560974) および造船学術研究推進機構（2009年度）の補助を受けた。ここに記して謝意を表する。

参考文献

- [1] Natsuhiko Otsuka, Koh Izumiyama and Masahiko Furuichi, STUDY ON FEASIBILITY OF THE NORTHERN SEA ROUTE FROM RECENT VOYAGES, Proceedings of the 22nd International Conference on Port and Ocean Engineering under Arctic Conditions, USB Memory (POAC13_225), 2013.
- [2] 野澤和男, 氷海工学, 成山堂書店, 2006.
- [3] Finnish Maritime Administration. Guidelines for the application of the Finnish-Swedish ice class rules. Finnish Maritime Administration Bulletin No. 14/20.12.2005, 2005.
- [4] 金野祥久, 水城崇, 山本敬介, 安木正樹, 若生大輔, 瀧本忠教, 金田成雄, 下田春人, 泉山耕. 砕氷船の性能評価を目的とした船体周りの氷片挙動シミュレータの開発. 日本船舶海洋工学会論文集, Vol. 8, pp. 99-106, 2008.
- [5] 金野祥久, 吉本和弘. 物理ベースモデリングに基づく **brash ice channel** 航行船舶の抵抗評価手法の開発. 日本船舶海洋工学会論文集, Vol. 10, pp. 49-56, 2009.
- [6] 金野祥久, 吉本和弘. 船舶のチャンネル内氷片排除能力の数値シミュレーションによる推定. 寒地技術論文・報告集, Vol. 23, pp. 208-212, 2007.
- [7] 金野祥久, 吉本和弘. 船舶のチャンネル内氷片排除能力の数値シミュレーションによる推定(第2報: **brash ice channel** における氷片排除能力の評価). 寒地技術論文・報告集, Vol. 24, pp. 222-226, 2008.
- [8] Akihisa Konno, RESISTANCE EVALUATION OF SHIP NAVIGATION IN BRASH ICE CHANNELS WITH PHYSICALLY BASED MODELING, 20th International Conference on Port and Ocean Engineering under Arctic Conditions 2009, June 2009.
- [9] 金野祥久, 齋藤耕. 船舶のチャンネル内氷片排除能力の数値シミュレーションによる推定(第3報: 氷片排除能力に対する氷片配置と垂線間長の影響). 寒地技術論文・報告集, Vol. 25, pp. 202-206, December 2009. CD-ROM.
- [10] David Baraff. Physically based modeling: Principles and practice; rigid body simulation I; unconstrained rigid body dynamics. Siggraph '97 Course notes, 1997.
- [11] David Baraff. Physically based modeling: Principles and practice; rigid body simulation II; nonpenetration constraints. Siggraph '97 Course notes, 1997.
- [12] Russel Smith. Open Dynamics Engine v0.5 User Guide, 2004. <http://www.ode.org/> (2010年10月25日確認).
- [13] Hoerner, S. F., Fluid-dynamic drag: practical information on aerodynamic drag and hydrodynamic resistance. Hoerner Fluid Dynamics, 438pp. 1965.
- [14] Jens-Holger Hellmann, Karl-Heinz Rupp and Walter L. Kuehnlein, MODEL TESTS IN BRASH ICE CHANNELS, Proceedings of 24th International Conference on Offshore Mechanics and Arctic Engineering (OMAE 2005), CD-ROM, 2005.
- [15] Jungyong Wang, Michael Lau, Chun-Ju Lee and Seong-Rak Cho, Modeling of Brash Ice Channel and Tests with Model CCGS Terry Fox. International Journal of Offshore and Polar Engineering, 19, pp. 206-213, 2009.
- [16] O'Brien, M., Lau, M., Icebreaker Resistance Calculation for Various Hull Forms. NRC Report

SR-2010-27, National Research Council, Canada, 2010.

[17] Finnish Maritime Administration. Guidelines for the application of the Finnish-Swedish ice class rules. Finnish Maritime Administration Bulletin No. 14/20.12.2005, 2005.

[18] Akihisa Konno and Osamu Saitoh. Preparation method of numerical ice channel and its evaluation for simulation of navigation in ice. In Proceedings of the 25th International Symposium on Okhotsk Sea & Sea Ice, pp. 154-159, 2010.

[19] E. B. Karulin and M. M. Karulina, Simulation of ridge keel behaviour in direct shear and punch tests by discrete element method, In Ice in the Environment: Proceedings of the 16th IAHR International Symposium on Ice, pp. 143-151, 2002.

[20] Y. Matsuo, S. Kochkin, S. Yokoyama, H. Kondo, S. Kioka, and H. Saeki, Experimental study on the shear strength of the unconsolidated layer model of ice ridge, In Proceedings of The 18th International Symposium on Okhotsk Sea & Sea Ice, pp. 215-220, 2003.

本プロジェクト研究の成果

① 発表論文

1. 金野祥久, 船舶のチャンネル内氷片排除能力の数値シミュレーションによる推定(第4報: 氷片排除能力に対する船体周り流れ場の影響). 寒地技術論文・報告集, Vol. 26, pp. 6-10, 2010. CD-ROM.
2. 金野祥久, 中根明裕, 船舶や海洋構造物と氷片の干渉解析を目的とした物理計算ライブラリの比較検討, 寒地技術論文・報告集, Vol. 28, pp. 1-6, 2012.

② 学会発表

1. Akihisa Konno and Osamu Saitoh. Preparation method of numerical ice channel and its evaluation for simulation of navigation in ice. In Proceedings of the 25th International Symposium on Okhotsk Sea & Sea Ice, pp. 154-159, 2010.
2. Yuuki Watanabe and Akihisa Konno, Investigation of effect of flow and channel condition against brash ice channel resistance, Proceedings of the 26th International Symposium on Okhotsk Sea & Sea Ice, pp. 103-109, 2011.
3. Akihisa Konno, Osamu Saitoh and Yuuki Watanabe, NUMERICAL INVESTIGATION OF EFFECT OF CHANNEL CONDITION AGAINST SHIP RESISTANCE IN BRASH ICE CHANNELS, Proceedings of the 21st International Conference on Port and Ocean Engineering under Arctic Conditions, USB Memory (POAC11-037), 2011.

4. Daisuke Ishibashi, Shota Sano and Akihisa Konno, Model-scale experiments of ship collision with a single ice floe, Proceedings of the 28th International Symposium on Okhotsk Sea & Sea Ice, pp. 137-140, 2013.
5. Show Asoh, Motoharu Sano and Akihisa Konno, Numerical simulation of ship collision with a single ice floe, Proceedings of the 28th International Symposium on Okhotsk Sea & Sea Ice, pp. 141-144, 2013.
6. Satoshi Kanamori and Akihisa Konno, Effect of ship shape representation for numerical estimation of channel resistance, Proceedings of the 28th International Symposium on Okhotsk Sea & Sea Ice, pp. 145-148, 2013.
7. Kazuki Sato and Akihisa Konno, Numerical investigation of effect of ship bow shape against channel resistance, Proceedings of the 28th International Symposium on Okhotsk Sea & Sea Ice, pp. 149-152, 2013.
8. Ryuji Yamagishi and Akihisa Konno, Level ice representation for physically-based simulation of ice-structure interaction, Proceedings of the 28th International Symposium on Okhotsk Sea & Sea Ice, pp. 153-156, 2013.
9. Akihisa Konno, Akihiro Nakane and Satoshi Kanamori, VALIDATION OF NUMERICAL ESTIMATION OF BRASH ICE CHANNEL RESISTANCE WITH MODEL TEST, Proceedings of the 22nd International Conference on Port and Ocean Engineering under Arctic Conditions, USB Memory (POAC13_143), 2013

③ 特許出願

なし (プログラム登録 1件)

シンセティックジェットの流動特性に関する研究

—剛体壁近傍の噴流に及ぼす無次元ストロークの影響—

グローバルエンジニアリング学部機械創造工学科 佐藤光太郎

青山学院大学理工学部機械創造工学科 横田和彦

Study on the Flow Characteristics of Synthetic Jets

—Influence of Non-dimensional Stroke on Synthetic Jet near a Rigid Boundary—

Kotaro SATO, Faculty of Global Engineering, Kogakuin University

Kazuhiko YOKOTA, Faculty of Engineering Science, Aoyama Gakuin University

ABSTRACT : Jet flows have been applied in a number such as flow separation control, thrust generator, air curtain, processing machine and so on. Over the last decade, several studies have been carried out on the production of synthetic jets as a substitute of continuous jets. However, there are still a large number of unknown quantities, including details of the structure, the formation mechanism and Coanda effect of such jets. Especially, there is little report concerning the interaction between synthetic jet and a rigid boundary. The present study attempts to clarify some of the fundamental flow characteristics of synthetic jets near a rigid boundary, based on experiments and numerical simulations. Experimental flow visualizations are performed using the smoke wire method, and these results are compared with numerical results. To clarify the Coanda effect of synthetic jets, the influence of a rigid plane boundary on the behavior of synthetic jets with various L_0 values is also discussed by demonstrating the velocity/vorticity distribution in the flow field and the pressure distribution on the surface of a plane boundary. It is found that the temporal change in flow pattern and the horizontal distance from slot to jet flow attachment point depend on non-dimensional stroke L_0 .

Key Words: Synthetic Jet, Continuous Jet, Plane Boundary, Velocity Distribution, Coanda effect, Smoke Wire Method

1. 緒 論

今日では工業製品の生産過程だけでなく、日常生活の様々な場面で噴流技術の発展を目にすることができるが、その背景には長い噴流研究の歴史がある^{(1),(2)}。最近では噴流を利用した流れの制御に関する研究⁽³⁾が盛んに行われ、噴流による境界層・失速制御、循環制御、抵抗低減などが試みられている。一方、これまでの連続噴流の代わりにシンセティックジェットを利用して流れを制御する研究も始まっている⁽⁴⁾⁻⁽¹³⁾。既存のシンセティックジェット・アクチュエータにはプラズマ方式やダイアフラム

式、ピエゾ駆動型、スピーカー型などがあり、いずれも機械的駆動部分が少ないため小型化・マイクロ化に適している。また、駆動源に多様性があることもシンセティックジェットの大きな特徴であり、将来的には非接触でのエネルギー供給も可能になると思われる。そのため、シンセティックジェットはマイクロ飛行体における推力・揚力生成あるいは生体内埋め込み型マイクロポンプや自走式カプセル内視鏡などへの応用が期待される。これまでのシンセティックジェットに関する研究では翼負圧面にシンセティックジェット・アクチュエータを取り付け翼の失

速制御⁽⁴⁾が行なわれてきた他、平均流の発生条件や生成メカニズム、基本流動特性に関連した噴流構造や非定常特性などが議論され一定の成果が報告されている^{(11)・(13)}。しかし、詳細な平均流の発生メカニズムや流動特性には未だに不明な点が多く残され、なかでもコアンダ効果に代表されるようなシンセティックジェットと境界面との干渉問題についての報告例は極めて少ない。特にシンセティックジェットを物体に働く流体力制御などに利用する上では、シンセティックジェットの挙動に及ぼす境界面の影響についての知見が極めて重要になるにも関わらず、今なお不十分なままである。

本研究ではコアンダ効果に注目しながら剛体壁近傍における二次元シンセティックジェットの流動特性について、実験的並びに数値的に解明を試みる。はじめに連続噴流とシンセティックジェットの流れ場の比較をスモークワイヤ法による可視化実験結果と数値計算結果の両面から行くとともに、シンセティックジェットのフローパターンに及ぼす無次元ストローク L_0 の影響について調べる。また、スロット中心を始点とした流線、速度ベクトル、渦度分布の時間的变化などから連続噴流とシンセティックジェットの挙動の同異並びにシンセティックジェットの流動特性に及ぼす L_0 の影響について議論する。さらに、剛体壁面上の時間平均速度分布と時間平均圧力分布から求められる噴流付着距離 X_{st} と L_0 との関係などを明らかにする。

2. 主な記号

- b_0 : スロット幅 = 5.0×10^{-3} [m]
- f : 振動数 [1/s]
- H : ステップ高さ (スロット中心から壁面までの距離) [m]
- H' : 数値計算でスロット中心から反壁面側 (上側) 境界までの距離 [m]

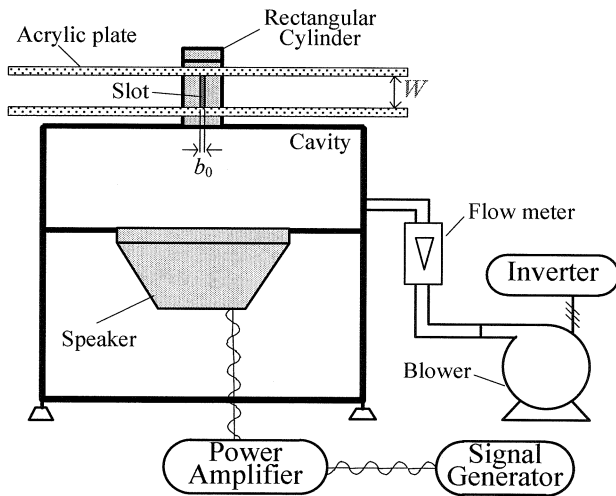
- l_0 : シンセティックジェットのストローク [m]
- L_0 : 無次元ストローク = l_0/b_0
- ReU_0 : U_0 に基づくレイノルズ数 = $U_0 b_0/\nu$
- t : 時間 [s]
- T : 出口速度振動の周期 [s]
- u_0 : スロットの出口流速 [m/s]
- U_{a0} : 連続噴流の時間平均出口速度 = u_{a0} [m/s]
- U_{s0} : シンセティックジェット噴出時のみを評価した時間平均出口速度 = $\frac{1}{T} \int_0^{T/2} u_{s0} dt$ [m/s]
- U_{sa} : シンセティックジェットの出口速度振動振幅 [m/s]
- u : x 方向速度 [m/s]
- v : y 方向速度 [m/s]
- ν : 動粘性係数 [m²/s]
- X_{st} : 噴流付着距離
- \bar{X}_{st} : 時間平均噴流付着距離
- y_{umax} : 噴流中心の y 座標
- τ : 無次元時間 = $t U_0/b_0$
- ω : 角振動数 [1/s]

下付

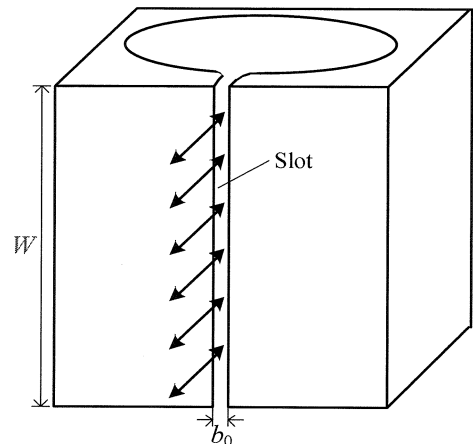
- c : 連続噴流
- s : シンセティックジェット

3. 実験装置および方法

図 1 に本実験で用いた実験装置の概略を示す。(a)は実験装置の全体概略図である。本実験における作動流体は空気である。スロット付き角柱はプレナムタンク上部に取り付けられ、両端はアクリル板により保持されていることから、スロット下流では概ね二次元の流れが実現されている。なお、本実験装置のプレナムタンクはヘルムホルツ共鳴周波数を約 30Hz (本研究では 10Hz~50Hz を使用) と仮定して設計・製作された。シンセティックジ



(a) Speaker-driven synthetic jet



(b) Magnified view of nozzle

Fig.1 Schematic of experimental apparatus

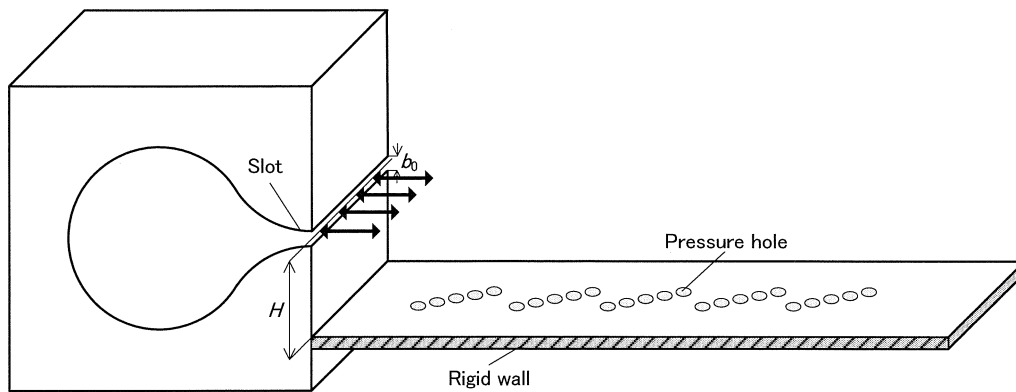


Fig.2 Schematic of experimental apparatus with rigid wall

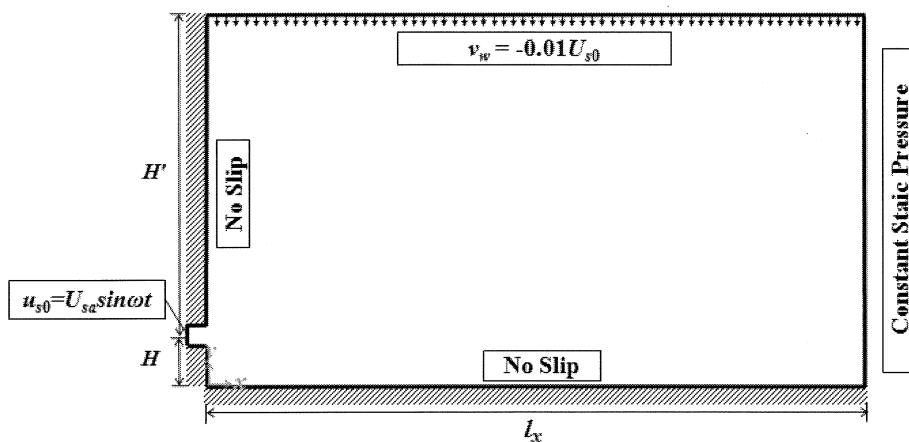


Fig.3 Numerical simulation domain and boundary conditions near rigid boundary

エットはシグナルジェネレータ(MCP LG1100D)とアンプ(Classic Pro V3000)でスピーカー(DIECOOK DD-15L)を駆動することで生成される。スピーカーの許出加圧レベルは91dB/1m/1wであり、本実験装置において再現性が保証される最大スロット出口速度振幅は50Hzで23.5m/sであった。一方、連続噴流の生成には送風機(昭和電機 U75-2-R313)を用いた。スロット出口流速はシンセティックジェットの場合はシグナルジェネレータとアンプで周波数及び電圧を調節することで、連続噴流ではインバータ(東芝 VFNC1-2007P)によって調整した。(b)は(a)のスロット部を含むテストセクションの拡大図である。スロットを有する角柱の内部は $R=30\text{mm}$ の円弧を組み合わせたノズル形状になっており、角柱スパン方向長さは $W=100\text{mm}$ である。連続噴流、シンセティックジェット噴出時に空気はプレナムタンクから(b)の角柱内円筒空洞部分に導かれ、方向を変えてノズルを通りスロットから噴出される。スロット幅 b_0 はスピーカーにより可変だが、本実験では $b_0=5\text{mm}$ で一定として実験を行った。したがって、本実験装置のスロットアスペクト比は $W/b_0=20$ である。

図2にスロット中心から H の距離に剛体壁が配された

場合の試験部拡大図を示す。剛体壁には直径1mmの圧力孔が45点設けられており、剛体壁表面圧力分布が計測可能である。圧力計測には微差圧計(岡野製作所 DMP301N)を用いた。本実験では剛体壁表面圧力分布から時間平均よどみ点が決まり、噴流の付着距離 X_{sc} が求められた。なお、本実験を通して使用した微差圧計の測定範囲は0~200Paで測定精度は $\pm 0.25\text{FS}\% \pm 1\text{dig}$ である。

可視化実験ではスロット出口から下流側に25mmすなわち $x/b_0=5$ 、スパン方向中央の位置にワイヤを設置し、煙を発生させた。スモークワイヤには直径0.35mmのニクロム線を使用し、発煙物質には流動パラフィンを用いた。なお、撮影には300fpsのデジタルカメラ(CASIO EX-F1)を使用し、測定部下流に光源(PHOTRON HVC-SL)を配した。ただし、可視化実験では流線の画質を確保するためにレイノルズ数を $ReU_0=990$ 、(可視化実験以外は $ReU_0=2430$)としている。

4. 数値シミュレーションモデル

数値シミュレーションには、非構造格子系熱流体解析システム SCRYU/Tetra for Windows [(株)ソフトウェア

クレイドル]を用いた。本研究では乱流モデルに $k-\epsilon$ モデルを採用し、二次元非圧縮粘性流れを仮定して流れ場の解析を行った。図3に剛体壁近傍でのシンセティックジェットの実験モデルと計算条件を示す。境界条件としてスロット出口には流速規定条件 ($u_{s0} = U_{sa} \sin \omega t$) を計算領域出口境界 ($x=420b_0$) では圧力一定条件を与えた。上側境界 ($H=380b_0$) では一定流速 ($v_w=0.01U_{s0}$) を与え、剛体壁表面上では no slip 条件を与えた。なお、本計算に用いたグリッド数は約 200,000 である。

5. 結果及び考察

5.1 剛体壁近傍でのシンセティックジェットのフローパターン

本研究では代表速度をシンセティックジェットの噴出時のみを評価した時間平均出口速度 U_0 、代表長さをスロット幅 b_0 とした。無次元ストローク L_0 、無次元ストロークに対応する無次元パラメータ K およびレイノルズ数を ReU_0 の詳細については前報⁽¹³⁾を参照されたい。ここでは主として代表速度 $U_{s0}=7.5\text{m/s}$ 、 $U_0=7.5\text{m/s}$ 、 $ReU_0=2430$ で得られた結果を示す。なお、本論文では壁面近傍でのシンセティックジェットに及ぼす無次元ストローク L_0 の影響について議論することから、オフセット比 $H/b_0=20$ (一定) の結果について述べる。

図4に数値計算で得られたスロット中心を始点とする流線を示す。連続噴流の $\tau=0\sim 15.0$ の結果を(a)に、シンセティックジェット噴出時 $t/T=0\sim 0.50$ で $L_0=3.14, 50, 150$ の結果をそれぞれ(b), (c), (d)に示す。ただし、シンセティックジェットの $t/T=0, t/T=0.50$ で厳密にはスロット出口流速 $u=0$ となるが、本図ではスロット出口中心線上において $u=+10^{-6}$ のオーダーで微小流速を有する点を始点として描かれた流線を $t/T=0$ および $t/T=0.50$ の流線とした。これまでの研究から剛体壁近傍の連続噴流はほぼ定常流れになることが知られていたが、本図(a)でも5本の流線はほぼ1本に重なっており、剛体壁近傍の連続噴流は極めて安定した流れであることが再確認できる。一方、シンセティックジェット(b), (c), (d)の場合には噴流の蛇行により流線が波状となる。無次元ストローク L_0 が大きくなるほど流線波形の波長が長くなり、振幅も大きくなっている。ただし、(b) $L_0=3.14$ の流線ではスロット出口近傍で小振幅の波形が観察される程度であるが、噴流の壁面付着に至るまでの流線の曲率に変化している。(c) $L_0=30$ では噴流が壁面に到達する直前まで流線が波状を示しているが、噴流付着点付近 ($x/b_0 \approx 30\sim 40$) より下流での噴流の蛇行は認められない。一方、(d) $L_0=150$ では噴流付着点付近 ($x/b_0 \approx 20\sim 60$) より下

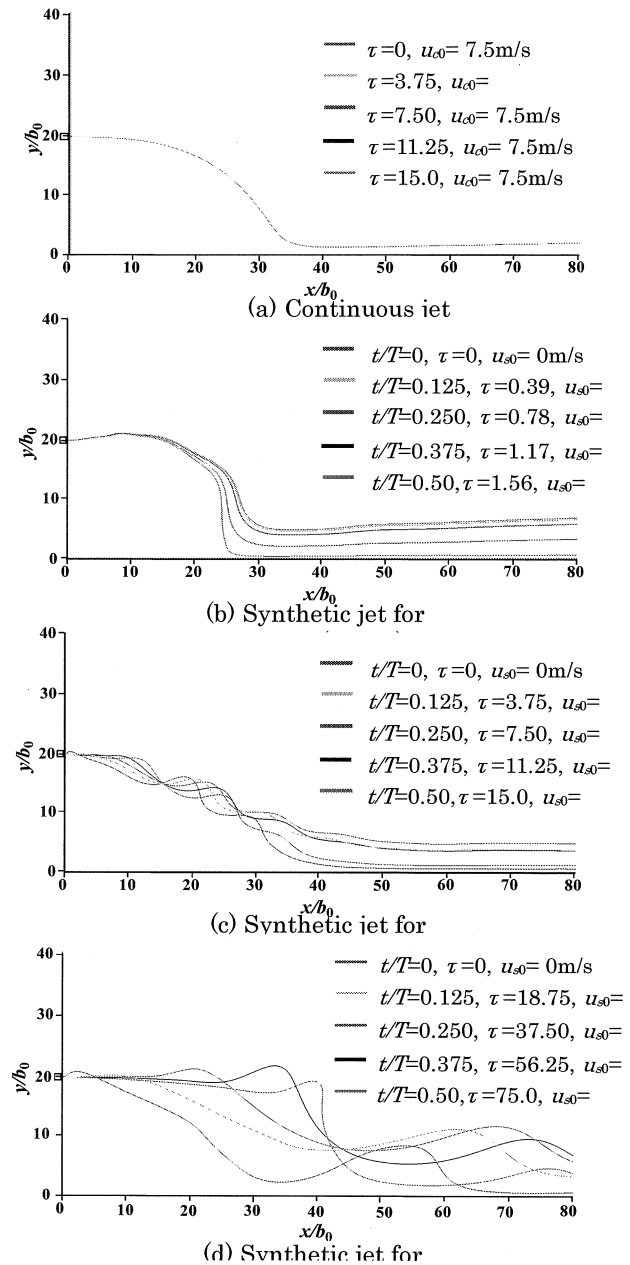
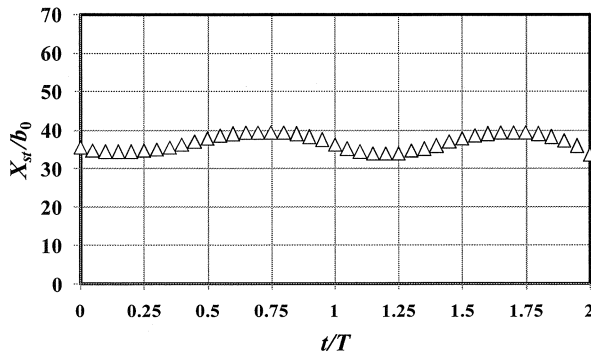


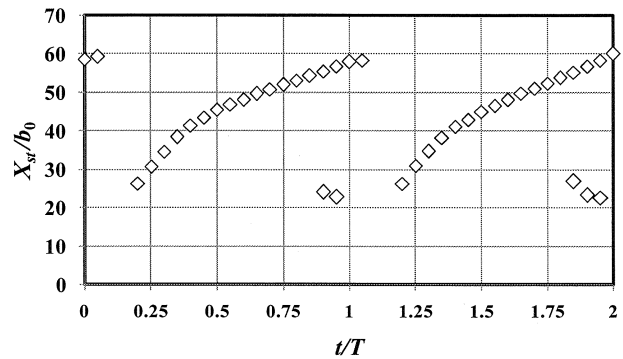
Fig.4 Stream line at center of slot pattern from numerical simulation ($H/b_0=20$)

流でも流線は波状となり、流れが蛇行している様子が観察できる。すなわち、噴流壁面衝突後も渦構造が消滅しないことから噴流は再び壁面から離脱し、その後壁面へ再付着する。したがって、同一オフセット比においても壁面近傍のシンセティックジェットは無次元ストローク L_0 によって流れ場に大きな違いがあることが明らかである。

5.2 シンセティックジェットの壁面付着



(a) Synthetic jet for $L_0=30$ ($K=9.55$)



(b) Synthetic jet for $L_0=150$

Fig.5 Jet reattachment length change with time ($H/b_0=20$)

図5に無次元噴流付着距離 X_{st}/b_0 の時間的变化を示す。本図では壁面表面近傍 ($y/b_0=0.01$) で x 軸に沿って速度を求め、 x 方向速度 u が負から正に変化する過程で $u=0$ となる点をよどみ点と定義し、原点からよどみ点までの距離を噴流付着距離 X_{st} とした。ただし、ここでは $x/b_0 \approx 0$ の角部に発生するコーナー渦に起因するよどみ点を排除するため、 $x/b_0 > 5$ で上記の条件を満足する点のみをプロットした。(a), (b)はそれぞれ $L_0=30, 150$ に対する計算結果である。(a) $L_0=30$ では前述の通り、スロット出口での非定常速度成分は渦が千鳥配列になることで下流へ伝わり、その結果、よどみ点位置が時間とともに一定範囲内で前後に移動するため、プロット点が波形となっている。なお、本条件ではスロット出口速度の時間波形と無次元噴流付着距離 X_{st}/b_0 の時間波形とは位相が概ね π ずれている。一方、(b) $L_0=150$ の場合には $t/T \approx 0.2$ で $x/b_0=25$ 付近によどみ点が現れた後、下流へ移動する。再び、 $t/T \approx 1.2$ で $x/b_0=25$ 付近に新たなよどみ点が現れ下流へ移動する様子が伺える。ここではストロークが大きいことから吸引過程終了直後に再循環領域が明瞭でなくなり、本図の定義に従うよどみ点が存在しなくなる時期 ($t/T \approx 0.1, 1.1$ 前後) がある。逆に $t/T \approx 0.9, 1.9$ 付近ではよどみ点が2箇所に見えるという状況が見られるが、上流側のよどみ点 ($x/b_0=23$ 付近) は再循環領域内で複数の渦が形成されることに起因するものであり、本研究で着目する噴流の壁面側への移動によるものではない。なお、図4(d)に示したように $L_0=150$ の場合には噴流が壁面に衝突した後も噴流に蛇行が見られることから、それに伴って壁面上の圧力分布には極大値が複数存在する場合がある。もし、よどみ点を圧力分布が極大値を示す点と定義するならば、本条件ではよどみ点が複数個存在したまま、それぞれのよどみ点は常に下流側へ移動すると考えられる。

図6は数値計算で得られた剛体壁近傍におけるシンセティックジェットの時間平均速度ベクトル図である。(a), (b), (c), (d)にそれぞれ連続噴流、 $L_0=3.14$ ($K=1.0$),

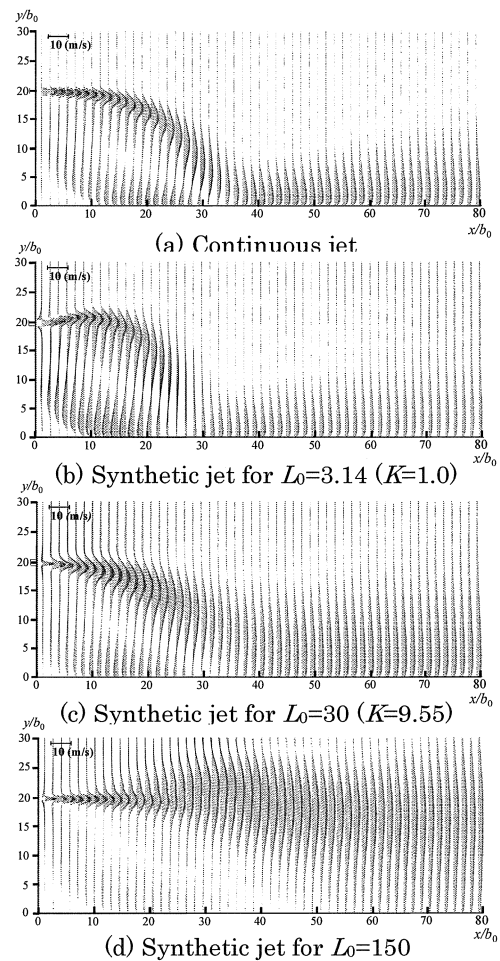


Fig.6 Time-averaged velocity vector and pressure field $L_0=30$ ($K=9.55$), $L_0=150$ ($K=47.76$) の場合を示す。(a), (b), (c)では噴流が弧を描くように壁面側に引き寄せられ、明瞭な再循環領域が形成されている様子が観察できる。噴流の付着距離 X_{st} は(b), (a), (c)の順に大きくなっている。ところが、(d) $L_0=150$ からはコアンダ効果により噴流が壁面側に引き寄せられるという印象はあまり与えられない。ただし、時間平均ベクトルからよどみ点の存在は確認でき、明瞭ではないものの再循環領域に相当する渦構造の存在は認められる。

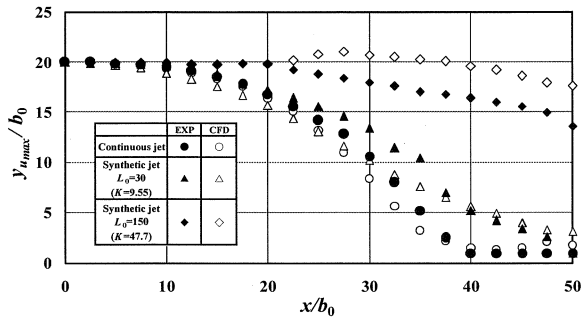


Fig.7 Migration of the jet center with the maximum velocity for $H/b_0=20$ (EXP: Experiment, CFD: Numerical simulation)

図7は実験並びに数値計算によって得られた壁面近傍における時間平均噴流中心（同一の x 座標において u の流速分布が最大値 u_{max} を示す y 座標） y_{umax}/b_0 の変化である。実験値を中空、計算値を中空のプロット点で示す。丸は連続噴流、三角が $L_0=30$ 、菱形が $L_0=150$ の結果を表し、それぞれ図6(a), (c), (d)に対応している。いずれの場合も実験結果と計算結果とに定量的な違いはあるものの、定性的には良好に一致していることがわかる。連続噴流と $L_0=30$ の場合には噴流がスロットを出た直後から噴流中心は壁面側へ引き寄せられるのに対し、 $L_0=150$ の場合は実験では $x/b_0 > 20$ から緩やかに壁面側への噴流中心移動が見られ、計算では $20 < x/b_0 < 26$ で噴流中心が壁面から遠ざかった後、 $x/b_0 > 26$ で徐々に壁面へ向かっている。本図の範囲 $x/b_0=50$ での噴流中心移動量は連続噴流、 $L_0=30$ の場合はオフセット比の概ね90%であるのに対して、 $L_0=150$ の移動量は実験で35%程度、計算で15%程度である。なお図6から、 $x/b_0 > 50$ でもこの傾向に大きな変化はないことが推察される。 $L_0=150$ では噴流が壁面に衝突して、よどみ点を形成するというよりは、図5(b)から読み取れたように噴流の挙動の時間変化が大きく、結果として時間平均噴流幅が拡大することでよどみ点が形成されると捉えることができる。これらの結果からオフセット比が等しくてもシンセティックジェットの挙動に及ぼす壁面効果は無次元ストロークに依って異なるものと考えられる。

図8に無次元ストローク L_0 と時間平均された無次元噴流付着距離 \bar{X}_{st}/b_0 の関係を示す。実験値を中空、計算値を中空のプロット点で表す。なお、本図では壁面表面上の時間平均圧力が最大を示す位置（よどみ点）を噴流付着点と定義し、原点から噴流付着点までの距離を噴流付着距離 \bar{X}_{st} とした。連続噴流の場合には噴流付着距離 \bar{X}_{st} はほぼオフセット比 H/b_0 のみで決定されるのに対して、シンセティックジェットでは実験、数値計算ともに噴流付着距離 \bar{X}_{st} は無次元ストローク L_0 に依存し、 L_0 が大きくなるほど \bar{X}_{st} が大きくなっている。実験結果と計算結果は定性的に一致しており、本条件での $L_0=150$ の

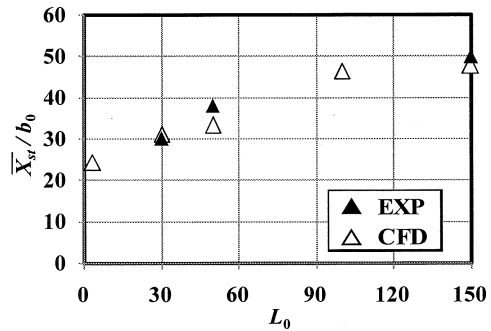


Fig.8 Relation between time averaged jet reattachment length and non-dimensional stroke L_0 ($H/b_0=20$) (EXP: Experiment, CFD: Numerical simulation)

噴流付着距離は $L_0=30$ の場合の1.6倍程度になることがわかる。なお、オフセット比 $H/b_0=20$ の連続噴流の無次元噴流付着距離は $\bar{X}_{st}/b_0=32$ 付近であるが、シンセティックジェットでは $L_0=30$ で、 $\bar{X}_{st}/b_0=30$ 前後となることから、大まかに言えば $L_0 < 30$ で連続噴流の付着距離より小さく、 $L_0 > 30$ で連続噴流の付着距離より大きくなる傾向にある。

6. 結 語

本研究では剛体壁近傍における二次元シンセティックジェットの基本流動特性を調べるため、実験並びに数値計算を行い、主として無次元ストローク L_0 の影響について調べた。主な結論を以下に示す。

1. スモークワイヤ法による流れの可視化および数値計算による速度ベクトル図、渦度分布から剛体壁近傍での渦対の挙動など典型的なフローパターンを観察し、実験結果と数値計算結果とが定性的に一致していることを示した。
2. 自由噴流状態でのシンセティックジェットは無次元ストローク L_0 の広い範囲で渦対が直線的に並進運動する対称な流れになるのに対して、剛体壁近傍でのシンセティックジェットは流れ場が非対称になることから、渦対の対称性が崩れて噴流は蛇行することがわかった。
3. 剛体壁近傍でのシンセティックジェットの挙動は同一のオフセット比 H/b_0 であっても、無次元ストローク L_0 に依存し、 L_0 によって流れ場が異なることが明らかになった。
4. 同一オフセット比 H/b_0 の場合、無次元ストローク L_0 が大きいほど、流線の時間的変化が大きいことを示した。
5. 噴流付着距離の時間的変化から無次元ストローク $L_0=30$ と $L_0=150$ では異なる特性を有していることがわかった。
6. 時間平均ベクトル並びに噴流中心移動からシンセティックジェットへ作用するコアンダ効果は無次元ストローク L_0 によって異なるがわかった。同一オフセ

ット比 H/b_0 に対しては L_0 が小さいほどコアンダ効果が顕著に表れる。

7. 時間平均噴流付着距離は無次元ストローク L_0 に依存し、 L_0 が大きくなるほど時間平均噴流付着距離が大きくなることがわかった。

文 献

- (1) 社河内敏彦, 噴流工学—基礎と応用—, 森北出版 (2004)
- (2) Rajaratnam, N., “Turbulent Jets”, Elsevier Scientific Publishing Company, Equation (1.93), (1976)
- (3) Joslin, R.D. and Jones, G.S., “Applications of Circulation Control Technology”, AIAA, Inc, Vol. 214 progress in astronautics and aeronautics (2006)
- (4) Duval, R., Hay, A., and Visonneau, M., “Optimal Location of a Synthetic Jet on an Airfoil for Stall Control”, *Journal of Fluid Engineering*, Vol.129 (2007), pp.825-833
- (5) Tensi, J., Boué, I., Paillé, F., and Dury, G., “Modification of the Wake behind a Circular Cylinder by Using Synthetic Jets”, *Journal of Visualization*, Vol.5, No.1 (2002), pp.37-44.
- (6) Whitehead, J. and Gursul, I., “Interaction of Synthetic Jet Propulsion with Airfoil Aerodynamics at Low Reynolds Numbers”, *AIAA Journal*, Vol. 44, No.8 (2006), pp. 1753-1766
- (7) You, D. and Moin, P., “Study of flow separation over an airfoil with synthetic jet control using large-eddy simulation”, *Annual Research Briefs, Center for Turbulence Research* (2007), pp.311-321.
- (8) Amitay, M., Glezer, A., Kibens, V., Parekh, D.E., and Smith, D.R., “Aerodynamic Flow Control over an Unconventional Airfoil Using Synthetic Jet Actuators” *AIAA Journal*, Vol. 39, No.3 (2001), pp.361-370
- (9) Shuster, J.M. and Smith, D.R., “An Experimental Study of the Formation and Scaling of a Round Synthetic Jet”, *Physics of Fluids*, Vol. 19-045109 (2007), pp.1-21
- (10) Zhang, P.F. and Wang, J.J., “Novel Signal Wave Pattern for Efficient Synthetic Jet Generation”, *AIAA Journal*, Vol. 45, No.5 (2007), pp.1058-1065
- (11) 高曾徹, 木下卓也, “環状シンセティック・ジェット・アクチュエータによる噴流の形成”, 日本機械学会年次大会講演論文集, Vol.2 (2006), pp.211-212
- (12) Holman, R., and Utturkar, Y., “Formation Criterion for Synthetic Jets”, *AIAA Journal*, Vol. 43, No.10 (2005), pp. 2110 -2116

- (13) 西部光一, 藤田祐樹, 佐藤光太郎, 横田和彦, シンセティックジェットの基本流動特性に関する研究 (第一報 自由噴流の挙動について), 日本機械学会論文集 (B 編) 77 巻 783 号 (2011), pp.2093-2104
- (14) 熊田雅弥, 馬淵幾未, 親川兼勇, “側壁を有する噴流による熱伝達の研究: 第3報, オフセットした平板上に再付着する二次元噴流による物質伝達”, 日本機械学会論文集, Vol.39, No.319 (1973), pp920-929

① 発表論文

なし

② 学会発表

1. Donghyuk Kang, Daichi Oka, Naoto Kawamura, Kazuhiko Yokota and Kotaro Sato, A NEW PUMP/THRUST WITH AN ASYMMETRIC FLOW CHANNEL EXCITED BY A RECOPROCATING PISTON, 5th International Symposium on Fluid Machinery and Fluids Engineering (ISFMFE 2012)
2. Donghyuk Kang, Yutaka Taguchi, Shigeo Takaki, Kazuhiko Yokota and Kotaro Sato, THE FLAGMILL-A NEW POWER GENERATOR UTILIZING FLEXIBLE SHEET FLUTTER, 5th International Symposium on Fluid Machinery and Fluids Engineering (ISFMFE 2012)
3. Masanori Kudo, Koichi Nishibe, Masayuki Takahashi and Kotaro Sato, Investigation on Flow Instabilities Downstream of Annular Inlet Guide Vanes, The 11th International Symposium on Advanced Technology, 2012.11
4. Koichi Nishibe, Masanori Kudo, Yuki Tanaka and Kotaro Sato, Study on Fundamental Flow Characteristics of Synthetic Jets, The 11th International Symposium on Advanced Technology, 2012.11
5. Masanori KUDO, Koichi NISHIBE, Masayuki TAKAHASHI, Kotaro SATO and Yoshinobu TSUJIMOTO, Study on Flow Characteristics Downstream of Annular Inlet Guide Vanes, ASME 2013 Fluids Engineering Division Summer Meeting, July7-11,2013, Incline Village, NEVADA (発表予定)
6. Yuhei ITO, Akira HIWATA and Kotaro SATO, Fundamental study on oil mist separation in swirl flow, ASME 2013 Fluids Engineering Division Summer Meeting, July7-11,2013, Incline Village, NEVADA (発表予定)
7. Koichi Nishibe, Kotaro Sato, Donghyuk Kang and Kazuhiko Yokota, Investigation on a synthetic jet

- actuator using bubble produced by electric discharge, Int. Conf. on Jets, Wakes and Separated Flows September, 2013, Nagoya (発表予定)
8. Masanori Kudo, Masayuki Takahashi, Kotaro Sato, Donghyuk Kang, Kazuhiko Yokota, Control of Flow Instabilities Induced between Two Parallel discs, Int. Conf. on Jets, Wakes and Separated Flows September, 2013, Nagoya (発表予定)
 9. 津野裕太郎, 渡邊匠, 姜東赫, 横田和彦, 佐藤光太郎, 孔開回転円筒の圧力損失特性, 日本機械学会関東支部第 18 期総会講演会論文集 (習志野), 2012.3.10
 10. 福島大海, 佐藤光太郎, 横田和彦, 円板型粘性マイクロポンプに関する研究, 日本機械学会東海支部第 61 期総会講演会論文集 (名古屋), 2012.3.15
 11. 田中雄貴, 根本篤, 西部光一, 佐藤光太郎, 武沢英樹, 気泡の運動により生成されるシンセティックジェット of の構造について, 日本機械学会東海支部第 61 期総会講演会論文集 (名古屋), 2012.3.16
 12. 廣瀬夏穂, 紙谷祐樹, 佐藤光太郎, 横田和彦, 循環制御翼周りの流れに関する研究, 日本機械学会東海支部第 61 期総会講演会論文集 (名古屋), 2012.3.16
 13. 工藤正規, 西部光一, 高橋政行, 佐藤光太郎, 辻本良信, 環状翼列により生成される旋回流に関する研究, 日本混相流学会年会講演会 2012(千葉), 2012.8.9
 14. 伊藤裕平, 鷺田晃, 森本敬, 佐藤光太郎, 旋回流中でのオイルミスト分離に関する基礎的研究, 日本混相流学会年会講演会 2012 (千葉), 2012.8.9
 15. 東美佳, 西部光一, 横田和彦, 佐藤光太郎, 壁面近傍におけるシンセティックジェットの流動特性に関する一考察, 日本混相流学会年会講演会 2012 (千葉), 2012.8.10
 16. 田中雄貴, 西部光一, 佐藤光太郎, 横田和彦, シンセティックジェット推進に関する基礎研究, 日本機械学会流体工学部門講演会講演論文集 (京都), 2012.11.18
 17. 工藤正規, 西部光一, 高橋政行, 佐藤光太郎, 辻本良信, 環状入口案内翼列下流の流動特性に関する研究, 日本機械学会流体工学部門講演会講演論文集 (京都), 2012.11.18
 18. 田口寛, 姜東赫, 横田和彦, 佐藤光太郎, フラッグミル - 柔軟シートフラッタによる新風力発電 -, 日本機械学会流体工学部門講演会講演論文集 (京都), 2012.11.18
 19. 岡大地, 佐藤光太郎, 姜東赫, 横田和彦, 側壁に設けたピストンの往復運動により生じる非対称流路内流れの実験, 計算, 解析, 日本機械学会流体工学部門講演会講演論文集 (京都), 2012.11.18
 20. 廣瀬夏穂, 姜東赫, 佐藤光太郎, 横田和彦, 単純形状の循環制御翼に生じる揚力特性, 日本機械学会中国四国支部第 51 期総会講演会文集 (高知), 2013.3.8
 21. 伊藤裕平, 鷺田晃, 姜東赫, 横田和彦, 佐藤光太郎, 旋回流を利用したオイルミスト分離に関する基礎的研究, 日本機械学会中国四国支部第 51 期総会講演会文集 (高知), 2013.3.8
 22. 藤原万理恵, 姜東赫, 島村泰輔, 横田和彦, 佐藤光太郎, 離散渦法によるシンセティックジェット流れのシミュレーション, 日本機械学会関東支部第 19 期総会講演会論文集 (東京), 2013.3.15
 23. 小瀬村達也, 姜東赫, 岡大地, 横田和彦, 佐藤光太郎, 側壁に設けたピストンの往復運動により生じる非対称流路内流れの PIV 計測, 日本機械学会関東支部第 19 期総会講演会論文集 (東京), 2013.3.15
 24. 杉田徹, 姜東赫, 渡邊匠, 横田和彦, 佐藤光太郎, 円形ダクト内回転円柱周りに生じる非定常流れの研究, 日本機械学会関東支部第 19 期総会講演会論文集 (東京), 2013.3.15
 25. 市原祐飛, 田口寛, 姜東赫, 佐藤光太郎, 横田和彦, 剛体・柔軟シートフラッタによる風力発電特性に関する実験的研究, 日本機械学会関東支部第 19 期総会講演会論文集 (東京), 2013.3.15
 26. 黒崎嘉斗, 内田匡哉, 横田和彦, 姜東赫, 佐藤光太郎, 二円板間の回転円柱周りに生じる非定常流れの計測, 日本機械学会関東支部第 19 期総会講演会論文集 (東京), 2013.3.15
- ③ 特許出願
なし

キチンの潜在能力を化学とバイオテクノロジーで拓く

工学院大学 工学部 応用化学科 小山文隆

工学院大学 工学部 応用化学科 菅原康里

工学院大学 工学部 応用化学科 坂口政吉

横浜市立大学 大学院医学研究科 神経内科学・脳卒中医学 土井 宏

Investigation of the new roles of chitin by means of chemistry and biotechnology

Fumitaka Oyama, Yasusato Sugahara, and Masayoshi Sakaguchi: Department of Applied Chemistry, Faculty of Engineering, Kogakuin University

Hiroshi Doi: Department of Neurology, Graduate School of Medicine, Yokohama City University

ABSTRACT : Two active chitinolytic enzymes, chitotriosidase (Chit1) and acidic mammalian chitinase (AMCase), have been identified in mice and humans. These chitinases are regarded as part of the host defense mechanism against chitin-containing pathogens and parasites. Mammalian chitinases have attracted considerable attention due to their increased expression in individuals with different pathological conditions. In this study, we developed a quantitative real-time RT-PCR system based on standard DNA to compare the expression levels in mice of two chitinases and three reference genes, GAPDH, β -actin and pepsinogen C, using the same scale. We found that AMCase mRNA is synthesized at extraordinarily high levels in the mouse stomach. Mouse tissues express more AMCase mRNA than Chit1 mRNA, with Chit1 mRNA being prevalent only in the eyes. AMCase mRNA is expressed at levels 7-10 fold higher than the levels of the housekeeping genes and at a level comparable with that of pepsinogen C (progastricsin) mRNA, a major component of the gastric mucosa. Thus, AMCase mRNA is a major transcript in mouse stomach, suggesting that AMCase functions as a digestive enzyme that breaks down polymeric chitin and as part of the host defense against chitin-containing pathogens in the gastric contents. Our methodology is applicable to the quantification of mRNAs for multiple genes across multiple specimens using the same scale.

1. はじめに

キチンは、*N*-アセチル-D-グルコサミンが β -1-4 結合した直鎖の高分子化合物で、自然界で二番目に多い多糖である。キチンは、真菌、甲殻類、昆虫の主要な構成成分として機能しているが、哺乳類では見つかっていない [1]。キチナーゼは、高分子キチ

ンの β -1-4 グリコシド結合を加水分解する。哺乳類はキチンやその合成酵素を生産しないが、二種類の活性のあるキチナーゼ、すなわちキトトリオンダーゼ (chitotriosidase, Chit1) と酸性哺乳類キチナーゼ (acidic mammalian chitinase, AMCase), を発現している [2, 3]。

Chit1 レベルは、常染色体劣性遺伝のリソソーム性蓄積病であるゴーシェ病の患者の血漿中で、著しく上昇する [4]。Chit1 は最初に精製、クローン化

された哺乳類キチナーゼである [5, 6]。劣性遺伝性の Chit1 活性の欠損は、コーカサス人 (白人) で一般的に観察される [7]。AMCase は、Chit1 の代償的役割により見付き、その至適 pH が酸性であることから命名された [8]。これらの哺乳類キチナーゼは、キチン含有病原体や寄生虫に対する生体防衛の一部として働くと考えられている [3, 9]。

Chit1 と AMCase は、分子量約 50 kDa のタンパク質として細胞外に分泌される。両タンパク質は、N-末端に触媒ドメイン、ヒンジ (分子上の折れ曲がる可動部) 領域、C-末端にキチン結合ドメインの三領域からなる [6, 8]。マウス AMCase は、Chit1 に対し、52% の同一性と 60% の類似性がある [10]。これらの構造上の類似性にも関わらず、これら酵素は酸性 pH での酵素化学的作用に関して著しい差異がある。AMCase は、顕著な至適 pH を有し、それは pH 2 であり、明確ではないけれども二番目の至適 pH を pH 4~7 にも有す [8]。他方 Chit1 は、pH 5 付近に広い至適 pH を有する [5, 11]。

哺乳類キチナーゼは様々な病的状況の患者でレベルが上昇するので、かなり注目を集めている。Chit1 レベルはゴーシェ病 [4]、慢性閉塞性肺疾患 (chronic obstructive pulmonary disease, COPD) [12]、アルツハイマー病 [13] および喫煙者 [14] で増加する。AMCase の発現と酵素活性は、喘息モデルマウスのアレルギー気道反応で過剰発現する [15]。さらに、高分子量キチンは AMCase の発現とアレルギーや喘息に関係する免疫細胞の動員を誘導する [16]。これらの結果は、キチン分解酵素が様々な病態生理的状況下で重要な役割を果たしていることを強く示唆する。しかし、これら酵素の病気の病態生理への貢献度合いは未だ十分に解明されていない。

我々は、Chit1 と AMCase mRNA レベルを定量し、対照遺伝子としてよく知られている遺伝子の発現レベルと比較することを計画した。このような mRNA 定量と遺伝子間でのレベルの比較は、哺乳類キチナーゼの生体内での制御を考える重要な手掛かりを得るための重要なステップである。最近、real-time PCR は、多くの mRNA レベルを定量する実験に広く用いられている。その理由は、この方法は一細胞の mRNA を検出するのに十分な感度を持つ、ことによる [17-20]。一般的な Real-time PCR では、注目している遺伝子の発現レベルを、すべてのサンプルでほぼ同じレベルで発現していると考えられている housekeeping 遺伝子の発現レベルで標準化している。しかし、この定量法では複数遺伝子間の mRNA レベルを同じスケールで比較することができない。

我々は、本研究において、定量 real-time RT-PCR システムを開発した。このシステムは、ターゲット

とする遺伝子の cDNA 断片を連結して作成した DNA を標準として用いる。このシステムは、キチナーゼと対照遺伝子の発現レベルを同じスケールで定量し、比較することを可能にした。その定量結果は、AMCase がマウスの胃において主要な転写産物であることを示した。

2. 実験材料と方法

RNA と cDNA の調製

この研究では、Mouse Total RNA Master Panel (Clontech Laboratories 社) を転写物のマウス組織分布を調べるために使用した。四種の胎生期と八種の成体組織を分析した。さらに、RNA は三ヶ月齢のオスのマウスの肺と胃から単離した。Total RNA は、製造者の推奨するプロトコールに従って、TRIzol Reagent (Invitrogen 社) を用いて肺と胃から調製した。わずかに混入するゲノム DNA を除去するため、total RNA サンプルを製造者のプロトコールに従って、RQ1 RNase-Free DNase (Promega 社) で処理した。核酸の濃度は、BioPhotometer Plus (Eppendorf 社) を用いて 260 nm での吸光度から求めた。次に、Random hexamer を primer として total RNA (3 µg) を鋳型に cDNA を合成した。反応液 (15 µl) は、酵素バッファー [終濃度は 50 mM Tris-HCl (pH 8.3), 75 mM KCl, 3 mM MgCl₂], random hexamer 100 ng, 10 mM DTT, 0.5 mM dNTPs より構成される。この反応液を 60 °C で 5 分間加熱し、37 °C で 5 分間保温後、組換えマウス白血球ウイルス逆転写酵素 (MuLV-reverse transcriptase, Invitrogen 社) を 200 U を加え、さらに 37 °C で 45 分間保温した。この逆転写反応は、95 °C で 5 分間の加熱で停止した。

Real-time PCR

Real-time PCR の primers は、Primer Express Software (Applied Biosystems 社) で設計し、その合成は Sigma-Genosys に依頼した (Sigma-Aldrich 社)。PCR 反応は、2 x SYBR Green Master Mix (Brilliant II SYBR Green QPCR Master Mix, Agilent 社)、マウス cDNA 2.7 ng または適当な標準 DNA の希釈液、キチナーゼ、pepsinogen C、glyceraldehyde-3-phosphate dehydrogenase (GAPDH)、β-actin の primers からなり、最終液量 13 µl で行った。標準的な real-time PCR は、Mx3005P (Agilent 社) を用いて行った。反応は、95 °C 10 分で DNA の変性とポリメラーゼ活性化を行った後、95 °C 1 分、55 °C 30 秒、72 °C 1 分で、この PCR 反応を 40 サイクル行った。反応産物の熱融解曲線は、PCR 増幅後に MxPro QPCR Software version 4.10 (Agilent 社) で作成した。

PCR 産物は、10% ポリアクリルアミドゲルで電気泳動し、Luminescent Image Analyzer (ImageQuant LAS 4000, GE Healthcare 社) で分析した。PCR 反応液を製造者のプロトコールに従って ExoSAP-IT (USB Products 社) で処理を行い、未反応の primer と dNTPs を除去した。ABI PRISM Big-Dye Terminator v3.1 Cycle Sequencing Kit と 3130 Genetic Analyzer (Applied Biosystems) を使って産物の塩基配列を決定した。

標準 DNA の構築

Real-time PCR によって転写産物のレベルを定量するための標準 template DNA (913 塩基対) は次のように構築した。AMCase, Chit1, pepsinogen C, GAPDH, β -actin の PCR ターゲット領域に、隣接した 9-120 塩基領域を加えた cDNA 断片を、*Bg*III, *Xho*I, *Pst*I, *Not*I (5'-または 3'-末端に) の制限酵素部位を含むオリゴヌクレオチド primers と KOD Plus DNA polymerase (Toyobo 社) を用い、製造者のプロトコールに従ってマウスの胃から調製した cDNA から増幅した。PCR 産物は、Wizard SV Gel and PCR Clean-Up System (Promega 社) を使って精製し、該当する制限酵素で処理を行った。得られた DNA 断片それぞれをアガロースゲル電気泳動と上述の Clean-Up System を使って精製し、T4 DNA ligase (Toyobo 社) で連結した。得られた DNA 断片は、forward primer 5'-GTGGATTCTGTGCCGACAAAGCAGATGGCC-3' と reverse primer 5'-TGGGTACATGGTGGTACCACCAGACAGCAC-3' を用いて KOD Plus DNA polymerase で増幅した。増幅した DNA の 3'-末端に Takara Taq HS (Takara Bio 社) を使って dA を付加し、上で述べた手順で精製した。得られた DNA は、TA cloning で pGEM-T Easy vector (Promega 社) にクローン化した。得られた plasmid の塩基配列は上記 DNA シーケンサーで確認した。五つの cDNA 断片からなる直線化した DNA は、同じ primers で KOD Plus DNA polymerase を使った PCR によってプラスミド DNA から再び増幅して調製した。増幅した DNA 断片は、上で述べたように精製、定量し、標準 DNA として使用した。

五つの全コード領域をカバーしている cDNA の調製

Real-time PCR による絶対定量法を検証するため、全コード領域 cDNA を調製した。二つのキチナーゼ (Chit1 と AMCase), 対照遺伝子 (GAPDH, β -actin, pepsinogen C) の五つの全コード領域をカバーする cDNA は、マウスの胃の cDNA から KOD Plus DNA polymerase で増幅し、pGEM-T Easy vector に TA クローニングにより挿入した。その cDNA の塩基配列

を決定し、目的産物の配列であることを確認した。サブクローニングした断片は、同じ primers を使ってプラスミド DNA から再び増幅し、全コード領域 cDNA として使用した。

標準曲線

複数の遺伝子の cDNA 断片から構成される標準 DNA のモル濃度は、溶液濃度と分子量に基づいて計算した。段階希釈は、Ct (Threshold Cycle, Ct = 閾値と増幅曲線が交わる点) が約 13 サイクルで得られる標準 template DNA の濃度で調製した。標準 DNA は、1 分子から 1,000 万分子の範囲で 10 倍ずつ段階希釈を行い、使用するまで一定量を -20 °C で凍結保存した。

標準曲線を使った real-time PCR による mRNA の定量

それぞれのサンプルは三度増幅し、それぞれの実験は少なくとも二回繰り返した。標準曲線を使って、Chit1, AMCase, GAPDH, β -actin, pepsinogen C mRNA の分子数を MxPro QPCR Software version 4.10 によって自動的に外挿で求めた。全ての値は、total RNA 10 ng あたりの分子数として表した。Ct 値は、MxPro QPCR Software で計算した。

3. 結果および考察

Real-time PCR 法の確立

マウスキチナーゼの重要性を研究するうえで重要なステップは、キチナーゼ転写物の発現レベルを信頼性高く定量する方法の確立である。ごく微量から多量に存在する mRNA の検出の目的には、現在の real-time RT-PCR が最も感度の良い定量法である。まず、Chit1 と AMCase 遺伝子の遺伝子発現レベルを比較することを考えた (図 1)。

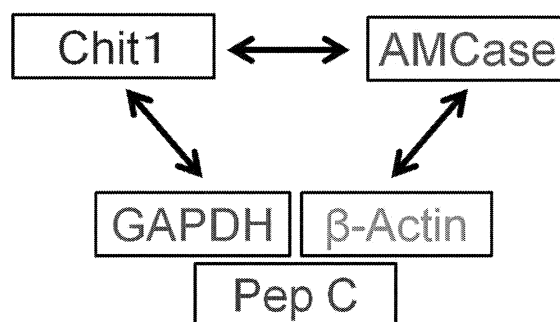


図 1. 五つの遺伝子発現レベルを比較するための戦略

キチナーゼの発現レベルを客観的に評価するため、ほとんどの組織や細胞において高いレベルで発

現することが知られている二つの housekeeping 遺伝子である, GAPDH と β -actin, を対照として使用した[21]。さらに, pepsinogen C (別名 progastricsin として知られている) を胃での対照遺伝子として用いた。Pepsinogen C は, 消化酵素として機能するアスパラギン酸プロテアーゼであり, 胃で生産される。この酵素は, 胃粘膜の主要な構成成分である[22]。これら三つの対照遺伝子を使って, Chit1 と AMCase の遺伝子発現レベルを評価した (図 1)。

まず, 定量 PCR のための primers を設計し, 適合性をその primer から増幅した産物が一つの熱融解温度 (T_m) を示すか, 10% ポリアクリルアミドゲルで一つのバンドかどうか, で評価した。そして, 産物の塩基配列も検証した。Primer の特異性を調べるために, それぞれの PCR 産物を四種の胎生期と八種の成体組織からなるマウス組織 cDNA 混合液を鋳型に実際の real-time PCR 条件の下で増幅し, 分析した。図 2A-E に示すように, Chit1 ($T_m = 79.7^\circ\text{C}$), AMCase ($T_m = 79.1^\circ\text{C}$), GAPDH ($T_m = 81.4^\circ\text{C}$), β -actin ($T_m = 82.0^\circ\text{C}$), pepsinogen C ($T_m = 81.4^\circ\text{C}$) で一つのピークが見られた。

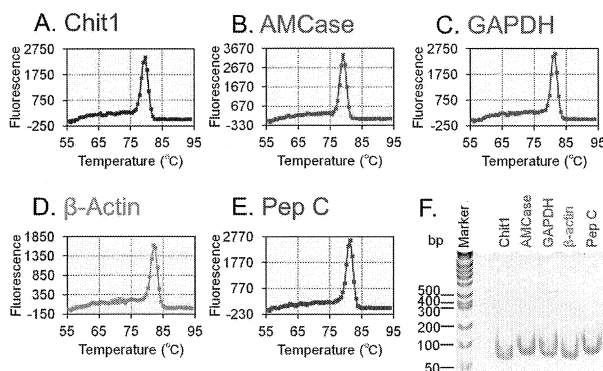


図 2. Real-time PCR 用の primer 適合性の評価

PCR 反応終了後, 10% ポリアクリルアミドゲル電気泳動で産物を分析した。ゲル電気泳動では, それぞれ Chit1 (69 bp), AMCase (81 bp), GAPDH (77 bp), β -actin (71 bp), pepsinogen C (82 bp) で期待サイズに明確な一つのバンドが認められた (図 2F)。PCR 産物のヌクレオチド配列は, 実験方法で述べた手順で直接決定した。以上の結果から, これらの PCR 産物がターゲット cDNA から増幅することを確認した (図 3B)。このことは, PCR 産物がターゲット cDNA から特異的に増幅されており, 本研究の実験条件下では mispriming は無視できる範囲であることを示している。

五つの遺伝子の遺伝子発現の定量, 遺伝子間比較のための標準 template DNA の作成

同じスケールで二つのキチナーゼと三つの対照遺伝子の発現レベルを定量し, 比較することを考えた (図 1)。この目的のため, 正確な定量のための標準 template を構築し, それを用いた定量 real-time PCR システムを確立した (図 3A)。五つの遺伝子断片を 1 分子ずつ連結した real-time PCR のための標準 DNA を構築した。その後, 実験方法で述べたように, 連結した DNA 断片を plasmid ベクターにクローン化した (図 3A)。913 塩基対の template DNA は, PCR ターゲット領域をカバーし, 隣接する 9-120 塩基領域を加えた五つの cDNA 断片と *Bgl*III, *Xho*I, *Pst*I, *Not*I の制限酵素部位を含んでいる (図 3A)。

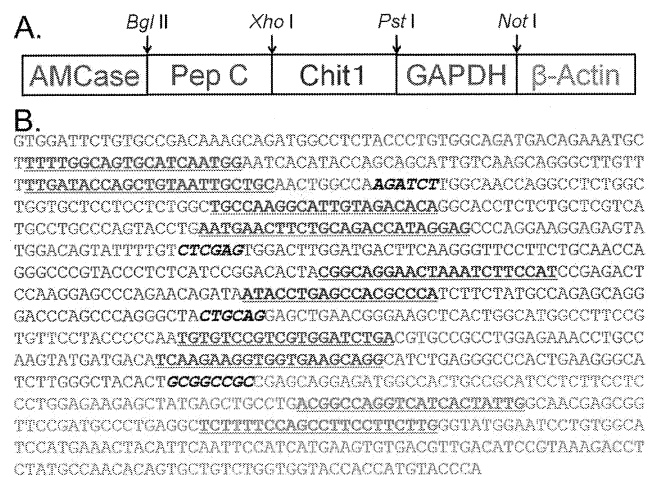


図 3. 標準 template DNA の作成

(A) Real-time PCR で使用する標準 template DNA の模式図。(B) 標準 template DNA の塩基配列。

標準曲線と定量 real-time PCR システムの検証

両キチナーゼと対照遺伝子の mRNA の定量は標準曲線に依存している。標準 template DNA の希釈系列は標準曲線を作成するために使用した。この標準曲線を使って, 五種類の mRNA を分析するために使う real-time PCR による定量を比較, 評価した。それぞれの標準曲線は, 五つの異なる primer pairs を使って, 標準 DNA を 10 倍ずつ段階希釈して作成した (図 4A-E, 左図)。

指数関数的増幅は広いレンジで維持され, 7 桁の広範囲にわたって測定が可能だった (図 4A-E, 左図)。五つの cDNA 断片からなる標準 template DNA を用いることによって, 標準曲線を作成するために使うそれぞれの希釈を五つ全ての遺伝子に割り当てることができた (図 4A-E, 右図)。

標準曲線が五つの遺伝子に対して絶対的に等量になっていることを示すために, 全コード領域をカバーしている既知濃度の cDNA を増幅し, 未知試料として解析した。この分析は, 希釈液が期待量得られているかを確認するために行った。図 4A-E の右

に示すように、標準曲線を作成するために使った量と等しい量の希釈にみられた (結果は示さず)。この方法で少量の転写物から多量の転写量が定量できることから、real-time PCR の感度と信頼性を確認することができた。このことは、この real-time PCR 法が広い定量のダイナミックレンジ、高い正確性、高感度を与えることを示している (図 4A-E, 右)。従って、確立した定量 real-time PCR システムが、同じスケールで、二つのキチナーゼ遺伝子と対照遺伝子の発現について信頼性の高い値を与えることを確認できた。

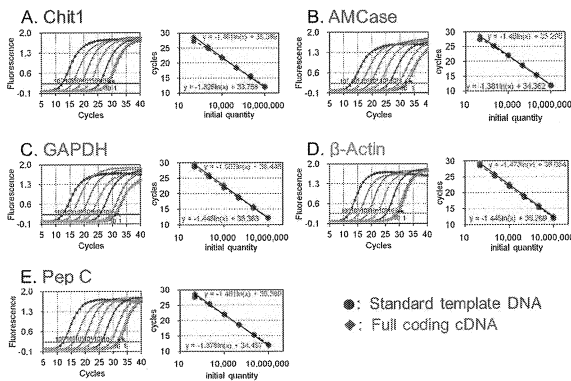


図 4. 標準 template DNA を使った定量 real-time PCR システムの確立と検証

マウス組織における Chit1 と AMCase の発現

生体内での Chit1 と AMCase の遺伝子発現制御を研究するため、四種類の胎生期と様々な成体組織から抽出した total RNA を、単一の標準 DNA を用いた定量 real-time PCR 法で解析した (図 3)。結果は、total RNA 10 ng あたりの分子数として表した (図 5)。

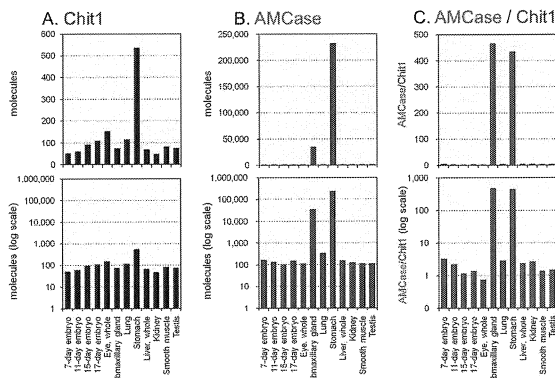


図 5. マウス組織における Chit1 と AMCase mRNA の発現。図の縦軸は、上は実数値で、下は対数値で示している。

Chit1 と AMCase mRNA は、マウス組織で広く発現していた (図 5A, 図 5B)。両キチナーゼの発現パターンにおいて、明らかな組織特性があることが分かった。Chit1 mRNA の高い発現レベルは、マウ

スの胃 (図 5A, 上図) で、次いで、目と肺において検出された。Chit1 mRNA は、他の組織で低レベルながらも容易に検出できた (図 5A, 下図)。AMCase mRNA は、胃で極めて高く発現し、次いで顎下線においても高い発現レベルで検出され (図 5B 上図)、他の組織でも発現していた (図 5B, 下図)。

次に、AMCase の Chit1 に対する比を求めた。それぞれの mRNA のコピー数を同一の標準 DNA の希釈液を使って定量した。その結果、AMCase mRNA が主に胃と顎下線で極めて高いレベルで発現していることを見出した (図 5C, 上図)。本研究で調べた他の組織は、AMCase が Chit1 より多く発現していたのは目のみであった (図 5C, 下図)。

肺と胃組織での Chit1, AMCase, GAPDH, beta-actin, pepsinogen C の分析

多くの研究は、肺組織を用いて哺乳類キチナーゼの病態生理学について行われている。本研究では、AMCase mRNA がマウスの胃組織で特異的に発現していることを示した (図 5)。ここで、三ヶ月齢のマウスの肺と胃組織から抽出した cDNA (n=5) を用いてキチナーゼと対象遺伝子の発現レベルの比較を行った。その定量結果は、total RNA 10 ng あたりの分子数として表した (図 6)。

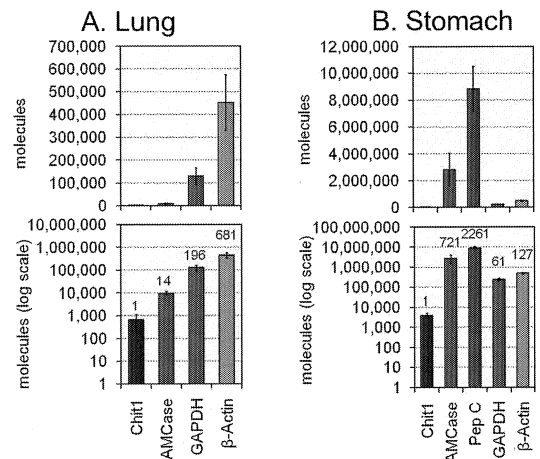


図 6. 肺と胃組織における Chit1, AMCase そして参照遺伝子 mRNA の分析。図の縦軸は、上は実数値で、下は対数値で示している。

Chit1 のレベルを 1.0 としたとき、各 cDNA の相対的な発現量は、マウスの肺で AMCase 14, GAPDH 196, beta-actin 681 だった (図 6A)。この結果は、肺組織で Chit1 より AMCase が多く発現しているが、AMCase の発現レベルは housekeeping 遺伝子の発現レベルよりも低いことを示している。

胃組織において、Chit1 のレベルを 1.0 とした

とき、それぞれの相対的発現レベルは AMCCase 721, pepsinogen C 2,261, GAPDH 61, β -actin 127 だった (図 6B)。GAPDH と β -actin 遺伝子はよく知られた housekeeping 遺伝子で、ほとんどの組織と細胞で常に高いレベルで発現している。Pepsinogen C (progastricsin) は、消化酵素として機能するアスパラギン酸プロテアーゼであり、胃において生産され、胃粘膜の主要な構成成分である [22]。AMCCase の発現レベルは、GAPDH や β -actin の発現レベルよりかなり高く、pepsinogen C のレベルに匹敵した。この結果は、胃の AMCCase は胃粘膜で主要な転写産物であり、この酵素は胃において生理的に重要な役割を果たしている可能性を示す。

4. 結論

AMCCase mRNA はマウスの胃で主要な転写産物の一つであることが分かった。この結果は、AMCCase が胃の内容物中で高分子量キチンを分解する消化酵素として機能し、そしてキチン含有病原体に対する生体防御の一部として働いている可能性を示唆する。

参考文献

1. Khoushab F, Yamabhai M (2010) Chitin research revisited. *Mar Drugs* 8: 1988-2012.
2. Bussink AP, van Eijk M, Renkema GH, Aerts JM, Boot RG (2006) The biology of the Gaucher cell: the cradle of human chitinases. *Int Rev Cytol* 252: 71-128.
3. Lee CG, Da Silva CA, Dela Cruz CS, Ahangari F, Ma B, et al. (2011) Role of chitin and chitinase/chitinase-like proteins in inflammation, tissue remodeling, and injury. *Annu Rev Physiol* 73: 479-501.
4. Hollak CE, van Weely S, van Oers MH, Aerts JM (1994) Marked elevation of plasma chitotriosidase activity. A novel hallmark of Gaucher disease. *J Clin Invest* 93: 1288-1292.
5. Renkema GH, Boot RG, Muijsers AO, Donker-Koopman WE, Aerts JM (1995) Purification and characterization of human chitotriosidase, a novel member of the chitinase family of proteins. *J Biol Chem* 270: 2198-2202.
6. Boot RG, Renkema GH, Strijland A, van Zonneveld AJ, Aerts JM (1995) Cloning of a cDNA encoding chitotriosidase, a human chitinase produced by macrophages. *J Biol Chem* 270: 26252-26256.
7. Boot RG, Renkema GH, Verhoek M, Strijland A, Blik J, et al. (1998) The human chitotriosidase gene. Nature of inherited enzyme deficiency. *J Biol Chem* 273: 25680-25685.
8. Boot RG, Blommaert EF, Swart E, Ghauharali-vander Vlugt K, Bijl N, et al. (2001) Identification of a novel acidic mammalian chitinase distinct from chitotriosidase. *J Biol Chem* 276: 6770-6778.
9. Goldman DL, Vicencio AG (2012) The chitin connection. *MBio* 3: e00056-12.
10. Bussink AP, Speijer D, Aerts JM, Boot RG (2007) Evolution of mammalian chitinase(-like) members of family 18 glycosyl hydrolases. *Genetics* 177: 959-970.
11. Zheng T, Rabach M, Chen NY, Rabach L, Hu X, et al. (2005) Molecular cloning and functional characterization of mouse chitotriosidase. *Gene* 357: 37-46.
12. Letuve S, Kozhich A, Humbles A, Brewah Y, Dombret MC, et al. (2010) Lung chitinolytic activity and chitotriosidase are elevated in chronic obstructive pulmonary disease and contribute to lung inflammation. *Am J Pathol* 176: 638-649.
13. Watabe-Rudolph M, Song Z, Lausser L, Schnack C, Begus-Nahrman Y, et al. (2012) Chitinase enzyme activity in CSF is a powerful biomarker of Alzheimer disease. *Neurology* 78: 569-577.
14. Seibold MA, Donnelly S, Solon M, Innes A, Woodruff PG, et al. (2008) Chitotriosidase is the primary active chitinase in the human lung and is modulated by genotype and smoking habit. *J Allergy Clin Immunol* 122: 944-950 e943.
15. Zhu Z, Zheng T, Homer RJ, Kim YK, Chen NY, et al. (2004) Acidic mammalian chitinase in asthmatic Th2 inflammation and IL-13 pathway activation. *Science* 304: 1678-1682.
16. Reese TA, Liang HE, Tager AM, Luster AD, Van Rooijen N, et al. (2007) Chitin induces accumulation in tissue of innate immune cells associated with allergy. *Nature* 447: 92-96.
17. Vandenbroucke, II, Vandesompele J, Paepe AD, Messiaen L (2001) Quantification of splice variants using real-time PCR. *Nucleic Acids Res* 29: E68-68.
18. Leong DT, Gupta A, Bai HF, Wan G, Yoong LF, et al. (2007) Absolute quantification of gene expression in biomaterials research using real-time PCR. *Biomaterials* 28: 203-210.
19. Wada K, Kubota N, Ito Y, Yagasaki H, Kato K, et al. (2007) Simultaneous quantification of Epstein-Barr virus, cytomegalovirus, and human herpesvirus 6 DNA in samples from transplant recipients by multiplex real-time PCR assay. *J Clin Microbiol*

- 45: 1426-1432.
20. Tiziano FD, Pinto AM, Fiori S, Lomastro R, Messina S, et al. (2010) SMN transcript levels in leukocytes of SMA patients determined by absolute real-time PCR. *Eur J Hum Genet* 18: 52-58.
 21. Nygard AB, Jorgensen CB, Cirera S, Fredholm M (2007) Selection of reference genes for gene expression studies in pig tissues using SYBR green qPCR. *BMC Mol Biol* 8: 67.
 22. Kageyama T (2002) Pepsinogens, progastricsins, and prochymosins: structure, function, evolution, and development. *Cell Mol Life Sci* 59: 288-306.
- 発表論文**
1. Ohno, M., Togashi, Y., Tsuda, K., Okawa, K., Kamaya, M., Sakaguchi, M., Sugahara, Y. and Oyama, F. (2013) Quantification of chitinase mRNA levels in human and mouse tissues by real-time PCR: species-specific expression of acidic mammalian chitinase in stomach tissues. *PLoS ONE* in press.
 2. Ohno, M., Tsuda, K., Sakaguchi, M., Sugahara, Y. and Oyama, F. (2012) Chitinase mRNA levels by quantitative PCR using the single standard DNA: acidic mammalian chitinase is a major transcript in the mouse stomach, *PLoS ONE*, 7 e50381.
- 学会発表**
1. A. Kashimura, Y. Kida, M. Ohno, K. Ishikawa, M. Sakaguchi, F. Oyama., Expression of mouse acidic mammalian chitinase in *Escherichia coli* and characterization of its properties., *American Society of Human Genetics 62nd Annual Meeting*, 2012年11月7日
 2. F. Oyama, M. Ohno, K. Tsuda, M. Sakaguchi, Y. Sugahara., Quantitative expression analysis of mouse chitinases: acidic mammalian chitinase is the major transcript in stomach., *American Society of Human Genetics 62nd Annual Meeting*, 2012年11月7日
 3. M. Ohno, K. Tsuda, M. Sakaguchi, Y. Sugahara, F. Oyama, Quantification of chitinase transcripts in human tissues., *American Society of Human Genetics 62nd Annual Meeting*, 2012年11月7日
 4. A. Kashimura, K. Ishikawa, K. Sekine, Y. Kida, M. Sakaguchi, Y. Sugahara, and F. Oyama, Expression of mouse chitinase in *Escherichia coli* and characterization of its properties, *The 61th Annual Meeting of the American Society of Human Genetics*, 2011年10月12日
 5. F. Oyama, M. Ohno, K. Tsuda, M. Sakaguchi, and Y. Sugahara, Regulation of gene expression of mammalian chitinases, *The 61th Annual Meeting of the American Society of Human Genetics*, 2011年10月12日
 6. M. Ohno, K. Tsuda, M. Sakaguchi, Y. Sugahara, and F. Oyama, Quantification of chitinase transcripts in mouse tissues, *The 61th Annual Meeting of the American Society of Human Genetics*, 2011年10月12日
 7. F. Oyama, K. Tsuda, M. Ohno, M. Sakaguchi, and Y. Sugahara, Regulation of expression of chitinase genes in mouse tissues, *60th Annual Meeting of the American Society of Human Genetics*, 2010年11月5日
 8. A. Kashimura, M. Kojima, M. Sakaguchi, Y. Sugahara and F. Oyama, Expression of chitin binding domain of mouse chitinase in *Escherichia coli* and characterization of its properties, *60th Annual Meeting of the American Society of Human Genetics*, 2010年11月5日
 9. 小山文隆, 大野美紗, 津田京子, 坂口政吉, 菅原康里, 哺乳類キチナーゼのマウスとヒトでの発現制御, 第26回キチン・キトサンシンポジウム, 2012年7月13日
 10. 菅原康里, 坂口政吉, 小山文隆, キトサンへのアクリルアミドのグラフト重合, 第26回キチン・キトサンシンポジウム, 2012年7月13日
 11. 鈴木将平, 坂口政吉, 小山文隆, 菅原康里, N-カルボキシアシルキトサンのDDSへの応用, 第26回キチン・キトサンシンポジウム, 2012年7月12日
 12. 樫村昭徳, 坂口政吉, 菅原康里, 小山文隆, 組換え酸性哺乳類キチナーゼの性質, 第26回キチン・キトサンシンポジウム, 2012年7月12日
 13. 大野美紗, 津田京子, 富樫勇斗, 坂口政吉, 菅原康里, 小山文隆, 哺乳類キチナーゼの遺伝子発現解析, 第26回キチン・キトサンシンポジウム, 2012年7月12日
 14. 大川一明, 樫村昭徳, 坂口政吉, 菅原康里, 小山文隆, ヒトAMCaseの大腸菌での発現と性質の解析, 第26回キチン・キトサンシンポジウム, 2012年7月12日
 15. 本田翔太郎, 菅原康里, 小山文隆, 坂口政吉, 細菌 *Listeria* 属由来キチナーゼの発現と性質の解析, 第26回キチン・キトサンシンポジウム, 2012年7月12日
 16. 樫村昭徳・石川晃太郎・関根一孝・貴田雄太・坂口政吉・菅原康里・小山文隆, 組換えマウス酸性キチナーゼの発現とその性質, *日本化学会第92春季年会*, 2012年3月25日
 17. 大野美紗・津田京子・坂口政吉・菅原康里・小山文隆, マウス組織におけるキチナーゼ遺伝子発現レベルの解析, 第168回東京医科大学医学学会総会, 2011年11月5日
 18. 大野美紗・津田京子・坂口政吉・菅原康里・小山文隆, マウス組織におけるキチナーゼ遺伝子発現レベルの解析, 第25回キチン・キトサンシンポジウム, 2011年8月31日
 19. 菅原康里, 南木香里奈, 野口倫, 坂口政吉, 小山文隆, N-カルボキシアシルキトサンの合成とその薬物送達システムへの応用, 第25回キチン・キトサンシンポジウム, 2011年8月31日

20. 小山文隆, 大野美紗, 山中雄太, 貴田雄太, 坂口政吉, 菅原康里, 哺乳類キチナーゼの遺伝子発現制御, 第25回 キチン・キトサンシンポジウム, 2011年8月31日
21. 樫村昭徳, 石川 晃太郎, 関根 一孝, 貴田雄太, 坂口政吉, 菅原康里, 小山文隆, マウスキチナーゼの大腸菌での発現とその性質, 第25回 キチン・キトサンシンポジウム, 2011年8月30日
22. 小山文隆, 津田京子, 小島雅貴, 坂口政吉, 菅原康里, マウスにおけるキチナーゼの遺伝子発現制御, 第24回 キチン・キトサンシンポジウム, 2010年7月14日
23. 樫村昭徳, 小島雅貴, 坂口政吉, 菅原康里, 小山文隆, マウスキチナーゼのキチン結合ドメインの大腸菌での発現とその性質, 第24回 キチン・キトサンシンポジウム, 2010年7月13日
24. 大沢 梢, 樫村昭徳, 坂口政吉, 菅原康里, 小山文隆, キチンオリゴマーの生成条件の検討, 第24回 キチン・キトサンシンポジウム, 2010年7月13日

複雑な多環性構造を有する新規抗腫瘍天然物の全合成研究

工学院大学工学部応用化学科 南雲紳史、安井英子

工学院大学附属高校 宮下正昭

北海道薬科大学 水上徳美

Synthetic Study of Highly Antitumor Active Natural Products Composing
of Complex Polycyclic System

Shinji Nagumo, Eiko Yasui, Department of Applied Chemistry, Kogakuin University

Masaaki Miyashita, High School of Kogakuin University

Megumi Mizukami, Hokkaido Pharmaceutical University, School of Pharmacy

ABSTRACT : Synthetic studies of cortistatin A isolated from Indonesian marine sponge *Corticium simplex* were reported. The natural product has abeo-9(10-19)-androstane and isoquinoline skeletons and shows the anti-proliferative activity ($IC_{50} = 0.0018 \mu M$) against human umbilical vein endothelial cells (HUVECs) with high selectivity. Diene **75** was synthesized from β -estradiol through the oxidative decomposition of aromatic ring, Dieckmann condensation, stereoselective Davis oxidation, and Suzuki-Miyaura cross coupling. Diene **75** was transformed to trieneyne **79** by 4 steps. Tandem ring closure metathesis of **79** with Grubbs catalyst (2nd) successfully produced the lactone **80** in good yield, which contains BCD rings of cortistatin A with the desired stereo configurations.

1. はじめに

近年、標的分子に基づく論理的な薬物設計が脚光を浴びている一方で、新しいリード化合物の探索という観点から天然物化学の重要性は未だ衰えていない。特に、近年の微量分析技術の飛躍的発展とスクーバーダイビングの普及に伴い、新規海産天然物の探索が盛んに行われるようになると、新しいタイプの天然物が次々と発見されるようになった。海洋生物は独自の生息環境に適応するため、陸上生物には見られない特異な構造や顕著な生物活性を示す二次代謝物を産生することが多く、新薬開発におけるシーズの宝庫として期待されている。特に抗腫瘍活性を有する海産天然物の探索が精力的に行われて

おり、その中には新しいメカニズムに基づいた次世代型抗癌剤のリード化合物として期待されている化合物もある。

次世代型として興味を持たれている制癌メカニズムの代表例として、血管新生阻害が挙げられる。血管新生は、正常個体においては傷の回復時など限られた場合にしか起こらないが、癌患者において腫瘍細胞が異常増殖する際には重要な意味をもつ。暴走した細胞増殖を持続するためには、それを賄う膨大なエネルギーが必要となる。そのため腫瘍細胞はある程度の大きさまで成長すると、血管新生促進物質というある種のタンパク質を放出し、周辺にある宿主の血管から腫瘍細胞に繋がる毛細血管を作り出す。したがって、血管新生の選択的阻害活性物質は固形癌の成長を抑制する一方で、正常細胞に対しては毒性を発現しない抗癌剤として期待されている。大阪大

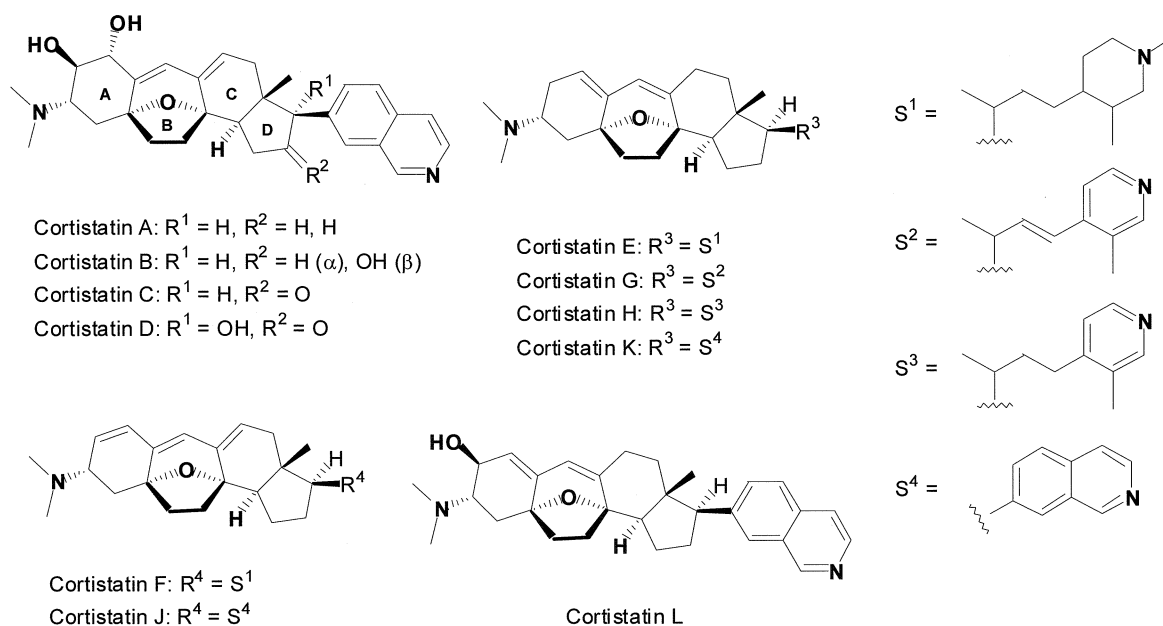


Fig. 1

学的小林教授らは血管新生阻害に基づく次世代型抗癌剤の開発を目的として、正常ヒト臍帯静脈血管内皮細胞 (HUVECs) に対する選択的増殖抑制物質を探索する中で、インドネシアの周辺海域で採取された海綿 *Corticium simplex* から Cortistatin A という強力な活性 ($IC_{50} = 0.0018 \mu M$) を示す化合物を見出した。⁽¹⁾ 新規リード化合物として注目を集めている Cortistatin A であるが、残念ながら海綿からの採取量は極微量であり、詳細な作用機序解明やファーマコフォアの特定を進めていく上でも化学合成による量的供給が強く望まれている。その構造はオキサピシクロ [3.2.1] オクテン骨格やイソキノリン骨格を含む類例のないステロイド系アルカロイドであり、その合成には独自の合成戦略が求められる。これまでも世界中の名だたるグループが合成研究に取り組んでいるが、著者らも独自の метод論を確立することにより本化合物の全合成に挑戦した。平成 22 年度—24 年度において本プロジェクト研究を進めた結果、独自にタンデム閉環メタセシス反応を開発し、それを鍵工程として Cortistatin A の BCD 環部に相当する多環性化合物 1 の合成に成功した。また、D 環部にイソキノリン骨格を導入するためのモデル実験を検討したので併せて報告する。

2. 合成計画

Cortistatin A の合成を進める上で、(1) D 環部に対する isoquinoline 環の立体選択的結合、(2) トランス縮環した CD 環部の合成、(3) oxabicyclo[3.2.1]octene 骨格の構築、(4) 高度に官能基化された A 環部の立体選択的構築の 4 項目を最重要課題と位置付け、Fig. 2 に示すような合成経路を立案した。Cortistatin A は A と B のクロスカップリングにより得られるものと考え、A は C より 6 員環形成を行うことで合成できると考えた。この際、同

時に必要となる水酸基等の立体選択的導入は不斉ジドロキシ化などを応用することで可能と考えた。C における B 環部を中心とした部分構造はその周辺との間で共役ポリエンシステムを併せ持っており、その構築には相当の困難が予想された。これに対して我々は、近年飛躍的に発展した閉環メタセシス反応を基盤として解決できるものと考えた。すなわち、化合物 C はエンイン D のメタセシス反応⁽²⁾と続くクロスオレフィンメタセシス反応を連続して行うことにより得られるものと考えた。化合物 D はアシロイン E から鈴木クロスカップリングによりビニル基を導入する⁽³⁾などして変換可能と考えた。また、化合物 E はアルケン F のオスミウム酸化等により変換できると考えた。

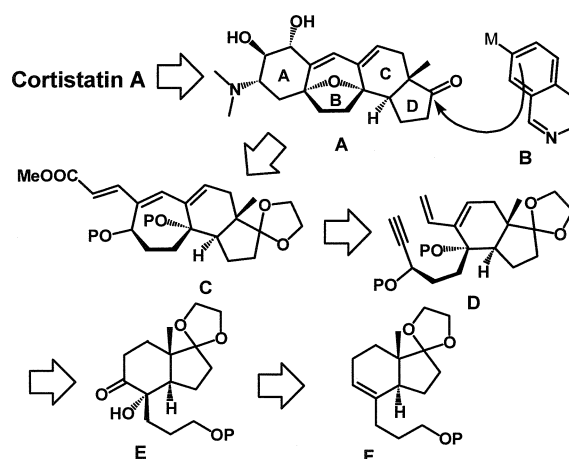


Fig. 2

3. モデル実験

立案した合成経路では、イソキノリンの立体選択的導入やエンインメタセシスによる 7 員環構築といった困難な課題を、かなり工程が進んでから行わなければならない

い。そこで、予めこれらの反応がスムーズに進行するか確かめるために、より単純な基質を用いて以下のモデル実験を行った。

3.1 イソキノリン環導入に関するモデル実験

将来的に、ケトンAから Cortistatin A への合成経路を確立していく上で、他の部位に影響を与えない緩和な条件下でのイソキノリン導入法を必要とする。これに関してはD環部をビニルボランへ変換し、プロモイソキノリンとの鈴木-宮浦クロスカップリングを行うことが最適であると考えた。そこで、D環部の立体的な環境がAに近いエストロンからビニルボラン **11**, **12** への変換、およびそれらの鈴木-宮浦クロスカップリングを検討した。

まずプロモイソキノリン **6** の合成に取り組んだ (Fig. 3)。市販の **1** を NaBH_4 で還元した後、トシル酸で処理することによりプロモインデン **3** を得た。次に四酸化オスmiumで処理し、得られたジオール **4** を過ヨウ素酸酸化に付すことによりジアルデヒド **5** へ導いた。最後にアンモニア水との反応を行い、プロモイソキノリン **6** を合成した。

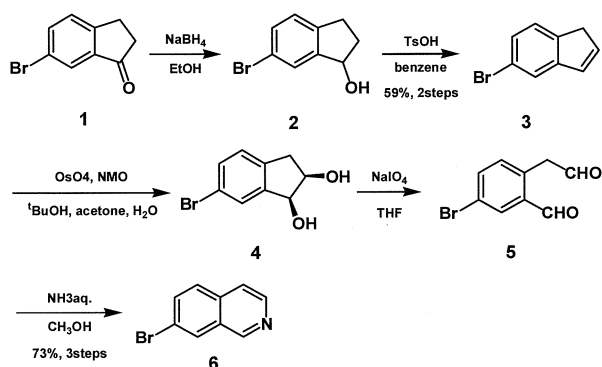


Fig. 3

一方ビニルボラン **11**, **12** はエストロンから以下のように合成した。A環部のフェノールを TBS 基およびメチル基で保護し、それぞれ **7**, **8** とした。次に Comin's 試薬を用いてD環部をエノールトリフレートに変換後、宮浦らの方法に従ってホウ素化を行った。その結果、いずれの基質からも高収率で **11**, **12** が生成した。

最初に **11** を用いて **6** とのクロスカップリングを検討した。DMF 溶媒中、 K_3PO_4 の存在下、触媒として $\text{PdCl}_2(\text{DPPF})$ を用いた。シリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製後、21%の収率でカップリング体 **13** が得られた。低収率の原因はカラムクロマトグラフィーで精製中に、**13** の一部がシリカゲルの中で結晶化してしまったためと考えた。これは基質中の TBS 基がシリカゲルなどにより外れやすかったことに起因しているので、そのような問題が起りにくい **12** を基質としてクロスカップリングを行った。その結果、70%の収率でカップリング体 **14** を得ることに成功した。最後に $\text{Pd}(\text{OH})_2/\text{C}$ を触媒として接触水素化を行ったところ、立体選択的に α 面からの付加を受け 97%の収率で **15** が生成した。な

お **15** の $^1\text{H-NMR}$ において、核環メチル基はイソキノリンの遮蔽効果を受け、そのケミカルシフトが 0.53 ppm に高磁場シフトしていた。以上のモデル実験により、鈴木-宮浦クロスカップリングを用いることでD環部にイソキノリン環を所望の立体化学で導入できることがわかった。

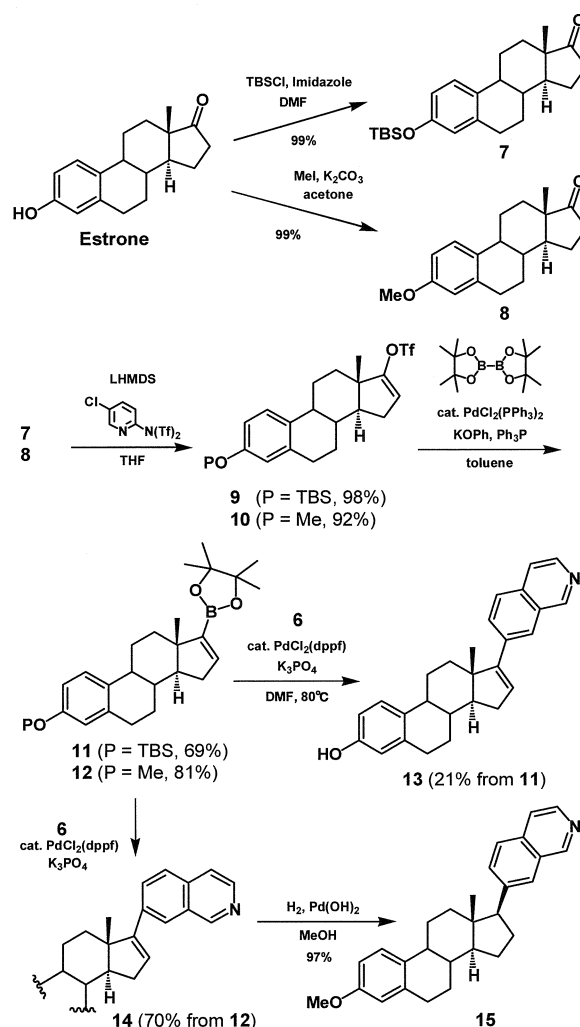


Fig. 4

3.2 新規タンデム型閉環メタセシスの開発

次にジェニン中間体Dの閉環メタセシス反応の可能性を見るために、**29** を用いたモデル実験を検討した。化合物 **29** はシクロヘキセンオキドを出発原料から **16** 工程で合成した。ベンジルアルコールを求核剤としてシクロヘキセンオキドの開環反応を行い、得られたアルコール **16** に対して tetrapropylammonium perruthenate (TPAP) 酸化を行うことによりケトン **17** へ導いた。化合物 **17** に対してグリニヤル反応でアリル基を導入後、ヒドロホウ素化を行うことによりジオール **3** を得た。さらに 7 工程の官能基変換によりエノールトリフレート **25** へ誘導し、ビニルボランとの鈴木クロスカップリング反応を行った。得られたジェン **26** は TBS 基の除去、Dess-Martin 酸化を順次行い、対応するアルデヒドへ変

換した。さらにアセチリドイオンとのカップリング反応、TMS 基の除去を順次行い目的とするジエンイン **29** を合成した。

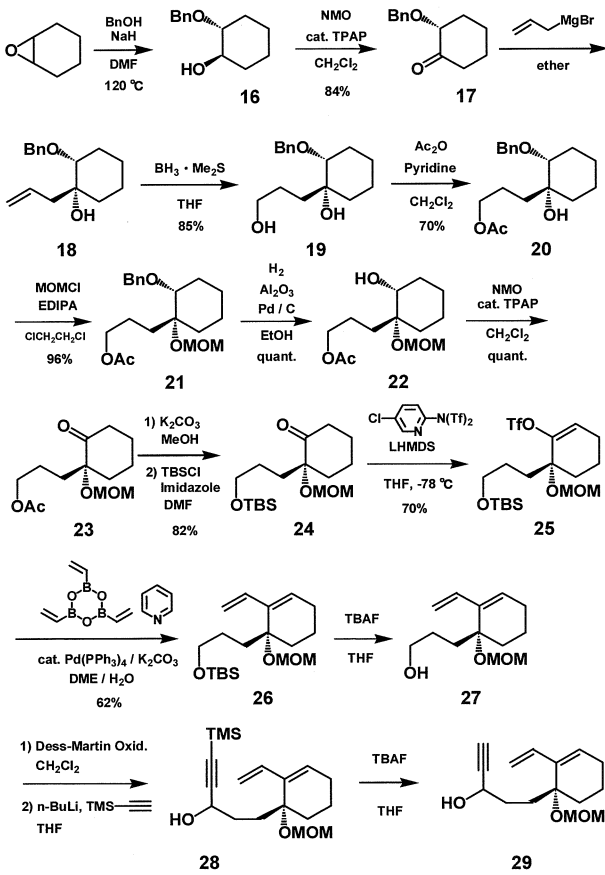


Fig. 5

閉環メタセシス反応には第一世代 Grubbs 触媒 (I)、第二世代 Grubbs 触媒 (II)、第一世代 Hoveyda 触媒 (III)、第二世代 Hoveyda 触媒 (IV) を用いて行った。

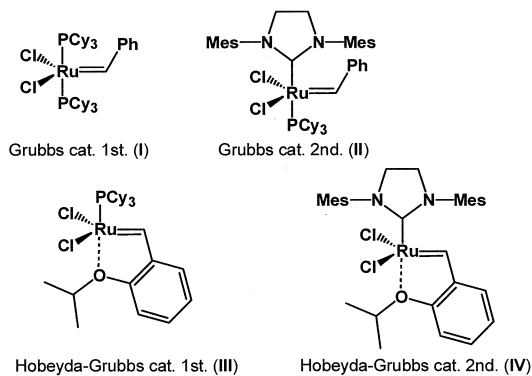


Fig. 6

最初に **28** および **29** を基質として種々条件検討を行ったが、エチレン雰囲気下、IV を用いたときにテトラエンが生成するとどまった。そこで、2 級水酸基をシリル保護した **32**、MOM 保護した **36** を合成し、その閉環メタセシス反応を行った。その結果、**32** の反応を IV を用

いて行ったとき 25%の収率で目的とする 7 員環成績体 **34** が生成したが、8 員環成績体 **35** も同時に生成した。**36** の反応では、8 員環成績体 **38** は生成したが 7 員環成績体の生成は確認できなかった。**32** や **36** の反応で 8 員環成績体が生成するのは、エチレンとのメタセシスにより生じるテトラエン中間体 **33**、**37** で、末端アルケン同士でのメタセシスが容易であるためと考えた。側鎖の TBSO 基や MOMO 基の立体障害が隣接する内部アルケンのメタセシスをより妨げているとも考えられる。

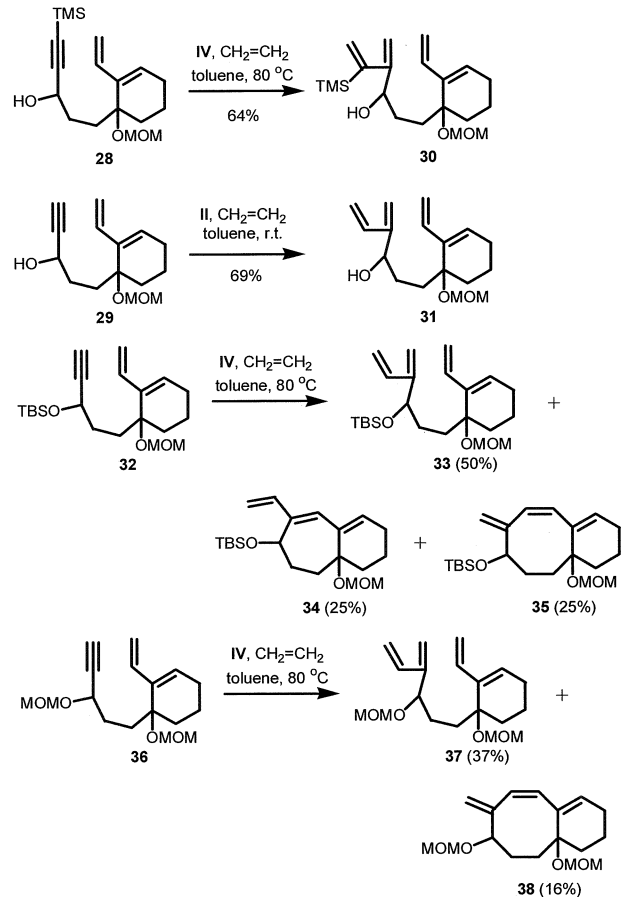


Fig. 7

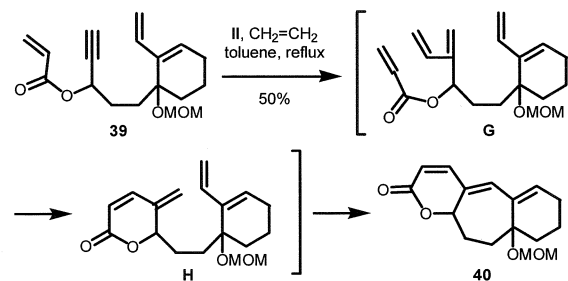


Fig. 8

そこで我々はアクリル酸エステル誘導体 **39** を合成し、そのタンデム閉環メタセシス反応を行った (Fig. 8)。この基質から生じるペンタエン中間体 **G** では、側鎖に存在する末端アルケンがアクリル酸部分とメタセシスを起こ

すことが期待できる。その結果として中間体 **H** を經由して7員環形成を強制的に進行させることができると考えた。第二世代の Grubbs 触媒を用いて toluene 還流の条件下で反応を行ったところ、期待通りに8員環形成を抑えられ7員環成績体 **40** を50%の収率で得ることに成功した。

4. Cortistatin A の CD 環部の合成

4.1 第一世代合成

Cortistatin 類の CD 環部はトランスに縮環している。当初これに関しては、エストラジオールの CD 環部がトランス縮環であることに着目した。すなわち、エストラジオールのベンゼン環を塩化ルテニウムにより酸化的に分解した。得られたジカルボン酸はエステル化、ケタール化に順次付シジエステル **42** に導いた。次に、**42** に対して、Dieckmann 環化反応、脱炭酸を順次行うことにより、ケトン **44** へ導いた。化合物 **44** の Baeyer-Villiger 反応は位置選択的に進行し78%の収率でラクトン **45** が生成した。

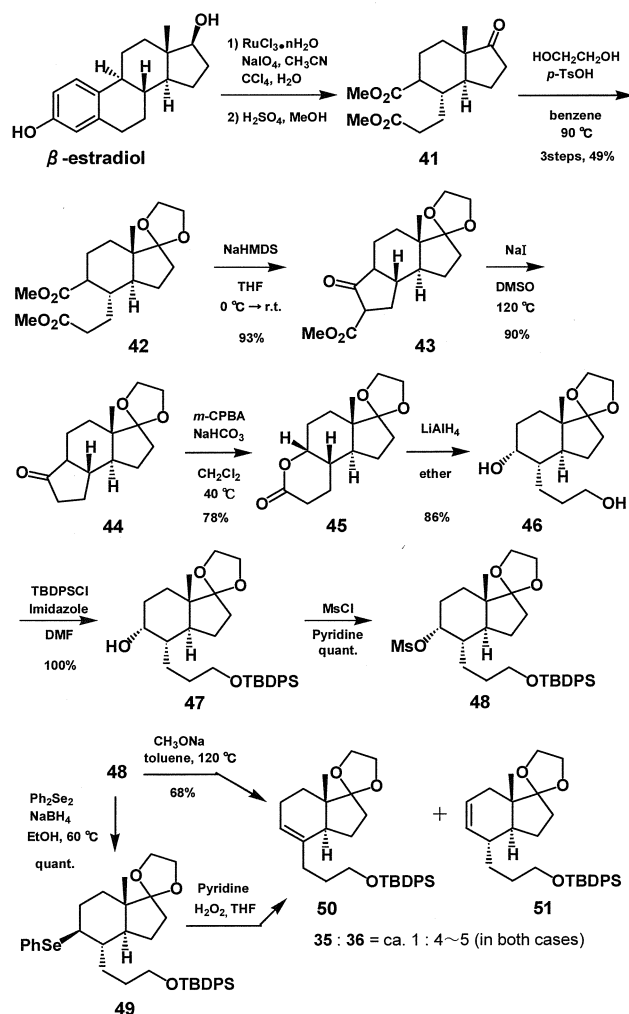


Fig. 9

^1H NMR の解析から、ラクトン環と C 環の縮環部はシス配置であることが判明した。**42** から **45** のどこの段階でエピメリ化が起こっているかはわかっていない。ラクト

ン **45** は LiAlH_4 還元によりジオール **46** へ導いた後、一級水酸基を選択的に TBDPS で保護して **47** を得た。さらに、アンチ脱離反応により三置換アルケンへ誘導することを目的として **47** のメシル化を行った。得られたメシレート **48** に対して塩基処理を行ったところ、予期に反し主生成物は二置換アルケン **51** であった。**50** と **51** の生成比は約 1:5 で、カラムクロマトグラフィーにより分離はできなかった。そこで、一度フェニルセレン **49** に変換し、そのシン脱離反応を検討した。しかし、この場合にも **51** が主生成物となった。

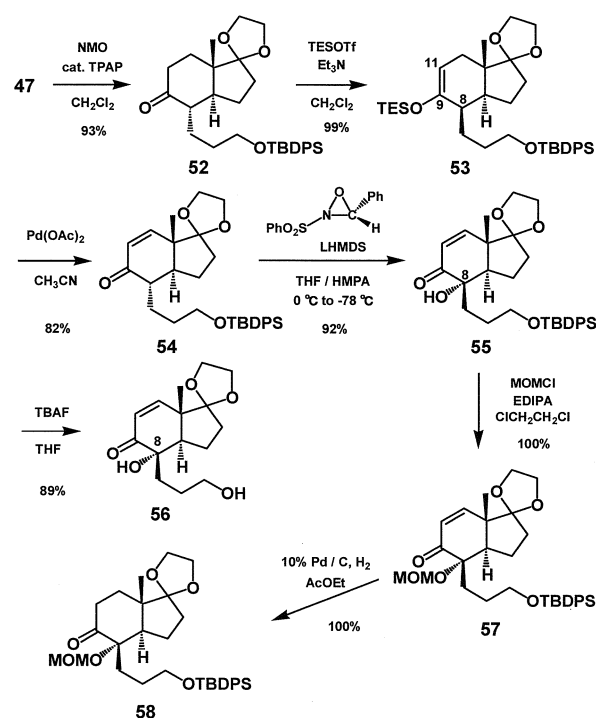


Fig. 10

アンチ脱離、シン脱離のいずれの場合にも二置換アルケンが主生成物となるため、四置換シリルエノールエーテルを選択的に合成し、MCPBA や四酸化オスミウムによる酸化を試みる計画を立てた。実際には、アルコール **47** を TPAP で酸化してケトン **52** へ変換した後、TESOTf/ Et_3N の条件下でシリル化を検討したが、この場合には望まぬ三置換シリルエノールエーテル **53** が99%の収率で得られた。そこで、片側を二重結合で酸化できないようにすればよいと考え、そのまま **53** を三枝反応に付シエノン **54** へ誘導した。続いて **54** の Davis 酸化⁽⁴⁾を行ったところ、狙い通り8位に水酸基を導入することができ、しかも立体選択的かつ高収率で α -ヒドロキシ体 **55** を得ることに成功した。導入された水酸基の立体配置は、TBAFにより TBDPS 基を除去し、得られた **56** の X線結晶解析により確認した。エノン **55** からは、接触還元を行った後、3級水酸基を MOM 保護してケトン **58** へ変換した。

4. 2 第二世代合成

第一世代合成の確立によって、確実にトランス縮環したCD環（ヒドロインダン骨格）を合成できるようになった。しかしながら、出発物質であるエストラジオールが極めて効果であること、また塩化ルテニウムによるベンゼン環の酸化分解が技術的に難しく再現性も乏しいといった問題があった。そこで、比較的簡便な操作で、かつより安価に合成方法を確立し、トランス縮環したヒドロインダン骨格の大量供給を可能にしようと考えた。

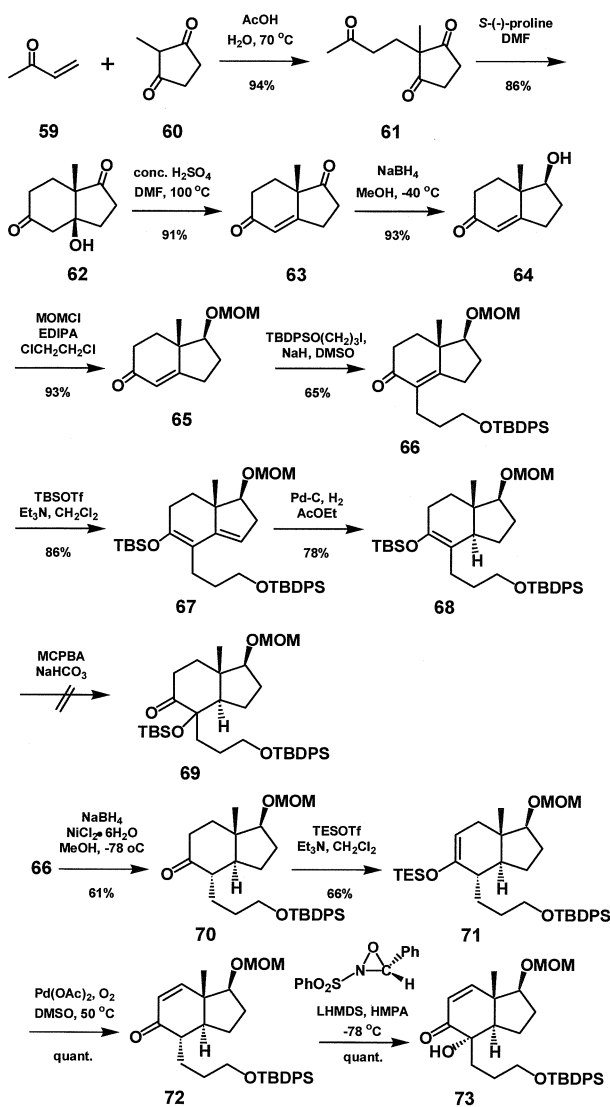


Fig. 11

ジケトン 60 とエノン 59 によるマイケル反応により 61 を得た後、有機触媒として *S*(-)-proline を用いて不斉分子内アルドール反応を行った。その結果、所望の 62 を高エナンチオ選択的かつ高収率で得ることができた。脱水により得られた 63 に対し、低温下で NaBH_4 還元を行ったところ、エノン部位は無傷で5員環上のケトンだけが還元された。アルコール 64 に対しては、MOM 保護後アルキル化を行うことで 66 を得た。さらに $\text{TBSOTf}/\text{Et}_3\text{N}$ の条件でシリルエノールエーテル 67 に

導いた後、Pd-C を用いて酢酸エチル中で接触還元を行った。その結果、5員環中のアルケンだけが還元された 68 を得ることができた。これに対して酸化がうまく進行すれば所望の 69 がえられるはずであったが、残念ながら複雑な混合物となってしまった。そこで、ニッケル触媒存在下 66 の NaBH_4 還元を行いケトン 70 に変換した。既に化合物 52 からエノンを経由しての8位の酸素官能基化に成功していたので、同様の変換を 70 から行った。いずれの工程も良好に進行し、ごく最近アシロイン 73 の合成に成功した。

5. Cortistatin A のB環合成

CD環部の立体選択的構築に関して、二つの合成経路を確立した。このうち、第一世代合成により 58 を早い段階で得ていた。また、既にトリエンイン 39 のタンデム型閉環メタセシスを開発していたので、58 からトリエンイン 79 へ変換し、そのタンデム閉環メタセシス反応を検討した。

ケトン 58 からエノールトリフレート 74 へ変換後、鈴木・宮浦クロスカップリング反応⁽³⁾を行い、89%の収率でジエン 75 を合成することに成功した。ジエン 75 に対して tetrabutylammonium fluoride (TBAF) を用いてシリル基の除去を行い、生じた1級水酸基の Dess-Martin 酸化によりアルデヒド 76 を得た。これに対し、trimethylsilylacetylene と BuLi から調製したリチウムアセチリドとのカップリングを行い、アルコール 77 を得た。続いて、TBAF で処理することにより 77 のシリル基を除去した後、アクリル酸クロライドとのエステル化により目的とするトリエンイン 79 を合成した。

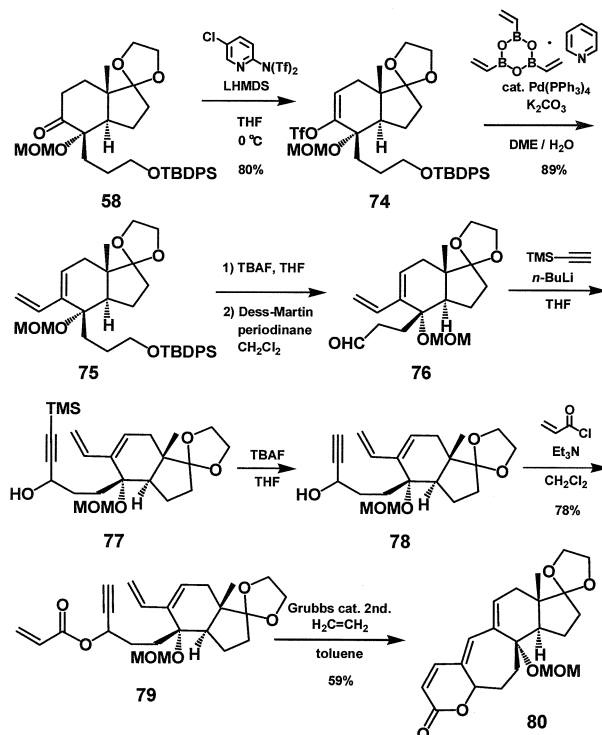


Fig. 12

次に化合物 **39** を用いたモデル実験を参考に、**79** のタンデム閉環メタセシス反応を検討した。トルエン溶媒中、エチレン雰囲気下、第二世代グラブス触媒を用いて行ったところ、59%の収率で環状ラクトン **80** が生成した。

6. 今後の検討課題でA環構築のモデル実験

最重要課題であったタンデム型閉環メタセシス反応はスムーズに進行し、Cortistatin A のBCD環が揃った**80**の合成に成功した。次の課題であるA環の構築はFig. 13のように計画している。まず、ラクトン環を還元後、数工程の官能基変換により**I**に変換する。Sharpless酸化により立体選択的にエポキシドを導入後、1炭素の増炭と官能基変換によりジケトン**K**へ導く。これを適当な塩基条件に付せば、分子内アルドール縮合が進行して**L**が生成し、ただちに分子内の水酸基によりマイケル付加を受け**M**となるものと考えた。

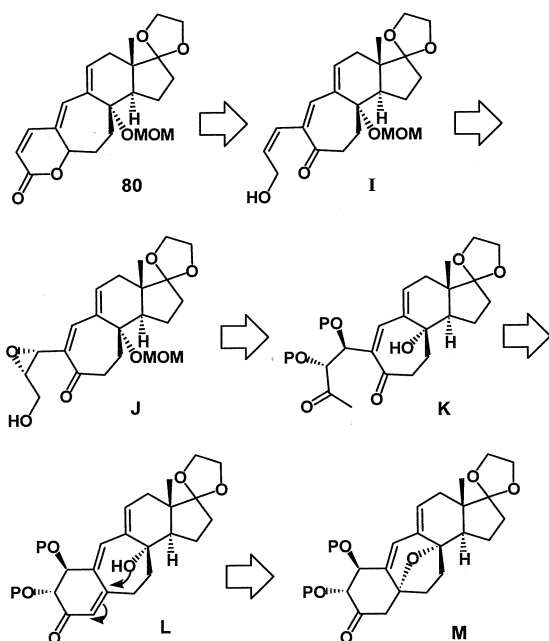


Fig. 13

A環構築に関するこのような合成経路が妥当であるか確かめるべく、モデル実験として**94**の合成およびその分子内アルドール縮合の検討を計画した。エノン**81**の臭素化により**82**に変換後、塩化セリウム存在下、 NaBH_4 還元を行った。得られたアルコール**83**はシリル化後ビニルボランとの鈴木カップリングに付した。シリル基の除去後、アクリルエステル**87**に変換した。第二世代のグラブス触媒を用いて閉環メタセシスを行い、ラクトン**88**を高収率で得た。 DIBALH 還元によりジオール**89**へ導いた後、それぞれの水酸基に異なる保護基をつけた。現在は、この**91**を合成した段階である。今後は、Sharplessエポキシ化や立体選択的ジヒドロキシ化反応を利用して**94**を合成し、さらにそこから**97**への変換を検討する。

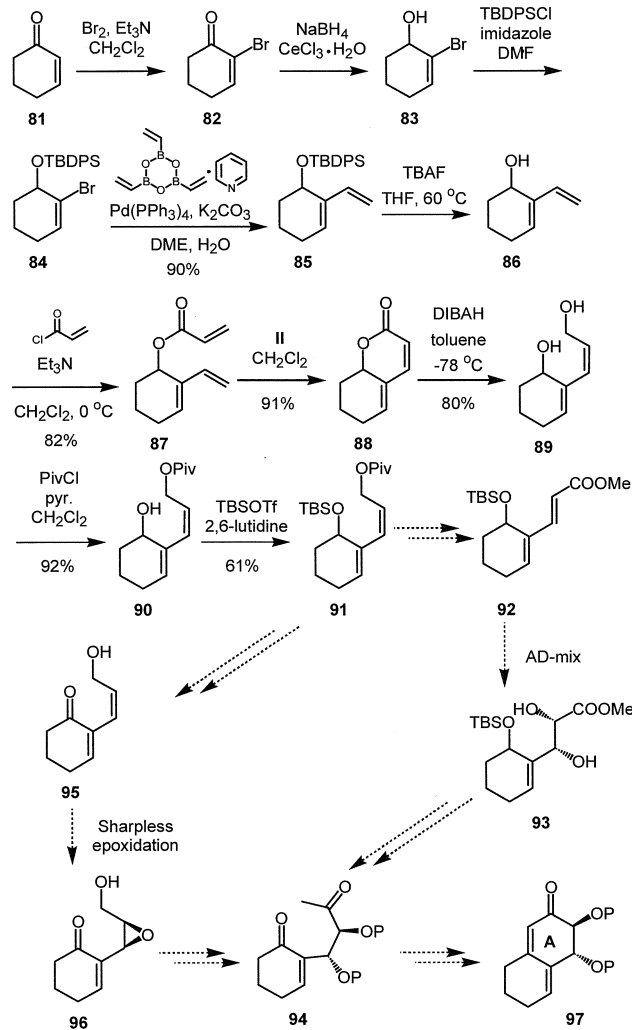


Fig. 14

7. おわりに

ここまで述べてきたように、我々は新たに設計したトリエンイン誘導体のタンデムメタセシス反応を基盤として、顕著な血管新生阻害活性を有するCortistatin AのBCD環部に相当する**80**の合成に成功した。今後は、Fig. 13で述べたA環構築法を実践して全合成を完成する予定である。本合成が完成すれば、Cortistatin Aの量的供給が可能になるばかりでなく、より活性が増強された誘導体の創製も期待できる。また、鍵工程として開発したトリエンインのタンデムメタセシス反応は、Cortistatin A以外の複雑な環状構造を有する天然物に適用できるものと期待している。なお、本研究は上原記念生命科学財団助成金(平成22年度)ならびに工学院大学総合研究所プロジェクト研究費により遂行できたものであり、ここに深く感謝の意を表する。

参考文献

- (1) Aoki, S., Watanabe, Y., Sanagawa, M., Setiawan, A., Kotoku, N., Kobayashi, M.: J. Am. Chem. Soc., Vol. 128, No. 10 (2006) pp. 3148-3149.

- (2) Kinoshita, A., Sakakibara, N., Mori, M.: J. Am. Chem. Soc., Vol. 119, No. 50 (1997) pp. 12388-12389.
- (3) Miyaura, N., Yamada, K., Suzuki, A.: Tetrahedron Lett., Vol. 20, No. 36 (1979) pp. 3437-3440.
- (4) Vishwakarma, L. C., Stringer, O. D., Davis, F. A.: Org. Synth., Vol. 66 (1988) pp. 203-210.

発表論文

- (1) Synthetic Studies of Lepranthin, a Lichen-produced Dimeric Macrolide. Stereoselective Synthesis of a Seco-acid Based on Stereosepecific Epoxide-opening Reactions.
Takada, H., Yasui, E., Sahara, Y., Chinen, Y., Tanaka, H., Morita, Y., Kobiki, C., Narisawa, D., Mizukami, M., Miyashita, M., Nagumo, S.
Heterocycles, Vol. 83, pp. 555-570 (2011).
- (2) Synthetic Studies of the Lichen Macrolide Lepranthin. Stereoselective Synthesis of Diolide Framework Based on Regioselective Epoxide-Opening Reaction.
Takada, H., Nagumo, S., Yasui, E., Mizukami, M., Miyashita, M.
Chem. Pharm. Bull., Vol. 59, pp. 525-527 (2011).
- (3) Synthetic studies of venturicidins: stereoselective synthesis of the C15- C27 segment based on two types of stereospecific epoxide opening reactions.
Suzuki, Y., Nagumo, S., Yasui, E., Mizukami, M., Miyashita, M.
Tetrahedron Lett., Vol. 52, pp. 6948-6951 (2011).
- (4) Tandem Five Membered-Ring Selective Prins Reaction and Friedel-Crafts Reaction.
Suzuki, Y., Niwa, T., Yasui, E., Mizukami, M., Miyashita, M., Nagumo, S.
Tetrahedron Lett., Vol. 53, pp. 1337-1340 (2012).
- (5) Novel method for construction of tetrahydro-1-benzazepine and tetrahydro-2-benzazepine based on 7-endo selective Friedel-Crafts cyclization of vinyloxirane.
Mizukami, M., Wada, K., Sato, S., Ishii, Y., Kawahara, N., Nagumo, S.
- (2) Dictyostatin の合成研究
八木田祐介、三浦麻美、鈴木裕治、南雲紳史、宮下正昭、第59回有機合成化学協会関東支部シンポジウム、東京農工大学工学部キャンパス、2010年5月22日。
- (3) アセチレンジコバルト錯体を利用した新規タンデム環化反応
高沢祥平、田所真介、安井英子、宮下正昭、南雲紳史、水上徳美、第36回反応と合成の進歩シンポジウム、ウインクあいち(名古屋)、2010年11月2日。
- (4) 複素環化合物の Friedel-Crafts 反応による中員環合成
今井幹典、岸伸彦、豊田咲希子、水上徳美、南雲紳史、第36回反応と合成の進歩シンポジウム、ウインクあいち(名古屋)、2010年11月2日。
- (5) アセチレンコバルト錯体を利用した新規連続環化反応
高沢祥平、田所真介、安井英子、宮下正昭、南雲紳史、水上徳美、第60回有機合成化学協会関東支部シンポジウム、新潟薬科大学、2010年12月4日。
- (6) 強力な抗腫瘍活性を示す海産天然物 Tedanolide の全合成研究
石渡達也、山崎淳一、安井英子、南雲紳史、宮下正昭、第60回有機合成化学協会関東支部シンポジウム、新潟薬科大学、2010年12月5日。
- (7) Arenicolide 類の合成研究
大保真澄、中野妙子、山田春樹、安井英子、宮下正昭、南雲紳史、第61回有機合成化学協会関東支部シンポジウム、千葉大学西千葉キャンパス、2011年5月22日。
- (8) Lepranthin の全合成研究
高田久嗣、安井英子、南雲紳史、宮下正昭、第61回有機合成化学協会関東支部シンポジウム、千葉大学西千葉キャンパス、2011年5月22日。
- (9) アセチレンジコバルト錯体を利用したタンデム環化反応
坂田優希、高沢祥平、田所真介、安井英子、宮下正昭、南雲紳史、水上徳美、第55回日本薬学会関東支部大会、東邦大学習志野キャンパス、2011年10月8日。
- (10) Prins-Friedel-Crafts タンデム環化反応
丹羽孝徳、鈴木裕治、安井英子、宮下正昭、南雲紳史、水上徳美、第55回日本薬学会関東支部大会、東邦大学習志野キャンパス、2011年10月8日。
- (11) 海産マクロライド系抗生物質 Tedanolide 類の全合成研究
山崎淳一、石渡達也、安井英子、南雲紳史、宮下正昭、第55回日本薬学会関東支部大会、東邦大学習志野キャンパス、2011年10月8日。

学会発表

- (1) タンデム型 enyne-metathesis を基盤とした Cortistatin A の合成研究
平川敦詞、古川諒一、小林優太、佐藤圭、南雲紳史、宮下正昭、第59回有機合成化学協会関東支部シンポジウム、東京農工大工学部キャンパス、2010年5月22日。

- (12) Sekothrixide の合成研究
寺山直樹、安井英子、南雲紳史、宮下正昭、第 37 回反応と合成の進歩シンポジウム、あわぎんホール (徳島)、2011 年 11 月 8 日。
- (13) 海産マクロライド系抗生物質 Tedanolide 類の全合成研究
山崎淳一、石渡達也、安井英子、南雲紳史、宮下正昭、日本薬学会第 132 年会、北海道大学、2012 年 3 月 29 日。
- (14) Sekothrixide の合成研究
寺山直樹、安井英子、宮下正昭、南雲紳史、日本薬学会第 132 年会、北海道大学、2012 年 3 月 29 日。
- (15) Arenicolide 類の合成研究
大保真澄、中野妙子、山田春樹、安井英子、宮下正昭、南雲紳史、日本薬学会第 132 年会、北海道大学、2012 年 3 月 29 日。
- (16) Venturicidin 類の合成研究
鈴木裕治、安井英子、水上徳美、南雲紳史、宮下正昭、日本薬学会第 132 年会、北海道大学、2012 年 3 月 29 日。
- (17) イミニウムカチオンを用いたインドール誘導体の Friedel-Crafts 反応
豊田咲希子、今井幹典、岸伸彦、佐藤哲平、水上徳美、南雲紳史、日本薬学会第 132 年会、北海道大学、2012 年 3 月 30 日。
- (18) 新規チエタンヌクレオシドの合成研究
中後孝洋、安井英子、南雲紳史、日本薬学会第 132 年会、北海道大学、2012 年 3 月 30 日。
- (19) Tirandalydigin の合成研究
佐々木仁軌、坂田樹理、安井英子、南雲紳史、宮下正昭、日本薬学会第 132 年会、北海道大学、2012 年 3 月 30 日。
- (20) Prins-Friedel-Crafts タンデム環化反応
丹羽孝徳、鈴木裕治、安井英子、宮下正昭、南雲紳史、水上徳美、日本薬学会第 132 年会、北海道大学、2012 年 3 月 30 日。
- (21) Sekothrixide の合成研究
寺山直樹、安井英子、宮下正昭、南雲紳史、第 63 回有機合成化学協会関東支部シンポジウム、東京理科大学野田キャンパス、2012 年 5 月 19 日。
- (22) Venturicidin 類の合成研究
鈴木裕治、安井英子、水上徳美、南雲紳史、宮下正昭、第 63 回有機合成化学協会関東支部シンポジウム、東京理科大学野田キャンパス、2012 年 5 月 19 日。
- (23) ビニルエポキシドから始まったケミストリー
南雲紳史、日本薬学会九州支部講演会、九州大学薬学部、2012 年 6 月 15 日。
- (24) エポキシドの開環反応を利用した sekothrixide の合成研究
寺山直樹、安井英子、宮下正昭、南雲紳史、第 42 回複素環化学討論会、京都テルサ、2012 年、10 月 11 日。
- (25) タンデム型閉環メタセシス反応を基盤とする Cortistatin A の合成研究
島村篤史、古川諒一、小林優太、安井英子、安井英子、宮下正昭、南雲紳史、第 56 回香料・テルペンおよび精油化学に関する討論会、鹿児島大学、2012 年 10 月 28 日。
- (26) A novel tandem cyclization of the iminium ion with Alkyne $\text{Co}_2(\text{CO})_6$ complex
Sakata, Y., Takasawa, S., Tadokoro, S., Yasui, E., Mizukami, M., Miyashita, M., Nagumo, S., ISAT special、工学院大学八王子キャンパス 2012 年 10 月 30 日。
- (27) 8-Endo Friedel-Crafts Cyclization of Vinyloxy and Vinylaziridine with an Acetylene-Dicobalt Complex
Aihara, T., Ishii, Y., Mizukami, M., Yasui, E., Nagumo, S., ISAT special、工学院大学八王子キャンパス 2012 年 10 月 30 日。
- (28) Synthetic study of Tirandalydigin
Sasaki, M., Sakata, J., Yasui, E., Miyashita, M., Nagumo, S., ISAT special、工学院大学八王子キャンパス 2012 年 10 月 30 日。
- (29) Prins-Friedel-Crafts cyclization
Niwa, T., Suzuki, Y., Yasui, E., Miyashita, M., Nagumo, S., ISAT special、工学院大学八王子キャンパス 2012 年 10 月 30 日。
- (30) Synthetic study of Arenicolides
Ohbo, M., Nakano, T., Yamada, H., Yasui, E., Miyashita, M., Nagumo, S., ISAT special、工学院大学八王子キャンパス 2012 年 10 月 30 日。
- (31) Synthetic study of Cripowellin A
Sahara, Y., Yasui, E., Miyashita, M., Nagumo, S., ISAT special、工学院大学八王子キャンパス 2012 年 10 月 30 日。
- (32) Synthetic study of a marine macrolide antibiotic Tedanolide
Yamazaki, J., Ishiwatari, T., Yasui, E., Nagumo, S., Miyashita, M., ISAT special、工学院大学八王子キャンパス 2012 年 10 月 30 日。
- (33) Synthetic study of a novel thietane nucleoside
Nakago, T., T., Yasui, E., Nagumo, S., ISAT special、工学院大学八王子キャンパス 2012 年 10 月 30 日。
- (34) Synthetic study of Cortistatin A
Shimamura, A., Furukawa, R., Kobayashi, Y., Yasui, E., Miyashita, M., Nagumo, S., ISAT special、工学院大学八王子キャンパス 2012 年 10 月 30 日。

- (35) Novel method for construction of medium-sized cyclic compounds based on intramolecular Friedel-Crafts reaction of vinyloxiranes
Mizukami, M., Wada, K., Imai, M., Kawahara, N., Akita, H., Miyashita, M., Nagumo, S., ISAT special、工学院大学八王子キャンパス 2012年10月30日。
- (36) Synthetic studies of venturicidins: stereoselective synthesis of stereogenic centers of Venturicidins based on stereospecific epoxide opening reactions
Suzuki, Y., Yasui, E., Miyashita, M., Nagumo, S., ISAT special、工学院大学八王子キャンパス 2012年10月30日。
- (37) Facile synthesis of medium-sized cyclic amines based on Friedel-Crafts reaction via iminium cation by use of Heterocyclic compounds
Imai, M., Kishi, N., Toyoda, S., Sato, T., Mizukami, M., Nagumo, S., ISAT special、工学院大学八王子キャンパス 2012年10月30日。
- (38) Design and Synthesis of Stabilized Helical Peptides for Transcriptional Inhibitor of Vitamin D Receptor
Nagoya, S., Demizu, Y., Sato, Y., Nagumo, S., Doi, M., Tanaka, M., Kurihara, M., ISAT special、工学院大学八王子キャンパス 2012年10月30日。
- (39) Tirandalydigin の合成研究
佐々木仁軌、坂田樹理、安井英子、宮下正昭、南雲紳史、第64回有機合成化学協会関東支部シンポジウム、長岡技術科学大学、2012年12月1日。
- (40) Arenicolide 類の合成研究(2)
内藤美菜子、大保真澄、山田春樹、中野妙子、安井英子、宮下正昭、南雲紳史、日本薬学会第93春季年会、立命館大学びわこ・くさつキャンパス、2013年3月23日。
- (41) エポキシニトロアルケンの位置選択的 Friedel-Crafts 反応の開発
佐原唯、安井英子、南雲紳史、日本薬学会第93春季年会、立命館大学びわこ・くさつキャンパス、2013年3月23日。
- (42) 閉環メタセシス反応を利用した sekothruxide の合成研究
寺山直樹、安井英子、宮下正昭、南雲紳史、日本薬学会第133年会、日本薬学会第133年会、パシフィコ横浜、2013年3月30日。
- (43) ジプロモアルカノールの位置選択的脱離
佐々木仁軌、安井英子、南雲紳史、日本薬学会第133年会、日本薬学会第133年会、パシフィコ横浜、2013年3月30日。
- (44) 2級水酸基が隣接するエポキシドと有機銅試薬の反応における位置選択性
牛嶋将大、寺山直樹、安井英子、南雲紳史、日本薬学会第133年会、パシフィコ横浜、2013年3月30日。
- (45) アセチレンコバルト錯体を利用した新規タンDEM環化反応
坂田優希、高沢祥平、田所真介、安井英子、水上徳美、宮下正昭、南雲紳史、日本薬学会第133年会、パシフィコ横浜、2013年3月30日。
- (46) ヒドロキシラクタムを用いたインドール誘導体の Friedel-Crafts 反応
佐藤哲平、豊田咲希子、今井幹典、岸伸彦、水上徳美、南雲紳史、日本薬学会第133年会、パシフィコ横浜、2013年3月30日。
Synthetic Study of Sekothruxide
Nagumo, S., Terayama, N., Yasui, E., Miyashita, M., ISAT special、工学院大学八王子キャンパス 2012年10月30日。

研究課題：血液環境で使用される医療機器の生体適合性の改善
2012年度課題：粒径の異なるチタン粉末焼結体の血液適合性の差異

工学院大学 工学部 環境エネルギー化学科 木村 雄二

埼玉大学 工学部 森田 真史

工学院大 総合研究所 大家 溪

Difference in Blood Compatibility of Sintered Compacts Formed with Various Grain Sizes of Titanium Powders

Yuji Kimura, Department of Environmental Energy Chemistry, Kogakuin Univ.
Masafumi MORITA, Faculty of Engineering, Saitama Univ.
and

Kei OYA, Research Institute for Science and Technology, Kogakuin Univ.

ABSTRACT : For developing new stent material, in previous work, various porous titanium specimens were sintered using particles with different size of 45, 120 and 250 μ m. Then, blood compatibility tests, that is, platelet adhesion test and so on were conducted. Both from platelet adhesion test result and morphologies of HUVEC after cultured on surface of porous specimens, specimen with smaller particle size of 45 μ m showed better anti-thrombosis property and adhesion characteristics toward vascular endothelial cells. As a result, titanium porous specimen sintered with smaller particle size showed relatively higher potential for using as new stent material.

Therefore in this study, various specimens which were sinter by HIP using powders with different grain size from 20 to 45 μ m were prepared. Then, blood compatibility tests, that is, platelet adhesion test and so on were conducted. Both from platelet adhesion test results, that is, Fibrin Network morphologies and adhered platelet number, sintered specimen of Ti-32~45 showed superior blood compatibility than other specimens including pure Ti plate. Also, blood compatibility of high temperature oxidized Ni-Ti alloy which was candidate material for various medical applications was evaluated. As a result, high temperature oxidized Ni-Ti alloy showed superior blood compatibility together with good cytocompatibility.

Key words : porous and compact Ti, blood compatibility, platelet adhesion characteristics

1. 緒言

動脈硬化による血管の閉塞は、心疾患や脳血管疾患の要因となる。冠動脈疾患に対する治療法として、主に薬剤治療や冠動脈バイパス手術、あるいは閉塞しかけてい

る血管内部位を拡張するバルーン（風船）拡張術が施されてきた^{1),2)}。しかし、これらの治療法は施術から短期間のうちに再狭窄が認められる場合が多かった。これらの解決を目指して開発されたのがステントである。ステントの登場により、これまでの血管内冠動脈治療が抱えて

いた問題は大幅に改善された。さらに、ステント挿入術は他の治療法と比較して低侵襲であり、なおかつ簡易であることから、超高齢社会を迎えた現代において、市場を急速に拡大している。

ステントはバルーン拡張術を応用したものであり、金属製の細かい網目構造を持つ筒状のデバイスである。ステントは通常、使用前は折りたたまれており、これを血管内の狭窄部まで輸送し拡張させることにより、狭窄部を物理的に拡張して血流を確保するものである。ステントはそれ自体が患部で自己拡張するもの（自己拡張型ステント）とバルーンにより拡張するもの（バルーン拡張型ステント）の二種類がある。自己拡張型ステントには主にニッケル・チタン合金が用いられており、バルーン拡張型ステントにはステンレス鋼やコバルト・クロム合金が用いられている^{3),4)}。

従来の血管狭窄治療法よりも効果的な治療デバイスとして最初に登場したステントは、金属が露出したままのステント（Bare Metal Stent: BMS）である。しかし、BMSは依然として再狭窄率が高いという問題があった。そこで開発されたのが血管を構成する細胞の増殖や活性を抑制する（すなわち、再狭窄を抑制する）薬剤を、ポリマーなどを用いてステント表面に被覆したステント（薬剤溶出型ステント、Drug Eluting Stent: DES）である。DESの中には長いもので約1年間、薬剤を放出できるものもあるが、長期間使用すればステントの下地がいずれ露出してしまう。そのため、時間の経過とともにDESはBMSと変わらないものとなってしまう、遅発性あるいは超遅発性のステント血栓症を引き起こすことが問題となっている。この問題を解決するために、現在、DESを改良したステントや、生分解性をもつステントの開発など、従来のステントに代わる新たなステントの開発が活発に進められている。

ステントには血管内で血栓を形成しないこと（抗血栓性）と、血管内皮細胞に対して優れた細胞接着性を有すること（細胞適合性）の二つの特性が求められる。BMSやDESに代わるステントの開発には、これらの特性を併せもつ材料が求められる。そのためには、材料の選定や表面形状の制御が重要な因子となる。これまでに、316Lステンレス鋼、コバルト・クロム・モリブデン合金、純チタン、およびチタン合金上で血栓形成の要因となる血小板の粘着やFibrin Networkの形成能を比較した結果、表面に酸化チタン皮膜を形成する純チタンやチタン合金はFibrin Networkの形成が早く、表面に酸化クロム皮膜を形成する316Lステンレス鋼、コバルト・クロム・モリブデン合金は血小板の粘着が少ないことが報告されており、材料によって抗血栓性に差があることがわかっている⁵⁾。一方、材料表面の粗さ（roughness）の違いが、細胞接着に大きく影響することが数多く報告されている^{6)~9)}。一般に、平滑な表面と比較して粗い表面の方が細胞接着性に優れる。さらに、材料表面の形状（topography）も、細胞接着性に大きな影響を及ぼす一因である。

本研究では新たなステント材料の開発を目指し、材料の多孔質化に着目した。上述したように材料表面の粗さは細胞接着を促進する重要な因子であり、多孔質化により金属材料表面に粗さを付与することができる。粗さをもつ材料表面は血管内皮細胞の足場材としての役割を担い、細胞の優れた伸展・増殖が期待できる。さらに、血管壁に対するアンカー性の向上によるズレの低減や、低ヤング率化による血管壁面に対するストレスの低減なども期待できる。2011年度は、粒径の異なるチタン多孔体に対し、血小板粘着試験と血管内皮細胞の接着性試験を行い、抗血栓性と細胞接着性の両方の観点から多孔体のステント材料としての可能性を検証した。

2012年度は、異なる粒度の真球状チタン粉末緻密焼結体に着目した。現在、チタン粉末焼結体の粒度の違いから、血小板の粘着に差異が生じることが明らかになっている。医療用金属材料であるチタンは、生体に対してのアレルギー反応が少なく、酸化皮膜を形成して安定している。そのためチタンは生体内で高い耐食性がある。しかし、チタンは血小板との親和性に優れているため、血栓の形成が懸念される。また、チタン粉末を焼結することで、従来のステントと比べて低ヤング率となることから、血管壁に対するストレスの低減なども期待できる¹⁰⁾。

そこで、本年度は、アレルギー反応の少ない抗血栓性ステント材料の作製を目的とし、血小板粘着試験を行うことで、20 μm 以下、20-32 μm、32-45 μm の異なる粒度のチタン粉末緻密焼結体が血小板粘着に及ぼす影響を評価した。

同時に、生体材料への応用が期待されている Ni-Ti 合金についても、血小板粘着試験による血液適合性を評価することにより、特に同材料に対する高温酸化処理の効果について検討した結果を述べる。

2. 実験方法

2-1. 試験片の作製

本研究で使用した真球状チタン粉末は、TILOP-45((株)大阪チタニウムテクノロジー製)を用いた。JIS規格の試験用篩(目開き 20 μm 以下、32 μm、45 μm)で篩がけを行い、粉体の粒度を 20 μm 以下、20-32 μm、32-45 μm に選択した。それぞれの異なる粒度のチタン粉末を熱間等方圧加圧法 (Hot Isostatic Pressing: HIP) で焼結することにより、チタン粉末緻密焼結体を作製した。焼結条件は 100 MPa、850 °C で保持時間は 240 min で行った。以下それぞれのチタン粉末焼結体を “Ti-20”, “Ti-20~32”, “Ti-32~45” と表記する。比較材として JIS 1 種の CP Ti (以下 “Ti”) を用いた。それぞれの試験片サイズは (10 mm × 10 mm × 2 mm) で、表面はエメリー研磨紙で #1000 まで研磨を行った。Fig. 1 にそれぞれの異なる真球状チタン粉末焼結体ならびに CP Ti の研磨後の表面形態を示した。

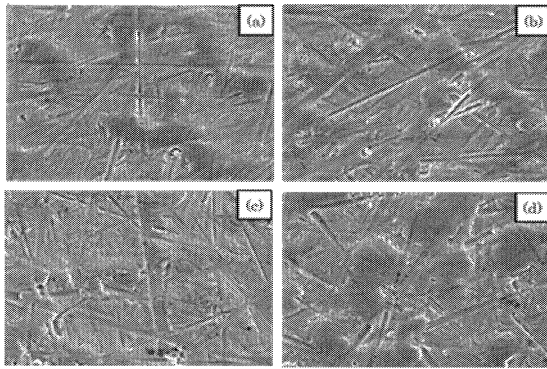


Fig. 1 Titanium powder sintered body.
(a) Ti-20, (b) Ti-20~32, (c) Ti-32~45 (c)Ti

2-2. 血小板粘着試験

健常者から血液を採取し、全血液と 9 : 1 になるよう抗凝固剤の 3.8 % のクエン酸ナトリウムを加え、遠心分離を行った。140 G で 15 min 遠心分離を行い、上澄みから PRP(多血小板血漿)を抽出後、1400 G で 30 min 再度遠心分離を行うことで、PPP(貧血小板血漿)を抽出した。この PRP, PPP の血小板数を血球計測盤により計測し、血小板数が 1.0×10^5 個/ μl になるよう調整し、使用直前に凝固剤として 0.25M -CaCl₂ を添加した。血小板血漿溶液を添加後、各試験片を 5,10min 浸漬した。その後、リン酸緩衝塩類(PBS(-))溶液で洗浄を行い、2 % グルタルアルデヒドで 2 h 固定した。エタノール上昇系列脱水を行った後、臨界点乾燥を行った。白金パラジウムを 10 nm スパッタリング後、SEM によって各試料における血小板の粘着の様子を観察し比較を行った。この様な血小板粘着試験の流れを Fig. 2 に示す。

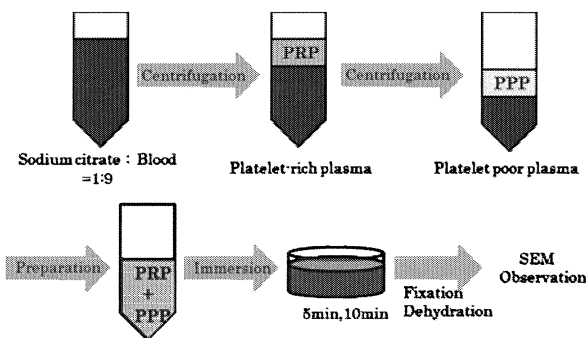


Fig. 2 Platelet adhesion examination.

3. 実験結果

3-1. 血小板粘着試験(5min)における血小板の形態

各試験片における 5 分後の血小板の様子を Fig. 3 に示す。Ti-20 では血小板が粘着し、Ti と同様に血栓の要因である Fibrin Network が活発に形成されている事が確認できた。しかし、Ti-20~32, Ti-32~45 では血小板の粘着は見取れるが、Fibrin Network の形性が緩慢に行われていた。Ti-20 では血小板が粘着し Fibrin Network が 4 μm 程度全体的に伸展している事が確認できた。Ti-20~32 では

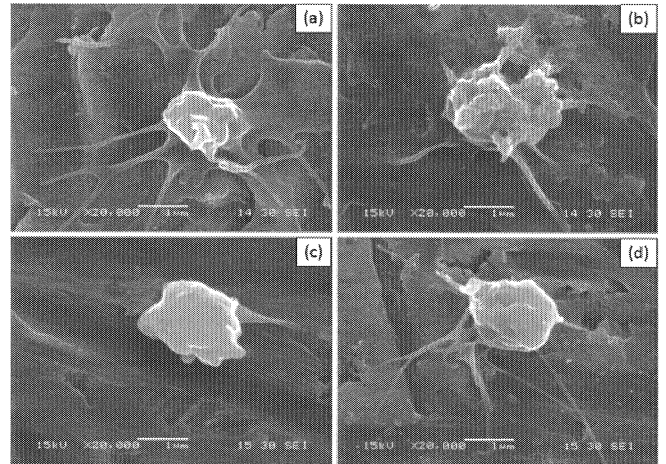


Fig. 3 Platelet adhesion examination (5min).
(a) Ti-20, (b) Ti-20~32, (c) Ti-32~45, (d)Ti

血小板が粘着し、Fibrin Network の形成が 1 μm 程度、全体的に伸展している事が確認できた。Ti-32~45 では血小板が粘着し、Fibrin Network が 1 μm 程度部分的に伸展している事が確認できた。

3-2. 血小板粘着試験(10min)における血小板の形態

各試験片における 10 分後の血小板の様子を Fig. 4 に示す。Ti-20 では全体的に Fibrin Network の形成が活発になり、Ti と同様に血小板に対して高い親和性が確認できた。また、Ti-20~32, Ti-32~45 では 5 分後よりも Fibrin Network が形成されているが、あまり伸展が確認できなかった。Ti-20~32 では血小板が粘着し、Fibrin Network が多少形成し、部分的に確認できた。Ti-32~45 では Fibrin Network の形成が緩慢で伸展が確認できなかった。

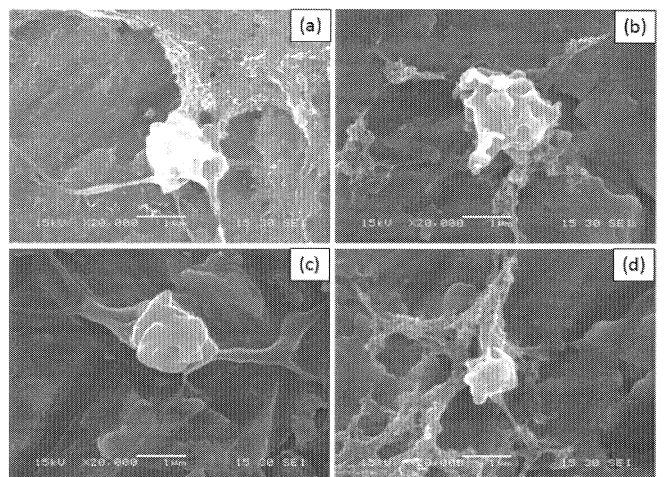


Fig. 4 Platelet adhesion examination (10min).
(a) Ti-20, (b) Ti-20~32, (c) Ti-32~45, (d)Ti

3-3. 血小板粘着試験における血小板の粘着数

SEM による画像解析から得た、各試験片における血小板の粘着数を Fig. 5 に示す。Ti で示したチタン表面上に血小板が最も多く粘着している事が確認できた。

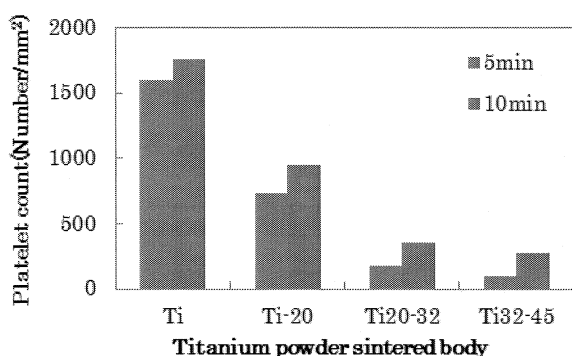


Fig. 5 Platelet adhesion examination (5,10min).

Ti-20~32, Ti-32~45 では Ti-20 に比べると血小板の粘着数は少なかった。これらの結果から、粒径が大きくなるにつれ、血小板が粘着しにくい傾向が明らかとなった。

4. 実験結果の考察

チタン粉末緻密焼結体においては、粒径の大きさに依存して血小板の粘着及び Fibrin Network の形成に差異が生じた。すなわち、粒径が大きくなるにつれ、血小板の粘着が弱くなり、Fibrin Network の形成が緩慢になることが確認できた。HIP 処理によるチタン粉末焼結体の粒径の差異が、血小板に対して影響を及ぼす因子であると示された。粒度によって差異が生じる要因としては、タンパク質の吸着が考えられる。金属表面とタンパク質は、血小板の粘着及び Fibrin Network の形成のための重要なプロセスである。血小板の粘着や Fibrin Network の形成は、材料表面の組成や比誘電率から、タンパク質の吸着に、大きく影響を与えることが検討されている。本研究でのチタン材料の酸化皮膜は TiO_x であり、比誘電率は 86-170 程度である。粒度を変化させることにより比誘電率の異なるチタン焼結体が作製できたと考えられる。比誘電率が高ければ、血液中の負の電荷を帯びたチタン表面上に Ca^{2+} と Mg^{2+} が優先的に引きつけられる。帯電した Ca^{2+} と Mg^{2+} に対してタンパク質の吸着が多くなり、血小板の粘着及び Fibrin Network の形成が活発となる。よって、粒度の異なるチタン粉末緻密焼結体は、酸化皮膜と比誘電率が血小板粘着に対して重要な役割を果たしていると考えられる。Fig. 3 と Fig. 4 から Ti-32~45 は比誘電率が低く、抗血栓性に優れている傾向があり、異なる粒度のチタン粉末の焼結体と比較して、血小板の粘着と Fibrin Network の形成を阻害したものと考えられる。

一方、Ni-Ti 形状記憶合金のバイオデバイスへの適用を意図した研究においても、高温酸化による表面 Ni フリー層の作製と残留 Ni から溶出イオン化した Ni イオンのアレルギー反応への寄与と同時に、血小板粘着試験による血液適合性を評価することで高温酸化処理した Ni-Ti 合金の生体材料への適用を検討した。すなわち、Ni, Ni-Ti 合金の ϕ 15mm 棒材を 2mm 厚にカットし、表面を #1000

までエメリー研磨した後バフ研磨を行い鏡面に仕上げた。その後 Ni-Ti 合金は 500°C で 30 分間の高温酸化を行い、Ni 板、Ni-Ti 板、高温酸化処理を施した Ni-Ti (以下 HTO) 板の 3 種類の試験片上での血小板粘着試験を行った。

その結果、下記の Fig.6 のような結果を得た。5min では HTO>Ni>Ni-Ti の順に血小板の粘着が見られたが、どの試験片でもフィブリンネットワークの形成は見られなかった。10min では Ni, Ni-Ti の血小板の粘着量は変わらなかったが、フィブリンネットワークの形成傾向が見られた。HTO には血小板の付着、凝集の増加が見られたものの、フィブリンネットワークの形成は見られなかった。Ni, Ni-Ti がフィブリンネットワークの形成傾向を示したことからステント等で応用した場合血栓を作る可能性が高い。しかし、HTO にはフィブリンネットワークの形成傾向が見られなかったことから、HTO は血栓を作る可能性が低く、抗血栓性に優れ、血液適合性に優れることが示された。

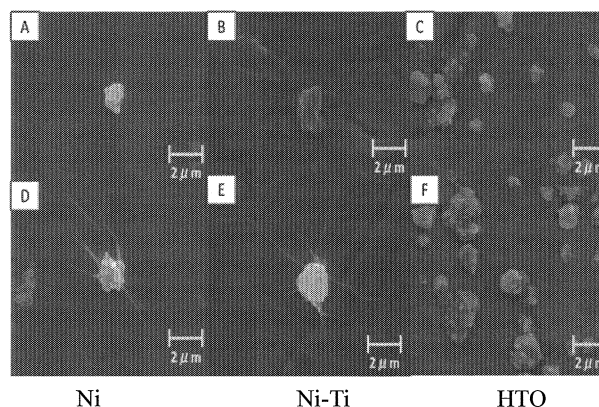


Fig.6 血小板粘着の様子(A, B, C:5min、D, E, F:10min)

5. 結言

本研究では、異なる粒度のチタン粉末緻密焼結体に血小板粘着試験を行うことで、血小板の粘着と Fibrin Network の形成に差異を生じ、粒径の大きいチタン粉末焼結体 (Ti-32~45) ほど、血小板の粘着及び Fibrin Network の形成が緩慢であることが明らかとなった。また、高温酸化 Ni-Ti 合金 (HTO) には血栓の原因であるフィブリンネットワークの形成が見られなかったことから、HTO は細胞適合性に優れるのと同時に血液適合性にも優れることが示された。

参考文献

- (1) 岩田博, 真鍋一郎: バイオマテリアル, 日本バイオマテリアル学会, 29(2011) pp.146-157.
- (2) 柿木佐知朗, 山岡哲二: バイオマテリアル, 日本バイオマテリアル学会, 29(2011) pp.166-173.
- (3) 塙隆夫: 医療用金属材料概論, 日本金属学会, (2010) pp.22-26 and pp.246-248.

- (4) 埴隆夫, 米山隆之: 金属バイオマテリアル, コロナ社, (2007) pp.18-20.
- (5) Y. Tanaka, K. Kurashima, H. Saito, A. Nagai, Y. Tsutsumi, H. Doi, *et al*, *J.Artif.Organs*, **12** (2009) pp.182-186.
- (6) J. Y. Martin, Z. Schwartz, T. W. Hummert, D. M. Schraub, J. Simpson, J. Lankford Jr, *et al*, *J.Biomed.Mater.Res.*, **29** (1995) pp.389-401.
- (7) K. Kieswetter, Z. Schwartz, T. W. Hummert, D. L. Cochran, J. Simpson, D. D. Dean, *et al*, *J.Biomed.Mater.Res.*, **32** (1996) pp.55-63.
- (8) B. D. Boyan, R. Batzer, K. Kieswetter, Y. Liu, D. L. Cochran, S. Szmuckler-Moncler, *et al*, *J.Biomed.Mater.Res.*, **39** (1998) pp.77-85.
- (9) T. J. Webster and J. U. Ejiolor, *Biomaterials*, **25** (2004) pp.4731- 4739.
- (10) 埴隆夫, 日本金属学会, 「医療用金属材料概論」, (2010), p246-248.

① 発表論文

- 1. Yuji Kimura, Improvement of Biocompatibility of Medical Ni-Ti Alloys through Forming TiO₂ Thin Film, *Advanced Materials Research*, Vol. 275, pp.182-185, 2011.

② 研究発表

- 1. 大家 溪, 箕浦祐貴, 木村雄二, チタン多孔体の孔径の違いによる血液適合性の差異, 日本材料科学会平成23年度学術講演大会講演予稿集, (2011) pp.67-68.
- 2. 大家 溪, 木村雄二, チタン多孔体の血液適合性, 日本材料科学会第3回医用生体材料分科会講演会前刷集, 2012年1月.
- 3. 石橋康正, 大家 溪, 木村雄二, 粒径の異なるチタン粉末の焼結体の血液適合性, 日本材料科学会平成24年度学術講演大会講演予稿集, pp.79-80, 2012.
- 4. 大家 溪, 木村雄二, チタン多孔体の血液適合性, 日本材料科学会第3回医用・生体材料分科会講演会講演予稿集, 2012.
- 5. 佐藤彰彦, 大家 溪, 木村 雄二, 粒度の異なるチタン粉末焼結体の血液適合性の差異, 日本材料科学会第4回医用・生体材料分科会講演会講演予稿集, 2013.
- 6. 近藤貴史, 大家 溪, 木村雄二, 高温酸化処理したNi-Ti合金の細胞適合性と血液適合性, 日本材料科学会第4回医用・生体材料分科会講演会講演予稿集, 2013.

解体を迎える半世紀供用した鉄筋コンクリート造建築物の後期健全度評価 と解体排出物のゼロエミッション型再資源化モデルの構築

—震災廃木材を含む未利用木材を有効利用した低圧縮型木片コンクリートと外装用木片セメント板の基礎的物性—

工学院大学 建築学部建築学科 田村雅紀

工学院大学 建築学部建築学科 阿部道彦

住友林業ホームテック 荒川京一

オーリス 佐山俊介

八洋コンサルタント 斉藤順一

首都大学東京 中村孝也

電源開発 石川嘉崇

鹿島建設技術研究所 依田和久

Robustness evaluation of reinforced concrete buildings using in long terms and
technical development the construction on recycling model for zero emission

Masaki Tamura, Department of Architecture, School of Architecture

ABSTRACT : The objectives for the long-term and environmental conscious use of buildings and constructed assets are more important issues in Japan, and the many types of technical approaches in order to reduce the environmental loads during the whole lifecycle are developing day by day. In particular, the issues regarding the waste management of disaster and usual conditions and CO2 reduction have been causing a lots of concern, and environmental loads including these materials such as demolished wood and concrete rubble should therefore be properly assessed. In this study, it is investigated the new system for using earthquake waste in structural concrete and external board and it is experimentally produced and evaluated these concrete specimens.

1. はじめに

現在、日本では東日本大震災からの復旧・復興対策を受けて、廃木材を含む未利用木材の活用方を推進する必要性が問われている¹⁾⁴⁾。これらの未利用木材は建設発生木材、製材工場等残材、間伐木材等に分類できるが、平常時と災害時における発生状況がある程度想定した上で、これらの排出物をゼロエミッション型の再資源化や削減を実施することになる。現状では平常時において上記は90~95%利活用されているが、間伐材等は利用率は乏しい。震災廃棄物を含む木質系チップ全体としての利用や木片コンクリートの用途も主に内装・下地材料に限られている。東日本大震災における廃木材の発生状況を鑑み、未利用木材の使用用途を広げることが有意義であり、ひいてはCO₂の固定化にも貢献でき、地域環境から地球環境までの保全及び震災対策に役立つものと考えられる。本研究では、これら問題を解決可能な対策のひとつに構造体として使用可能となるような低圧縮型木片コンクリートブロックの利用を掲げた⁵⁾¹⁰⁾。現在海外で使用されている低圧縮型木片コンクリートブロック（以下海外輸入ブロックとする）は炭素を固定化したまま木チップを利用し、さらに構造用材料として外装使用できる等、多くのメリットが考えられるため、ヒアリング調査を踏まえて海外輸入ブロック及び作製した低圧縮型木片コンクリートの基礎的物性評価を行い比較した。続いて、外装

パネルを想定して利用する場合では、現在の法律では有機物である木材含む木質セメント系材料は構造や外装材利用に強度や耐火、防火、木材特有の膨張収縮等の理由より制限があり、幅広く使用することができないことから品質を改善して要求条件を満たす必要がある。そこで本研究では、木質セメント板の木材利用環境の現状調査を行った後に、硬化促進方法として塩化物の添加、高温養生を実施する改質処理ならびに、超低粘度の補修材の含浸処理を行い、製造時・補修時を含めた改質処理効果の実験を行った。

2. 震災廃木材を含む低圧縮型木片コンクリートの研究

2.1 研究概要

表1に既製のブロックを使用する利点と問題点を示す。ヒアリング調査(研究1)により、海外輸入ブロックは海外の耐火基準は満たしているが日本では法で定める圧縮強度を満足しないため耐火試験が実施できず構造材料としての使用上の課題が明示された。これより本研究では低圧縮型木片コンクリートを現行の国土交通省告示やJISの強度以外の性能を満たすように強度改善を図り、構造材としての仕様を想定した性能評価を行なった。

表2に使用材料を示す。リサイクルチップはパーティクルボード製造業者が震災廃棄物(工場で定められた放射線量濃度基準値以下のもの)を含む廃木材を加工したものを

用い、比較対象としてセメントの硬化不良を起こす可能性のあるカラ松材とそのような硬化不良が生じにくい赤松材を選定した。チップの使用状態は含水による強度低下を防止するため表乾状態とはせず、室温約 20℃湿度約 60% に保たれた部屋で 1 週間以上養生したものを使用した。

表 3 に要因と水準、表 4 に実験項目と方法、表 5 に調合を示す。海外輸入ブロックの基礎物性を踏まえ、低圧縮型木片コンクリートを作製し、圧縮試験は屋外使用を想定し、標準状態、吸水状態、吸水→乾燥状態の 3 水準により試験を行った。

2.2 海外輸入ブロックの基礎物性試験 (研究 2)

図 3a)にかさ密度及び空隙率を示す。海外輸入ブロックの上部と下部では材料分離によるセメント硬化体密度が異なることが目視確認できた。そのため、上部 (H)、中部 (M)、下部 (L) から試験体を切断しかさ密度を測定したところ、下部ほど上昇し、空隙率はおおむね低下した。また海外輸入ブロックのチップ要素におけるセメント含有量を塩酸水溶液で溶かした後に粒度分布試験を行ったところ、粒度は小粒度から大粒度まで偏りなく分布していることがわかった。

図 3b)に密度と質量変化率を、図 3c)に圧縮強度と静弾性係数の変化を示す。試験体の吸水乾燥後の密度及び質量は吸水乾燥前とほぼ変化はない。圧縮強度については吸水後に低下し、乾燥後も回復はなかった。木片粒子の吸水に伴う水素結合力の緩和と乾燥再固化後の吸水膨張ひずみの残存影響が生じていると思われる。なお静弾性係数は強度変化と同様に推移した。図 3d)に部位の違いによる曲げ強度の変化を示す。これらの密度差の結果より、下部から上部にかけての強度低下が予測できるが結果は L→H→M の順に低下しており、含有する粒子状態の機械的かみ合わせの程度が曲げ特性に影響し、木材のように圧縮よりも曲げの方が強度が卓越する基本的な性質の影響も生じている可能性が考えられた。

2.3 低圧縮型木片コンクリートの基礎物性試験 (研究 3)

2.3.1 廃木片リサイクルチップの基礎物性

続いて、廃木片を含むリサイクルチップを用いて実際に低圧縮型木片コンクリートを製造する。リサイクルチップ RM の粒度分布は既製品と同じく最密充填であり、RL は中粒度が少なかった。小サイズは微粉末である。

図 4a)に木チップの使用状態におけるかさ密度及び含水率を示す。かさ密度は小サイズが最大となり、カラ松材の密度は赤松材と比べると大きく、含水率は大サイズが最大となった。

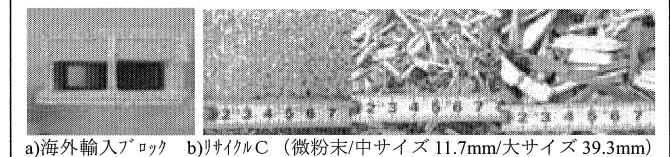
図 4b)d)に木チップの表乾密度及び絶乾密度、吸水率を示す。表乾密度は使用状態のかさ密度と同様に小サイズが最大となり、絶乾密度は大サイズが最大となった。またカラ松材の表乾及び絶乾密度は赤松材と比べ小さく、吸水率は小サイズが最大となった。この結果には、チップ自身の真密度の違いと木片の繊維組成が関係するチップサイズごとの表面積の違いの影響と考えられる。

表 1 海外輸入ブロックを使用する利点と問題点 (研究 1)

ヒアリング項目	課題 (生産・意匠・構造・評価, 法律)	
未利用木材の有効利用	木材をチップ化して使用。間伐材等も利用するため林地残材の有効利用が可能。	
施工速さの向上	乾式の組積造のため、工期短縮可能。ブロックは軽量でノコギリでも切断可能なため加工性に優れる。	
代替型枠化	ブロックが型枠の性能を有している。型枠工事不要	
外装利用可能	破碎木材は現在 PB,OSB,など主に屋内使用に限定であるが、本製品は屋外での使用が可能である。	
問題点 (日本使用)	説明	現状
耐火	木材を骨材に木材を使用しているため、耐火性能に懸念がある。	ISO1182 及び BS476 準拠の耐火試験は満たすが JIS 準拠の試験は未実施
圧縮強度	国土交通省告示第 463 号及び JIS A 5406 に規定されている 20N/mm ² 未満	海外輸入ブロックの圧縮強度は約 2 N/mm ²
関連法規	名称	材料性能の規定
建築基準法施工令	第 51-62 条 組積造	JIS A 5406 建築用コンクリートブロック
	第 62 条の 2-8 補強コンクリートブロック造	
国土交通省告示	第 463 号 鉄筋コンクリート組積造	告示で規定

表 2 使用材料 (研究 2,3)

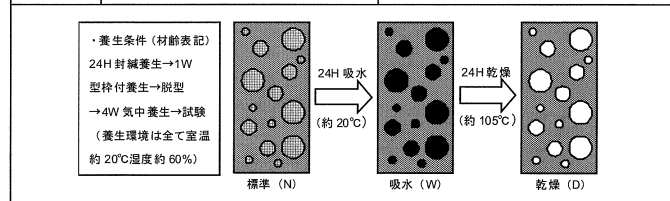
項目	記号	種類	平均最大寸法 (mm)
木チップ	RS	リサイクル材 (小)	— (微粉末)
	RM	リサイクル材 (中)	11.7
	RL	リサイクル材 (大)	39.3
	KS	カラ松材 (小)	(3mm メッシュを通過)
	AS	赤松材 (小)	(3mm メッシュを通過)
セメント	N	普通ポルトランドセメント (密度: 3.16g/cm ³)	
AE 減水剤	Ad	リグニンスルホン酸化合物とポリオール複合体	
増粘剤	M	メチルセルロースをエーテル化した水溶性 MCE 系混和剤	
チップサイズの基準	小	パーティクルボード表面材サイズ	
	中	パーティクルボードコア材サイズ	
	大	解体木材を一次破碎工程でできるサイズ	



a)海外輸入ブロック b)リサイクル (微粉末/中サイズ 11.7mm/大サイズ 39.3mm)
備考) 震災廃木材チップは、放射線の影響がサンプリング試験により生じないことが評価された試験片を持っている。

表 3 実験要因と水準 (研究 2,3)

研究	要因	水準
研究 2	圧縮試験条件	標準 (N), 吸水 (W), 乾燥 (D)
	曲げ試験条件	標準: H, M, L
研究 3	水・セメント比 W/C (%)	40, 50, 60
	チップ・セメント比 P/C (%)	10, 15, 20
	木チップ	RS, RM, RL, KS, AS (表 2)
	AE 減水剤	セメント比 0.25% 使用
	増粘剤	水比 0.1% 使用
	養生条件	図 2 参照
	圧縮試験条件	標準 (N), 吸水 (W), 乾燥 (D)
	曲げ試験条件	標準, W/C 50%, P/C 15%



備考) 木片の積極利用により無機有機融合体としての特徴が標準状態、吸水状態、吸水→乾燥状態の 3 水準で生じると考えられる。

2.3.2 低圧縮型木片コンクリートの試験体作製

試験体の作製方法は JIS A 1132 コンクリートの強度試験用供試体の作り方を参考に行った。木片コンクリートは粘性が高いのでセメント成分とチップを均一にするため突く層の数を多くするとともに、RM, RL はチップとセメントペーストとの材料分離防止のためメチルセルローズ系粉体増粘剤を添加した。

2.3.3 低圧縮型木片コンクリートの圧縮強度

図5にコンクリートの空隙率を、図6に日本建築学会式との比較を、図7に空隙率の違いによる圧縮強度・静弾性係数の変化を示す。チップの含有量が少ないほどコンクリート全体の空隙量は少なくなり、圧縮強度との関係での普通コンクリートの空隙率が約1%増加すると圧縮強度は約5%減少する、コンクリートの一般的な性質とほぼ同様に推移した。

図8に試験体の密度と重量変化率を、図9に圧縮強度と静弾性係数を示す。縦ひずみはコンプレッソメーターを用い、供試体端面の平滑度を踏まえ、上端面は石膏及びアンボンドキャッピングを施して試験した。密度変化と重量変化率の変化量はチップ寸法と含有量が多くなるにつれ増加したが、圧縮強度についてはチップ寸法が大きく含有量が多くなると低下した。また吸水・乾燥させると強度低下するが、チップ寸法が小さいものは乾燥固化後の強度が回復した。これらの圧縮強度とヤング係数の関係より、全体としてヤング係数が小さくなっているが、それは密度 γ として ALC パネルの密度 0.5g/cm³、軽量コンクリート骨材の密度 1.0~1.5g/cm³ を想定した場合の学会式と同等な物性として評価可能である。

2.3.4 低圧縮型木片コンクリートの曲げ試験

図10に曲げ強度と曲げ靱性エネルギーを示す。曲げ強度は大サイズが最大となり、チップ寸法に比例して木材の曲げ強度が圧縮強度より増大する木材自身の力学特性の傾向が顕著に現れた。曲げ区間に対する1%の変形を限界状態とし、曲げたわみ曲線における3mmまでのたわみに囲まれた面積を曲げ靱性エネルギーとし評価したところ、曲げ靱性エネルギーは曲げ強度と等しく変化した。当該コンクリートは、海外輸入ブロックと比べ圧縮強度は約2~15倍の強度向上が図れており目標としていた20N/mm²以上が得られている。曲げ強度も同等の強度を保つことができ、また強度のばらつきも少ない形で

表4 実験項目と方法 (研究2,3)

状態	実験項目	方法 (試験体寸法 mm)	
研究2	木チップ	粒度分布	ブロックを塩酸水溶液に浸し、附着しているセメント成分を取り除き測定
	試験体	密度試験	要素試料かさ密度 (40×40×160)。NWD密度・質量変化率測定 (φ150×300)
		圧縮試験	JIS A 1108, 1149 参照 (φ150×300)
		曲げ試験	JIS R 5201 参照。3線式中央1点荷荷により、曲げ強さとたわみ量測定 (40×40×160)
	空隙率試験	ポーラスコンクリートの空隙率試験方法を参照し測定 (40×40×70)	
研究3	木	粒度分布	使用状態における粒度分布を測定
		密度試験	JIS A 1109 参照。表乾・絶乾密度測定
		吸水率試験	JIS A 1109 参照。吸水率を測定
		実積率試験	JIS A 1104 参照。実積率を測定
	試験体	密度試験	N, W, D の密度・質量変化率を測定
		圧縮試験	JIS A 1108, 1149 参照 (φ100×200)
		曲げ試験	JIS A 1106 参照。三等分点荷荷法により、曲げ強さとたわみ量測定 (100×100×400)
		空隙率試験	研究2と同様に試験 (φ50×100)

表5 計画調査 (研究3)

項目	記号	W/C(%)	P/C(%)	セメント	水	チップ	Ad
単位量 [kg/m ³]	40	40	10	1274	510	127	C×0.25%
	50	50	15	1146	573	172	
	60	60	20	1019	611	204	

備考) Ad:化学混和剤, M:像粘用メチルセルローズ粉末

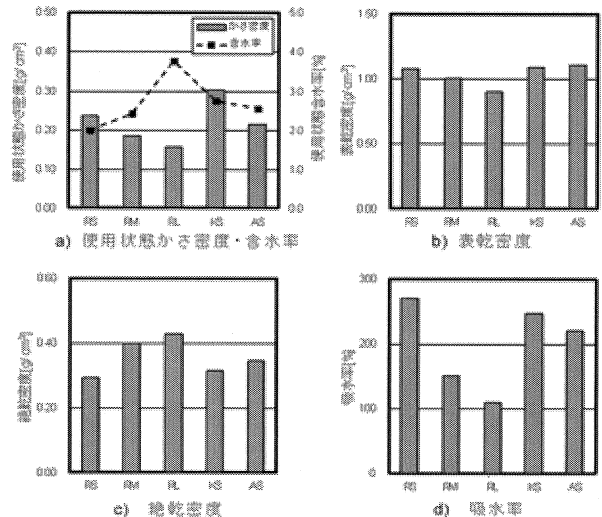


図4 使用する木チップの基礎的物性 (研究3)

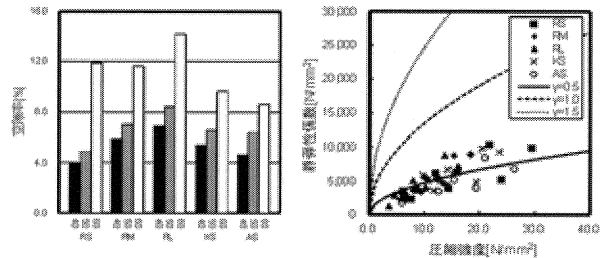


図5 コンクリート空隙率 図6 AIJ 圧縮-静弾性との関係

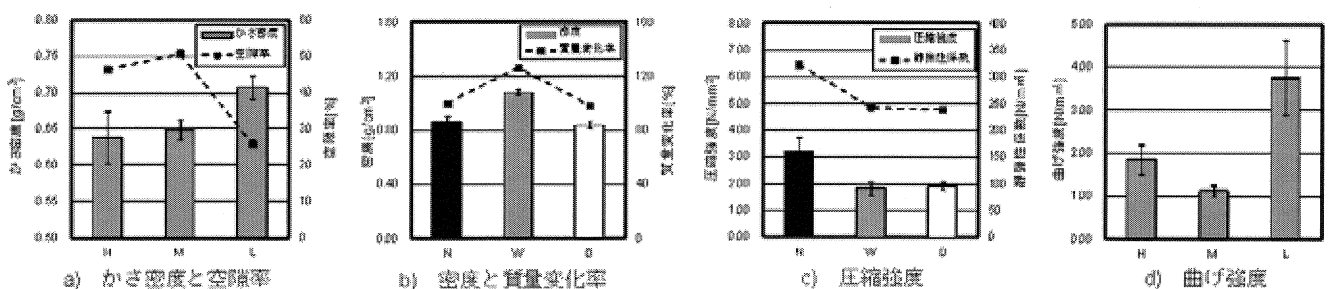


図3 海外輸入の低圧縮型木片コンクリートブロックの基礎物性 (研究2)

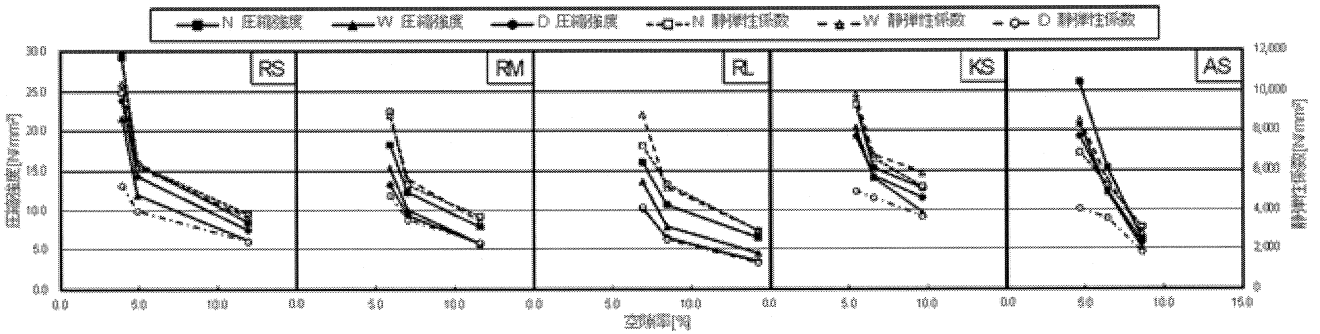


図7 低圧縮型木片コンクリートの空隙率の違いによる圧縮強度と静弾性係数の変化

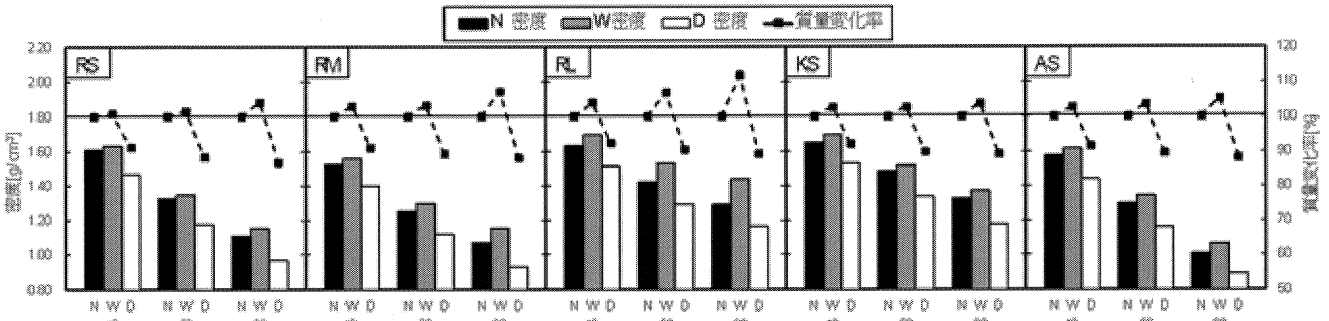


図8 低圧縮型木片コンクリートの吸水・乾燥による密度と質量変化率の推移

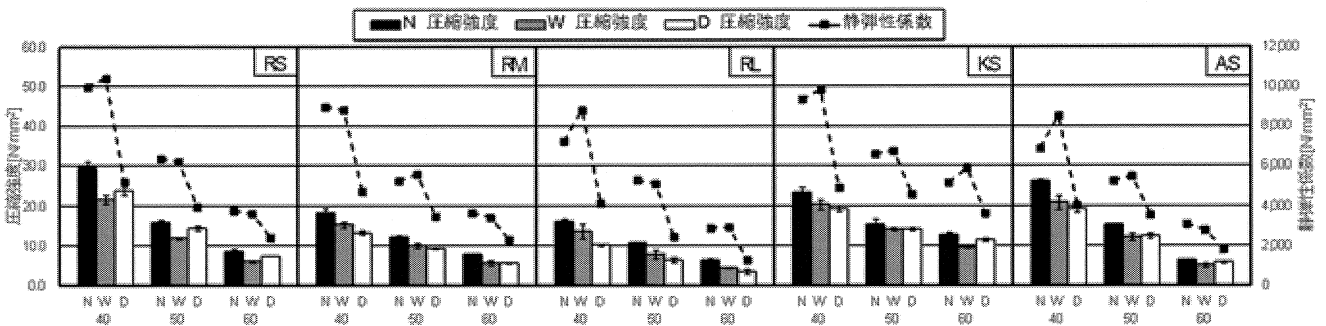


図9 低圧縮型木片コンクリートの吸水・乾燥による圧縮強度と静弾性係数の変化

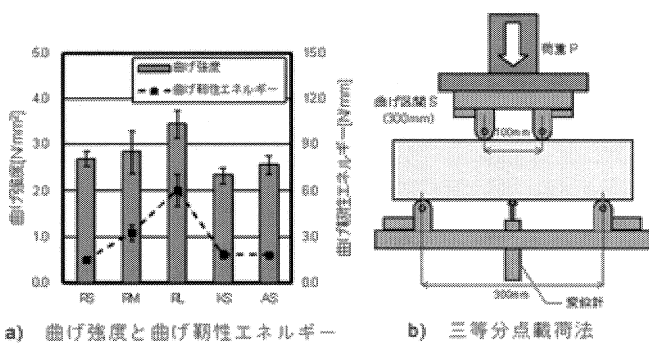


図10 低圧縮型木片コンクリートの曲げ試験結果

評価された。なお密度は約1.3~2倍程度増加し、空隙率は約45~92%減少していることから、のこぎり等による切断成形が可能となる木質材料に特有の施工性に関わるメリットが低下していることから、強度を保持したままチップの含有量を増やしてセメント量を減らすような調査を実現できるが課題となる。

3. 震災廃木材を含む外装用木片セメント板の研究

3.1 研究概要

表6から表12に廃木材を含む外装用木片セメント板の使用材料、木片セメントパネルの基礎的物性と補修材性能、製品の製造条件および実験要因と水準を示す。外装用木片セメント板は、現在は限られた樹種の木片を利用して大規模な製造システムにより工業化された製品の需給体系が構築されており、既往研究の蓄積がなされているが、震災廃木材等の未利用木材を積極利用することは容易ではない。したがって、木質材料の多様な原料化を達成しつつ、製品用途を現在の下地材等よりも拡大をはかることで高度な利活用につながる。また炭素固定の観点からも積極的な利用が望まれるといえよう。ここでは特に硬化不良を起こすカラマツなどは、震災廃棄物を含むリサイクルを用いて製品をボード状で製造し、セメントは木質セメント板で一般的に採用されている早強ポルトランドセメントを用いて成形時にプレス加工を施して試験体とし、それらの基礎的物性を評価した。

表 6 使用材料

材料名	種類	内容
セメント	早強 PC	密度 3.14g/cm ³
木チップ	カラマツ	長さ 2~5mm, 密度 0.32g/cm ³
	リサイクル	長さ 2~5mm, 密度 0.24g/cm ³ (震災廃棄物)
補修材	超低粘度アクリル系樹脂	密度 1.1g/cm ³ 毛細管現象による吸収特性

表 9 パネル製造条件

要素	内容
かさ厚さ	24mm
プレス厚さ	12mm
水セメント比	50%
木セメント比	30%
加圧量	56kg/cm ²
材齢	14 日

表 10 実験要因と水準

種類	水準
樹種	K (カラマツ), R (リサイクル)
塩分濃度	N (0%), S (10%)
養生温度	20 (20°C), 70 (70°C)
補修材	A (アクリル樹脂)

表 7 パネル含水率及び密度

種類	平均厚さ H (mm)	密度 (g/cm ³)	含水率 (%)
KN20	18.0	1.15	5.96
RN20	16.9	1.13	5.86
RN70	18.0	0.93	1.44
RS20	16.0	1.21	3.24
RS70	17.3	1.19	2.80

表 8 補修材含浸率(1h)

種類	含浸率 (%)
KNA20	33.3
RNA20	32.3
RNA70	43.0
RSA20	22.1
RSA70	29.0

表 11 パネル種類と計画調合表 (kg/m³)

樹種	塩分	養生	記号	セメント	水	木チップ	塩分
K	N	20	KN20	584	292	175	—
		70	KN70				
	S	20	KS20	584	292	175	32
		70	KS70				
R	N	20	RN20	667	334	200	—
		70	RN70				
	S	20	RS20	667	334	200	37
		70	RS70				

表 12 試験内容

実験項目	内容	試験体 (長さ×幅×厚さ), 枚数
切削性評価	切断面観察	パネル及び切り出し試験体
含水率及び密度試験	JIS A 5404 乾燥 105°C 48h	100mm×100mm×H, 3 枚
吸水含浸試験	JIS A 1414-3 吸水 48h, 含浸 1h	100mm×100mm×H, 3 枚
曲げたわみ試験	JIS A 1408 JIS A 1414-3	160mm×40mm×H, 3 枚
圧縮試験	JIS A 1108	20mm×20mm×H, 2 枚

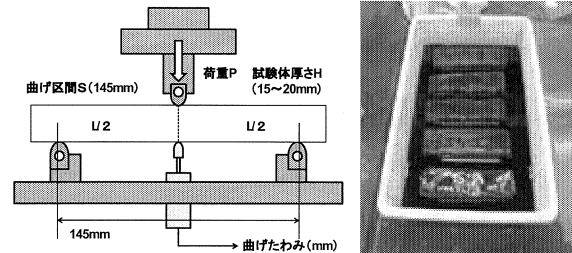


図 11 3線式 1点荷重曲げ試験と補修用含浸材による毛細管吸収処理

3.2 外装用木片セメント板の基礎物性評価

3.2.1 実験要因及び実験方法

本研究では樹種, 硬化促進用塩分の有無, 硬化促進養生時の温度影響による物性評価を目的とし, 水セメント比及び木セメント比を一定にした。硬化促進用塩分は, 木質系廃棄物の塩水による含水状態を過程し塩水濃度を 10%と設定, 浸透時間・加圧量はヒアリング調査で得た情報を参考に設定した。試験体の断面構成は木チップ 1 種類単層とする。強度試験は木質セメント板及び建築用ボードの試験を参照しており, 試験体は型枠に 2 倍のかさ容積の量を圧縮して 12mm の木片セメント板として製造し, 型枠打ち込み 7 日後脱型しさらに 7 日間養生を行い製品とした。

3.2.2 木片パネルの切削性評価と含水率・密度

図 12 に木片パネルの切削性評価と含水率・密度を示す。シリーズ K の大部分は脱型時に破損し, 試験に使用が困難であった。その理由は水溶性多糖類による硬化阻害, 養生期間不足が考えられる。それを踏まえ, 以後は KN20 と R シリーズについて各種試験を実施した。試験体をノコギリで切り出した際, 写真 1 及び断面の画像解析 (LIA32 使用) より, S は N に比べ, 角縁かけが少なく, 70 は 20 よりも角縁かけが増えることが確認できた。また, 含水率及び密度変化より, R は K より厚さ方向に対する膨張率が小さく, S は N に比べ厚さ方向に対する膨張率が小さい。また各種の温度変化試料である 20 シリーズは厚さ膨張が 70 シリーズより小さいものの, すべての

試験体が硬質木片セメントの条件を満たしていた。また, 硬化促進改質処理を施した場合, 含水率が低下する傾向が確認できた。実際のパネルを吸水試験にかけた場合は, 各種シリーズにおける R は K に比べ少々高く, N は S より高く, 70 は 20 に比べ吸水率が高い傾向がしめされた。このように, 木質チップが保有する粒子分散型の組織構成が保有されることから, 溶液が含浸した場合の補修材吸収効果が高いと考えられることから 1 時間含浸率を評価したところ, 吸水試験と同様の傾向が確認でき, 含浸により吸水率の低下が確認でき, 補修材による耐候性向上の可能性が考えられた。

3.2.3 木片パネルの曲げたわみ試験

図 13 各種状態における木片パネルの曲げ—たわみ曲線を, 図 14 に最大曲げ強度を, 図 15 に曲げ靱性エネルギーを示す。なお RN70 は, 載加直後に破壊したため最大曲げ強度のみ記載する。図より, K シリーズは R より強く, S シリーズは N より強度があり, 養生影響については 20 シ

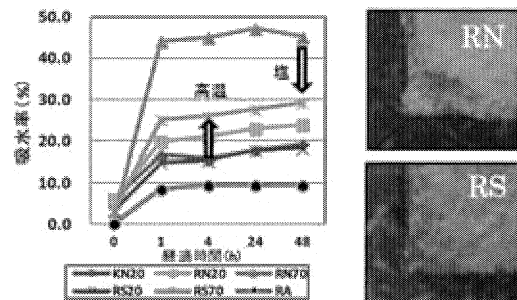


図 12 木片パネルの含水率・密度切削性評価

リーズが 70 より強く加熱による水分脱気が影響していることが確認された。なお塩水による強度増加に関しては、塩水中の塩化物イオンがセメント系水和反応の刺激剤となると考えられ、反応を促進し塩化物イオンを取り込んだ水和物の形成も考えられ、結果として最も強度が大きいものが RS20 となった。また湿潤状態において RN20 を除いた試験体は 30~45% 程度の強度低下が確認でき、含水により水素結合力が解離し強度低下が生じる現象が生じるといえる。なお、KN20 以外の試験体は乾燥により、湿潤状態から強度が回復するだけでなく気乾状態の強度を上回り、劣化後の強度回復も期待できる場合もある。

続いて、補修材含浸により 20~30N/mm² の曲げ強度が保持され大幅な物性の改善が得られた。JIS A 5408 に規定された硬質木片セメント板の曲げ破壊荷重も満たすことが可能となる。含浸率の最も高い RNA70 が高強度であるが生じるといえる。なお、

KN20 以外の試験体は乾燥により、湿潤状態から強度が回復するだけでなく気乾状態の強度を上回り、劣化後の強度回復も期待できる場合もある。

続いて、補修材含浸により 20~30N/mm² の曲げ強度が保持され大幅な物性の改善が得られた。JIS A 5408 に規定された硬質木片セメント板の曲げ破壊荷重も満たすことが可能となる。含浸率の最も高い RNA70 が高強度であるが、含浸率の最も低い RSA20 ではなく RSA70 が最低強度という結果になった。RSA20 と RSA70 を比較した

場合は含浸率の高い RSA70 の強度が低くなり、塩分とアクリル系樹脂の相性が悪く含浸により十分な性能が得られなくなる可能性が推察される。RNA20 と RSA20 を比較した場合は RSA20 は含浸率が低くそれらの悪影響を受にくくなるため同程度の強度を保持したと考えられる。また R シリーズと K を比較した場合は、R のほうが若干高強度となるが、曲げ靱性エネルギーについては KN20 及び RN20 と状態は変わらず材齢とともに上昇するが、RS20 及び RS70 は湿潤状態で低下するが、その後気乾状

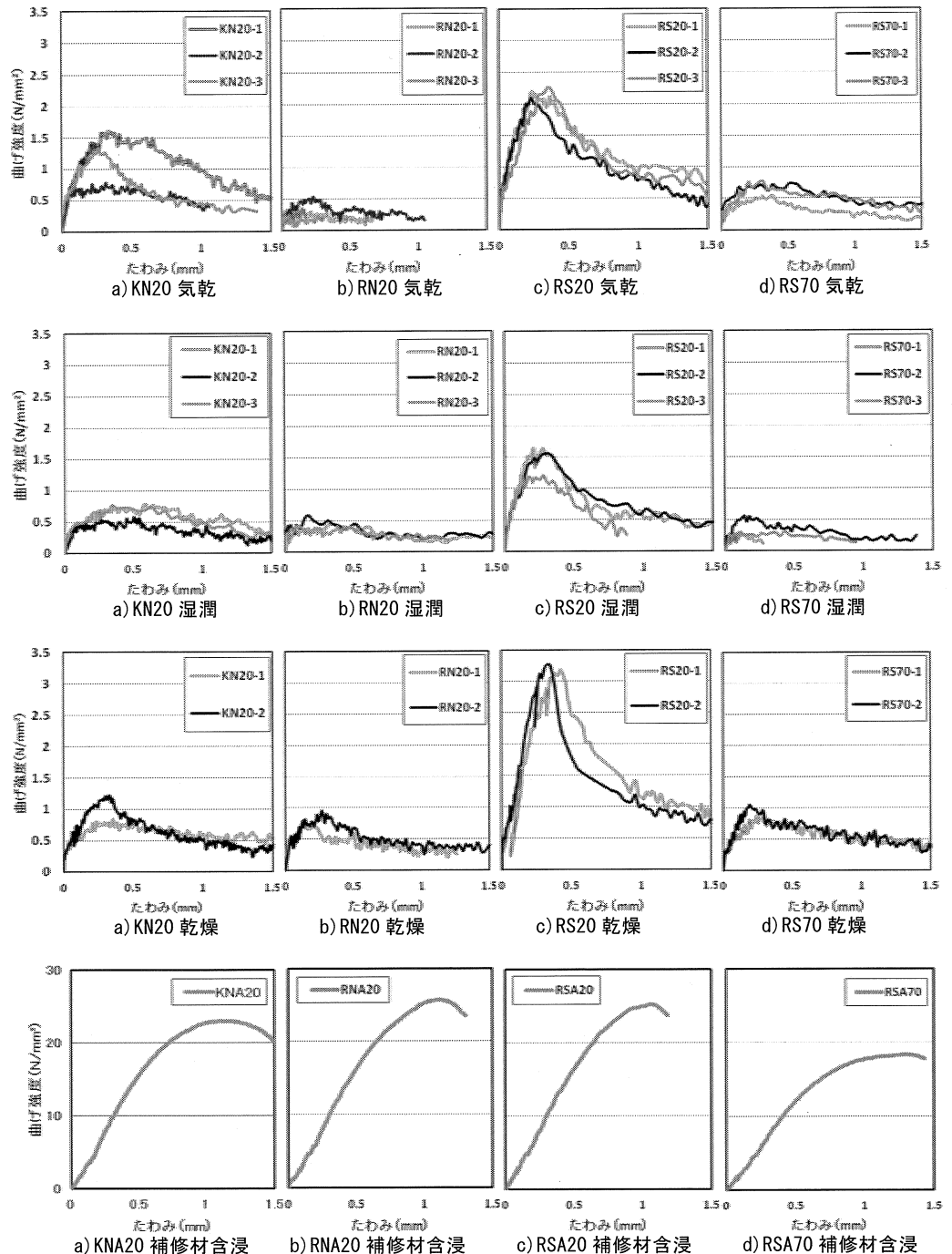


図 13 各種状態における木片パネルの曲げ—たわみ曲線

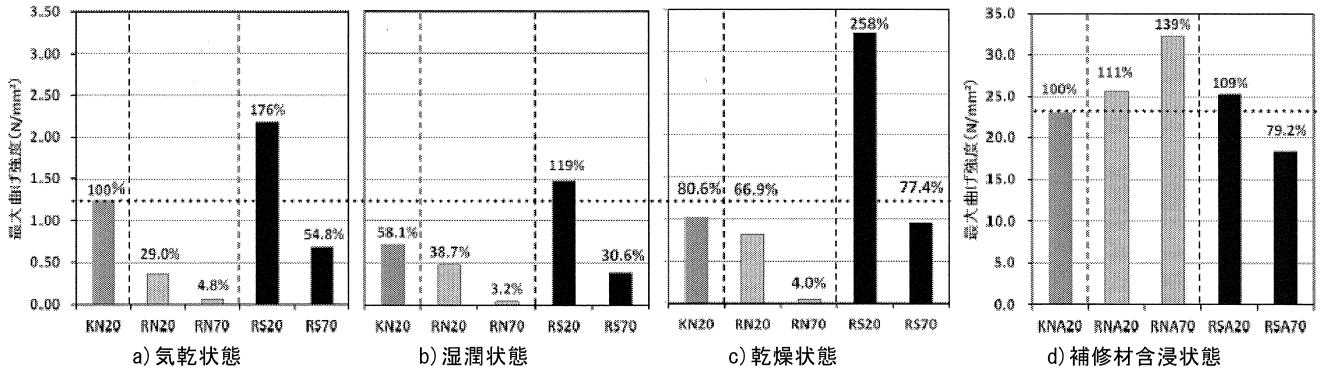


図 14 各種状態における木片パネルの最大曲げ強度

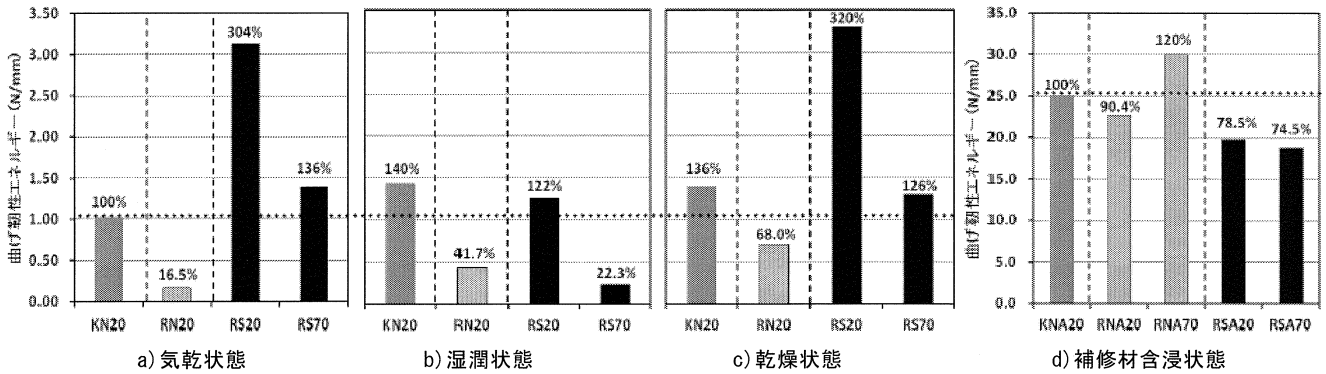


図 14 各種状態における木片パネルの曲げ靱性エネルギー

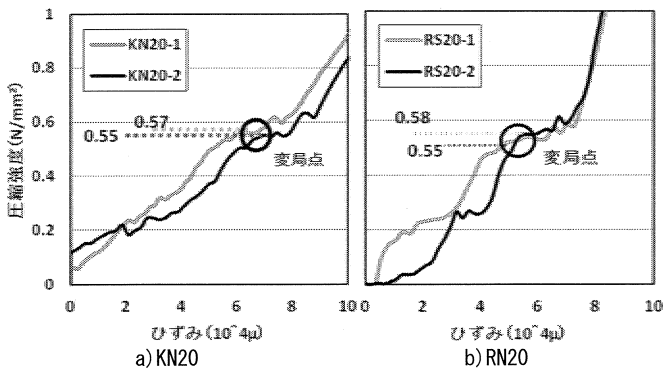


図 15 木片パネル要素の圧縮強度-ひずみ硬化と変局点状態

の数値前後まで回復することができる。なお、図 15 に木片パネル要素の圧縮強度試験の結果を示すが、これは圧縮試験は基礎物性を明らかにするために実施しており、曲げ-たわみ試験と比べて樹種、塩分、養生温度による強度変化は特に見られず、塩分を加えた場合、ひずみの減少傾向が確認でき、ここでも塩分による一定の養生促進効果が確認されたといえる。

4. まとめ

本研究により以下の知見が得られた。

- 1) 海外輸入ブロックは強度・耐火性能等の懸念から日本での使用は現状では不可能であった。
- 2) 低圧縮木片コンクリートは、吸水・乾燥による強度低下が大サイズが最大となり、強度面から見て、屋

外使用を目的とする場合は粒子系が小さい木片を利用したほうがよい。

- 3) 低圧縮木片コンクリートの木片にカラ松材を使用しても硬化不良の影響は特に見られず、セメント使用量の増加に伴い改善したと考えられ、廃木材を含むリサイクル材や硬化不良樹種でも十分使用可能である。
- 4) 低圧縮木片コンクリートは目標とした圧縮強度 20N/mm^2 以上を一部水準で達成でき、構造材料として使用可能となるが、骨材の不燃化や耐摩耗性能向上等が課題となる。
- 5) 外装用木片セメント板を成形した場合、カラマツを使用するには脱型時破損を避けるため養生期間を長くするか高加熱高圧プレス等による急速硬化促進が必要となる。
- 6) 外装用木片セメント板の曲げ強度は、カラマツ材は硬化時間を長期間要するものの曲げ強度はリサイクルより優れる場合があり、塩分による養生促進処理により厚さ膨張が抑えられノコギリ等の切削状態も改善され、曲げ強度も上昇したことから塩分を含む木質系震災廃棄物を有効活用できる可能性がある。
- 7) 外装用木片セメント板の硬化時に高温養生を施した場合、角かけが多くなり曲げ強度も低下する。これはパネル化により対重量表面積比が増加し養生時の水分脱気の影響を大きく受けセメント硬化反応に影響するためである。

8) 外装用木片セメント板の曲げたわみ特性は、大部分の試料が湿潤状態で強度低下するものの、乾燥状態では強度回復する傾向にあり、養生材齢の影響が大きい。なお、補修材によりほぼ一定の曲げ強度を保持させることは可能でありそれらは含浸率に影響する。

参考文献

- 1)内閣府：首都直下地震対策概要，2007
- 2)全国木質セメント板工業会：木質セメント板ガイドブック,p.60,2011
- 3)農林水産省，バイオマス活用基本計画，2010
- 4)林野庁：平成24年度版森林・林業白書，pp.35-39，pp.131-167,2012
- 5)社団法人日本コンクリート工学会，ポーラスコンクリートの設計・施工法の確立に関する研究委員会委員会報告書，2003.5
- 6)土木学会：材料劣化が生じたコンクリート構造物の構造性能研究小委員会，コンクリート331委員会，2009
- 7)織裳信明，川村政史，笠井芳夫：木片コンクリートの製造及び強度・密度に関する実験研究（その2），日本建築学会大会学術講演梗概集（関東）P.P.681~682，2001.9

- 8)笠井芳夫，川村政史，周建東：解体木材を用いた木片コンクリートの製造及び曲げ・圧縮強度，日本建築学会構造系論文集 第473号 P.P.1~10，1995.7
- 9)山岸宏一：硬化不良樹種による木質セメント板の製造に関する研究，林産試験場研究報告 74号 P.P.1~48 1985.3
- 10)セメント協会：セメント・コンクリート化学の基礎解説，pp.135-137,pp.157-165,1996

謝辞

本研究の実施にあたり、震災廃棄物、未利用木材チップの提供や加工等で東京ボード工業、双日与志本林業、小出チップ工業、氏家製作所の関係各位に、ヒアリング調査等に全国木質セメント板工業会、太陽セメント工業、デュリソルジャパン、木毛セメント板工業組合、積水ボード、ジャスト関係各位より多くの助力を賜り感謝致します。なお本研究の一部は、工学院大学 UDM・PJ 研究、H24 年度科研費（若手 A）都市減災・早期復興に資する震災廃棄物起源材料の高度利活用研究（代表：田村雅紀）により実施された。そして本研究は、平成 24 年度田村研究室卒論生である荒川京平氏、佐山俊介氏の卒業論文の各テーマである。付記して謝意を表する。

廃棄物系バイオマス由来燃料を用いたデュアルフューエルディーゼル発電

工学院大学 機械工学科 小林 潤

(独) 国立環境研究所 資源循環・廃棄物研究センター 倉持秀敏 室長

Study on Dual Fuel for Diesel Generation Using Waste Biomass Fuel

Jun Kobayashi, Department of Mechanical Engineering
Hidetoshi Kuramochi, National Institute for Environmental Studies

ABSTRACT : Development of technologies for energy recovery from waste biomass such as a biomass diesel fuel (BDF) production and thermal gasification is important for reduction of both fossil fuel consumption and greenhouse gas emission. In this study, dual fuel diesel generation using simulant biogases and BDF was investigated. Hydrogen, methane and carbon dioxide were used as simulant gases and oleic acid was regarded as a simulated BDF. A small commercial diesel generator was applied to an experimental apparatus. Diesel oil substitution effect was confirmed at several conditions but combustion efficiency decreased using fuel gases, especially methane. It was thought to be due to mixing gas fuels and air i.e. a fuel gas supply method. In this experimental condition, every air ratio for methane was outside the combustible range of that. Therefore, the combustion of these gas fuels became incomplete. Using the mixture of the BDF and diesel oil, NO_x emission decreased with increase of the BDF concentration in the diesel oil. On the other hand, power generation efficiency using the mixture was almost same to that of pure diesel oil.

1. はじめに

バイオマスの熱分解ガス化やメタン発酵などで得られるいわゆるバイオガスは、単位堆積当たりの発熱量が小さい (~十数 MJ/m³) ため単独での利用が困難な状況にあるが、セタン価の高い液体燃料と気体燃料を併用するデュアルフューエルディーゼル(DFD)を用いることで、このような気体燃料に対しても十分な熱力学的仕事を得ることが可能であると予想される。現在 DFD で使用される液体燃料は軽油、気体燃料は水素とメタンが主流であるが、BDF やバイオマスガス化ガスを使用した DFD の研究はあまり多くない[3], [4]。一方、昨今のエネルギー利用状況を勘案すると再生可能エネルギーを積極的に利用することが求められている。そのためには、既存の軽油を利用したディーゼル発電と比較し燃焼特性、熱損失、軽油代替効果、有害物質生成などの傾向を明らかにする

必要がある。本研究では BDF とガス化ガスを併用する DFD の実用化を最終目標とする。本研究では、ガス化ガスの主要成分を単体で使用し、市販の小型ディーゼル発電機をそのまま用いて DFD 発電の実証実験を行う。また、BDF を用いた場合の環境負荷特性についても検討を行い、当該技術の実用化に不可欠な技術的課題について検討を行う。

2. 実験

2.1 実験装置

本研究の実験装置の概略図を以下の Fig. 1 に示す。なお、本研究では市販の発電機 2 台をほぼそのまま使用している。発電機の仕様は以下の Table 1 の通りである。

実験装置はディーゼル発電機本体の他に液体燃料供給部分、気体燃料供給部分および排気ガス採取部から構成

される。また、発電時の電力負荷として、出力の切り替えが可能な市販のセラミックヒーターを用いている。

液体燃料供給部分は燃料消費量の計測するためにバイパス部分を作成し、三方コックにより燃料タンクと燃料計測用分液ロートとエンジン供給配管を接続し、分液ロートから独立して燃料供給ができるよう変更した。さらに、オーバーフロー燃料の燃料タンクへの戻り量を計測するため、タンクへの配管を切り離し、戻り量を個別に測定出来るよう改良を加えた。

気体燃料供給部分は各種ガスに流量計を設置し、それらを配管で接続し容積 10 L のバッファータンク内で燃焼用空気と混合させ、エンジン本体の空気吸気口から供給されるように改良した。なお、エンジン本体の吸気量は常に一定 (480 L/min) であるため、気体燃料を混合させることにより実質的な供給空気量は減少することになる。

排気ガス採取部については、エンジンのマフラーにアルミ製のダクトを取り付け、これに熱電対およびガスサンプリング用枝管を設置し、ここから排気ガスを採取できる構造となっている。排気ガスの採取には小型のポンプを使用し、排ガス中の水分除去のための洗浄瓶および煤を含む粒状浮遊物質 (PM) などの除去のためガラスフィルターを通過させた後にサンプリングバッグに採取できる。

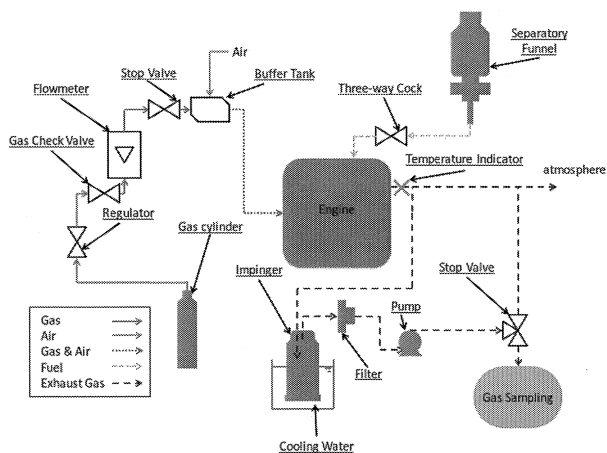


Fig. 1 Schematic diagram of experimental apparatus

Table 1 Details of diesel generator

	Generator 1	Generator 2
Model number	YDG250VS	YDG350VS
Frequency	50 Hz	50 Hz
Number of revolutions	3000 rpm	3000 rpm
Engine displacement	320 cc	320 cc
Bore diameter	78 mm	78 mm
Stroke	67 mm	67 mm
Max power	2000 W	3000 W

2. 2 実験条件

本研究で使用する水素、メタンおよび二酸化炭素はいずれも工業用の単成分高圧ガスおよび液化ガスであり、その各物性値は Table 2 に示す通りである。また、本研究では液体燃料として軽油 2 号および A 重油 (LSA 重油) を使用し、BDF 模擬燃料として、オレイン酸 (関東化学)。

- 1) 液体燃料を分液ロートに入れ、重量を計った上で装置に接続する。
- 2) 燃料供給を分液ロートに切り替え、一定時間分液ロートから燃料を供給し、その重量変化を測定する。このとき、供給燃料の戻り量も併せて測定し、これらの結果から正味の消費燃料重量を求める。
- 3) 排気ガスは別途採取し、そのときの排気ガス温度を計測する。併せて、排ガス流路中に酸素・一酸化炭素濃度測定器を設置し、随時排ガス中濃度の測定を行う。
- 4) 各条件において 1) ~3) の手順を繰り返す。
- 5) 採取された排ガスの組成をガスクロマトグラフィーで分析する。
- 6) 排ガス中の窒素酸化物 (NOx) は検知管により計測する。

なお、メタンや水素などの可燃性ガスを適用する場合、供給開始後排気ガス温度が一定となるまで待ってから実験を行った。

3. 結果及び考察

3. 1 デュアルフューエル発電

3. 1. 1 燃焼特性

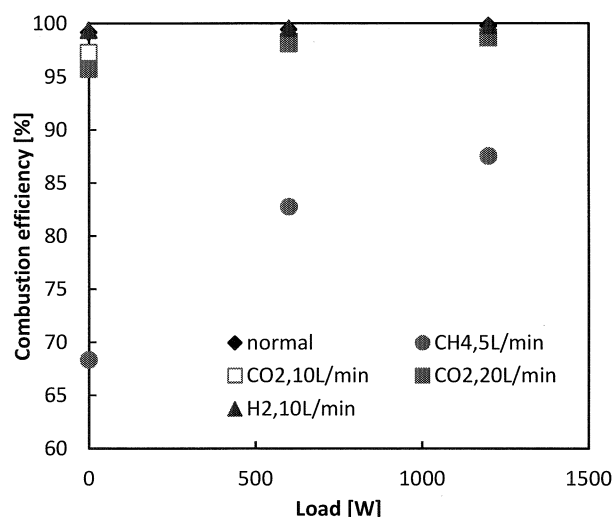


Fig. 2 Combustion efficiency at gas supplied and normal condition

本実験で得られた燃料消費量および排ガス中の未燃組成から燃焼効率を求めた。その結果を Fig. 2 に示す。なお、各条件下における空気比を Fig. 3 に示す。

本図より、メタン供給時では燃焼効率が低く不完全燃焼となっていることが確認されたが、発電負荷の増加に

に伴い改善される傾向にあることが示された。燃焼条件としては、メタン供給時を除いて空気比は概ね4以上となっているが、メタン供給時に発電負荷をかけた場合は4以下となることもあり、通常の状態と比較すると Fuel rich な条件となっている。実際、気体燃料は燃焼用空気に予混合させてシリンダー内に供給しているため、気体燃料分の空気量は減少するが、全体の供給空気量(480 L/min)と比較しても1%程度であり、供給空気量の減少による影響は少ないと考えられる。一方、気体燃料を供給することでそれらを燃焼させるための空気が必要となるが、本来 DFD においては供給される液体燃料が通常時よりも減少するはずであり、理論空気量も大きく変動しないはずである。しかし、メタン供給時においては後述の通り液体燃料供給量の削減量が少ないため、結果として通常より燃料過多の状態となっている点に注意が必要である。

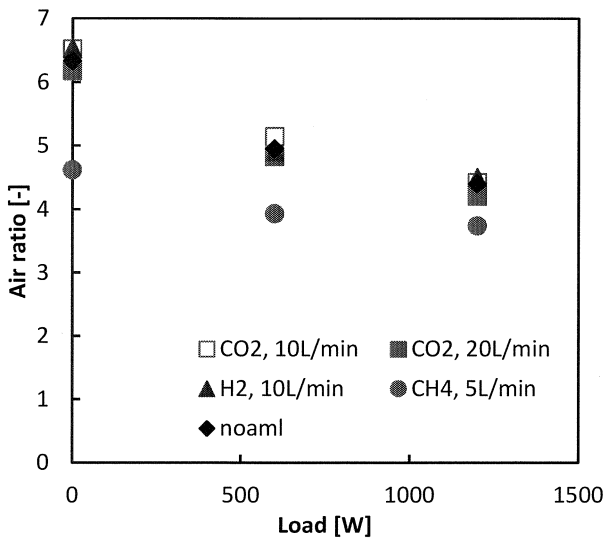


Fig. 3 Air ratio at experimental conditions (Fuel consumption basis)

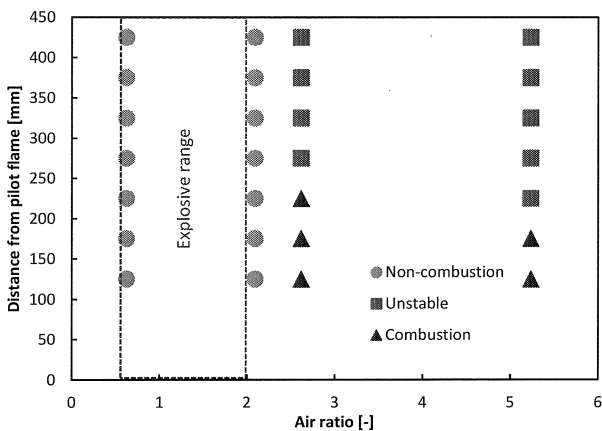


Fig. 4 Methane combustion behaviors at diffusion combustion

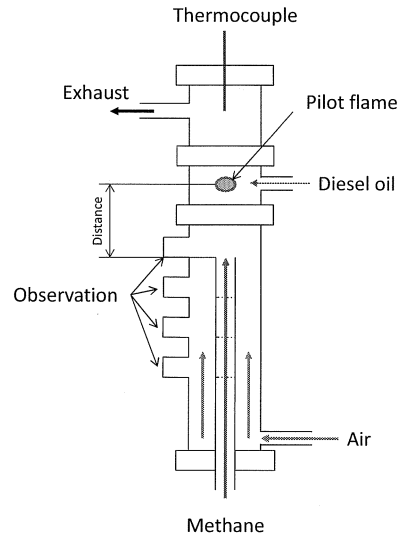


Fig. 5 Schematic diagram of experimental apparatus for methane combustion

一方、本実験条件ではメタンおよび水素供給時の吸気ガス中濃度ではいずれも爆発範囲には入っておらず、混合気はそのままでは燃焼しないと予想される。そのため軽油の噴霧により着火することで軽油のみならず気体燃料も燃焼すると考えられるが、後述の通り実際の結果ではメタンのみが一部未燃状態で排出され、水素は排ガス中には含まれない結果となった。別途メタン-空気燃焼について実験的検討を行った結果、完全予混合状態ではなく燃料濃度に分布が存在する条件であれば、爆発限界外(破線の枠外)であっても着火することを確認している。(Figs. 4 and 5) 上記を勘案し、さらにシリンダー内気体燃料の燃焼挙動について詳細に検討し、燃焼効率の向上に努める必要がある。

3. 1. 2 燃料代替効果

高位発熱量を基準に、使用した軽油の熱量、未燃分の熱量、燃焼した可燃ガスの熱量、燃焼で発生した一酸化炭素の熱量をそれぞれ以下の Figs. 6~8 に示す。

これらの図より、気体燃料を併給した場合、軽油のみを供給した通常の場合と比較して熱量供給量が増加していることが分かる。その一方、気体燃料を併用することで軽油投入量が確実に減少することも、本図より確認された。気体燃料の各成分と比較すると、メタンを用いた場合未燃分として排出されるが、水素は特に確認されなかった。また、発電負荷の増加に伴い未燃メタン量が減少する傾向が確認された。水素が排ガス中で計測されなかった原因として、排ガスの採取位置をマフラーのさらに下流側にとっているため採取までの間に酸化している可能性も考慮する必要がある。特に未燃メタンが際立っているが、メタンよりも爆発限界が広い水素においても未反応で排出されていることから、気体燃料供給方法について抜本的な改良が必要であると考えられる。

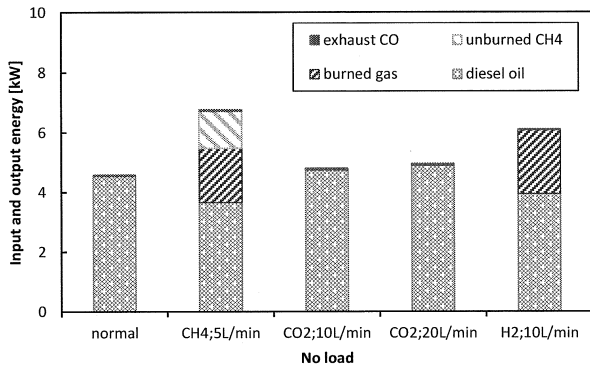


Fig. 6 Input and output energy at no-load

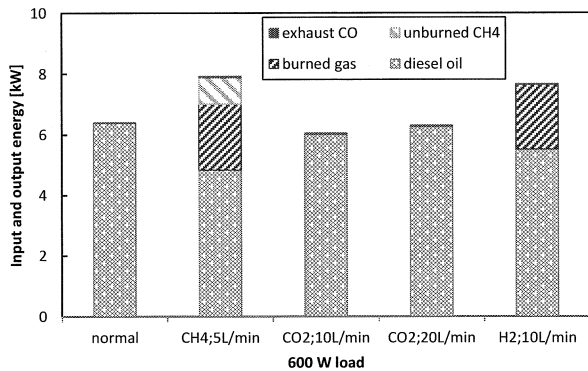


Fig. 7 Input and output energy at load of 600 W

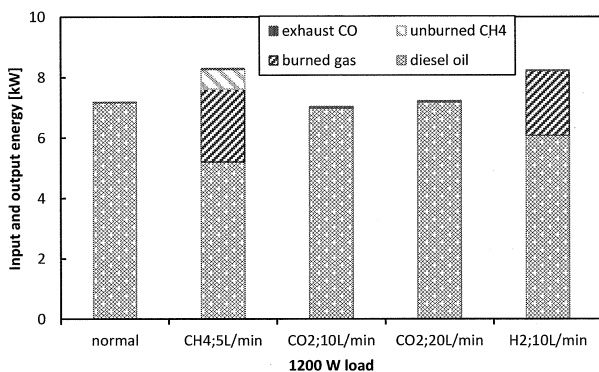


Fig. 8 Input and output energy at load of 1200 W

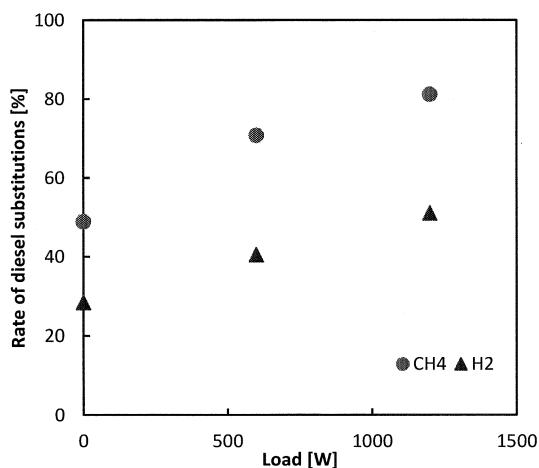


Fig. 9 Effect of fuel gases on diesel substitutions

通常状態の軽油発熱量を基準に可燃性ガス供給時の軽油削減率を算出し、その際に供給された気体燃料の発熱量に対する比率としてまとめた結果を Fig. 9 に示す。

本図より、気体燃料が軽油の代替燃料として効果を有することが改めて確認された。今回の実験範囲では水素よりもメタンの方が代替効果が高いことが示された。この原因としては、供給される水素がシリンダー内で全て燃焼せず、軽油供給量の削減に寄与しなかったためと考えられる。

3. 1. 3 発電効率

上記結果に基づいて算出された発電効率をまとめた結果を Fig. 10 に示す。本図より、負荷が上昇することで発電効率も上昇していることがわかる。しかし可燃性ガスを供給した際には効率が下がっていることがわかる。燃焼効率の向上が発電効率の向上に必須であることが改めて示された。

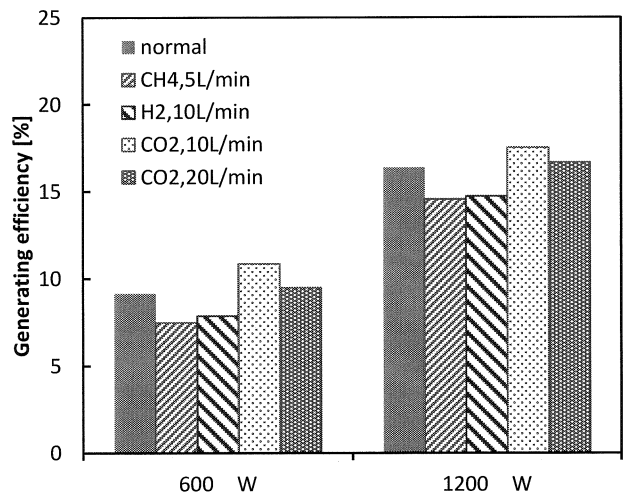


Fig. 10 Power generation efficiency at several conditions

3. 1. 4 燃焼排ガスの組成

ディーゼル機関の排ガス中の有害成分として、燃料中に含まれる硫黄分に起因する硫黄酸化物 (SOx)、空気中の窒素が酸化して生成される NOx および PM が挙げられ、その削減が求められている。ここでは、排ガス中に含まれる窒素酸化物(NO, NO₂)について評価を行った。その結果を Fig. 11 および 12 に示す。なお、図中の NOx 濃度は酸素濃度 13%換算値である。

各条件における NO および NO₂ 濃度は、概ね負荷の変動に対してほぼ一定であった。一方、二酸化炭素供給量を増やすことで NOx を低減出来ることが本結果から明らかとなった。発電負荷を増加させることにより燃料供給量そのものも増加することが前述の結果から明らかとなっており、このことは燃焼温度の増加につながるものと考えられる。実際、排気ガス温度を計測した結果、マフラー排出直後の温度でも 10~20℃程度の明確な温度上昇が確認されている。燃焼温度の上昇は NOx 生成を促進することが過去の研究の結果分かっており、負荷の増加に伴い NOx も増加すると予想していたが、今回の結果

からはそのような傾向は確認されなかった。一方、二酸化炭素は空気と比較して若干比熱が大きいいため、空気のみを用いた場合よりも燃焼場の温度が低下することが予想される。その結果として、EGR と同じようにゼルドビッチ機構の NOx 生成を抑制したものと考えられる。

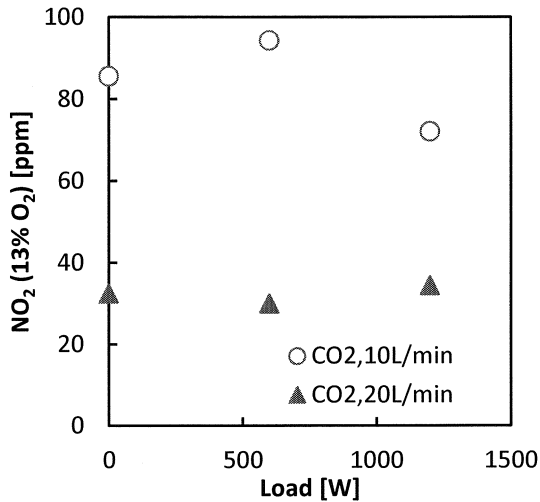


Fig. 11 NO₂ composition of dry exhaust gas

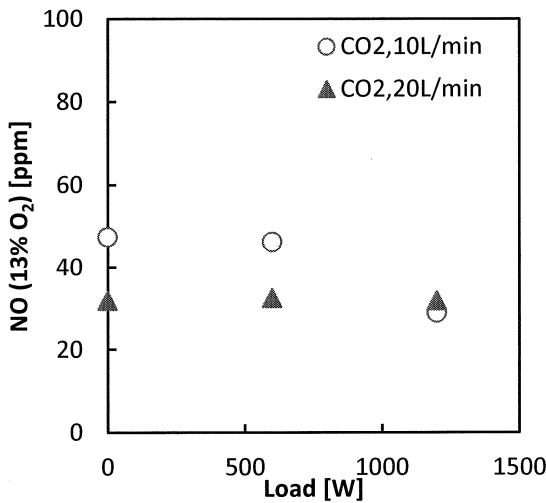


Fig. 12 NO composition of dry exhaust gas

排ガス中に含まれる一酸化炭素の濃度をまとめた図を Fig. 13 に示す。一酸化炭素の生成の主な原因は不完全燃焼である。一酸化炭素が多く生成されることは不完全燃焼を起こしている可能性が高い。Fig. 13 に着目すると、負荷が上昇することで一酸化炭素の濃度が減少していることがわかる。これは、Figs. 6~8 でも述べたように負荷上昇によって未燃分が減少しており、負荷を加えることで燃料供給量そのものが増加し燃焼温度が上昇したことによるものと考えられる。なお、メタンを供給した際には一酸化炭素の濃度が他の条件より高いことがわかる。先述の通り、今回の実験範囲ではメタンのみが未燃分として観測されており、未燃メタンの存在が一酸化炭素濃度の増加に影響を及ぼしたものと考えられる。

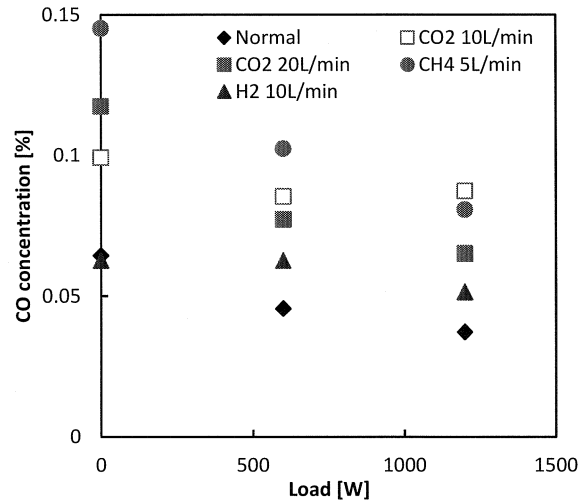


Fig. 13 CO concentration in dry exhaust gas

3. 2 BDF の混焼

DFD 発電を行う上で BDF の使用も考慮する必要がある。ここでは、現実的な利用方法として BDF と軽油との混合燃料によるディーゼル発電について、特に排ガス中に含まれる有害成分などの環境負荷影響について検討を行った結果について述べる。なお、今回は模擬 BDF としてオレイン酸を使用している。

3. 2. 1 発電効率

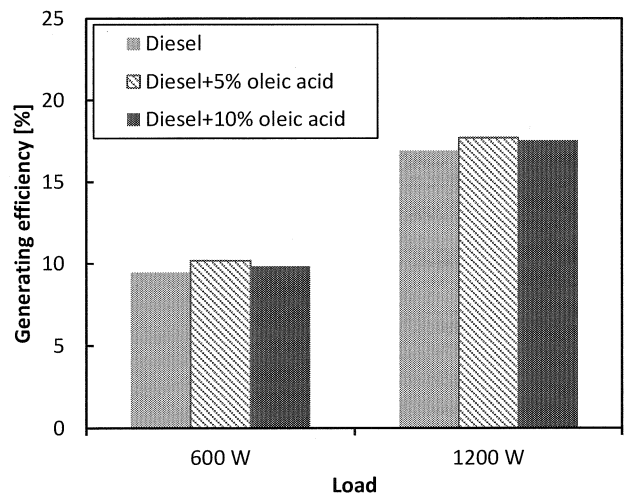


Fig. 14 Power generation efficiency using BDF-diesel mixture

今回使用したオレイン酸は軽油と比較して若干発熱量が小さいが、本実験範囲においては発電効率に及ぼす影響は非常に軽微であることが Fig. 14 から明らかとなった。ただし、若干ではあるがオレイン酸混合軽油を用いた場合は効率が向上する傾向が確認された。後述の一酸化炭素排出挙動と関連づけて考えると、オレイン酸を混合することで一酸化炭素濃度が減少する傾向が確認できることから、含酸素燃料を用いることで燃焼効率が向上したためこのような結果となったと推察される。

3. 2. 2 燃焼排ガスの組成

排ガス中に含まれる NO₂, NO, CO の濃度をそれぞれ Figs. 15-17 に示す。なお、NO_x 濃度については酸素濃度を 13% に換算した値を用いている。

NO₂ については、オレイン酸を添加することで若干濃度が低下する傾向にあるが、NO についてはほとんど影響がみられないことが本図より明らかとなった。一酸化炭素についても傾向的にはオレイン酸の添加量の増加に伴いその濃度が低下するが、その割合はそれほど大きくはない。これらの原因として、先述の通りオレイン酸に含まれる酸素により一酸化炭素等の未燃分は減少するが、発熱量そのものも低下するため燃焼温度が低下し NO₂ の生成量の抑制につながったものと考えられる。

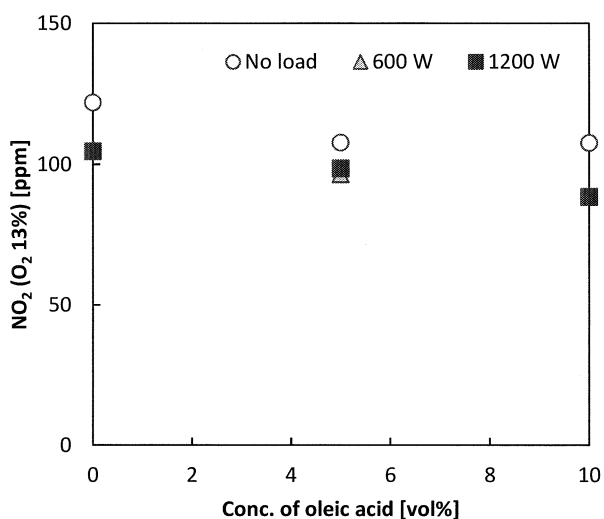


Fig. 15 NO₂ emission behaviors using diesel oil with oleic acid

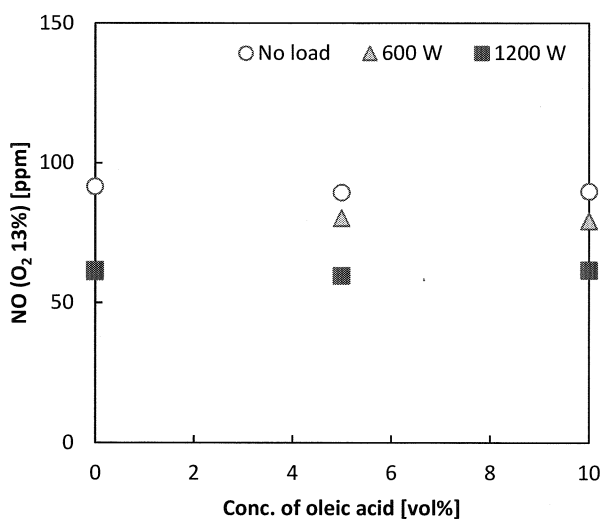


Fig. 16 NO emission behaviors using diesel oil with oleic acid

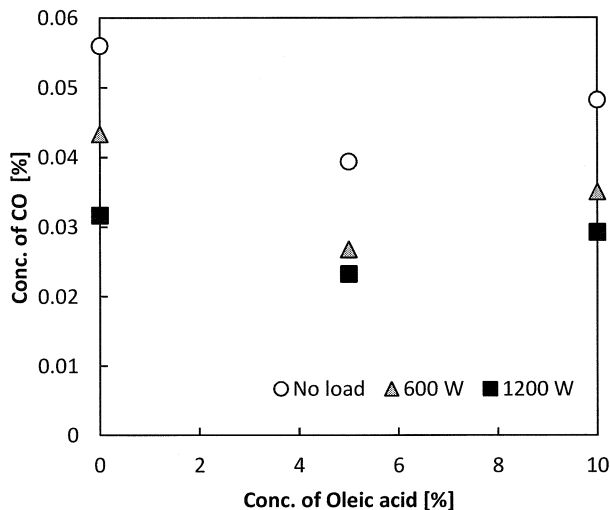


Fig. 17 CO emission behaviors using diesel oil with oleic acid

4. 発電用重油代替としてのBDF

4. 1 排ガスの環境影響

廃棄物由来のBDFには不純物が多く含まれるため、自動車用の軽油代替燃料として適用するためには高度な精製が不可欠となり、結果として価格競争力を失いリサイクルのメリットが半減してしまうという課題を有している。そこで、本研究では発電用に特化し、重油を用いる発電用ディーゼルへの適用を念頭に置いたBDFの代替利用について検討を行っている。現状では重油を用いた場合と重油にBDFを混合させた場合の排出ガス組成の相違について実験的検討を行っている。以下にその結果について述べる。

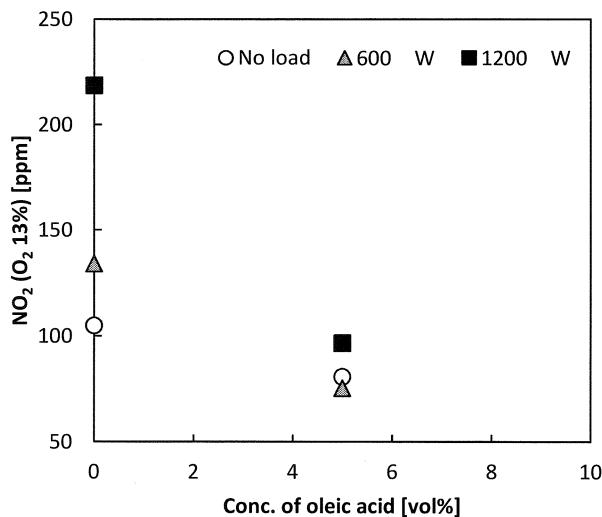


Fig. 18 NO₂ emission behaviors using marine diesel oil with oleic acid

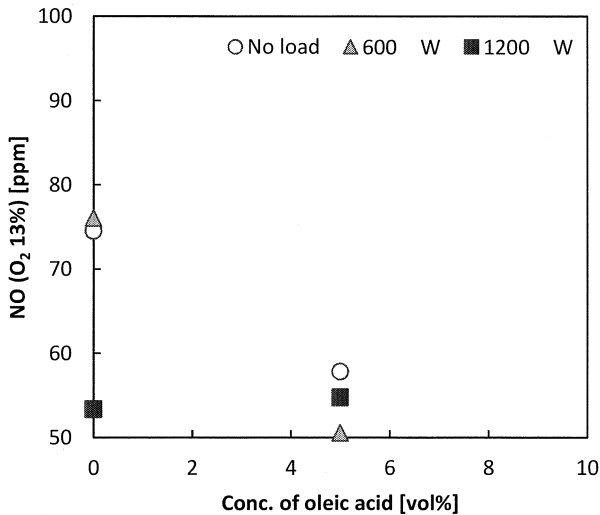


Fig. 19 NO emission behaviors using marine diesel oil with oleic acid

今回の実験では発電用に用いられる硫黄含有量の低いA重油 (LSA重油) を燃料として用いている。重油のみを用いた場合のNO_x組成は、軽油のみを用いた場合と比較してやや高くなっているが、BDFを混合することでNO_xの濃度が大幅に減少することが明らかとなった。この傾向は軽油にBDFを添加したケースよりもより顕著であった。

5. 結言

ディーゼル発電機を使用したDFDおよびBDFの燃焼特性における研究を行った結果以下の知見を得た。

1. 水素やメタンなどの可燃性ガスを供給することで軽油の削減効果がある。しかし可燃性ガスの一部が未燃分として排出されてしまい、結果として発電効率の低下を招く要因となる。
2. 特にメタンを供給した場合、燃焼効率が低下した。
3. 二酸化炭素を供給することで窒素酸化物排出量の削減効果がある。
4. 模擬BDFとしてオレイン酸を併用した場合、発電効率に対しては特に影響を及ぼさない。
5. オレイン酸を併用することでNO_xおよび一酸化炭素が若干減少する。

6. 今後の検討

本研究の実験の結果、可燃性ガスの未燃分が排出されることが明らかとなり、燃焼効率の向上が重要な課題の一つとして挙げられる。別途メタンの拡散燃焼に関する実験的検討を行った結果を示したが、燃焼状況をよりDFDに近づけた条件における燃焼実験を詳細に実施し、最適な気体燃料供給方法について検討を行う必要がある。また、いわゆる熱分解ガス化ガスの主要成分である水

素、一酸化炭素、メタンを個別に供給して実験を行ってきたが、それらがある組成を持って供給された場合、相互の燃焼速度や爆発限界など燃焼物性の違いにより、燃焼効率に影響を及ぼす可能性がある。この点についても厳密に検討を行う必要があると考える。

今回はBDFの利用がディーゼル発電に及ぼす影響について検討する目的でオレイン酸を用いた実験的検証を行い、一定の成果が得られたが、実際に適用を考えているBDFは非常に複雑な化学組成と多くの不純物を含むことが予想されるため、これらがディーゼル燃焼や排ガス組成に及ぼす影響について詳細な検討を行う必要がある。さらに、BDFとDFDとの併用が発電効率や環境負荷低減に及ぼす効用についても検討を行う予定である。

参考文献

- [1] Kobayashi, J., Kawamoto, K.: Catalyst durability in steam reforming of thermally decomposed waste wood, *J. Mater. Cycles Waste Manag.*, vol.12 (2010) pp.10-16.
- [2] Wu, W., Kawamoto, K., Kuramochi, H.: Hydrogen-rich synthesis gas production from waste wood via gasification and reforming technology for fuel cell application, *J. Mater. Cycles Waste Manag.*, Vol.8 (2006) pp.70-77.
- [3] 関 太填, 安藤 裕一, 吉川 邦夫, 遠藤 浩之: 廃棄物ガス化発電用混焼ディーゼル機関に関する研究, *日本機械学会論文集(B編)*, 第70巻, 697号 (2011) pp.2468-2473.
- [4] 塩路 昌宏, 石山 拓二, 池上 詢, 三谷 信一, 芝田 裕晃: 天然ガスデュアルフェューエル機関の性能および排気特性, *日本機械学会論文集(B編)*, 第66巻, 647号 (2008) pp.1898-1904.
- [5] 代 淳吉朗, 尾崎 貞一, 内山 芳忠, 本橋 金一: ディーゼル機関におけるEGRおよび水噴射のNO_x抑制効果, *燃料協会誌*, 第52巻 (1973) pp.113-120.
- [6] 斉藤 正浩, 小川 宏克, 新井 雅隆: EGRを伴う噴霧燃焼器のNO排出特性, *化学工学論文集*, 第26巻 (2000) pp.215-220.

① 発表論文

- S. Kato, E. Yamashita, S. Ogasawara, H. Noritomi, H. Tachibana, H. Kuramochi, Analysis of the Slow Rates of the Viscous Methanol/Triglyceride Dispersion in Batch Biodiesel Fuel Production Process. *Solvent Extraction Research and Development, Japan*, 18, 205-209(2011).
- M. Toba, Y. Abe, H. Kuramochi, M. Osako, T. Mochizuki, Y. Yoshimura Hydrodeoxygenation of waste vegetable oil over sulfide catalysts. *Catalysis Today*, 164, 533-537(2011)

② 学会発表

- H. Kuramochi, K. Maeda, M. Osako, Characterization of fuel content recovered from trap grease as an alternative to fossil fuel, ISAF2011 Verona Italy, 2011/10
- H. Kuramochi, K. Maeda, M. Fujii, M. Osako, Upgrading trap grease to an alternative to fossil fuel and its cost and GHG emission, WCST2011 London UK, 2011/11

H. Kuramochi, K. Maeda, M. Osako, S. Sakai, Modification of enzymatic BDF synthesis by use of co-solvent and two-step reaction towards fast and high-yield BDF production, SEE2011, Bangkok Thai, 2012/02

H. Kuramochi, K. Maeda, T. Kobayashi, Y. Ebie, K. Fukui, M. Osako, Possibility of Dual-Fuel Production from Trap Grease by Combination of Heat-Driven Upgrading and Methane Fermentation, AIChE Annual Meeting 2012, 2012/10, Pittsburgh

倉持秀敏, 前田光治, 大迫政浩, トラップグリースの燃料化を目的とした微量アルカリ金属の除去技術の開発, 化学工学会第43回秋季大会, 2011年, 9月, 名古屋

倉持秀敏, 前田光治, 大迫政浩, トラップグリースのアップグレード処理後の油分の不純物成分の分析と熱物性測定, 第22回廃棄物資源循環学会研究発表会, 2011年, 11月, 東京

倉持秀敏, 藤井実, 王媚, 島宗敬太郎, 大迫政浩, トラップグリースのアップグレード処理後の品質と収集-処理に係るコストおよび環境負荷の試算, 第22回廃棄物資源循環学会研究発表会, 2011年, 11月, 東京

倉持秀敏, 前田光治, 福井啓介, 大迫政浩, 相分離を用いた廃グリースからのバイオ重油製造とその性状評価, 化学工学会第44回秋季大会, 2012年, 9月, 仙台

小林 潤: 日本燃焼学会 バイオ燃料燃焼分科会 研究発表, 2013年3月20日

③ 特許出願

無し

新規ナノ構造高熱伝導高分子の創生と熱伝導メカニズムの解析

工学院大学 応用化学科 伊藤雄三

九州大学大学院 機械工学科 西村 伸

Development of Novel Nano-structure High Thermal Conductivity Polymers and Study on Their Thermal Conductivity Mechanism

Yuzo Itoh, Department of Applied Chemistry, Faculty of Engineering,
Kogakuin University
Shin Nishimura, Department of Mechanical Engineering,
Graduate School of Kyushu University

ABSTRACT : The high thermal conductivity insulating materials have recently become to be very attractive materials because decreasing the temperature of the devices, which intrinsically produce a lot of heat, is critically important to make excellent devices, like small size motors and power semiconductors, etc. The high thermal conductivity thermo-setting polymers with liquid crystal structure have been proposed as high thermal conductivity polymers, but their high thermal conductivity mechanism has not been clarified. We studied thermal conductivity mechanism of phenyl benzoate and biphenyl benzoate twin-mesogen epoxy polymers by vibrational spectroscopy from the viewpoint of relationship between the thermal conductivity and the higher order structures of the materials. We synthesized phenyl benzoate and biphenyl benzoate twin-mesogen epoxy polymers and compared and discussed differences of thermal conductivities and higher order structures between them. The epoxy polymers were characterized by infrared (IR), small-angle X-ray scattering (SAXS), and wide-angle X-ray scattering (WAXS).

1. はじめに

液晶構造を有する熱硬化性樹脂は、これまでの熱硬化性樹脂と同等の成型加工性、軽さ、絶縁性に加え、高い熱伝導性を有する樹脂であり、次世代の電気機器、特に発熱量の大きいモータやパワー半導体などの絶縁材料として現在盛んに研究が行われている。特に本研究で扱うツインメソゲン型エポキシ樹脂は、熱伝導を支配するフォノンの散乱を抑制することにより、添加剤、異方性を伴わずに従来の熱硬化性絶縁樹脂の約5倍の熱伝導率を示す^{1,2)}。この樹脂は自己配列しやすい構造であるメソゲン骨格によって樹脂内部に高い秩序性を有する液晶構

造のドメインを形成し、その高い秩序性により、構造の乱れによる熱伝導フォノンの静的な散乱やフォノン同士の動的な散乱を抑制し、その高い熱伝導性を実現している。しかし現在までに推定されているのは定性的な高熱伝導発現のメカニズムであり、エポキシ樹脂内部の液晶ドメインの詳細な構造や大きさと熱伝導性の関係など、定量的な熱伝導メカニズムはまだ明らかになっていない。

そこで本研究では、ツインメソゲン型高熱伝導エポキシ樹脂の熱伝導メカニズムを定量的に明らかにするため、メソゲン基の異なるツインメソゲン型エポキシモノマーを2種合成し、硬化剤と共に高分子化し、広角および小角X線や振動分光学的解析等の構造化学的手法による詳細な高次構造解析を行い、メソゲンの化学構造や大きさの違いにより高次構造や熱伝導率がどのように変化

するかを考慮し、高熱伝導樹脂の高次構造と熱伝導フォノンの散乱メカニズム及び熱伝導率との定量的相関検討を行うことを目的とする。

2. 実験

2.1 ツインメソゲン型エポキシモノマーの合成

フェニルベンゾエイト型ツインメソゲン型エポキシモノマー (Twin8e) の化学構造及びその合成経路を Fig.1 に示した。Allyl bromide、4-hydroxybenzoic acid より Fig.1 化合物 2 を 1,8-dibromooctane、hydroquinone から Fig.1 化合物 3 を合成した。化合物 2 及び 3 より Fig.1 化合物 Twin8a を、さらに両末端をエポキシ化して目的物であるツインメソゲン型エポキシモノマー (Twin8e) を合成した。得られた Twin8e に対し ¹H-NMR 測定、偏光子を取り付けた状態での融点測定を行い合成確認した。

ビフェニルベンゾエイト型ツインメソゲンエポキシモノマー (BTwin8e) の化学構造及びその合成経路を Fig.2 に示した。Fig.2 において 1,8-bis(4-carbethoxyphenoxy)octane (1) より 1,8-bis(4-carboxyphenoxy)octane (2) を、次いで、1,8-bis(4-chloroformylphenoxy)octane (3) を、次いでビフェニルとのエステル化により 1,8-bis(4-(4'-hydroxybiphenyl-4-oxycarbonyl)phenoxy)octane (4) を得、最後に両末端をエポキシ化し、目的物であるビフェニルベンゾエイト型ツインメソゲンエポキシモノマー (BTwin8e) を合成した。得られた BTwin8e に対し ¹H-NMR 測定、偏光子を取り付けた状態での融点測定を行い合成確認した。また、硬化剤である 4,4'-Diaminodiphenylmethane (DDM) の化学構造を Fig.3 に示した。

2.2 ツインメソゲン型エポキシモノマーの分子及び相構造の解析

次に構造解析として DSC 測定とホットステージ付き偏光顕微鏡(POM)観察、KBr 法による IR 測定、広角 X 線回折 (WXR) 測定、小角 X 線回折 (SAXS) 測定を行った。これらの測定から得られた結果を総合的に考察し、相同定した。DSC 測定、POM 観察の結果から重合温度の決定も行った。なお樹脂に対して IR 測定による合成確認を行うため硬化剤 DDM の IR 測定も行った。

2.3 ツインメソゲン型樹脂の重合と高次構造及び熱伝導特性の解析

次に Twin8e および BTwin8e と DDM を重合させ、それぞれ、樹脂 TME₈ および BTME₈ を得た。樹脂は周期加熱法による熱伝導率の測定が行えるよう、測定条件を満たす形に切り抜いたシリコンゴムの型に詰め込んで加熱重合した。得られた樹脂に対し KBr 法による IR 測定、ATR 一回反射法による IR 測定と偏光 IR 測定、広角 X 線回折 (WXR) 測定、小角 X 線回折 (SAXS) 測定を行った。これらの結果から合成確認と、樹脂の高次構造、配向、液晶相の構造及びその周期構造の測定及び解析を行った。

熱伝導率は周期加熱法により測定した。熱拡散率と体積熱容量を別々に測定し、熱伝導率を算出した。

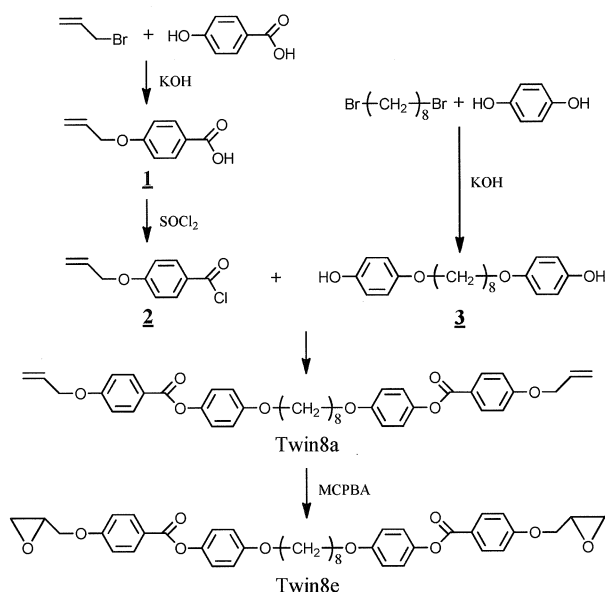


Fig. 1 Synthetic scheme of Twin8e

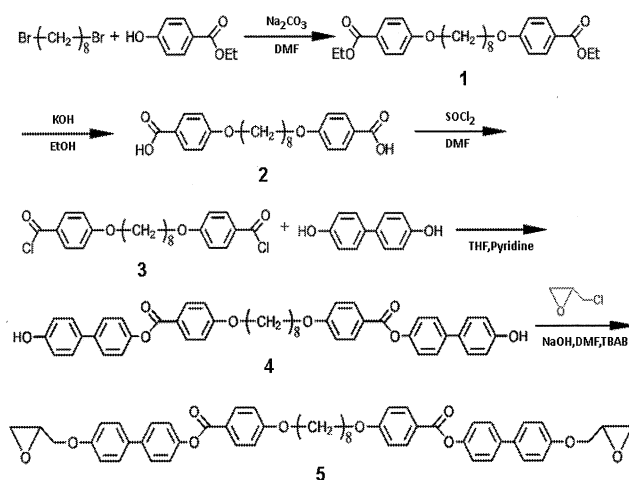


Fig. 2 Synthetic scheme of biphenyl benzoate twin-mesogen epoxy monomer

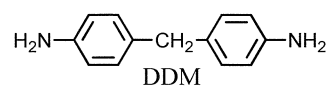


Fig. 3 Chemical structure of DDM

3. 結果および考察

3.1 ツインメソゲン型エポキシモノマーの分子及び相構造の解析

合成により得られた化合物 (TME₈) に対する ¹H-NMR 測定の結果を Fig.4 に示した。文献値^{3), 4)}との比較により目的物以外にも片末端がエポキシ化されていないものが若干含まれていることが確認された。しかし融点測定の結果はこの化合物は 152.2~182.5°C で液晶を示し、文献値^{3), 4)}152~182°C とほぼ一致したため、重合に用いるのに十分な純度の目的物であると判断した。

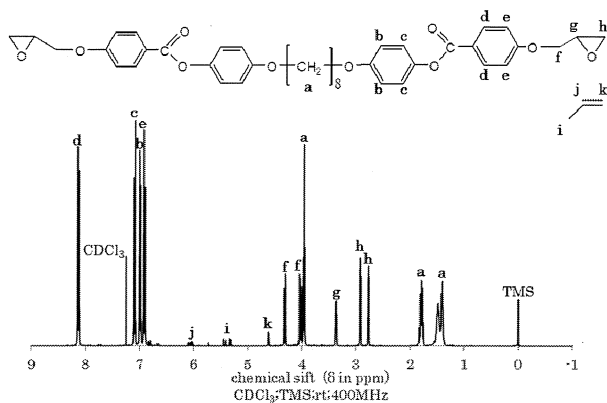


Fig. 4 The ¹H-NMR spectrum of Twin8e and its peaks assignments.

次に合成により得られた化合物 (BTME₈) に対する ¹H-NMR 測定の結果を Fig.5 に示した。スペクトルの帰属も図中に示した。帰属により、目的物が得られていることを確認した。

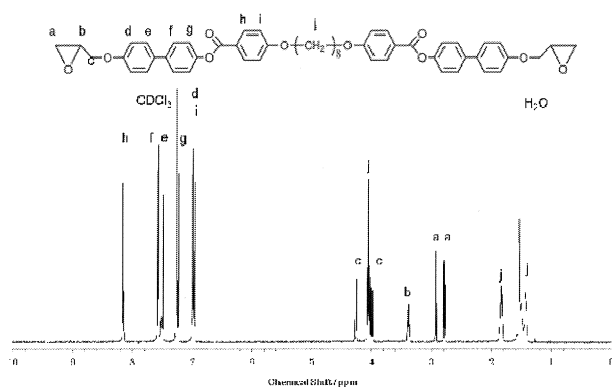


Fig. 5 The ¹H-NMR spectrum of BTwin8e and its peaks assignments.

3.2 ツインメソゲン型エポキシモノマーの分子及び相構造の解析

TME₈ の DSC 測定結果を Fig. 6 に、偏光顕微鏡 (POM) 観察結果を Fig. 7 に、それぞれ示した。DSC では、約 150°C と 181°C に吸熱ピークが現れた。それぞれの温度

域における POM 観察で、150°C は結晶から液晶相への転移点、181°C は液晶相から等方性液体への転移点であることがわかった。これらの結果から Twin8e はこの温度域でネマチック液晶相を発現すると考えられる。

Twin8e の FT-IR 測定結果を Fig. 8 に、その帰属を Table 1 に示した。FT-IR スペクトルから Twin8e の分子構造を確認した。

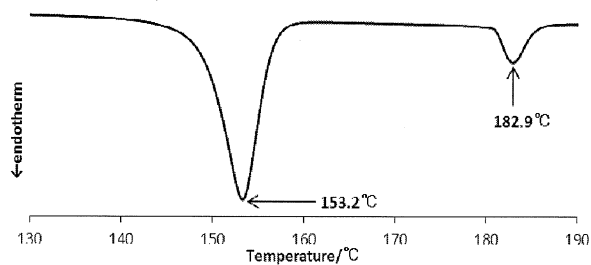


Fig. 6 The DSC spectrum of Twin8e.

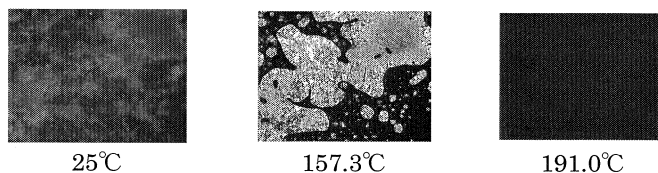


Fig.7 POM images of Twin 8e at each temperature.

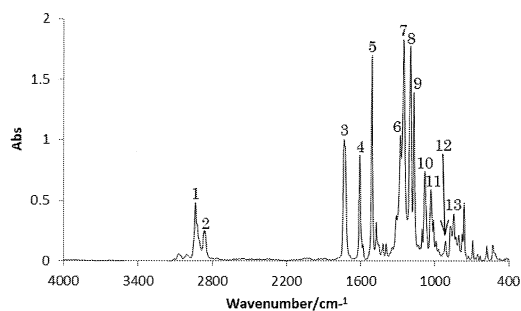


Fig. 8 The FT-IR spectrum of Twin8e.

Table 1 Assignments of the FT-IR spectrum of Twin8e.

No.	/cm ⁻¹	帰属	No.	/cm ⁻¹	帰属
1	2935	CH 逆対称伸縮	8	1201	CO 伸縮
2	2862	CH 対称伸縮	9	1172	CO 伸縮
3	1736	C=O 伸縮	10	1082	CH 面内変角
4	1609	芳香族面内骨格	11	1034	CH 面内変角
5	1511	芳香族面内骨格	12	913	COC 逆対称伸縮
6	1285	CO 伸縮	13	847	COC 非対称伸縮
7	1255	COC 対称伸縮			

BTME₈ の DSC 測定結果を Fig. 9 に、偏光顕微鏡 (POM) 観察結果を Fig. 10 に、それぞれ示した。DSC では、約 192°C、272°C、343°C に吸熱ピークが現れた。それぞれの温度域における POM 観察で、192°C は結晶からスメクチック相への転移点、272°C はスメクチック相からネマチック相への、343°C はネマチック相から等方液体への転移点であることがわかった。これらの結果から BTwin8e はこの温度域でネマチックおよびスメクチック液晶相を発現すると考えられる。

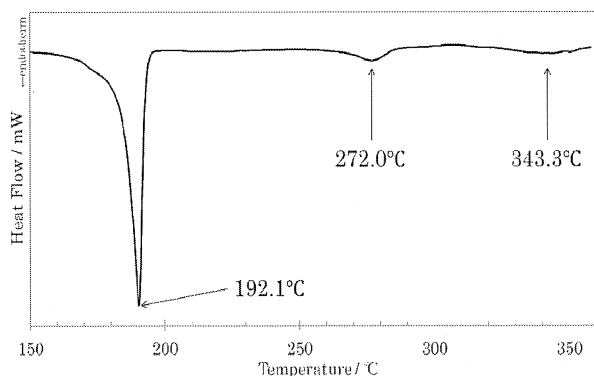


Fig. 9 The DSC spectrum of BTwin8e.

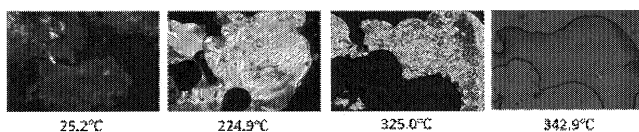


Fig.10 POM images of BTwin 8e at each temperature.

エポキシ由来と思われるピーク、DDM の 3376 cm^{-1} 、3280 cm^{-1} の NH 由来のピークが全て消失し、逆に 1363 cm^{-1} に CN 結合由来のピークが確認されたことから、重合反応が進行したことが確認できた。

次に樹脂の表面とバルクとの差異を検討するため、得られた樹脂に対し ATR 一回反射法による IR 測定を行い、先ほどの KBr 法による測定の結果と比較した (Fig.12)。また、試料表面の配向を検討するために ATR 一回反射法による偏光 ATR 測定を行った。試料面に対し垂直な偏光 (p 偏光) での測定と、試料面に対し平行な偏光 (s 偏光) での測定における IR スペクトルの比較を Fig.13 に示した。Fig. 12 では 2 つのスペクトルに差が見られなかったため、樹脂の表面とバルクの構造に差異がないことが確認された。また Fig. 13 においても 2 つのスペクトルに差が見られなかったため、樹脂表面に配向がないことが確認された。これらの結果から、この樹脂は表面で配向することなく、等方的に硬化されていることが確認された。

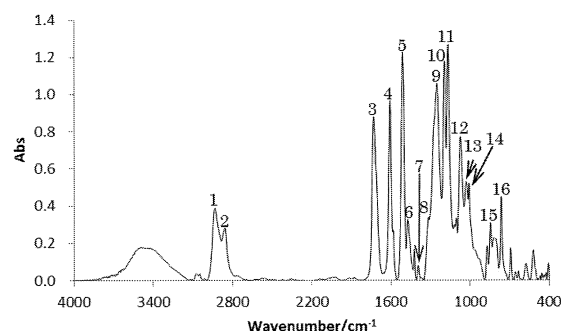


Fig. 11 The FT-IR spectrum of TMEs

3.3 ツインメソーゲン型樹脂の重合と高次構造解析

上記の結果を踏まえ、Twin8e の硬化は Twin8e が液晶相を示す温度帯で行った。具体的には、Twin8e:DDM = 2:1 のモル比となるよう乳鉢で粉砕・混合し、直径 12mm、厚さ 2mm の穴を開けたシリコンゴムの型に詰め込み、180°C で 4 時間加熱し樹脂 TME₈ を得た。得られた樹脂は台形様で、目視では上辺と下辺が平行・平滑であった。それぞれの直径が 8mm と 9mm、厚みが 1.7mm の黒色のペレットであった。文献¹⁾では一度硬化した樹脂を成型加工することにより測定を行える形状にしているため、この得られた樹脂も同様にして成型加工することにより測定を行うことが可能であると言える。

得られた樹脂の構造解析及び合成確認のため、KBr 法による IR 測定を行った。樹脂 TME₈ の FT-IR スペクトルを Fig. 11 に、その帰属を Table 2 に示した。樹脂の吸収スペクトルでは、Twin8e で確認された 913 cm^{-1} の

Table 2 Assignments of the FT-IR spectrum of TMA₈s

No.	/cm ⁻¹	帰属	No.	/cm ⁻¹	帰属
1	2933	CH 逆対称伸縮	9	1250	COC 伸縮
2	2857	CH 対称伸縮	10	1193	CO 伸縮
3	1731	C=O 伸縮	11	1167	CH 横揺れ
4	1605	芳香族面内骨格	12	1073	CO 伸縮
5	1509	芳香族面内骨格	13	1031	COC 対称伸縮
6	1472	CH 変角	14	1009	CH 横揺れ
7	1363	CN 伸縮	15	846	CH 変角
8	1313	OH 変角	16	764	CC 骨格

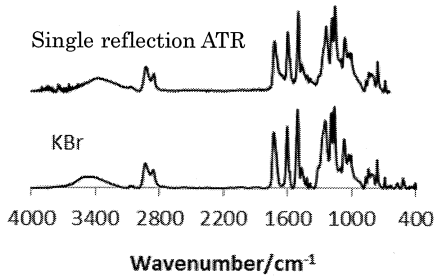


Fig. 12 The comparison between the single reflection ATR and the bulk (KBr) FT-IR spectra of TME₈

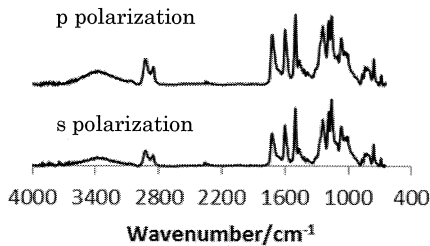


Fig. 13 The comparison between the p polarization and the s polarization single reflection ATR FT-IR spectra of TME₈

BTwin8e の硬化は DDM と混合し BTwin8e がスメクチック相を示す 215°C で 4hr 加熱を行い、樹脂 BTME₈ を得た。試料表面の配向を検討するために ATR 一回反射法による偏光 ATR 測定を行った。試料面に対し垂直な偏光(p 偏光)での測定と、試料面に対し平行な偏光(s 偏光)での測定における IR スペクトルの比較を Fig.14 に示した。2 つのスペクトルに差が見られなかったため、樹脂表面に配向がないことが確認された。これらの結果から、この樹脂は表面で配向することなく、等方的に硬化されていることが確認された。

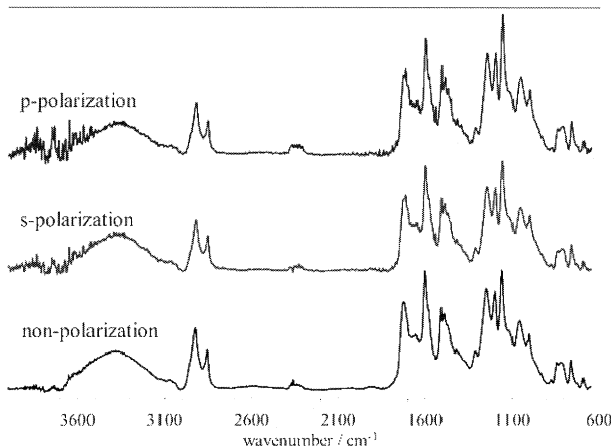


Fig.4 The comparison between the p-polarization and the s-polarization single reflection ATR FT-IR spectra of BTwin8e.

次に広角 X 線回折 (WXR) により樹脂の凝集構造解析を行なった。TME₈ および BTME₈ の WXR の測定結果を、それぞれ、Fig.14(a) および (b) に示した。TME₈ の回折角 2θ は 19.8° 、半値幅 $\Delta 2\theta$ は 5.9° であり、BTME₈ の回折角 2θ は 20.0° 、半値幅 $\Delta 2\theta$ は 5.3° であった。これらの値を用いて Bragg の式、Scherrer の式から、それぞれ、面間隔 d と微結晶サイズ (可干渉距離) D を求めると、TME₈ は $d=4.5\text{ \AA}$ 、 $D=27.2\text{ \AA}$ 、BTME₈ は、 $d=4.4\text{ \AA}$ 、 $D=30.3\text{ \AA}$ となった。この面間隔はメソゲン骨格であるフェニルベンゾエートの厚みと近い値のため、樹脂内部でベンゾエートが厚み方向に配列していると考えられる。この配列は厳密な周期性を有する結晶相としてのものではなく、 D の値を考慮すると X 線の可干渉距離にしてベンゾエートが約 6 個分のよりラフな秩序性、すなわち液晶構造が樹脂中で凍結した配列と考えられる。また、この D の値はその方向の配列の秩序性のパラメータと考えられ、この値が大きいくほど秩序性が高い。モノメソーゲン高熱伝導樹脂の D 値は、 14.7 \AA であり、TME₈ のほうがモノメソーゲン型より秩序性が高く、BTME₈ の秩序性はより高いと考えられる。TME₈、BTME₈ 樹脂のこの秩序性の高さが、その熱伝導率の大きさに関連していると考えられる。

TME₈ 樹脂の小角 X 線回折 (SXRD) 測定を行い、散乱ベクトル q が 0.14、すなわち、 2θ が 2° の値で回折ピークを測定した。この値より面間隔 d を計算すると 4.4 nm となり、TME₈ 樹脂中に面間隔 4.4 nm の層構造が存在し、スメクチック液晶構造を形成していると考えられる。この層間隔は、量子化学計算によって求めた Twin8e の両末端 CC 原子の距離と DDM の両末端 NN 原子の距離を足した値 4.9 nm と近い値となったため、TME₈ 樹脂の高次構造として、この繰り返し単位がやや傾いた状態で分子鎖方向に層構造を形成しているスメクチック液晶構造が考えられる。これらの結果から TME₈ 樹脂中にはスメクチック液晶型の層構造が存在し、高い秩序性を有しており、ネマチック型構造を有するモノメソーゲン樹脂より、より大きな熱伝導性を示すことが予想される。

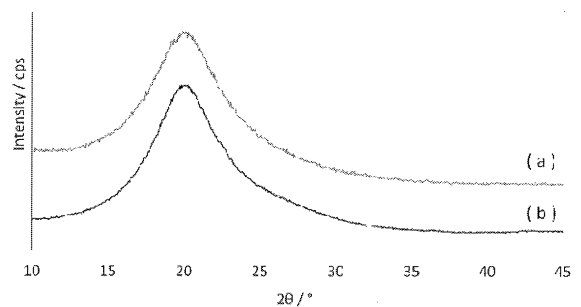


Fig. 14 The wide-angle X-ray diffraction patterns of (a)TME₈ and (b) BTME₈

3.4 ツインメソゲン型樹脂の熱伝導率と高次構造の相関

周期加熱法により測定したモノメソゲン型高熱伝導樹脂及び今回合成したツインメソゲン型高熱伝導樹脂 TME₈ 及び BTME₈ の熱伝導率の値を可干渉距離 D および液晶構造とともに Table 3 に示した。熱伝導率の大きいツインメソゲン型熱伝導樹脂 TME₈ 及び BTME₈ は、モノメソゲン型高熱伝導樹脂より液晶構造中、同一層内 (横方向) の秩序性を表す可干渉距離 D が大きく、また、層構造を示さないネマチック液晶構造を示すモノメソゲン型高熱伝導樹脂より、層構造を示すスメクチック液晶構造を示すため、層形成方向 (縦方向) に関して秩序性が高く、熱伝導率の大きさと高次構造の秩序性の相関が本実験時事実により明確に示されたと考えられる。ツインメソゲン型樹脂である TME₈ と BTME₈ に関しては、メソゲン基が大きく、モノマーが大きな液晶性を示し、樹脂の秩序性 D も大きい、ビフェニルベンゾエート型 BTME₈ がフェニルベンゾエート型 TME₈ より熱伝導率が大きく、秩序性と熱伝導率の相関があることが定量的に示された。

Table 3 Thermal conductivities, coherent lengths D , and liquid crystal structures of mono- and twin-mesogen epoxy polymers TME₈ and BTME₈

樹脂	BTME ₈	TME ₈	モノメソゲン型
熱伝導率 (Wm ⁻¹ K ⁻¹)	0.92	0.68	0.26
D (Å)	30.3	27.2	14.7
液晶相の型	Smectic	Smectic	Nematic

4. 結論

合成により高熱伝導樹脂 TME₈ 及び BTME₈ のモノマー Twin8e 及び BTwin8e を得て、種々の測定によりその液晶性に関する知見を得た。またそこから TME₈ 及び BTME₈ の重合温度を決定した。

重合により得た樹脂は IR 測定により合成確認をした。この樹脂 TME₈ 及び BTME₈ は周期加熱法による熱伝導率測定を行うことがほぼ可能な形状に硬化することができた。KBr 法、ATR 法による IR 測定、偏光 IR 測定の結果から樹脂表面の配向がないこと、等方的に硬化されていることを確認した。XRD 測定、SAXS 測定から、TME₈ 及び BTME₈ 樹脂の高次構造、すなわち、樹脂内部に形成されている液晶構造の詳細な知見を得た。その構造は、モノマーがネマチック相であったのに対し、より秩序性の高いスメクチック液晶型の構造であった。

さらに樹脂に対し熱伝導率測定を行うことで高次構造と物性の相関を明らかにし、モノメソゲン型高熱伝導樹脂と今回検討を行ったツインメソゲン型高熱伝導樹脂 TME₈ 及び BTME₈ の熱伝導率の違いをその高次構造の違いから明らかにすることができた。

参考文献

- 1) Akatsuka, M., Takezawa, Y., : J. Appl. Polym. Sci., 89, (2003) 2464.
- 2) 竹澤由高, “高次構造制御による高熱伝導絶縁エポキシ樹脂”, ネットワークポリマー, 第 26 巻(第 4 号) (2005) 38
- 3) Shiota, A., Ober, C.K., J. of Polym. Sci. Part A: Polym. Chem., Vol.34, (1996) 1291-1303
- 4) 塩田淳, クリストファー ケムパー オーバー, 特開平 9-118673, 公開日 1997 年 5 月 6 日

【研究成果】

① 発表論文

Yuzo Itoh, Shuji Kawamoto, Hirotda Fujiwara, Hiroaki Ono, Tadatomo Kawai and Shin Nishimura, J. Polym. Sci. Polym. Phys. Ed., in preparation.

② 学会発表

1) Yuzo Itoh, Shuji Kawamoto, Hikaru Natori, Tadatomo Kawai, and Haruki Okawa, “Vibrational spectroscopic study on high thermal conductivity mechanism of biphenylbenzoate twin-mesogen epoxy polymers”, The 9th SPSJ International Polymer Conference, Kobe (2012.12)

2) Yuzo Itoh, Chikako Nakajima, Hikaru Natori, Tadatomo Kawai, and Haruki Okawa, “Vibrational spectroscopic study on high thermal conductivity mechanism of phenylbenzoate twin-mesogen epoxy polymers”, The 9th SPSJ International Polymer Conference, Kobe (2012.12)

3) 名取洸, 澤田光, 川井忠智, 大川春樹, 伊藤雄三, 「ツインメソゲン型エポキシ樹脂の高熱伝導発現メカニズムの振動分光学的研究」、高分子分析討論会、東京 (2011.9)

③ 特許なし

生体機能分子の固定化制御による軟組織適合性に優れた金属材料表面の創製

工学院大学 総合研究所 大家 溪

東京医科歯科大学 生体材料工学研究所 塙 隆夫

Soft tissue compatibility of titanium on which immobilized a cellular adhesive peptide through electrodeposited zwitterionic polyethylene glycol

Kei Oya, Research institute for science and technology, Kogakuin University
Takao Hanawa, Institute of biomaterials and bioengineering, Tokyo Medical and Dental University

ABSTRACT : It is known that the cellular adhesive properties of biomaterials are affected by micro- or nanoscale structures processed on culture surface. In the present study, the femtosecond laser processing technique was used to scan a laser beam at an intensity around ablation threshold level on a titanium surface for nanoscale processing to improve the soft tissue compatibility of titanium. Microscopic observation revealed that the processed titanium exhibited a periodic-patterned groove structure at the surface. Murine fibroblast, L929 cells, were cultured on the surface at the cell density of 3.0×10^3 cells/cm². For comparison, the cells were also cultured on a non-processed titanium surface at the condition identical to the processed surface. Results revealed that the duration for cell attachment to the surface was reduced on the processed titanium as compared with the non-processed titanium. Moreover, cell orientation was aligned along the direction of the periodic grooves. These results suggest that the femtosecond laser processing improves the cellular adhesive properties of cells derived from soft tissues by producing the nanoperiodic structure on titanium culture surfaces.

1. はじめに

老化, 疾病, 事故によって失われた人体機能を修復あるいは再建する方法として, 再生医療, 人工材料による治療がある. 再生医療による治療は長期の入院加療を要する場合が多いが, 人工材料による治療は, 生体機能の早期再建が可能であり, 高齢者や早期の社会復帰を望む患者に有効である. 現在, 医療用デバイスに使用される人工の生体材料は, 金属, セラミックス, 高分子に大別される. 金属材料は優れた機械的特性をもつため, 現在使用されている体内埋入デバイスの約 80 %を占めている. 一方, セラミック材料や高分子材料はその作製段階から生体組織適合性や生体機能性を付与することが可能であるが, 金属材料は製造プロセスにおいて, それらを

付与することができない。

チタンやチタン合金は他の金属材料と比較して生体適合性に優れており, 整形外科や循環器外科, 歯科など, 幅広い医療分野に応用されている. しかしながら, 上述のように金属材料は生体機能性を有さないため, セラミック材料や高分子材料と比較してその適合性は劣る. 金属材料に生体機能性を付与するためには, 表面の形状を制御する, あるいは, 種々の生体機能分子を表面に固定化するなど, 金属表面の改質や処理に関する研究が盛んに行われている. 金属材料の表面改質・処理はドライプロセスとウェットプロセスに大別できる. 一般に粗い表面は細胞や組織との接着や機能発現を促進することがわかっており, 金属材料表面の形態を制御する技術が数多く開発されている. 具体的には, プラズマスプレー, ポ

ーラス化, プラスト処理, レーザ加工, 酸エッチングなどの技術が挙げられ, 溝構造や粗い表面を形成して生体機能性の向上を実現している²⁾. 一方, 金属材料表面の組成や相制御に関する技術として溶射, 気相成長法, イオン注入, ガス処理, NaOH 処理・加熱, ゼルゲル, デイップコーティング, 擬似体液浸漬, 電気化学的手法などが挙げられ, これらの技術によってアパタイト形成やアパタイト形成促進, 耐摩耗性や耐食性の向上, 生体親和性の向上を実現している²⁾.

一方, 歯科インプラントや心臓ペースメーカ, ステンチなど, 金属材料は軟組織との優れた接着性が求められる部材が多いが, 軟組織との接着性に優れた固体材料はこれまでに開発されていないのが現状である. これまでに, フェムト秒レーザによりチタン表面に形成したナノ周期構造上でヒト滑膜由来間葉系幹細胞を培養した結果, 細胞接着を促進し, 配向を制御できることが示されている³⁾. したがって, フェムト秒レーザにより形成したナノ周期構造は軟組織との接着性も向上できることが期待できる. 本研究では, フェムト秒レーザによりチタン表面に形成したナノ周期構造上で軟組織由来細胞を培養し, 細胞接着特性に及ぼすナノ周期構造の影響を調査した.

2. 実験方法

2.1 チタン表面へのナノ周期構造の形成

研磨紙 320, 600, 800, 1000 番の順で湿式研磨を施した直径 8 mm, 厚さ 1.5~2.0 mm の JIS2 種の工業用純チタンを試料とした. 基本波長 780 nm のフェムト秒レーザ装置 (IFRIT, サイバーレーザ) を用いて, パルス時間幅 190 fs, レーザフルエンス 0.5 J/cm², 走査速度 1200 mm/min の条件でレーザをチタン表面に照射した. 以下, レーザ加工を施したチタンを“Nano-Ti”, 比較材の研磨のみを行ったチタンを“Ti”と表記する. 各試料表面を走査型電子顕微鏡 (SEM, JSM-6380LA, 日本電子) により観察した. さらに, 画像解析ソフト (ImageJ, National Institutes of Health) を用いて得られた SEM 像からナノ周期構造のピッチを測定した. 走査型プローブ顕微鏡 (SPM, VN-8000, キーエンス) を用いて溝の深さと表面粗さ (R_a) を測定した. 溝のピッチとは, 隣り合う山の頂点間の距離と定義した.

2.2 軟組織由来細胞接着特性の評価

軟組織由来の細胞として, マウス由来線維芽細胞株の L929 を用いた. 培養培地には, Eagle's minimal essential medium (E-MEM) に 10%濃度になるようにウシ胎児血清 (FBS) を添加したものをを用いた. 培養は 37°C, 5%CO₂ 下で行った.

試料表面上に 3.0×10³ cells/cm² の密度で L929 を播種し, 1, 6, 24 h 培養した. 各時間培養後, 細胞を Karnovsky 固

定液で前固定, 1%四酸化オスミウム溶液で後固定し, 脱水後に臨界点乾燥を行った. その後, 白金-パラジウムを 10 nm コーティングし, SEM により細胞接着の様子を観察した. 得られた SEM 像から ImageJ を用いて細胞の接着面積を求めた. さらに, Fujita らの手法を用いて一細胞の輪郭を楕円近似し, 長軸と短軸の比 (アスペクト比) を計測した⁴⁾. さらに, 培養 24 h の細胞の SEM 像から, 楕円の長軸と Nano-Ti の溝方向がなす角度 (配向角度) を計測した⁴⁾. Ti 上の細胞では, 楕円の長軸と任意の一本の線とがなす角度を配向角度とした.

2.3 統計処理

細胞接着面積測定結果およびアスペクト比の測定結果は Student's two tailed *t*-test により有意差検定した. 有意水準は $P < 0.05$ とした.

3. 結果と考察

3.1 ナノ周期構造付与チタンの表面性状

SEM および SPM による Nano-Ti と Ti の表面観察結果の像を Fig.1 および Fig.2 に示す. 各像より, Nano-Ti 上にはナノレベルの溝構造がチタン表面に形成されていることが確認できた. また, SPM による測定結果より, Nano-Ti 表面の周期構造は, ピッチ: 540 ± 54 nm, 深さ: 55 ± 23 nm, R_a: 27 ± 4 nm だった. 一方, Ti の R_a は 20 ± 7 nm だった³⁾.

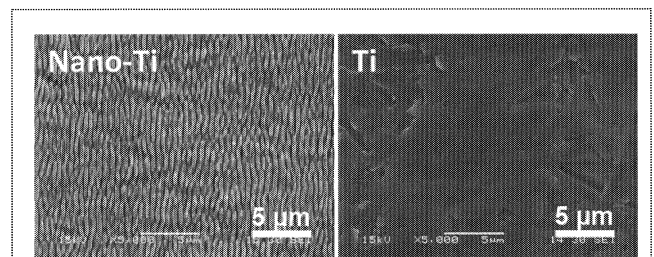


Fig.1 SEM images of Nano-Ti and Ti.

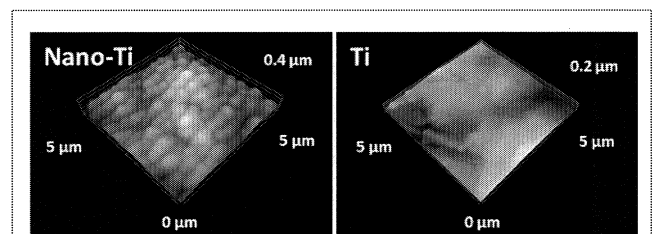


Fig.2 SPM images of Nano-Ti and Ti.

3.2 線維芽細胞の接着特性

各試料上で L929 細胞を 1 h, 6 h, 24 h 培養した後の細胞接着の様子を Fig.3 に示す. 一般に線維芽細胞は, 接着前は球形をしており, 培養基板に接着後, 最初は円形に

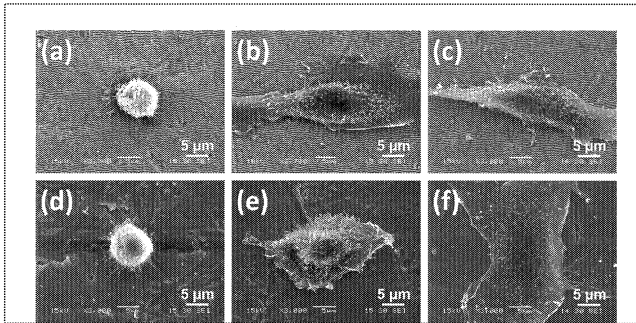


Fig.3 SEM images of L929 cells cultured on Nano-Ti (a, b, c) and Ti (d, e, f) for 1 h (a, d), 6 h (b, e), and 24 h (c, f) with scale bars of 5 μm.

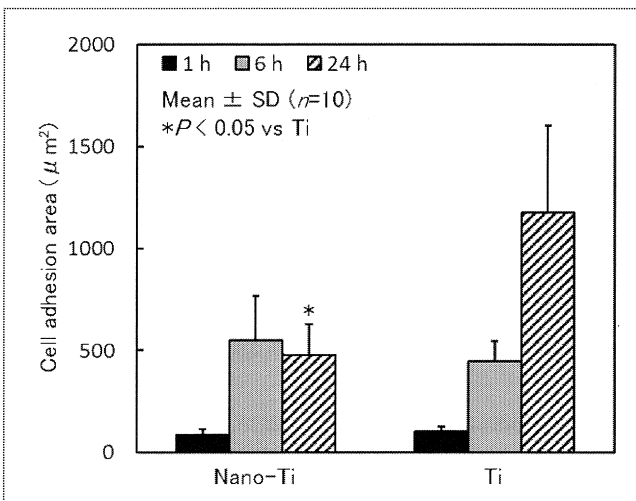


Fig.4 Cell adhesion areas on Nano-Ti and Ti cultured for 1, 6, and 24 h. Data averaged from 10 samples ($n=10$) are shown with standard deviation with statistically significant differences set at 0.05.

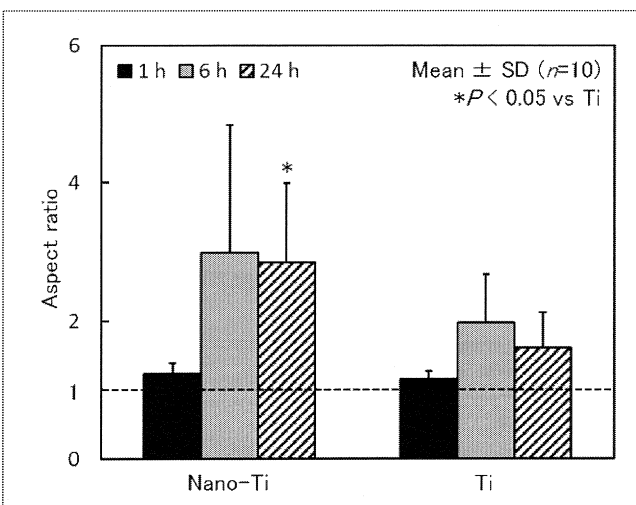


Fig.5 Aspect ratios of cells on Nano-Ti and Ti cultured for 1, 6, and 24 h. Data averaged from 10 samples ($n=10$) are shown with standard deviation with statistically significant differences set at 0.05. The dotted line indicates a value of 1, indicating a shape of a true circle.

伸展し、最後は紡錘形をとる。培養 1 h において、Ti 上の L929 細胞は依然として球形をしており、細胞の伸展は観察できなかった。一方、Nano-Ti 上の細胞も球形をしていたものの、試料表面上に仮足を伸展させている様子が観察できた。培養 6 h 以降では細胞が接着して紡錘型になっていく様子が確認できたが、Ti と比較して Nano-Ti 上細胞の方が早期に紡錘形をとっていく様子が確認できた。また、Nano-Ti 上の細胞は溝方向に沿って細胞が進展している様子が観察でき、さらに、Nano-Ti 上の細胞はナノ周期構造の溝方向に仮足を伸展させている様子が観察され、L929 細胞がナノ周期構造を認識していることがわかった。

各時間培養後の各試料上の L929 細胞の接着面積の測定結果を Fig.4 に示す。培養 1 h および 6 h では接着面積に有意差はなかったが、培養 24 h における細胞接着面積は Ti の方が Nano-Ti と比較して有意に大きかった。SEM 観察結果と併せて考察すると、培養 24 h の Nano-Ti 上の細胞は既に紡錘形となっていたが、Ti 上の細胞は円形から紡錘形になっていく様子が見受けられ、これによって接着面積が Nano-Ti と比較して Ti の方が大きくなった要比は 1 が真円を意味し、数値が大きくなると、細胞が紡錘形になっていることを示す。培養 1 h および 6 h では因であると考えられる。

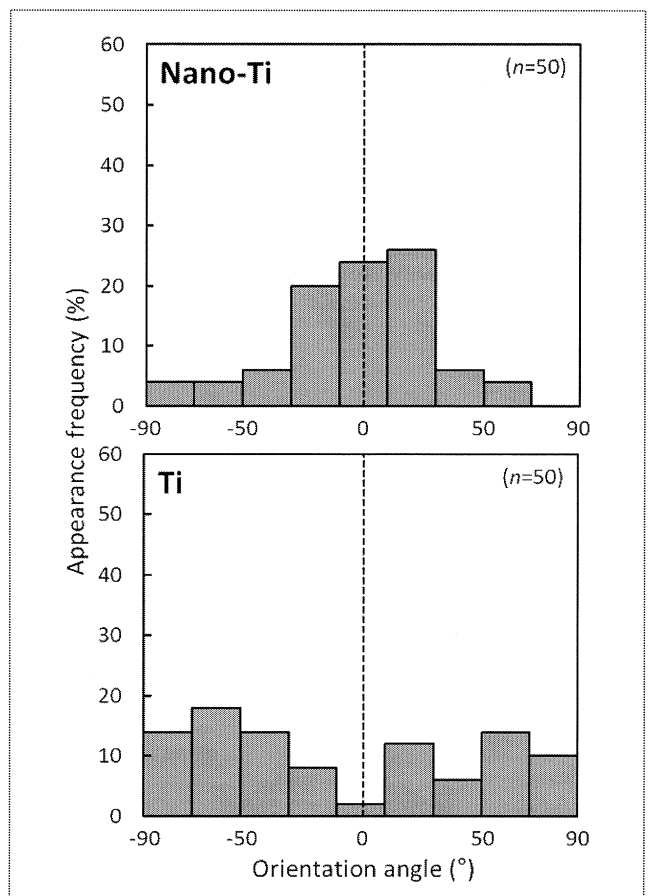


Fig.6 Distribution of cells in the range of each orientation angle cultured for 24 h on Nano-Ti (upper) and Ti (bottom) with a sample number of 50 ($n=50$).

各時間培養後の各試料上の L929 のアスペクト比の測定結果を Fig.5 に示す. 細胞接着面積測定結果と同様に, 培養 1 h と 6 h では各試料における細胞のアスペクト比に有意差はなかったが, 培養 24 h におけるアスペクト比は Nano-Ti の方が Ti と比較して有意に大きかった. Fig.3 と併せて考察すると, Nano-Ti 上の L929 細胞は培養 6 h から Ti 上の細胞と比較して早期に紡錘形をとりつつあることを示唆している.

最後に, 培養 24 h の各試料上の L929 の -90° から 90° まで, 20° 毎に分布している細胞数をまとめた結果を Fig.6 に示す. すべての細胞が等方的に配向している場合, 分布率はおよそ 11%となる. その結果, Ti 上の細胞は等方的に分布しているのに対し, Nano-Ti 上の細胞は $\pm 30^{\circ}$ に 70%の細胞が分布しており, Nano-Ti 表面は細胞の配向を制御できることがわかった.

5. まとめ

フェムト秒レーザーによりチタン表面に形成したナノ周期構造上で軟組織由来の L929 細胞を培養した結果, ナノ周期構造は L929 細胞の伸展を促進し, 配向も制御できることがわかった. 以上より, フェムト秒レーザー加工により軟組織適合性に優れる材料表面が創製可能であることが示唆された.

参考文献

- (1) 埴 隆夫, 米山隆之: 金属バイオマテリアル, コロナ社 (2007) pp. 89-98.
- (2) 埴 隆夫: 医療用金属材料概論, 日本金属学会 (2010) pp. 152-177.
- (3) Kei, O., Shun, A., Kazunori, S., Norihiko, S., Kenji, S., Norimasa, N., Hiromichi, F.: Morphological observations of mesenchymal stem cell adhesion to a nanoperiodic-structured titanium surface patterned using femtosecond laser processing, Jpn. J. Appl. Phys., Vol. 51 (2012) pp. 125203.
- (4) Satoshi, F., Daizaburo, O., Masahiro, O., Hiroo, I., Supercritical CO₂-assisted embossing for studying cell behaviour on microtextured surfaces, Biomaterials, Vol. 29, Issue 34 (2008) pp. 4494-4500.

【研究成果】

①学会発表

1. 谷, 大家, 鈴木, 藤江, フェムト秒レーザーによりチタン表面に形成したナノ周期構造の軟組織適合性, 日本材料科学会 平成 25 年度学術講演大会, 2013 年 6 月.

2. 総合研究所プロジェクト研究報告 (2013年度継続研究)

細胞の増殖、分化、機能維持を制御する蛇毒因子の単離とその機能に関する研究

工学院大学 応用化学科 辛 英哲

工学院大学 応用化学科 今村保忠

明治薬科大学 薬学教育センター 阿刀田 英子

山梨大学 医学部 井上 克枝

Isolation and Characterization of the Snake Venom Protein that Affects the Growth, Differentiation and Function of mammalian Cells.

Yongchol Shin and Yasutada Imamura, Department of Applied Chemistry, Kogakuin University; Hideko Atoda,

Department of biology, Meiji Pharmaceutical University;

Katsue Inoue, Department of Clinical and Laboratory Medicine, Yamanashi University

ABSTRACT : The snake venom proteins that inhibit binding of human fibrosarcoma cell(HT-1080) to collagens and fibronectin were purified from the crude venoms of *Naja atra* (Taiwan cobra) and *Ovophis okinavensis* (Hime habu) by column chromatography. Determined N-terminal amino acid sequence of one of purified proteins from the venom of *Naja atra* is identical with Cardiotoxin-4. The molecular weight of the venom protein measured by mass spectrometry well coincides with that of Cardiotoxin-4. Therefore, the purified venom protein is identified as Cardiotoxin-4, that has hemolysis activity. The Cardiotoxin-4 inhibits binding of HT-1080 as well as other tumor cells to type IV collagen more effectively than type I collagen or fibronectin. Fractions those contained 30 to 100 kDa proteins from the venom of *Ovophis okinavensis* inhibits binding of HT-1080 to fibronectin specifically, not to Type I or Type IV collagen.

1. はじめに

コラーゲンなどの細胞外基質は細胞の足場としてだけでなく、細胞の増殖や分化、機能維持に積極的に関与していることが明らかになっている。細胞外基質と細胞の結合は、インテグリンとよばれる細胞膜タンパク質を筆頭に多くのタンパク質、糖鎖、脂質などが関与していると考えられている。インテグリンは細胞表面に発現している膜貫通型タンパク質であり、 α 鎖と β 鎖の異なる2つのサブユニットが非共有結合により会合した構造をし

ており、細胞の接着、脱着において中心的な役割を果たす。哺乳類では18種類の α 鎖と8種類の β 鎖が存在し、その組み合わせが異なる24種類のインテグリンが知られている。インテグリンの接着能は細胞が受ける種々の刺激に応じて細胞の内側からもコントロールされている。また、インテグリンを介して細胞がリガンドに接着すると、その情報は細胞内に伝えられ最終的には細胞の次の活動(生存、増殖、遺伝子発現など)を引き起こすことが分かっている。これらの結合について詳細に解析することは、細胞外基質によって細胞の増殖、分化や機能維

持がいかにかに制御されているかを調べる上で重要である。

ヘビ毒の中にはインテグリンと競合的に結合することで細胞と細胞外基質の接着を阻害し、細胞の機能の抑制や細胞にダメージを与えるタンパク質がある。このようなタンパク質は循環器疾患の診断薬の設計、骨粗しょう症の治療薬、および血管新生により引き起こされる腫瘍の増殖と転移における治療薬の設計に利用されている(1)。

Cardiotoxin (CTX) ファミリータンパク質はコブラ科のヘビ毒に多く含まれている塩基性タンパク質で、3つのループからなる構造をしており立体構造の特徴から three finger toxin ファミリータンパク質に属する(図3)。コブラ科のヘビ毒は、アセチルコリンやアセチルコリン受容体、あるいはイオンチャンネルに作用する神経毒が主に含まれていることが分かっており、神経に関する報告が圧倒的に多い。その含量は通常のコブラ粗毒中に30~50%と非常に高い。タイワンコブラ粗毒由来のCTX1はマウスの骨格筋細胞の壊死を惹き起すことがわかっており、CTX2、CTX3、CTX4は溶血作用を持つことが知られている(2)。また、CTX3は腫瘍細胞の壊死を引き起こす(3)、プロテインキナーゼCの阻害することが知られている。CTX5は、インテグリン $\alpha_v\beta_3$ と結合することが知られている(4)。このようにCTXファミリーは幅広い活性を有する事が知られている。

昨年度までの研究から、CTX4が細胞接着阻害活性を有することを明らかにした。これまでCTX4に細胞接着阻害活性がある事は知られておらず、接着阻害作用機構について詳細に解析することにより、インテグリンなどの細胞膜レセプターを介した細胞外基質による細胞の増殖、分化や機能維持の制御機構の一端を明らかにする、また、腫瘍細胞などの特定の細胞の増殖や転移を制御する道具としての可能性を検討することができると考えている。本研究では、CTX4、CTX3の効率良い精製法を確立する事を目指した。

一方、マムシ科のヒメハブ粗毒から、細胞外基質であるファイブロネクチンと肉腫細胞の結合を阻害する因子が存在する事を明らかにした。本研究ではこの因子を特定し、接着阻害機構を明らかにする事を目指した。

2. 実験方法

2.1 カラムクロマトグラフィーによる接着阻害因子の単離と同定

18種類の蛇毒から、細胞外基質と細胞の結合に影響を及ぼす因子を含む蛇毒を選定した。本研究では細胞外基質としてコラーゲン、ファイブロネクチンを用いた。コラーゲンは、従来ペプシン等の酵素を用いて組織から抽

出するが、工学院大学の今村保忠教授により酵素を使わずコラーゲンを抽出する方法が確立されており、より生体内の状態に近いコラーゲンを用いた。つぎに、蛇毒から種々のカラムクロマトグラフィーを用いて、目的タンパク質を精製する。本実験では、ゲルろ過クロマトグラフィーおよび陽イオン交換クロマトグラフィーを単独、あるいは組み合わせて、タイワンコブラ粗毒からCTXファミリータンパク質を単離し、ヒメハブ粗毒から接着阻害因子を含む画分を分画した。タンパク質のN末端側のアミノ酸配列をプロテインシークエンサーで解析し、分子量を飛行時間型質量分析計によって測定した。

2.2 蛇毒タンパク質を用いた接着阻害実験

クロマトグラフィーにより分画した蛇毒タンパク質画分や単離したCTXを用いて、ヒト線維肉腫細胞(HT-1080)と各細胞外基質(I型、IV型コラーゲンおよびフィブロネクチン)との接着への影響を調べた。さらに、数種類の細胞を用いて細胞接着阻害実験を行い細胞による接着阻害活性の特異性を確認した。

2.3 蛇毒タンパク質の標的因子の特定

各種培養細胞を細胞溶解液に加え、3時間インキュベートした。その後、細胞溶解液を回収し、試料とした。

CTX4あるいはBSAをビオチン化した。されたCTX4あるいはBSA回収した。

2.19 ビオチン化したCTX4とBSAを用いた、細胞に含まれるCTX4と結合するタンパク質の検出

この試料を電気泳動した後、PVDF膜にゲル中のタンパク質を転写した。PVDF膜上にBiotin Labeling Kit-NH₂を用いてビオチン化したCTX4あるいはBSAを添加した。PVDF膜上に転写したタンパク質と結合したビオチン化CTX4あるいはBSAを、酵素標識したアビジンと反応させ、発光基質による検出を試みた。

3. 結果

3.1 液体クロマトグラフィーによる接着阻害因子の単離と同定

既に18種類の蛇毒から、肉腫細胞とコラーゲンあるいはファイブロネクチンとの結合を阻害する成分を有する蛇毒として、ヒメハブ、タイワンコブラ、タンビマムシ由来の粗毒の3種を選定した。

コラーゲンとの結合阻害活性が最も強かったタイワンコブラ由来の粗毒から、ゲルろ過クロマトグラフィーと陽イオン交換クロマトグラフィーによって接着阻害因子であるタンパク質を効率よく精製する事に成功した(図1)。

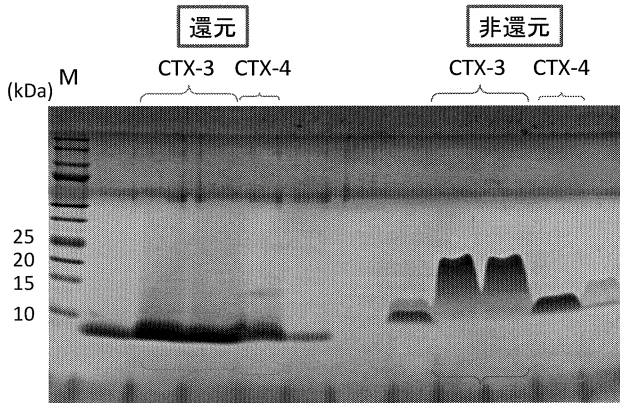


図1 単離したCTXファミリータンパク質のSDS-PAGE法による解析

単離したCTX-3およびCTX-4を、15% Tricine SDS-ポリアクリルアミドゲルを用いた電気泳動法により分析したCTX-3、CTX-4共に還元条件下では、10kDa以下となった。一方、非還元条件下では、CTX-3は20kDa、CTX-4は10kDaであった。

単離したタンパク質の分子量を質量分析計によって測定した結果、分子量は6781.080でありCTX4(分子量6780.3846)とほぼ一致した。他のCTXファミリータンパク質も同様に単離した。単離したタンパク質の分子量を上記と同様にして測定した結果、6734.308であり、Cardiotoxin-3 (CTX3) (分子量6734.4292)とほぼ一致した。それぞれのタンパク質の収率はCTX-4が2.7%、CTX-3が7.8%であった。この2つのタンパク質のN末端側のアミノ酸配列(20残基)を解析したところ、それぞれのタンパク質の決定されたアミノ酸配列はCTX4とCTX3に完全に一致したため(システイン残基は、還元アルキル化等を行っておらず、予想された配列の位置では検出されなかった)、2つのタンパク質をCTX4とCTX3であると同定した。またゲルろ過クロマトグラフィーの結果から、CTX3はCTX4より高分子量側に溶出される事がわかり、多量体を形成していることが示唆された。

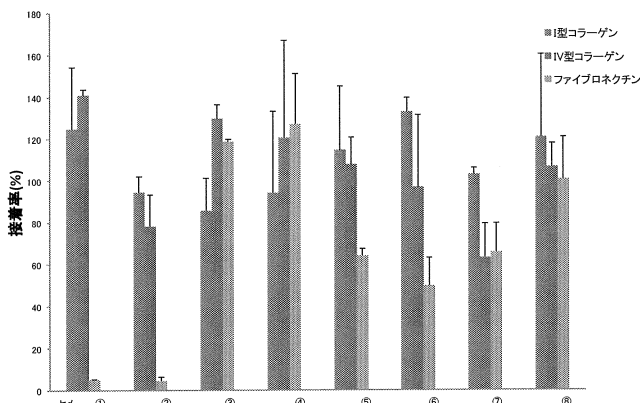


図2 ゲルろ過クロマトグラフィーにより分画したヒメハ粗毒由来の各画分による、肉腫細胞と各種細胞外マトリックスとの結合への影響

HT-1080を用いて細胞接着阻害実験を行った。ヒメハ

粗毒非添加時の肉腫細胞と細胞外マトリックス(I型コラーゲン、IV型コラーゲン、ファイブロネクチン)との接着数を100%とした。ファイブロネクチンとHT-1080との結合を強く阻害した①、②の画分には30~100kDaのタンパク質が含まれている。

また、ゲルろ過クロマトグラフィーを用いて、ヒメハ粗毒を分子量により分画し、それぞれの画分を用いて、細胞と細胞外基質との結合阻害活性を調べた。その結果、分子量30kDa~100kDaのタンパク質が含まれる画分に、肉腫細胞とファイブロネクチンとの結合を特異的に阻害する活性があることが分かった(図2)。

3.2 単離した接着阻害因子(CTX)による各種細胞と細胞外マトリックスとの接着阻害

CTX4を用いたときの結果(図3)を見るとIV型コラーゲンとHT-1080の接着をより強く阻害していた。さらに、細胞による特異性を確認するために数種類の細胞を用いて接着阻害実験を行ったところ、ヒト胎児由来肝臓細胞(HEK293)、ラット副腎髄質褐色細胞(PC-12)とIV型コラーゲンの接着を強く阻害していたが、ヒト臍帯静脈内皮細胞(HUVEC)、ヒト胎児由来線維芽細胞(TIG-1)の接着をほとんど阻害しなかった(図3)。接着阻害活性がみられた細胞は全て腫瘍化した細胞であり、CTX4は腫瘍細胞によるIV型コラーゲンへの接着を強く阻害すると考えられる。一方で、CTX3を用いて接着阻害実験を行った結果、細胞接着阻害はいずれの条件でも認められなかった。

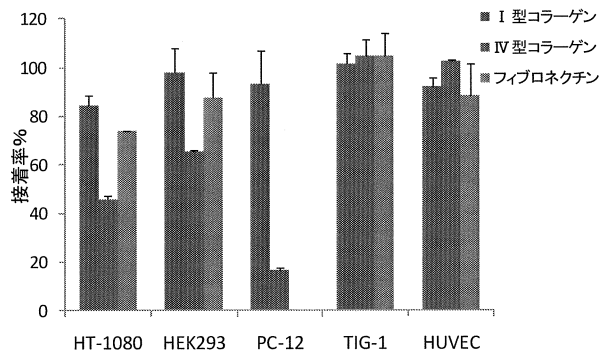


図3 各種細胞とCTX4を用いた細胞接着阻害実験

HT-1080、HEK293、PC-12、TIG-1、HUVECを用いて細胞接着阻害実験を行った。CTX4非添加時の各種細胞と細胞外マトリックスとの接着数を100%とした。添加したCTX4の終濃度は全て2.2μMである。PC-12はCTX4を添加無しでもファイブロネクチンと接着しなかった。

多くのthree finger toxinファミリータンパク質の神経毒性発現残基が2ループ目の先端に存在することや、CTX3とCTX4のアミノ酸配列の違いから(図4,5)、CTX4が有する接着阻害活性は28~31残基のアミノ酸に起因するものではないかと考えている。

30

CTX-4 rkenklvplfyktpagknlcykmfmvsnl
 CTX-3 lkenklvplfyktpagknlcykmfmvatp

CTX-4 tvpvkrgcidvcpknsalvkyvccntdrcn
 CTX-3 kvpvkrgcidvcpkssllvkyvccntdrcn

図4 CTX4 と CTX3 のアミノ酸配列の相同性

CTX4 と CTX3 のアミノ酸配列を比較し、CTX3 と異なる CTX4 のアミノ酸配列を赤色で示した。数字はアミノ末端からのアミノ酸残基数を示している。

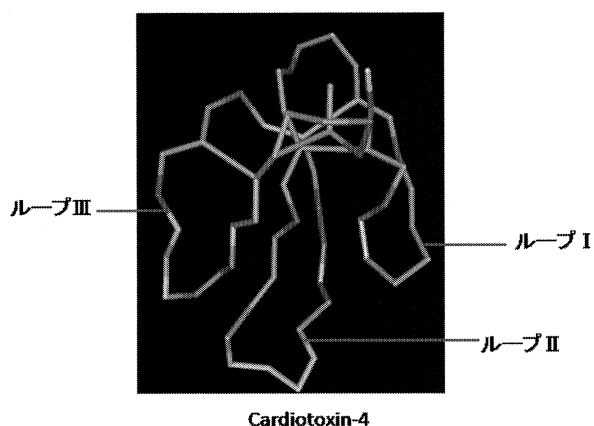


図5 CTX4 の立体構造図

中性アミノ酸を灰色、塩基性アミノ酸を青色、酸性アミノ酸を赤色、CTX3 と異なるアミノ酸を黄色、ジスルフィド結合をオレンジ色で表す。

3. 3 蛇毒タンパク質の標的因子の特定

ビオチン化CTX4と結合する細胞膜上のタンパク質の検出を行った。その結果、CTX4を反応させたメンブレンにのみ、PC-12、TIG-1、HUVECの各種細胞溶解液では、25KDa-35KDa付近にCTX4と結合するタンパク質が確認できた。したがって、PC-12、TIG-1、HUVECの細胞膜上に、CTX4と結合する分子量が25~35KDaのタンパク質を含んでいる可能性が高い(図6)。

また、検出されたバンドがスメアなことから、糖タンパク質であると考えた。細胞表面に分布しているタンパク質が糖鎖修飾を受けていることが多いことから、今回検出されたタンパク質は細胞表面に分布している可能性がある。しかし、HT-1080にはこのようなタンパク質が検出されなかったため、今回検出されたタンパク質が接着阻害活性に関与していることは示せなかった。もしくはHT-1080は別の機構により接着を阻害させている、SDS-PAGEによりタンパク質が変性してCTX4と結合できなかった等の理由が考えられる。

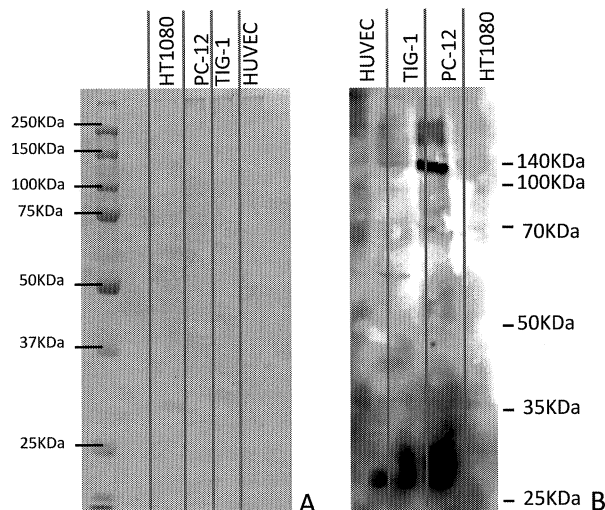


図6 各種培養細胞膜上のビオチン化CTX4と結合するタンパク質の検出

A: 各細胞の溶解液を電気泳動した後、CBB染色を行った。B: PVDF膜に各細胞の溶解液を転写し、ビオチン化CTX4 (1.3 μM) を反応させてアビジンにて検出した。

4. 考察

タイワンコブラ粗毒から細胞該マトリックスとヒト線維肉腫細胞 (HT-1080) との接着を阻害する因子を単離した。分子量及びN末端のアミノ酸配列からCTX4であることが明らかとなった。CTX4は腫瘍化した細胞とIV型コラーゲンとの接着を特異的に阻害した。特にラット副腎髄質褐色細胞 (PC-12) とIV型コラーゲンとの接着を強く阻害した。接着阻害活性を示さなかったCTX3とアミノ酸配列を比較した結果、28~31残基のアミノ酸 (Ser-Asn-Leu-Thr) が接着阻害活性に関係していると考えられた。CTX4には溶血作用があることが知られているが、細胞とIV型コラーゲンとの結合を阻害する活性があることは知られておらず、その作用機序は大変興味深い。ビオチン化したCTX4と結合する細胞膜タンパク質の分子量は、PC12由来細胞膜では25~35KDa、TIG-1由来細胞膜では25~30KDaであった。CTX4による接着阻害が確認できなかったHUVEC由来細胞膜では25KDaの分子量のタンパク質と結合することが確認できた。一方、CTX4による接着阻害を示すHT1080由来細胞膜では、CTX4と結合を示すタンパク質を確認することが出来なかった。これらタンパク質との結合がCTX4の示す、細胞接着阻害活性と関係しているか、現在検討中である。

タイワンコブラ粗毒由来のCTX5は、インテグリン $\alpha_v\beta_3$ との結合を阻害する事が報告されている。インテグリン $\alpha_v\beta_3$ はファイブロンネクチンあるいはフィブリンノーゲンの受容体であることが知られており、IV型コラーゲンの受容体ではないと考えられている。よってCTX4とCTX5の細胞接着阻害は異なる機構で起きていると考え

られる。腫瘍細胞の壊死を引き起こす CTX 3 は細胞膜表面上のリン脂質と相互作用することが報告されている (5)。CTX 3 とスフィンゴリン脂質複合体との X 線結晶構造解析も行われており、結合機構の詳細についての解析が進んでいる (5)。CTX 3 はスフィンゴリン脂質複合体と相互作用しつつ、細胞に穿孔を形成する事で細胞死をもたらすと考えられている。CTX4 には細胞死を誘導する活性があることは知られておらず、スフィンゴリン脂質複合体との相互作用の有無についても知られていない。

コブラ科の蛇毒に主に含まれている three-finger toxin ファミリータンパク質は神経細胞の神経伝達物質受容体に結合し、神経伝達を阻害することが知られている。タイドクハキコブラ由来の three-finger toxin ファミリータンパク質 α -cobratoxin (Cbtx) とアセチルコリンレセプター 構造類似体 acetylcholine-binding protein との複合体の X 線結晶構造解析から、Cbtx の 2 つ目のループに標的タンパク質の認識部位が存在する (6)。本研究からも、CTX4 の第 2 ループのアミノ酸残基が接着阻害活性に関与していることが示唆されており、three-finger toxin ファミリータンパク質の第 2 ループの機能的特徴であると考えられる。

ファイブロネクチンと細胞との結合を阻害する蛇毒タンパク質として、よく知られているのがディスインテグリンである。アルギニン (R) -グリシン (G) -アスパラギン酸 (D) からなる配列が接着阻害活性に関与することが明らかにされている (7)。ディスインテグリンの分子量は 10-20 kDa であり、本研究でヒメハブ粗毒に含まれる、ファイブロネクチンと細胞の結合を阻害するタンパク質のサイズは 30-100kDa と考えられることから、ディスインテグリンではない、新規なタンパク質であると考えられる。

CTX4 やヒメハブ中の新規細胞接着阻害因子による細胞接着阻害機構を研究することで、細胞外基質による細胞の増殖、分化や機能維持の制御機構の一端を明らかにし、腫瘍細胞などの特定の細胞の増殖や転移を制御するツールの開発を目指す。

参 考 文 献

- (1) Lewis, R. J., Garcia, M. L. : Therapeutic potential of venom peptides, *Nature Rev. Drug Discov.*, Vol. 2, (2003) pp.1790-802.
- (2) Chen, Y. H. *et al.* : Membrane disintegration and hemolysis of human erythrocytes by snake venom cardiotoxin (a membrane-disruptive polypeptide), *Biochem. Int.*, Vol. 8 (1984). pp. 329-338
- (3) Iwaguchi, T. *et al.* : Cytolytic activity of cytotoxin isolated from Indian cobra venom

against experimental tumor cells, *Biochem. Int.*, Vol. 10 (1985). pp. 343-349

- (4) Wu, P. L., *et al.* : Non-cytotoxic cobra cardiotoxin A5 binds to $\alpha(v)\beta3$ integrin and inhibits bone resorption. Identification of cardiotoxins as non-RGD integrin-binding proteins of the Ly-6 family, *J. Biol. Chem.*, Vol. 281 (2006). pp. 7937-7945
- (5) Wang, C.H. *et al.* : Glycosphingolipid-facilitated membrane insertion and internalization of cobra cardiotoxin. The sulfatide cardiotoxin complex structure in a membrane-like environment suggests a lipid-dependent cell-penetrating mechanism for membrane binding polypeptides., *J. Biol. Chem.*, Vol. 281 (2006). pp. 656-667
- (6) Bourne, Y. *et al.* : Crystal structure of a Cbtx-AChBP complex reveals essential interactions between snake α -neurotoxins and nicotinic receptors, *EMBO J.*, Vol. 24 (2005). pp. 1512-1522
- (7) Huang, T-F. *et al.* : A low molecular weight peptide inhibiting fibrinogen interaction with platelet receptors expressed on glycoprotein IIb/IIIa complex. *J. Biol. Chem.*, Vol. 262 (1987) . pp.16157-16163

オーバーレイネットワークによるアプリケーションレイヤ

リンクアグリゲーションの研究(2)

動的リンクアグリゲーションデータ分配制御方式

工学院大学工学部情報通信工学科 浅谷耕一

早稲田大学大学院国際情報通信学研究科 中里秀典

A Study on Overlay Network Link Aggregation on Application Layer

Koichi ASATANI Department of Computer Science and Communications, Kogakuin University

Hidenori Nakazato, Graduate School of Global Information and Telecommunications Studies, Waseda University

Abstract : The link aggregation is a technology that bundles multiple links on a single virtual links, enabling large-capacity data communications and faster transmission speed. In addition to faster transmission speed and large-capacity data communications, link aggregation also enables redundant communications. Several link aggregation schemes have been proposed, but these schemes utilize transport layer link aggregation. The authors proposed application level link aggregation and verified the feasibility by implementing link aggregation on Android terminals.

Appropriate data distribution ratio will give the maximum throughput of aggregated links. This paper proposes data distribution decision mechanism and verifies it by experiments.

1. はじめに

大容量なデータ通信，通信速度の高速化が可能になる技術として，リンクアグリゲーションが研究されている[1],[2]．リンクアグリゲーションとは，複数のリンクを束ねて1つの論理的なリンクとして使用する技術のことである．これにより，帯域幅の拡大を図ることができる．また，大容量なデータ通信，通信速度の高速化以外に，冗長性のある通信も可能となる．具体的には，経路で損失したパケットをもう一方の経路で再送することにより損失したパケットの保証が可能となる．リンクアグリゲーションは，様々な通信システムにおいて研究が行われている．既存のリンクアグリゲーションの研究では，トランスポートレイヤ以下においてリンクアグリゲーションを実現している．そのため，リンクアグリゲーションを前提としたシステム

構築が難しいという問題点がある．また，無線ネットワークと有線ネットワークのリンクアグリゲーションは未検討である．

筆者らは，オーバーレイネットワークに着目し，トランスポートレイヤ以下の変更を不要とし，導入を容易とするため，リンクアグリゲーションはアプリケーションレベルにおいて行った．[3],[4] リンクアグリゲーション方式のアーキテクチャ，アルゴリズム，動的データ転送制御について検討し，Android 端末及びLinux サーバにアプリケーションを実装し，通信実験を行った．

リンクアグリゲーションの効果を最大にするには，各リンクのスループットの比に最適なデータ比率で各リンクにデータを配分する必要がある．スループットは，電波強度，背景トラフィックなどにより動的に変動

する。

本報告では、リンク帯域の変動に適用した動的データ分配手法を提案し、実験により安定した高いスループットでのリンクアグリゲーション通信が可能なことを示す。

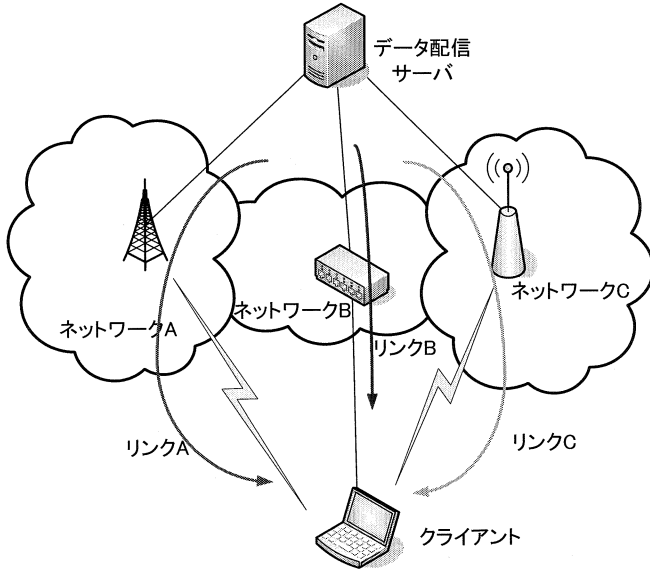


図 1. 提案方式のネットワーク構成例

2 関連研究

イーサネットにおけるリンクアグリゲーションに IEEE802.3ad がある[1]。また、無線システムによるリンクアグリゲーション MIMO(Multi-Input Multi-output) 環境を想定したマルチリンク伝送がある[2]。さらにトランスポート層におけるリンクアグリゲーションである M/TCP(Multi Path/Transmission Control Protocol)[5] やコグニティブ層におけるリンクアグリゲーション[6]などがある。しかしこれらの方式はトランスポート層以下で実装を行っているためシステムの導入が困難であるという問題点がある。また、無線ネットワークと有線ネットワークのリンクアグリゲーションは検討されていない[7]。

3 アプリケーションレベルにおけるリンクアグリゲーション方式の概要

3.1 提案方式の狙い

提案するオーバーレイネットワークによるリンクアグリゲーション手法はトランスポートレイヤ以下の変更が不要であるため導入が容易であることが特徴である。本方式ではユーザの利便性向上、スループットの向上を目指す。

①ユーザの利便性向上

ユーザが複雑な設定や手続きを踏むことなくリンクアグリゲーション通信を行えるようにする。ユーザは Web を閲覧した際に特定のリンクを選択することでリンクアグリゲーションを開始する。Web ページ上のリンクを選択するだけで自動的にアプリケーションが起動し、データのダウンロードが開始されるため、ユーザが特別な操作を行う必要はない。ユーザの利便性向上については新規接続時の処理にて検討を行う。

② スループット向上

使用可能な複数のリンクを活用し、より短い時間でデータのダウンロードを完了できることでユーザの満足度を向上する。

3.2 リンクアグリゲーション方式のアーキテクチャ

ネットワーク構成例を図 1 に示す。クライアントはネットワーク A,B,C へ接続できることとする。各ネットワークの基地局、ルータの上位に、データ配信サーバを設置し、各リンクへデータの分配、及び送信を行う。また、クライアントは複数の無線システムを利用するため、各アクセスポイントの通信エリアが重なるエリアにいることが前提となる。

アプリケーションレベルにおけるアグリゲーションの概念図を図 2 に示す。この方式ではアプリケーションレベルにおいて、サーバはデータの分配を、クライアントでは復元を行う。また、アプリケーションレベル以下においてコネクションは独立である。

この方式は、リンクアグリゲーション通信と単一リンク通信の切替えを行う動的リンク制御機能と、リンクアグリゲーション通信時に各リンクへのデータ分配を

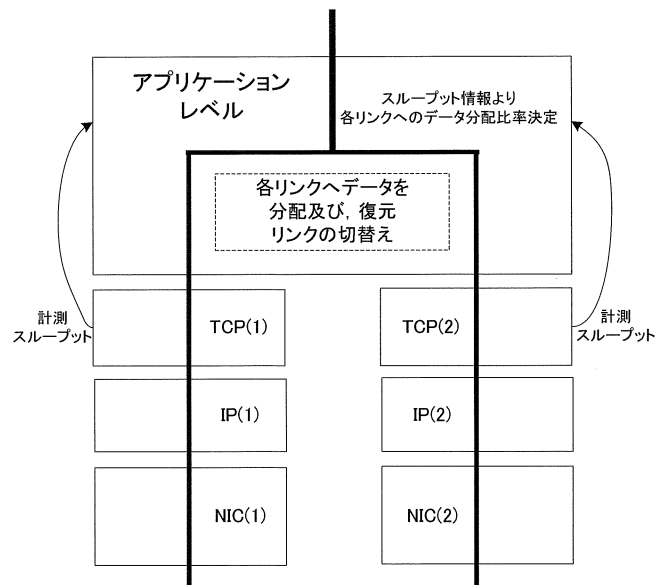


図 2. アプリケーションレベルにおけるリンクアグリゲーション

決定するスループットを指標としたデータ分配機能、帯域変動時にデータ分配比率を動的に変更する動的データ分配比率変更機能の3つの機能により構成する

3.3 動的リンク制御機能

クライアントは、新規接続時にテストデータを各リンクへ送信することによりスループットを測定し、それを指標として単一リンク通信を行うか、リンクアグリゲーション通信を行うか判断する。リンクアグリゲーション通信を行う場合は、各リンクへのデータ分配比率を決定し、データ配信サーバへ到達する。リンクアグリゲーション通信時のスループットである総合スループットを最大にするデータ分配比率は、各リンクのスループット比率よりクライアントが算出する。また、データ通信時に、通信に使用しているリンクのスループット変動を検知した場合、分配比率を動的に変更する。これにより、スループットが変動しても総合スループットは最大となる。また、総合スループットが単一リンク通信時の特性と同等以下となる場合、リンクアグリゲーション通信から単一リンク通信の切替えを行う。

通信継続時は、各リンクより受信したデータより各リンクのスループットを計測し、リンクアグリゲーション通信を継続するか、単一リンク通信に切替えるか判断する。単一リンク通信に切替え後、複数のネット

ワークに接続可能である場合は、再度テストデータを送信しスループットを計測し、リンクアグリゲーション通信へ切替えるか単一リンク通信を継続するか判断する。リンクアグリゲーション通信継続時に各リンクの帯域が変動したと判断した場合は、各リンクのスループットより再度データ分配比率を算出し、データ配信サーバへ到達する。

3.4 データ分配比率決定機能

提案方式ではデータ分配に用いる指標として、電波強度、スペクトル干渉、各リンクのスループット、RTTなどが挙げられる。各リンクへのデータ分配比率が決定したら、その分配比率データを双方のリンクでデータ配信サーバに送信する。これにより、冗長性のある分配比率決定の通知が可能となる。データ配信サーバが分配比率を把握すると、データ配信サーバにおいて受信したデータを分配比率に沿って各リンクへ分配する。クライアントにおいては各リンクから受信したパケットをデータ単位で復元及び、並び替える。

3.5 動的データ分配機能

通信継続時において帯域が変動した場合、動的にデータの分配比率変更する。クライアントにおいて各リンクからのデータ受信完了時間差が生じる。そこで、通信継続時において各リンクの実効帯域が変動し、閾値以上となる場合、データ分配比率を変更する。

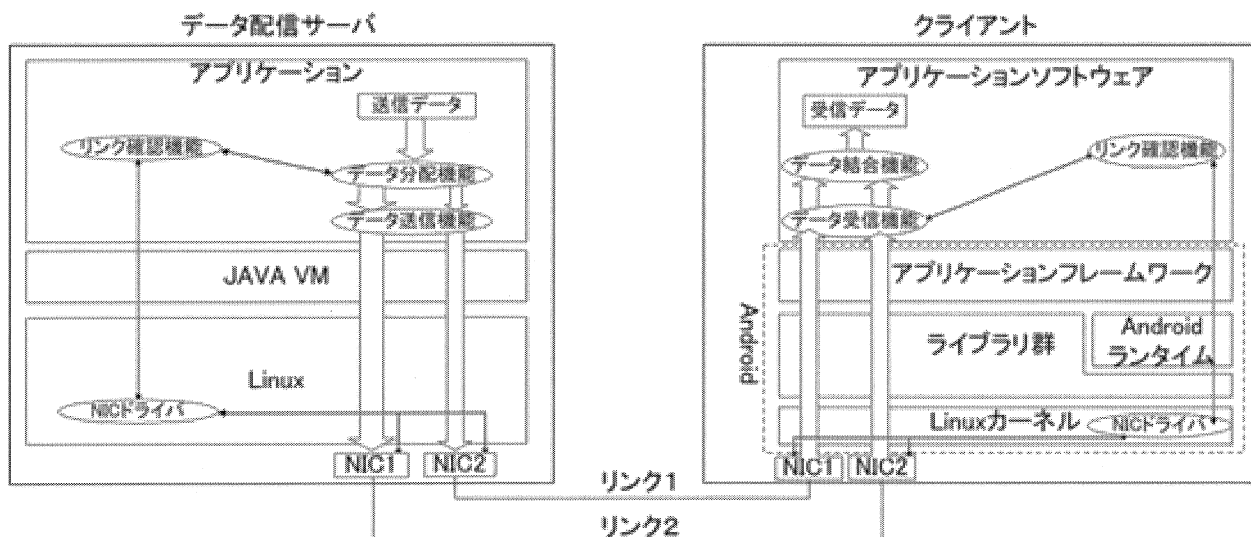


図 3. 実装システムアーキテクチャ

3.6 Android クライアントの実装

スマートフォンやタブレット端末などに向けた汎用的な OS である Android を搭載した端末に実装し、実現可能性を確認する。提案手法のアーキテクチャを図 3 に示す。

本報告では Windows 7 上で OS 仮想化ソフトである Virtualbox を動作させ、そのバーチャルマシンとして Android x86 を用いて実装を行った。

汎用的な方式を目指すため、OS やデバイスドライバの変更は行わないが、通信に使用するネットワークインターフェースの指定は OS が行う。そこでクライアントの実装では Android ランタイムを利用し、アプリケーションから Linux コマンドを発行することにより、アプリケーションから経路ごとに使用するネットワークデバイスを指定する。にデータ分配バッファを設け、データ分配比率に合わせデータ分配バッファに書き込むデータサイズを変更することでデータ分配を行う。また、データ分配バッファにデータを書き込む時、データにシーケンス番号を付加する。受信端末では、シーケンス番号を基に受信したデータの復元を行う。

3.7 動的データ分配制御方式

データ送信サーバは、各リンクごとのスループットによって次式によりデータ分配比率を算出するのが最適である。

$$\begin{aligned} & \text{当該リンクへのデータ分配比率} \\ &= (\text{当該リンクスループット}) \\ & \quad / (\text{各リンクスループットの総和}) \end{aligned}$$

帯域変動、背景トラフィック変動に伴いスループットも変動する。一定時間ごとに測定するスループットの変動に応じて上式によりデータ分配比率を決定する。

上式のスループットに代わりここでは一定時間ごとの受信データ量で動的にデータ分配比率を決定する手法を提案する。3 手法を対象として検討する。

手法 A は、各リンクの一定時間ごとのデータ受信量の比をデータ分配比率とする。

$$\begin{aligned} & \text{データ分配比率} \\ &= (\text{当該リンクで受信したデータ量}) \\ & \quad / (\text{各リンクで受信したデータ量の総和}) \end{aligned}$$

手法 B は帯域変動への追従と帯域の平均的なスループットに適用したデータ分配を行うために、過去 n 回の平均受信データ量を用いて分配比率を決定する。

$$\begin{aligned} & \text{データ分配比率} \\ &= (\text{当該リンクで受信した過去 } n \text{ 個の平均データ量}) \\ & \quad / (\text{各リンクで受信した過去 } n \text{ 個の平均データ量の総和}) \end{aligned}$$

手法 C は、単純平均ではなく、重みづけ平均を採用し、過去の履歴の反映度を調整して分配比率を決定する。

$$\begin{aligned} & \text{データ分配比率} \\ &= (\text{当該リンクで受信した過去 } n \text{ 個の重みづけ平均データ量}) \\ & \quad / (\text{各リンクで受信した過去 } n \text{ 個の重みづけ平均データ量の総和}) \end{aligned}$$

$$R_{k,n} = \sum \alpha_i R_{k,n-i}, \quad \sum \alpha_i = 1$$

ここで、 $R_{k,n}$ は次のデータ分配比率算出のためのリンク k の受信データ量、 α_i は重み係数、 R_{n-i} はデータ量算出時点の i 回前の受信データ量である。

4 実験評価

手法 A では分配比率間隔を 1 秒、3 秒、とし、手法 B、手法 C では、分配比率決定間隔 1 秒とした。

図 4 に示すネットワーク構成で実験評価した。実験に使用した機器を表 1 に示す。

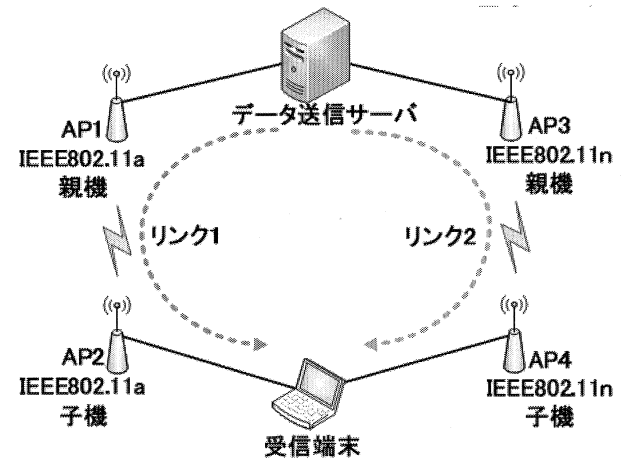


図 4. 動的データ分配方式実験ネットワーク構成

クライアント 表 1. 使用機器 データ送信サーバ

項目	クライアント	項目	データ送信サーバ
型番	DELL Vostro 3300	型番	DELL PowerEdge T400
CPU	Intel i5 M460	CPU	Intel Xeon X3420
仮想化ソフト	VirtualBox 4.1.6	OS	Ubuntu 11.10 (32bit)
クライアント OS	Windows 7 Home Premium	無線 LAN カード	BCM5722 (Fast Ethernet Controller)
クライアント OS	Android 2.2 x86	無線 LAN カード	BCM5722 (Fast Ethernet Controller)
無線 LAN カード	Realtek 883E	アクセスポイント	
無線 LAN カード	GW-C5Micro-C	AP1	WZR-HP-G301NH
無線 LAN カード	GW-L25Value-EZ	AP2	CJ-WL3000G1
無線 LAN カード	DW-531		

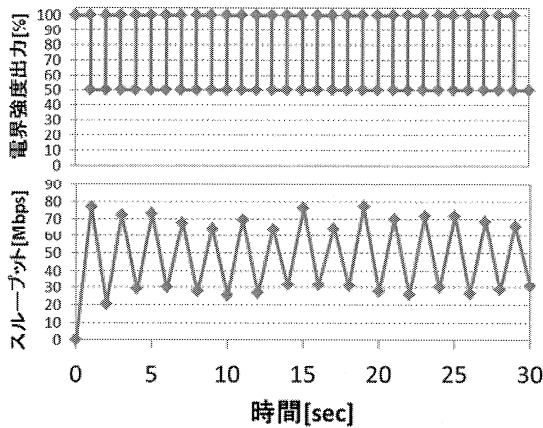


図 5. 電界強度変動パターン

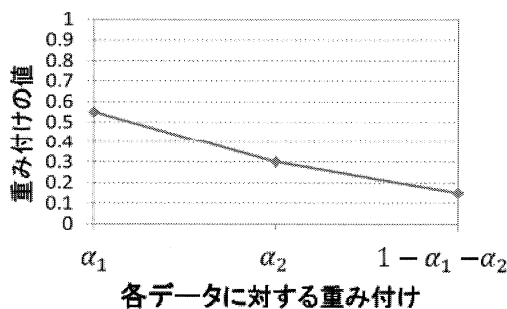


図 6 手法 C の重み関数

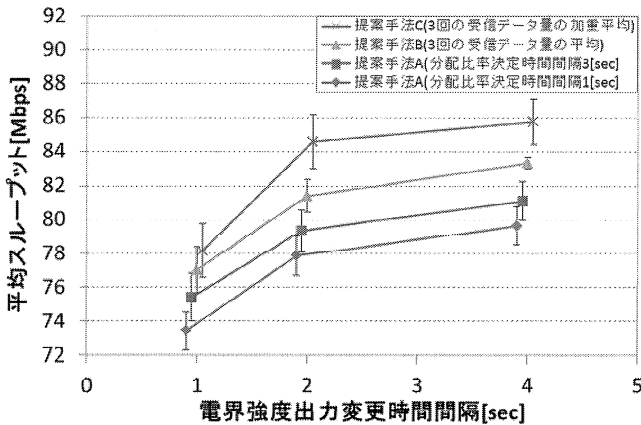


図 7 各手法の平均スループット

AP3 の電界強度の設定を変更することでリンク 2 の帯域を 1 秒間隔, 2 秒間隔, 4 秒間隔ごとに变化させた。(図 5)

3 手法の平均スループットを評価した。手法 B, 手法 C の平均する過去データの個数は 3 とした。手法 C の重み係数を図 6 に示す。

手法 A では、分配比率決定時間間隔を小さくすると追従性は向上するがスループットの変動に対して誤差

が大きくなる。分配比率決定時間間隔を大きくすると誤差は小さくなるが追従性は悪くなる。

手法 B では、分配比率間隔を小さくし、複数の過去データを平均することにより、追従性と誤差のバランスを取る。単純平均をとることにより過去データの古い履歴にも影響されるため追従性に劣る傾向がある。

手法 C では、手法 B と同様に、複数の過去データを用いるが、履歴に応じた異なる重みづけにより過去履歴の影響の程度を調整する。

各手法の平均スループットの実測結果を図 7 に示す。手法 C が最も高い平均スループットを示す。これは、手法 C により算出した受信データのスループットが最適なデータ分配比率に最も近いことを示す。

5 おわりに

本報告では、アプリケーションレベルリンクアグリゲーションにおいて、スループット変動に適応する動的データ分配制御手法の提案を行った。過去のデータ受信量を持ち、重みづけ平均データ量によりデータ分配比率を決定する手法を提案し、安定した高いスループットでのリンクアグリゲーション通信が可能であることを示した。

参考文献

- [1] Draft standard P802.3ad, Supplement to Carrier Sense Multiple Access with Collision Detection(CSMA/CD)Access Method and Physical Layer Specification: Link Aggregation, draft 3.0, Nov. 1999.
- [2] 長谷川洋平, 村瀬勉, “TCP の特性を考慮した複数経路通信方式の提案と評価,” 信学会技報, NS2003-328, pp.175-178, Mar. 2004.
- [3] T.Takiguchi, H. Masui, A. Hidaka, Y. Sugizaki, O. Mizuno, and K. Asatani, A New Application Level Link Aggregation and Its Implementation on Android Terminals, IEEE IWCMC 2012. Limassol Cyprus, Aug.28, 2012
- [4] T.Takiguchi, H. Masui, A. Hidaka, Y. Sugizaki, O. Mizuno, and K. Asatani, A New Application Level Link Aggregation and Its Implementation on Android Terminals, Wireless Communications and Mobile Computing Issues, Vol.12, Issue 18, pp. 1664-1671, 25 Dec 2012
- [5] 坂本大輔, 近藤勝裕, 村田裕昭, 六浦光一, 岡田博美, “マルチリンク無線 LAN における ML-ARQ 方式,” 信学技報, IN2004-273, pp. 149-152, Feb. 2005.
- [6] 石津健太郎, 黒田正博, 原田博史, “コグニティブ無線クラウド(4)—異種無線アダプティブリンクアグリゲーション技術—,” 信学技報, SR2006-73, pp43-50, May 2007.
- [7] 増井大, 杉崎義雄, 水野修, 浅谷耕一, “無線・有線ネットワーク上のオーバーレイネットワークによるリンクアグリゲーション方式,” 信学技報, CQ2010-81, pp81-86, Feb. 2011.

遠隔操作する災害対応ロボットに資する動的電波マップ生成に関する研究

工学院大学 工学部 機械システム工学科 羽田靖史

芝浦工業大学 工学部 通信工学科 行田弘一

Dynamic Generation of Electromagnetic Wave Strength Map for Tele-Operated Rescue Robot

Yasushi Hada, Department of Mechanical Systems Engineering, Kogakuin University

Koichi Gyoda, Department of Communications Engineering, Shibaura Institute of Technology

ABSTRACT : When the tele-operated mobile robot went over its communication range accidentally, the operation would be suspended. We named this kind of trouble “the distress of mobile robot”. In order to prevent the distress of mobile robot, it is necessary to estimate communications conditions around the robot by means of radio wave propagation simulation. The simulation consists of a combination of environmental shape measurement and radio propagation simulation using the shape. In this paper, we describe the trial simulation using simple ray-tracing method.

Key Words: tele-operated mobile robot, wireless communication, network

1. はじめに

東日本大震災以降、災害対応ロボットの実用化が改めてクローズアップされている。[1] 実用上の大きな技術課題の一つに、無線通信状況の推定、及び可視化がある。遠隔操作ロボットの制御は、ロボットに搭載されたカメラ等のセンサ情報を元に操作者が行動指示を送る、通信を介した広義のフィードバック系を構成する。そのため、通信が切れればロボットは停止し、それ以降の運用が不可能となる。ここではこれを「ロボットの遭難」と呼ぶ。(図1) 特に危険な被災地において人間の代替として運用される災害対応ロボットでは、遭難したロボットを回収することは本末転倒であるため、そのまま放置されることとなる。実際に、東京電力福島第一原子力発電所で用いられていた「クインス改」[2]「Survey Runner」[3]などはケーブル切断による通信途絶により遭難し、現在も発電所棟内で停止中である。[4,5] これらのロボットでは無線通信の不確実性を嫌い有線方式での通信を行っていたが、無線通信の信頼性がより向上すれば、重い通信ケーブルを用いる有線方式よりも利点が多いことは自明である。

また、信頼性がない無線通信を用いた運用では、操作者（消防隊員）は遭難を恐れて、本来運用可能であるはずの範囲までロボットを進めず、自らロボットの運用範囲を狭めてしまう。この原因は通信可能範囲を操作者がわからないからであり、状態の可視化が必要不可欠である。

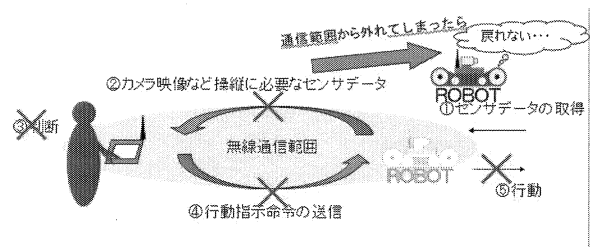


Fig.1 ロボットの遭難

2. 本研究の目的

本研究では、ロボットの遭難を防止するために、未知屋内環境における将来の通信状況をシミュレーションにより推定し操縦者に提示するシステムの開発を目的とする。これには未知環境の形状データ生成と電波伝搬のシ

シミュレーションが必要であるが、本稿では電波伝搬のシミュレーションに適した環境形状の生成と、それを用いたシミュレーションについて述べる。

3. 電波伝搬の性質

3.1 電波の諸性質

一般に、アンテナから放出された電波は広がりを持ち、各地点に伝搬した電力は電界強度として表される。真空中の電界強度は(1)式で減衰する。このような送受信機間に特別な障害がない電波は直接波と呼ばれ、直接波の減衰は自由伝搬損失と呼ばれる。なお、電界強度の単位は電力 $1\text{mW}=0\text{dBm}$ を基準としており、アンテナ利得は理想的な無指向性 (アイソトロピック) アンテナの利得を 0dBi とした単位である。

$$L = -20 \log \left(\frac{4\pi d}{\lambda} \right) + 10 \log(P) + G_t + G_r \quad (1)$$

L: 電界強度[dBm]

d: 送信アンテナからの距離[m]

λ : 波長[m]

P: 発信機の電力[mW]

G_t : 送信アンテナ利得: [dBi]

G_r : 受信アンテナ利得: [dBi]

また電波は、衝突などの伝搬媒質の変化により、反射、回折、透過、散乱などの諸性質を持つ。実際に受信機で受信される電界強度は、直接波のみならず、環境中で複雑な反射、回折、透過、散乱等を行って届いた複数の電界強度の和で表される。(図2)

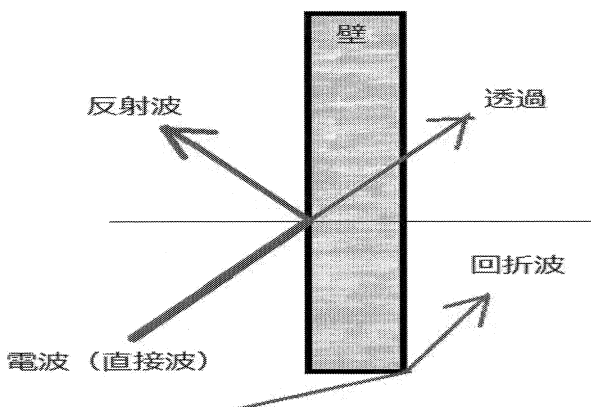


Fig.2 電波の諸性質

3.2 電波伝搬シミュレーション方法

送信された電波の振る舞いを計算し、各地点での電界強度をコンピュータ上で求めることを電波伝搬シミュレーションと呼ぶ。シミュレーション法にはレイトレース法、有限要素法[6]、時間領域差分法[7]、などが存在する。レイトレース法は電波を光束として模擬する方法であり、あまり正確ではないが高速に計算出来るものの、環境の

複雑さに応じて計算量が増大する。このような性質から、レイトレース法は放送波や携帯電話電波の受信可能エリアの簡易推定によく用いられる。一方、有限要素法や時間領域差分法ではより正確かつ細やかなシミュレーションが可能である。環境の複雑さは計算量に影響しないが、環境の広さや電波の波長に応じて計算量が膨大となるため、電子機器内部の電磁環境適合性 (EMC) 調査やアンテナ周辺の電磁場解析に用いられることが多い。

4. 電波シミュレーションに適した地図

無線操縦型移動ロボットの遭難を防ぐための電波伝搬シミュレーションに適した形状等の取得について述べる。なお、以下の議論ではロボットは水平平面内を走行するものと仮定する。

電波には反射、回折、透過等の性質があるため、無線通信状況は操作卓とロボットの位置関係、見通し距離、環境の形状や材質等に大きく依存し、その推定は難しい。一般オフィスなどで動作する案内ロボットや工場の搬送車であれば、事前に環境計測や問題対処を充分に行うことができる。対して、災害時に被災地で活動するロボットでは、環境は未知かつ危険であり、また速やかな対応も必要である。そのため、操作者はほとんど準備されないままロボットを運用する必要があり、また人間が環境計測を行うことも出来ない。すなわちロボット自身が動作中に環境情報を計測し、その計測データと電波伝搬モデルを元に環境の電波伝搬状況を推定する必要がある。しかし推定に必要な環境の形状情報、通過した地点での電波状況、材質、湿度等をロボットが総合的に取得する手法は存在しない。

特に、過去に環境の形状情報の取得については多くの研究がなされてきた。一般的には、移動ロボットに搭載されたレーザレンジファインダ (LRF) 等を用いて複数の地点から環境形状を繰り返し取得し、これらを重ね合わせる事で広範囲の形状情報を作成する。[8] しかし、一般的な LRF 形状情報で電波伝搬を考えるには以下の問題点がある。

①一般的な LRF のデータは各方向の最近傍物体までの距離を表す疎な点群であり (図3)、電波伝搬シミュレーションには適さない。例えば災害対応ロボットで主に使われる電波の波長は 12.5cm または 6cm であり、従来技術で作成された形状情報でシミュレーションを行っても容易に壁 (を表すデータ) を通過してしまう。(図4、図6)

②他のセンサと同様に LRF のデータには誤差があり、たとえ滑らかな壁面を計測しても、取得した形状情報には数ミリの凹凸が生じる。この凹凸は小さいためロボットの走行には問題が少ないが、電波伝搬シミュレーションには大きな誤差を生じる原因となる。(図5、6)

③複数計測データを重ね合わせて大域形状情報を生成すると、主に計測地点座標の累積誤差等により、地図に歪みが生じる。電波の伝搬には直進性があるため、地図の歪みは見通しや反射点の推定に大きく影響してしまう。

以上の問題点により、電波伝搬シミュレーションに適した、より密で歪みや凹凸のない形状情報を作成可能な手法を開発する必要がある。

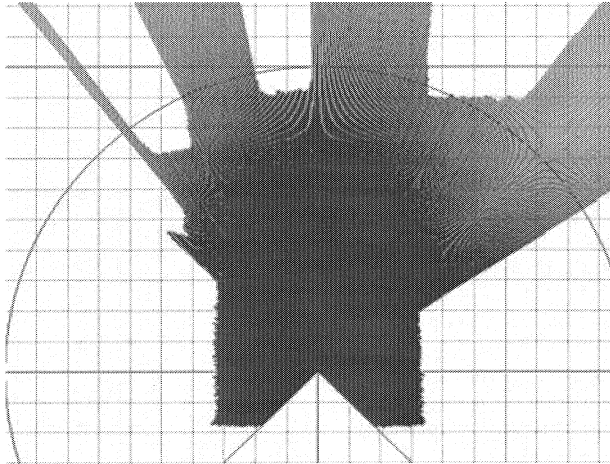


Fig.3 LRF を用いた点群地図

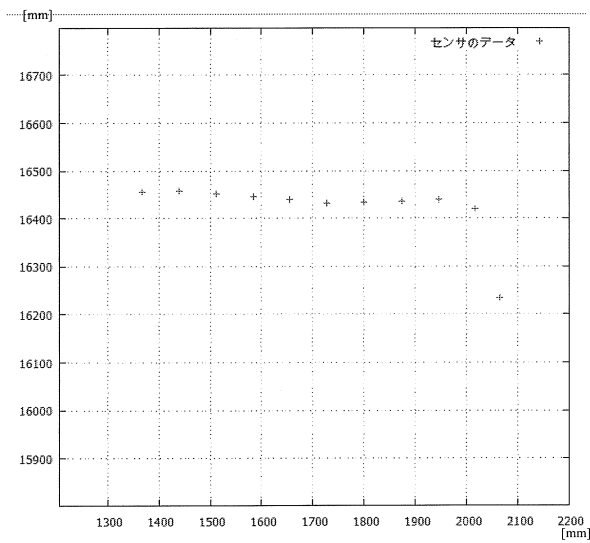


Fig.4 LRF 点群の拡大図 (1 スキャン)

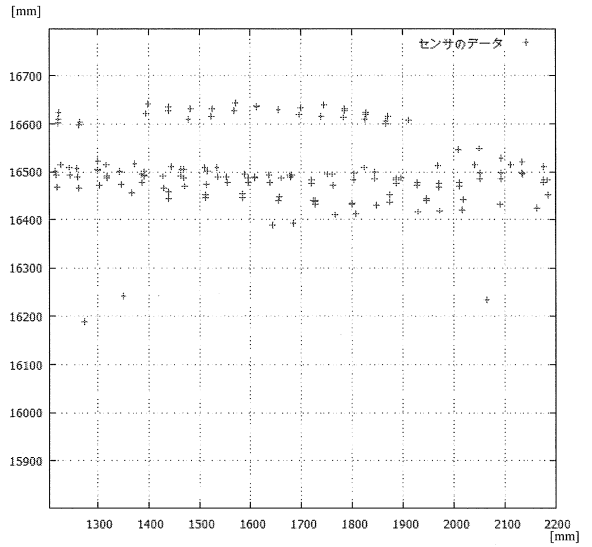


Fig.5 LRF 点群の拡大図 (複数スキャン)

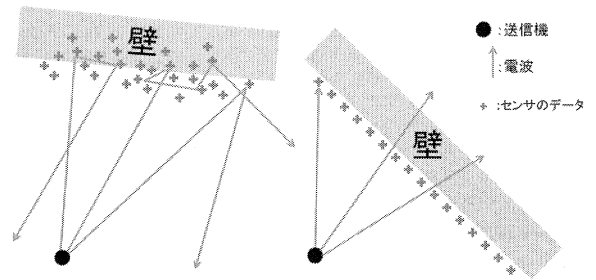


Fig.6 壁を表す点群に電波が乱反射または透過するイメージ

5. 地図生成手法

5.1 点群の直線化

地図の生成は、LRFデータの直線化を行った上で重ね合わせを行う。まず、1回のLRFの計測で測定された点群を、隣接した点の距離値を用いてグループ化し、各グループについてRMA直線回帰を用いて直線化する。点群データを (X_k, Y_k) とおくとこれらに当てはまる回帰式 $Y=ax+b$ の係数は(2)(3)で求められる。その際、グループ内の点数が少ない物は除外する。

$$a = \pm \frac{\sqrt{\sum_{k=1}^n y_k^2 - \frac{(\sum_{k=1}^n y_k)^2}{n}}}{\sqrt{\sum_{k=1}^n x_k^2 - \frac{(\sum_{k=1}^n x_k)^2}{n}}} \quad (2)$$

$$b = \left(\frac{\sum_{k=1}^n y_k}{n} \right) - \left(\pm \frac{\sqrt{\sum_{k=1}^n y_k^2 - \frac{(\sum_{k=1}^n y_k)^2}{n}}}{\sqrt{\sum_{k=1}^n x_k^2 - \frac{(\sum_{k=1}^n x_k)^2}{n}}} \right) \quad (3)$$

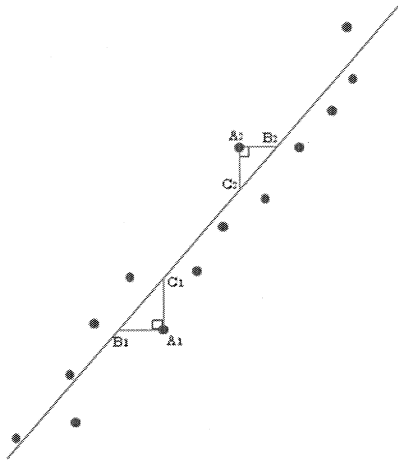


Fig.7 RMA 直線回帰

しかしこのままでは一つの点グループの中に複数の壁面を表す点群が入っており、1本の直線ではうまく当てはめることはできない。(図8)そこで直線当てはめの妥当性を検証するために、グループ内の各点から直線までの距離の分散を求め、これが閾値以上である場合には、その極値でグループを切断し再び直線当てはめを行う。(図9)

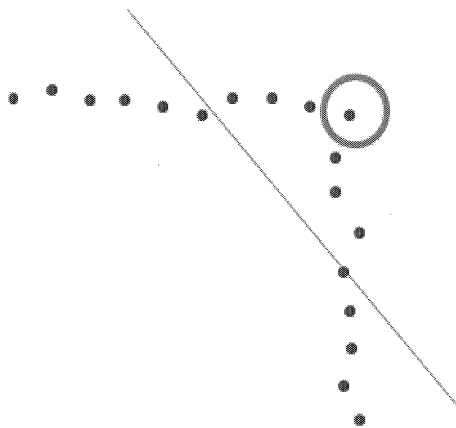


Fig.8 誤った直線当てはめと距離差分の極値点

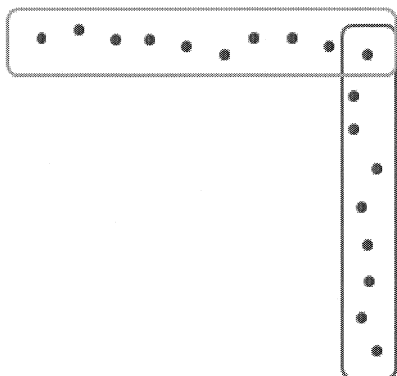


Fig.9 極値点で分割し再グループ化

5. 2 複数のデータの重ね合わせ

複数の直線で構成された形状データの重ね合わせを行う。重ね合わせにはICPの一手法であるLineMatchアルゴリズム[8]を用いる。ICP[参考文献]とは、SLAMを行う際に用いられる方法の1つで、2つのデータを重ね合わせる際に用いられる手法である。図10の矢印の様に、2つのデータの各点が最も距離の近い点を見つけ、全てのデータの距離(矢印)の合計が最小になるように移動させることで、図10の様にセンサの座標がずれたものを重ね合わせようとしてもうまく合成することが出来るようになる。

スキャンマッチングとは、センサから送られてくるデータをその都度重ね合わせていき、重ね合わせの際にデータの移動量からロボットの移動量を推定する方法である。本研究では、データの差(矢印の長さ)の平均距離を計算し、その分ずらしていき、複数回繰り返すことにより合成する。

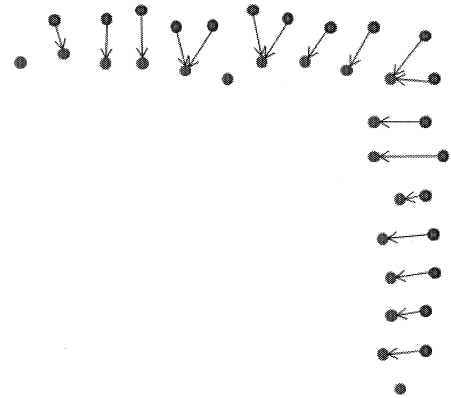


Fig.10 ICPの基本概念図

6. 地図生成実験

6. 1 電波伝搬シミュレーション方法

データを取得するセンサとして、北陽電機社製測域センサ UTM-30LX (図 11) を使用する。このセンサは、図 12 の様な二次元平面上の近傍の物体までの距離を270度の範囲で測定することができ、USB を介して PC などに計測したデータを送ることが出来る。仕様を表 1 に示す。

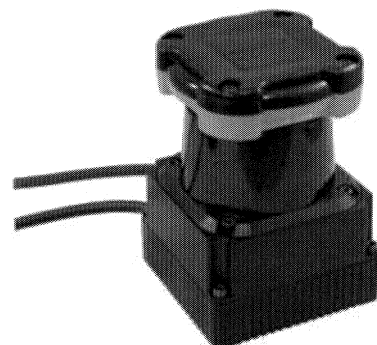


Fig.11 測域センサ UTM-30LX

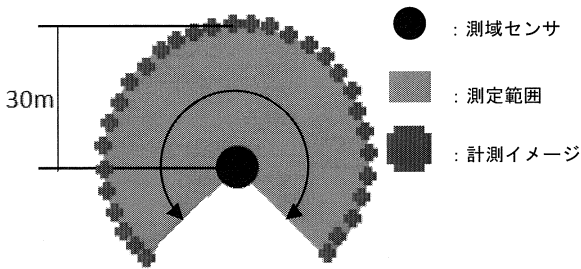


Fig.12 UTM-30LX のセンサ範囲

Table1 測域センサ UTM-30LX 諸元

電源電圧	DC12V±10%
消費電流	700mA 以下(起動時は約 1A)
測定範囲	定格 : 0.1~30m(白色紙) 角度 : 270°
測距精度	0.1~10m : ±30mm 10~30m : ±50mm
角度分解能	ステップ角 : 0.25°
走査時間	25ms/scan
インタフェース	USB2.0(Full Speed) 同期出力(NPN オープンコレクタ DC30V 30mA 以下)
使用周囲照度	10000lx
使用周囲温度	-10~+50℃(保存時-25~+75℃)
使用周囲湿度	85%RH 以下(ただし、結露・氷結しないこと)
質量	約 370g(ケーブル含む)
寸法	W60 × D60 × H87

6. 2 実験環境

シミュレーション及び実測環境は工学院大学新宿校舎 1 6 階ラウンジ周辺である。図面を図 13 に示す。一般的なオフィス環境と同様に床、天井、壁面及び什器は平面で構成されている。

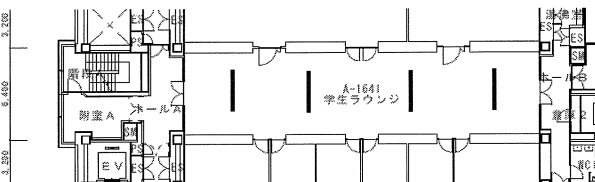


Fig.13 測域センサ UTM-30LX

6. 3 グループ化と直線当てはめ結果

測域センサを用いて環境を 1 度スキャンした結果を図 14 に、複数個所でスキャンしたものを同時にプロットした結果を図 15 に、さらにその一部を拡大したグラフを図 16 に示す。1 度スキャンしただけでは、一部分の壁面しかスキャンできていないが、位置を変えて複数回スキャンを行うと概ねラウンジ全体の形状が計測できている。しかし、センサ誤差や設置したセンサの位置の誤差などにより、それらを重ねた結果は均一な直線上には載っていないことがわかる。

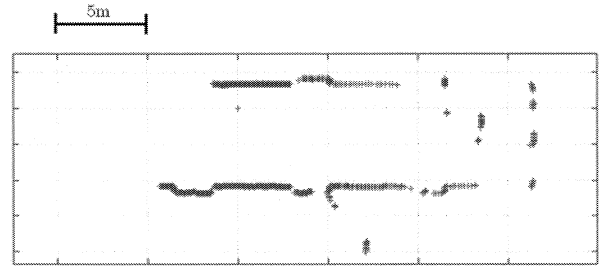


Fig.14 対象環境を 1 回スキャンした結果

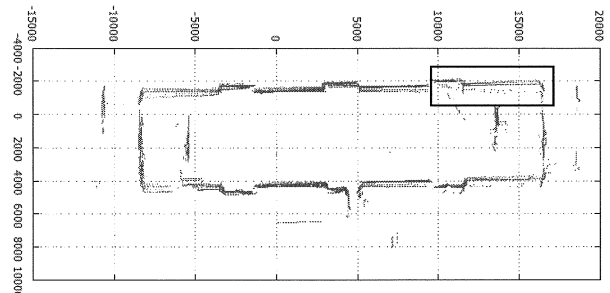


Fig.15 対象環境を複数回スキャンした結果の合成

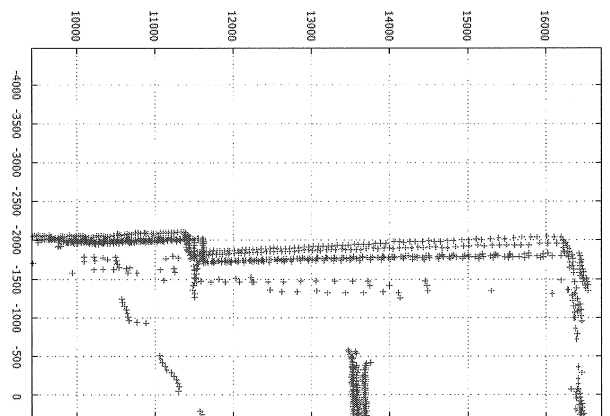


Fig.16 複数回スキャンした結果 (拡大図)

ここで 5. 1 章で述べたアルゴリズムを用いることにより、直線フィッティングを行った結果を図 18 に示す。フィッティング前の点群データ (図 17) が分割され、3 つの直線に分割できている。また、このアルゴリズムを 1 回のスキャンデータに対して行った結果を図 19 に示す。長い線分部分に関してはおおむね良くフィッティングができているが、短く計測された線分部分については角度の誤差が大きいことが分かる。これについては今後の検討課題である。

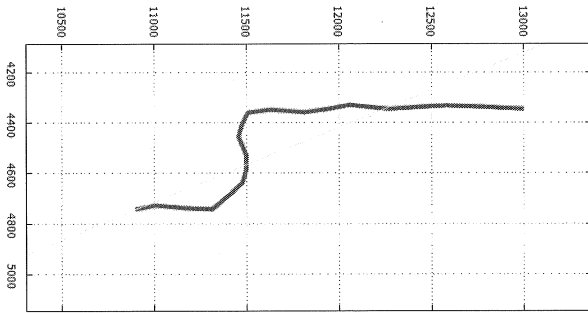


Fig.17 元の点群データを繋いだもの (一部)

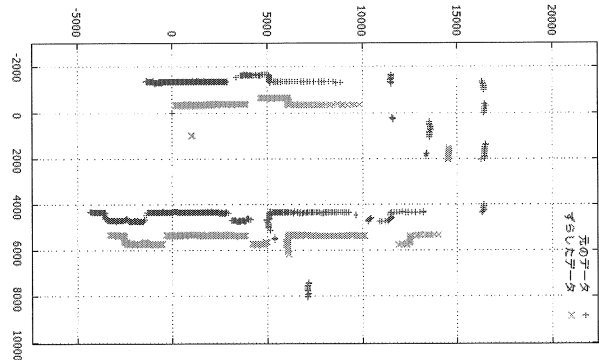


Fig.20 点群データの重ね合わせ前データ

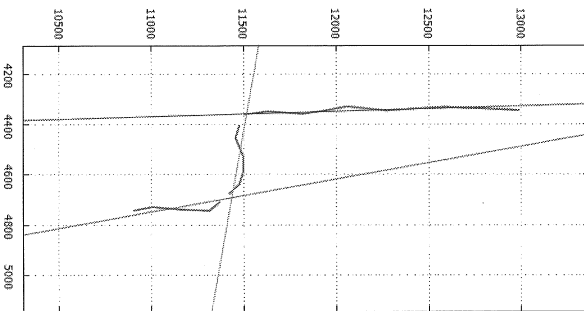


Fig.18 点群に直線化を行った結果 (一部)

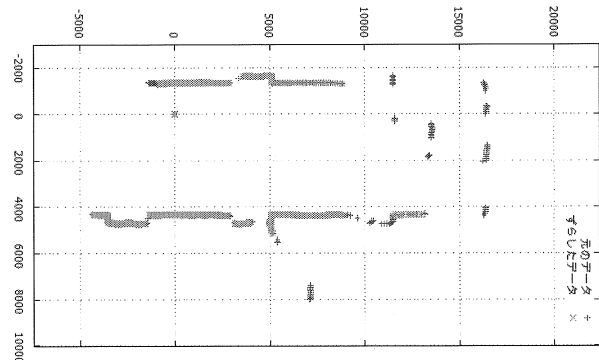


Fig.21 点群データの重ね合わせ結果

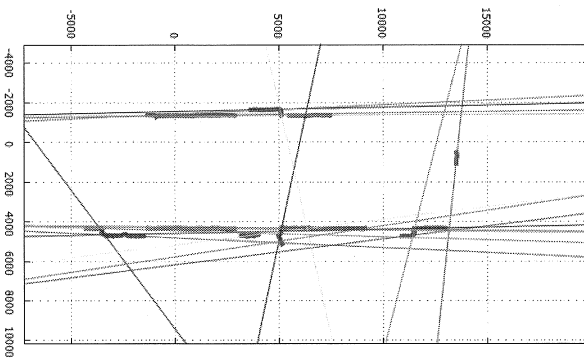


Fig.19 点群に直線化を行った結果 (全体)

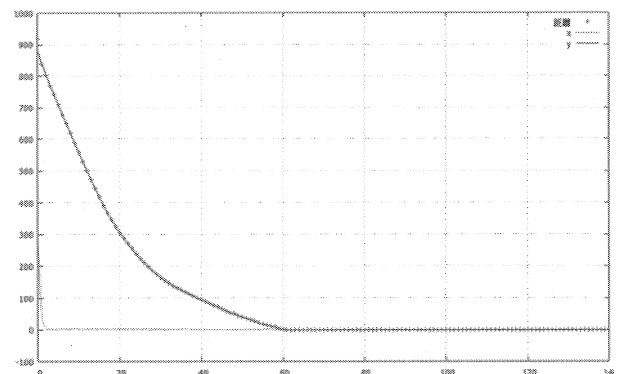


Fig.22 2つの点群の差分が漸近する様子

6. 4 重ね合わせ結果

5. 2章で説明したアルゴリズムを用い、2つの点群データの重ね合わせを行った。2つの点群は局所的には異なるが、おおむね近い値のものであるが、図20の元データは故意に約1mずらしたものである。重ね合わせを行った結果、図20のように2つのデータはほぼ重ね合わせることができた。まだ前章の直線化と併せて利用することはできていないが、次年度には環境全体の形状地図が作成できると考えている。

7. 直接波のみの電界強度シミュレーション

7. 1 実験環境

研究の第一段階として、送信機(無線LANアクセスポイント)から伝搬した電波のうち、直接波のみの伝搬シミュレーションを実装した。このプログラムは2次元配列とした大域地図を用いて送信機と各地点との見通しの有無を確認し見通しがある場合について(3.1)式を用いて電界強度を求めるものである。環境は前章と同様、工学院大学新宿キャンパス16階である。

7. 2 実験結果

地図を用いたシミュレーション結果を図23に示す。こ

の地図は自動生成した物ではなく人力で CAD 図面から作成したものである。シミュレーション条件は $P=200\text{mW}$, $\lambda=0.125\text{m}$, $G_t=1\text{dBi}$, $G_r=1\text{dBi}$ としている。

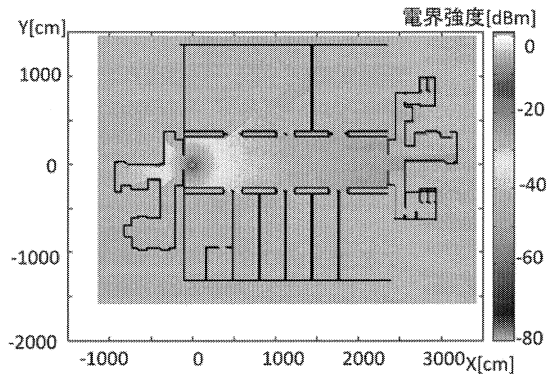


Fig.23 電波伝搬シミュレーション結果

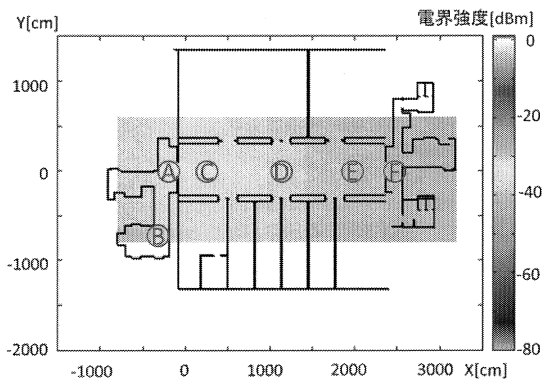


Fig.24 実測結果

Table2 実測値とシミュレーション値の比較

地点	推定値[dBm]	実測値[dBm]
A	-21	-32
B	結果無し	-40
C	-21	-30
D	-36	-39
E	-41	-43
F	-43	-44

またこの結果を検証するために同一条件で実機計測を行った結果を図 24 に、そのうち代表的な数カ所についての結果の比較を表 2 に示す。シミュレーションによる推定値と実測値を比較すると、第一に見通しがある部分については概ね良く推定出来ているものの、全体的にシミュレーションによる推定値の方が実測値よりも高くなっており、その傾向は送信機近傍において顕著になっている。この誤差の理由は送信機の出力の誤差、送信機内及び受信機内の減衰等が考えられる。ただし、本研究の目的は通信可能範囲の判別であるから、近傍の誤差はそれほど問題とならないと考えている。

次に、見通しの効かない箇所においては、シミュレーションでは電界強度が計算出来ていない点が大きく異なる。これはシミュレーションが反射・回折・透過等の電

波の性質を全く考慮していないことが原因である。この点については通信可能範囲の判別に大きく関わるため、上述の電波の諸性質をシミュレーション上に実装する必要である。

8. 今後の予定

本稿で述べた電波伝搬シミュレーションに適した環境地図作成手法については未だ一部が実装出来ていないため、実際の電波伝搬シミュレーションは行えていない。実際の電波シミュレーションを行った際の結果や問題点については次年度報告する。また、まず簡単な直接波シミュレーションを行ったため、見通しの効かないエリアで実測値と大きく異なる結果が得られたが、今後は他の諸性質を実装しより正確なレイトレースシミュレーションを行う。また、時間領域差分法でもシミュレーション実装を行っているが、こちらは別の機会に報告する。また、本論文では触れなかったが、物理層の電界強度を推定しただけではアプリケーション層の通信状況を推定したことはない。そのため、今後は電界強度の推定と併せて、その際の通信スループットや通信エラー率を合わせて推定する必要がある。

参考文献

- (1) 浅間, "原発事故対応のための遠隔操作機器の開発と運用", ロボット(206), pp.33-38, 2012.
- (2) Keiji Nagatani, et. Al., "Redesign of rescue mobile robot Quince -Toward emergency response to the nuclear accident at Fukushima Daiichi Nuclear Power Station on March 2011-", Proc. of the 2011 IEEE SSR, pp. 13-18, 2011.
- (3) “福島第一原発の復旧支援を行う探査ロボットを東京電力に貸与,” トピー工業株式会社ニュースリリース, <http://www.topy.co.jp/release/archives/2012/03/06/entry502.html>
- (4) “東電、原子炉建屋内で停止したクインスの扱いは未だに検討中”, 日刊工業新聞社 Robonable, <http://www.robable.jp/news/2011/10/quince-1028.html>
- (5) “トピー工業のロボットは回収困難、無線通信で救助できず、原発事故調査”, 日刊工業新聞社 Robonable, <http://www.robable.jp/news/2012/07/topy-0713.html>
- (6) 小暮他, “電磁界シミュレータで学ぶ高周波の世界”, CQ 出版社, ISBN978-4-7898-3022-5, 2010.
- (7) 宇野, “FDTD 法による電磁界およびアンテナ解析”, コロナ社, ISBN978-4-339-00689-6, 1998.
- (8) J.S. Gutmann, et. Al., "Fast, Accurate, and Robust Self-Localization in Polygonal Environments," Proc. of IROS'99, pp.1412-1419, 1999.

放射性物質の回収とリン酸塩ガラス異常現象を利用した長期安定的固定化

工学院大学 工学部 環境エネルギー化学科 大倉利典

工学院大学 工学部 環境エネルギー化学科 吉田直哉

東京大学 先端科学技術研究センター 渡部俊也

Recovery of radioactive substances and long-term stable immobilization using phosphate glass anomaly

Toshinori Okura, Department of Environmental and Energy Chemistry,
Faculty of Engineering, Kogakuin University

Naoya Yoshida, Department of Environmental and Energy Chemistry,
Faculty of Engineering, Kogakuin University

Toshiya Watanabe, Research Center for Advanced Science and Technology,
The University of Tokyo

ABSTRACT: Radioactive substances leaked by an accident of the nuclear power plant which occurred in March in 2011. Techniques for recovering the radioactive substances have been required. We studied adsorption methods as a technique of collection, and vitrification methods of iodine for safekeeping. In this study, Iodine-adsorption on magnesium compounds was evaluated, and fixation of iodine into glass was tried. The resultant Iodine-adsorbed magnesium compounds could be vitrified into phosphate glass.

1. はじめに

原子力発電所から発生した使用済燃料には、再び燃料として使用できるウランやプルトニウムが含まれている。これらの元素を発電用原子炉で再利用するための使用済燃料再処理工程で、高レベル放射性廃液（以下、高レベル廃液）や低レベルの放射性液体・固体廃棄物が発生する。また、再処理施設で使用済燃料からウランやプルトニウムを分離・回収した後に残る、核分裂生成物を主成分とする廃棄物で放射能濃度が高い廃棄物のことを高レベル放射性廃棄物と言う。

高レベル放射性廃棄物は、低レベル放射性廃棄物に比べてその発生量自体は少量であるが、放射線の管理に注意が必要な半減期の長い核種も比較的多く含まれているため、長期間にわたり、人間環境から隔離する必要がある。このため、高レベル放射性廃棄物は、ガラスと混ぜて溶かし、「キャニスター」と呼ばれるステンレス製の容器に注入したあと、冷やして固めるという方針が採られており、この状態のものを「ガラス固化体」と言う。このガラス固化体は崩壊熱を出すため、冷却期間として30～50年間一時貯蔵する。30～50年間冷却（空冷）するこ

とにより、発熱量は減少し、安全な処分ができるようになる。そして最終的には地下300メートルより深い安定な地層中に処分される。現在はガラス固化体が450℃以下の状態になったら地層処分が可能となっている。この処分形態では、ガラス固化体に到達できる液体は水だけであると考えられ、たとえ水が固化体に到達し、核種が水に浸出したとしても、人工バリア、天然バリア中の核種の透過速度が極めて遅いため、人間環境へ漏出するまでの極めて長い期間に放射能はすべて無くなると考えられている。

しかし、2011年に発生した福島原発事故によって、今まで核燃料サイクル内では重要視されてこなかった、ヨウ素、セシウム、ストロンチウム等の放射性同位体が発生し、大気や土壌、海、河川などに飛散した。これにより新たな問題として、これらの核種の処理に関する技術の不足が明らかとなった。問題点は大きく分けて二つの段階からなる。初めの段階は、飛散して希薄な放射性物質を効率よく回収することであり、次の段階はそれを安全に長期間保管することである。この問題の解決法として現在様々な研究が行われている。

1. 1 本研究の目的

報告者らは、模擬放射性廃棄物のガラス固化体について、リン酸塩ガラスを用いた研究を行ってきた。その結果、現在、放射性廃棄物ガラス固化体に用いられているホウケイ酸塩ガラスの 25mass% を大きく超える模擬廃棄物含有率 45mass% のガラス固化体を作製することに成功した¹⁻³⁾。また、放射性ヨウ素をターゲットとし、マグネシウム化合物によるヨウ素の吸着を行ってきた。これらの先行研究を踏まえ、放射性物質の回収から処理までの一連の技術の確立のために、酸化マグネシウムにより吸着したヨウ素 - マグネシウム化合物とリン酸塩ガラスを用いたガラス固化体の作製を目指した。

1. 2 放射性物質

1. 2. 1 放射性ヨウ素

核分裂によって生成するヨウ素の放射線同位体（半減期）には、¹²⁹I(16×10⁵y)、¹³¹I(8.05d)、¹³²I(2.3h)、¹³³I(22.4h)、¹³⁴I(53m)、¹³⁵I(6.7h)、¹³⁶I(86s) など、安定同位体も含め 24 種の同位体が存在する。核実験や原子炉事故時に検出されるのは、¹³¹I、¹³²I、¹³³I などであり、半減期が他の同位体と比べ格段に長い ¹²⁹I も原子炉中で作られるが、上に述べた 3 種類の放射性ヨウ素に比べ、格段に少ないので検出されにくい。しかし、使用済み核燃料を長期保存して半減期の短いヨウ素が半減すると、主に観測される。

原子炉事故の際に最初に検出されるのは、気体か、気体状になりやすい放射性元素であり、放射性の希ガス（クリプトン、キセノン）やヨウ素がこれに相当する。希ガスは安定で化学反応しないため、人体に蓄積されることはなく、大気中に拡散し、希薄となっていく。そして半減期に従い放射機能を失っていくため、人体に与える影響は極めて小さい。一方、放射性ヨウ素は呼吸や食べ物を通じて体内に入り、血中に移行する。血中に入ったヨウ素の 10~30% は甲状腺に蓄積されるが、その割合は、放射性でないヨウ素の採取量に左右される。通常人体には 15~20mg のヨウ素が含まれており、その 70~80% は甲状腺に存在する。甲状腺ではタンパク質と結合し、甲状腺ホルモンとして生理的に重要な動きを担う。ヨウ素の必要量は成人で 1 日当たり 100~200 μ g 程度と言われている。

1. 3 高レベル放射性廃棄物

自然界に鉱物資源の一つとして存在するウランは、核分裂しにくいウラン、いわゆる燃えにくいウラン（ウラン 238）がほとんどを占めるが、その中に 0.7% 程度、核分裂しやすいウラン、いわゆる燃えやすいウラン（ウラン 235）が含まれている。通常、原子力発電（軽水炉発電）は、この燃えやすいウランを 3~5% 濃縮したものを燃料とし、核分裂の連鎖反応を持続的に起こさせ、発生するエネルギーを電気に変換して利用するものである。

発電後の燃料（使用済み燃料）には、核反応の結果生

成した新たな物質が含まれているが、この中には、放射能の極めて高い放射性物質や半減期が極めて長い放射性物質が含まれる。たとえば、燃えやすいウランを 3% 含む、燃えにくいウランを 97% 含む燃料を発電に利用すると、使用済み燃料中には、燃え残りの燃えやすいウランが約 1%、燃えにくいウランが約 95%、新たに生成したプルトニウムが約 1% 含まれている。使用済み燃料を再処理することにより、これらを分離・回収し、リサイクル利用する。それに加えて、新たに生成したその他の放射性物質が約 3% 含まれているものは、放射能が極めて高い核分裂生成物が含まれているため、化学的に安定な形態に処理して、高レベル放射性廃棄物として安全に処理している。具体的には、現在、再処理工場ではガラスと混ぜて安定化し、ステンレス製容器の中に固めた、いわゆるガラス固化体としている。

ガラス固化体として安定化処理された高レベル放射性廃棄物は、当初は放射能が高く発熱量も高いが、30 年から 50 年程度貯蔵管理することにより、地下深い地層中に合理的に処分することが可能な発熱量となる。また、放射能の高い大部分の放射性物質は半減期が比較的短いため、数百年の間に急速に減少する。

しかしながら、高レベル放射性廃棄物は、量は多くないものの、半減期が数百年以上の長半減期核種を含むため、原子力発電所の運転から発生する低レベル放射性物質と違って、長期にわたって放射性物質であり続ける特徴がある。

使用済み燃料の再処理によって 1MTU (metric ton uranium) あたり 0.5~1.0m³ の高レベル廃液が発生する。廃液は硝酸溶液で、セシウム、ストロンチウム等の核分裂生成物 (FP)、回収残さのウラン、プルトニウムやネプチニウム、アメリシウム等のアクチノイド元素、鉄などの腐食性生物および再処理工程で添加するナトリウム等の試薬が含まれている。

1. 3. 1 処理・保管方法

高レベル放射性廃棄物は、安定な形態にガラス固化した後、30 年から 50 年程度冷却のための貯蔵を行い、その後搬出し、地下深い地層に中にするのが日本の基本的な方針である。地下深部は、地上に比べて地震や台風などの自然現象による影響が少なく、人間の活動の影響が及びにくいことから、高レベル廃棄物と人間の生活環境の間に『十分な距離』を保つことができる。また、地下深部の地下水は金属を腐食させにくく、ものを溶かすこみにくいという特徴があり、仮にガラス固化体中の放射性物質が地層中に溶出したとしても、地下深部は地上に比べて物質の動きがゆっくりしているため、人間の生活環境に至るまでに放射能が減衰するための時間を稼ぐことができる。このような地下深部の能力は人間の関与なしに自然に発揮されるものであることから、地下深部は高レベル放射線廃棄物の処分に対して十分に適切な場所であると考えられている。

1. 4 放射性物質の回収

原発事故によって発生したヨウ素、セシウム、ストロンチウム等の放射性同位体は、広範囲に飛散しているため、高レベル放射性廃棄物と異なり、希薄な物質を回収し、濃縮させることが処理に必要な条件の一つとなっている。現在、飛散した放射性物質の回収には様々な方法が検討されている。例としてフェロシアン化鉄を用いた放射性セシウムの回収や、ゼオライトのかご状構造を利用した放射性セシウム、放射性ストロンチウム、放射性ヨウ素の回収などが挙げられる。しかし放射性物質を吸着したのち、最終処分を行う技術の不足が指摘されており、実際に吸着した物質を保管する場所が不足する問題も起きている。よって放射性物質の除染には吸着・回収に終わらず、最終処理までを一連のプロセスで行える必要性がある。

1. 5 ガラス固化体について

1. 5. 1 ガラス固化体の特徴

使用済み核燃料の再処理工程によって発生する放射能レベルの高い硝酸廃液や固体廃棄物（以下、高レベル廃棄物：約 10^7GBq/m^3 ）は飛散や分離しやすく、収納容器を腐食させるため、安定な媒体中に固化する必要がある。

この廃棄物を蒸発、濃縮することで減容し、ホウケイ酸塩ガラスと固化させたものがガラス固化体である。高

レベル放射性廃棄物の固化については、色々な方式が検討されたが、ガラスによる固化は、ガラス固化体の化学的安定性、製造や取り扱いの容易さ、製造コストの観点から優れていると考えられており、ほぼすべての国で採用されている固化方式である。

日本では、原子力発電所の使用済み核燃料再処理工程で発生する高レベル放射性廃棄物がガラス固化の対象であり、2007年3月の時点で、日本国内で約1550本のガラス固化体が貯蔵保管されている。

ガラス固化体は、高レベル放射性廃棄物に SiO_2 、 B_2O_3 を主成分とするガラス原料を混合し、 1250°C で加熱溶融した後、急冷することにより作製される。そのため、廃棄物中の核分裂生成物元素、アクチノイド元素、その他の廃棄物成分元素は、ガラスネットワーク構造中に取り込まれ固定化される。日本のガラス固化体の諸物性の一例を表1に示す。

ガラスの原料組成、廃棄物含有率などは、ガラス固化体の溶融性、熱的安定性、化学的耐久性、照射効果などの廃棄物管理に関連する特性評価をもとに設定されている。廃棄物含有率（酸化物換算）は15～35wt%程度であり、ガラスの溶融方法として、日本、アメリカでは液体供給式直接電型セラミックメルト法を使用している。一方、フランス、イギリスでは廃液仮焼・誘導加熱金属メルト法が使用されている。

表1 日本のガラス固化体の諸物性

ガラス固化体の物性	条件	測定値
密度($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$)	室温	2.74×10^3
熱膨張係数($\times 10^{-7} \text{K}^{-1}$)	室温～ 500°C	88
ヤング率(GPa)	室温	86
曲げ強度(MPa)	w20×t10×L100mm、室温 表面は切断砥石による切断面	75
粘度(dPa·s)	1150°C	4.0
比抵抗($\text{c}\Omega\text{m}$)	—	4.8(1150°C)
熱伝導率($\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \text{K}^{-1}$)	100°C	1.0
比熱($\text{kJ} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$)	100°C	0.9
転移点($^\circ\text{C}$)	—	501
浸出率($\times 10^{-4} \text{kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$)	90°C 、static(MCC-1 法)	2.3

1. 5. 2 化学構造

固化ガラスに用いるホウケイ酸塩ガラスの構造は、主成分であるケイ素とホウ素とが酸素を介して網目状に配置する構造（網目構造）を形成しており、ガラス固化体では高レベル放射性廃棄物を構成する放射性物質がこの網目構造の中に均一かつ安定に取り込まれる。色ガラス

も何らかの着色元素をガラスの網目構造の中に含んだものであるが、色ガラスが割れて色の成分だけ流れ出すことはないように、ガラス成分と高レベル放射性廃棄物を構成する放射性物質も一体化しており、仮にガラスが割れても中から放射性物質だけが流れ出すことはない。

1. 5. 3 ガラス組成と特性

高レベル放射性廃液中の放射性核種を閉じ込めるために、各国において多くの種類の固化体の作製が行われてきた。これまでに、仮焼体（酸化粉末）、コンクリート固化体、リン酸塩ガラスやホウケイ酸塩ガラスなどの固化体、セラミックス（SYNROC 等）、結晶化ガラスなどが研究され、固化プロセスの実現性、化学的耐久性（浸出率）、廃棄物の含有量、対放射熱性、熱的安定性などの比較評価の結果、ホウケイ酸塩ガラス固化体が選定されている。ガラス固化は以下の点に留意して進められた。

- (1) 廃棄物成分をできるだけ多量、かつ均一にガラス化できる
- (2) ガラス熔融温度が低い（1100～1200℃程度で熔融可能なこと）
- (3) 化学的耐久性に優れている
- (4) 廃棄物成分の組成の変動に対し、許容幅が大きい
- (5) 結晶化の傾向が少ない

1. 6 リン酸塩ガラス

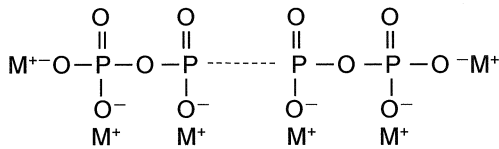
1. 6. 1 ガラス構造の特徴

Si は酸素を配位子とした場合、 sp^3 混成軌道を形成して四面体配位をとる。シリカガラス中ではこの四面体が互いに頂点を共有し三次元網目構造を形成している。

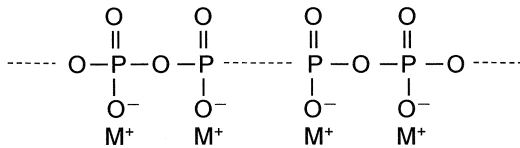
シリカ SiO_2 にアルカリ（アルカリ土類）酸化物 M_2O を導入すると、 M^+ が共有結合性の強い $Si-O-Si$ 結合を切

断し、 $Si-O-M^+$ という一つの Si にのみ結合した酸素（非架橋酸素）が生成する。すなわち、網目構造は部分的に切断され、その結果、化学的耐久性、粘度は著しく減少し、熱膨張係数は増大する。一方、P は $(Ne)(3s^2)(3p^3)$ という配位を有し、Si と同様に酸素四面体構造を形成するが、5 価 4 配位のため P の残り一つの電子が酸素の p と $d_{\parallel}-p_{\parallel}$ 型の一連の結合を形成する。よって P_2O_5 ガラスは M^+ がなくても非架橋酸素が存在する。 $M_2O-P_2O_5$ 二成分系ガラスを例にとると、その構造は MO/PO 比(R)によって図 1 のように変化するが、基本構成単位は 4 種類である。分岐点は M が 1 より小さい組成（ウルトラリン酸塩）で存在する。分岐点グループは二重結合が一つの P-O 結合に局在するため、化学的に不安定で水などと反応して二つの P-O 結合に比局在化した中間グループに容易に転化する。この事実は *anti-branching rule* と呼ばれる。すなわち、リン酸塩ガラスではケイ酸塩とは逆に、 P_2O_5 に M_2O を導入していくと、分岐点グループが消失する組成になるまで、むしろ化学的に安定になっていく、ウルトラ組成域のガラスを熔融すると原料や雰囲気中の水分をガラス構造中に取り入れて、*anti-branching rule* に従い分岐点なくなるように、 $(M_2O+H_2O)/P_2O_5=1$ になろうとする傾向がある。このため、リン酸塩ガラスは他のガラス系に比べてきわめて多くの OH を有するのである。

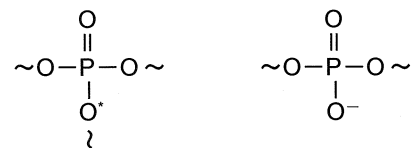
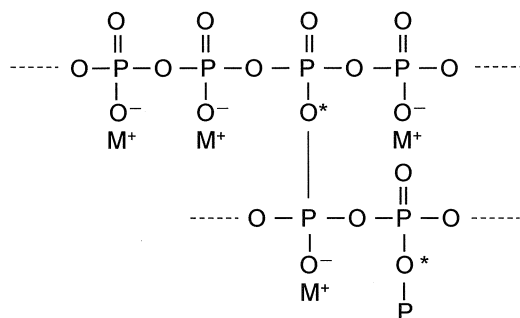
(a) $R > 1$



(b) $R = 1$



(c) $R < 1$



(a) 分岐点グループ (b) 中間グループ



(c) 末端グループ (c) オルトグループ

図 1 組成によるリン酸塩ガラスの構造変化（左）と四種の基本構成単位（右）

1. 6. 2 リン酸異常現象

リン酸塩ガラスの中でも $\text{MgO-P}_2\text{O}_5$ 系、 $\text{ZnO-P}_2\text{O}_5$ 系などは“異常ガラス”として知られている。リン酸塩ガラスの中で、 $\text{CaO-P}_2\text{O}_5$ などの normal タイプでは、2 価金属酸化物 MO の含有モル比の変化にともない、密度や屈折率などの物性が線形的に変化するのに対し、anomalous タイプのリン酸塩ガラスでは、組成と物性間に非線形性を示す。 $\text{MgO-P}_2\text{O}_5$ 系ガラスにおける異常現象を構造的に考えると、以下のように考えることができる。

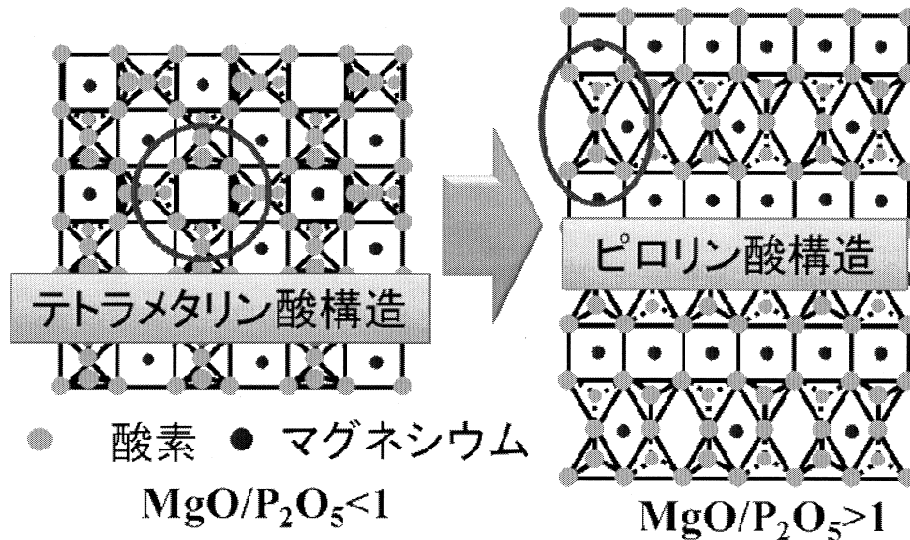


図2 リン酸マグネシウムガラスのメタ組成付近における構造変化

多くのリン酸塩ガラスは、鎖状構造をとることが知られているが、この $\text{MgO-P}_2\text{O}_5$ 系ガラスは二つのタイプの構造を含むと考えられている。一つは $\text{MgO/P}_2\text{O}_5 > 1$ のときで、テトラメタリン酸構造を含むもの、もう一つは $\text{MgO/P}_2\text{O}_5 < 1$ のときで、ピロリン酸構造を含むものである。モル比によって構造に変化がおこるが、この構造変化過程で異常現象を引き起こしていると考えられる。リン酸マグネシウムガラスのメタ組成付近における構造変化モデルを図2に示す⁴⁾。

2. 母ガラス作製

ガラス固化体を作製するために使用する母ガラスを作製した。ガラス固化体に適する母ガラスを選択するために数種類のリン酸塩ガラスを作製した。また、X線回折 (XRD) 測定により、均一なガラスが得られているかどうかを確認した。

2. 1 $\text{MgO-P}_2\text{O}_5$ 系および $\text{CaO-PbO-P}_2\text{O}_5$ 系母ガラスの作製

出発原料として H_3PO_4 および MgO 、 CaO 、 PbO を用いた。これらをガラス組成において、 $\text{MgO:P}_2\text{O}_5=40:60$ (モル比)、 $\text{CaO:PbO:P}_2\text{O}_5=20:20:60$ 、 $30:10:60$ 、 $10:30:60$ (モル比) となるように採取した。300ml ビーカー中で MgO または CaO 、 PbO にイオン交換水を加えた後、 H_3PO_4 を少量ずつ加えて反応させ、脱水のためにマントルヒーターを用いて加熱した。十分に混合・脱水させた後、アルミナるつぼに移して電気炉 (マッフル炉) 中で、さらに水分を除去するために 200°C 、12h 以上仮焼を行った。その後、電気炉 (SUPER-BURN) 中で $\text{MgO-P}_2\text{O}_5$ 系では 1300°C で 30min、 $\text{CaO-PbO-P}_2\text{O}_5$ 系では 900°C で 30min の条件で熔融させ、グラファイト板を用いてプレス急冷を行うことにより母ガラスを作製した。

2. 2 $\text{K}_2\text{O-P}_2\text{O}_5$ 系母ガラスの作製

KCO_3 および $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ を出発原料とした。ガラス組成において $\text{K}_2\text{O:P}_2\text{O}_5=20:80$ 、 $30:70$ 、 $50:50$ (モル比) となるように採取し、アルミナ乳鉢を用いて粉碎・混合させた。十分に粉碎・混合させた後、アルミナるつぼに移して、電気炉 (マッフル炉) 中で、脱アンモニウムのために 400°C で 30min、脱炭酸のために 900°C で 30min 仮焼を行った。さらに 900°C で 30min 熔融し、グラファイト板を用いてプレス急冷を行うことにより母ガラスを作製した。図3に母ガラス作製のフローチャートを示す。

3 ヨウ素 - マグネシウム化合物のガラス固化

リン酸塩ガラスによるヨウ素 - マグネシウム化合物のガラス固化体の作製を行った。また作製したガラス固化体に対して非晶質化の確認のために XRD 測定、ヨウ素含有の有無、含有率の確認のためにヨウ素定性分析、紫外可視吸収スペクトル測定を行った。

3. 1 ヨウ素 - マグネシウム化合物の作製

本実験では模擬放射性物質としてヨウ素-マグネシウム化合物を使用した。ヨウ素吸着物質として宇部マテリアルズ株式会社製の酸化マグネシウム (UC95ST) を試料として使用した。0.05mol/L ヨウ素溶液 500mL を三角フ

ラスコにとり、マグネシウム試料を 15g 加え、遮光して常温で 24h マグネットスターラーを用いて攪拌した。その後、溶液の吸引ろ過を行った。沈殿生成物であるヨウ素-マグネシウム化合物をデシケーター内で遮光しながら 2 週間程度乾燥させた。これをガラス固化体作製に用いるヨウ素-マグネシウム化合物試料とした。

3.2 ヨウ素 - マグネシウム化合物ガラス固化体の作製

ヨウ素-マグネシウム化合物を、ガラス固化体への含有率が 5mass%、10mass%、15mass% となるよう秤量し、アルミナ乳鉢を用いて十分に粉砕したガラス試料と共にフタつきのアルミナるつぼに移した (ヨウ素 - マグネシウム化合物とガラス試料をフタつきのアルミナるつぼに入れる際は、先にヨウ素 - マグネシウム化合物を入れ、その上にガラス試料を混合しないよう静かに入れた)。電気炉 (SUPER-BURN) 中で、MgO-P₂O₅ 系母ガラスでは 1300℃ で 20min、CaO-PbO-P₂O₅ 系母ガラスでは 900℃ で 20min 熔融させ、グラファイト板を用いてプレス急冷をすることにより模擬放射性物質固化体 (以降、ガラス固化体と表記する) を作製した。ガラス固化体作製のフローチャートを図 4 に示す。

3.3 X線回折 (XRD) 測定

作製した母ガラスおよびガラス固化体について、非晶質化の確認のため、XRD 測定を行った。ステンレス乳鉢で粉砕後、さらにアルミナ乳鉢で粉砕した試料を、Rigaku 製 MiniFlex II を用いて測定した。

3.4 ヨウ素定性分析

作製したガラス固化体にヨウ素が固定化されているかどうかを評価するため、ヨウ素定性分析を行った。メッシュ 115 を通過できるまで、アルミナ乳鉢を用いて試料を細かく粉砕し、粒径を整えた後、5 規定に調整した硫酸 50ml に対して粉砕したガラス試料を 1g 加えて遮光し、常温でガラス試料が溶けるまで 2 日間静置した。その後、炭酸ナトリウム、水酸化カルシウムを用いて中和した溶液に対して吸引ろ過を行った。得られたろ液に硝酸銀水溶液を加え、溶液の反応を確認した。また、中和前後および硝酸銀水溶液添加前において、ヨウ素でんぷん反応を試みた。

3.5 紫外可視吸収スペクトル測定

ガラス固化体中のヨウ素の有無を評価し、さらに、ヨウ素により吸光度にどのような変化が現れるかを検討するため、ガラス固化体に対して紫外可視吸収スペクトル測定を行った。測定試料には、ガラス固化体の表面を凹凸が無くなるまで、研磨紙 120、600、1200 で研磨したものを用いた。

3.6 密度測定

作製したガラス固化体について、母ガラスに対するヨウ素 - マグネシウム化合物の混合量から MgO と P₂O₅ の組成比を計算し、密度変化からガラス固化体でのリン酸異常現象 (メタ組成付近における密度低下) が観察されるかを調べるため、アルキメデス法を用いて密度測定を

行った。密度測定には METTLER TOLEDO 製 Density determination kit を用い、試料の密度は以下の式を用いて求めた。

$$\rho = \frac{A}{A - P} \times \rho_0$$

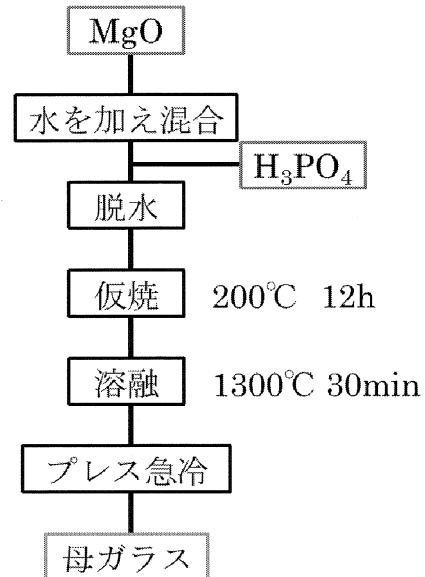
ρ : 密度 (g/cm³)

A : 空気中での試料の重量 (g)

P : 水中での試料の重量 (g)

ρ₀ : 水の密度 (g/cm³)

(a)



(b)

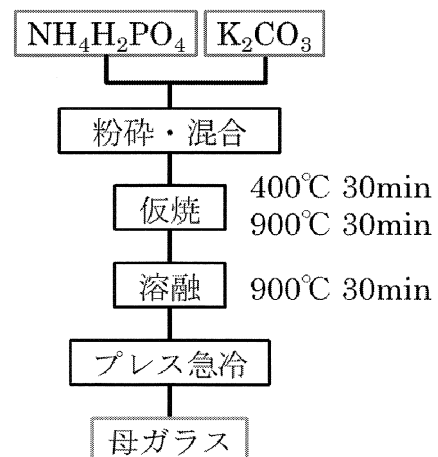


図 3 母ガラス作製プロセス

(a) MgO-P₂O₅ 系ガラス (b) K₂O-P₂O₅ 系ガラス

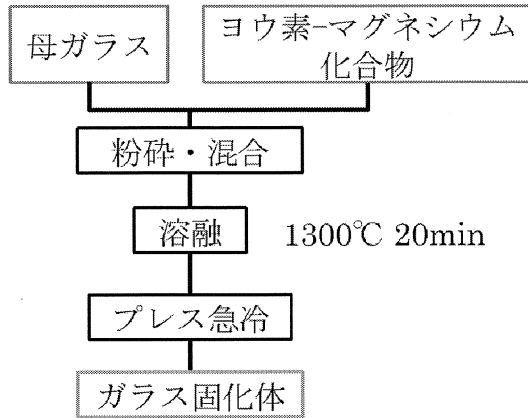


図4 ガラス固化体作製プロセス

4 母ガラスの評価

4.1 X線回折 (XRD) によるガラス化の確認

MgO-P₂O₅系、CaO-PbO-P₂O₅系および K₂O-P₂O₅系母ガラスの XRD パターンをそれぞれ図 5、図 6 および図 7 に示す。すべての成分系においてガラス化を確認することができたが、K₂O-P₂O₅系母ガラスは、常温で放置している状態で潮解してしまった。そのため、30:70 の組成の試料については XRD 測定は実施できなかった。

作製した母ガラスのサンプル名およびガラス化の有無を表 2 に示す。

表 2 作製した母ガラス

組成	(mol 比)	サンプル名	ガラス化
MgO:P ₂ O ₅	40:60	MgP	○
CaO:PbO:P ₂ O ₅	10:30:60	CaPb0103	○
	20:20:60	CaPb0202	○
	30:10:60	CaPb0301	○
K ₂ O:P ₂ O ₅	20:80	K02	○
	30:70	K03	○
	50:50	K05	○

表 3 作製したガラス固化体

母ガラス	ヨウ素-マグネシウム化合物含有量 (mass%)	サンプル名	ガラス化
MgP	5	MgPIM05	○
	10	MgPIM10	○
	15	MgPIM15	○
CaPb0103		CaPb0103IM	×
CaPb0202	10	CaPb0202IM	×
CaPb0301		CaPb0301IM	×
K02		K02IM	×
K03	10	K03IM	×
K05		K05IM	×

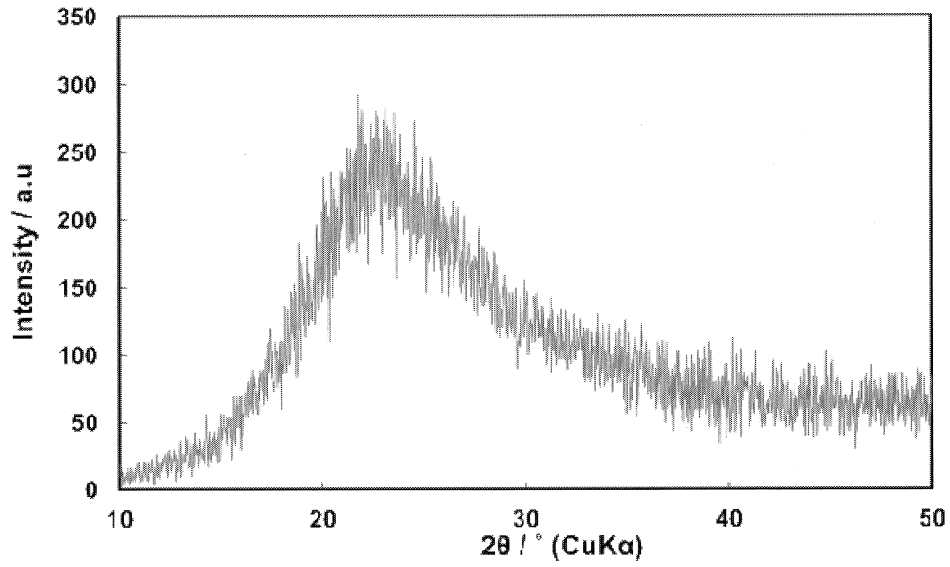


図5 MgP ガラスの XRD パターン

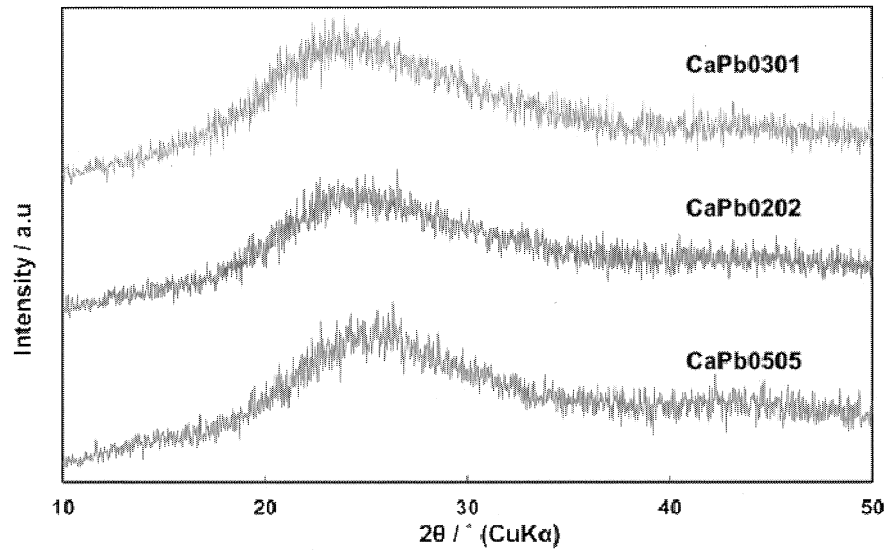


図6 CaPb 系ガラスの XRD パターン

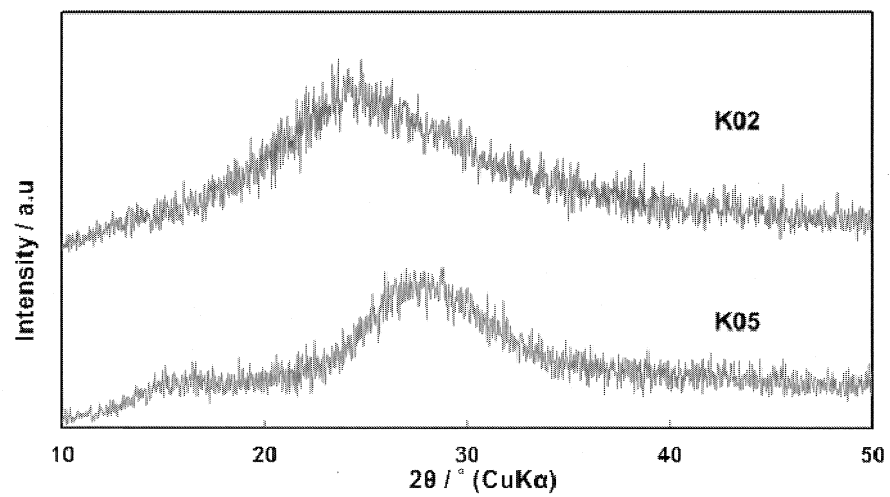


図7 K 系ガラスの XRD パターン

5 ガラス固化体の評価

$K_2O-P_2O_5$ 系ガラスは常温で潮解してしまうため、粉砕が困難であり、ガラス固化体の作製ができなかった。また、 $CaO-PbO-P_2O_5$ 系母ガラスを用いたガラス固化体作製では、流し出したガラスに MgO が溶け残っており、今回の作製プロセスにおいてはガラス固化体を得られなかった。したがって、ヨウ素定性分析、紫外可視吸収スペクトル測定および密度測定では、 MgP を母ガラスとしたガラス固化体を使用した。

作製したガラス固化体のサンプル名およびガラス化の有無を表3に示す。

5.1 X線回折 (XRD) によるガラス化の確認

$MgO-P_2O_5$ 系固化ガラスおよび母ガラスの XRD パターンを図8に示す。ヨウ素 - マグネシウム化合物の含有量が 5mass%、10mass%、15mass%、すべてのガラス固化体においてハローパターンとなり、ガラスが得られたことがわかった。

5.2 ヨウ素定性分析結果

硝酸銀水溶液を添加後、 MgP 、 $MgPIM5$ 、 $MgPIM10$ および $MgPIM15$ 溶液すべてにおいて黄色の沈殿が生成した。この沈殿を遠心分離した後の写真を図9に示す。デシケーター内で遮光しつつ乾燥させたものの XRD パターンを図10に示す。この XRD パターンはリン酸銀のものと同じであった。硝酸銀水溶液添加前の溶液の pH を確認したところ、約 pH6 の弱酸性であったことから、母ガラスから溶出したリン酸が影響していると考えられた。また、ヨウ素でんぷん反応は、中和前および硝酸銀水溶液添加前後すべてにおいて呈色は見られなかった。これはガラス固化体作製プロセスにおいて、ヨウ素 - マグネシウム化合物中のヨウ素の大部分が揮発してしまい、ガラス固化体中のヨウ素濃度が低くなってしまっているためであると考えられる。

5.3 紫外可視吸収スペクトル測定結果

紫外可視吸収スペクトル測定の結果を図11に示す。可視部においては、ヨウ素分子と同一のピークは見られなかったが、ヨウ素 - マグネシウム化合物含有量が 10mass%、15mass%ともに母ガラスにはない吸収が紫外部である 300~400nm 付近で確認された。母ガラスとガラス固化体において、ヨウ素化合物以外に組成の違いがないことから、紫外部における吸収はヨウ素化合物によるものと考えられた。また 5mass%においてこの吸収が見られない理由としては、ガラス固化体作製プロセスにおいてヨウ素が揮発してしまったと考えられる。

5.4 密度測定結果

$MgO:P_2O_5=40:60$ (モル比) を母ガラスとして作製したガラス固化体において、加えたヨウ素 - マグネシウム化合物の混合量から計算したガラス中の MgO の含有率は、 $MgPIM5$ 、 $MgPIM10$ および $MgPIM15$ はそれぞれモル比で 47.0、53.1、58.4 であった。これらの結果をもとに、ガラス固化体の各組成に対する密度の測定結果を図12に示す。またリン酸異常ガラスの密度と比較した。

今回作製したガラス固化体では密度低下は見られなかった。また、母ガラスが $MgO:P_2O_5=40:60$ のガラス固化体においても、母ガラスよりも密度が低くなっていることがわかった。

6 結言

本研究は、原発事故により飛散した放射性ヨウ素をターゲットとし、ヨウ素を吸着した酸化マグネシウムを模擬放射性物質として、リン酸塩ガラスを用いたガラス固化体の作製を行った。

ヨウ素定性分析では母ガラスから溶出したリン酸が影響していることからヨウ化銀は得られず、ヨウ素でんぷん反応においても呈色は見られなかった。

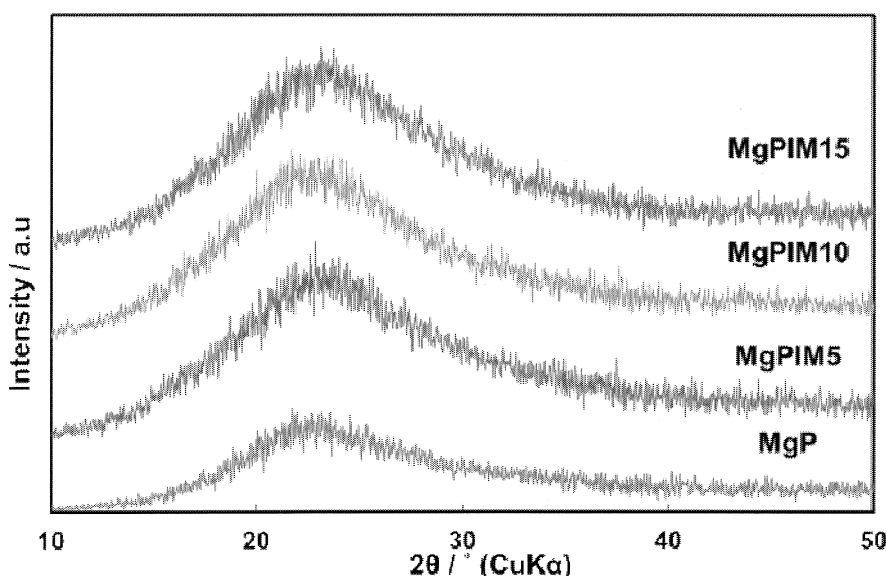


図8 作製したガラス固化体の XRD パターン

しかし、紫外可視吸収スペクトル測定の結果から MgPIM15 および MgPIM10 において、母ガラスにはない吸収が紫外部において確認できた。母ガラスとガラス固化体においてヨウ素化合物以外に組成の違いがないことから、ヨウ素化合物がガラス中に固定化されている可能性が示唆された。しかし、MgPIM5 においては紫外部に吸収が確認できなかったことから、ガラス固化プロセスにおいて、酸化マグネシウムに吸着したヨウ素の大部分が揮発していると考えられた。このことから、ガラス固化プロセスの再検討が必要であることがわかった。

熔融温度の低温化のために低融点の母ガラスを用いることや、ヨウ素-マグネシウム化合物と母ガラスの混合方法の改善などが考えられる。

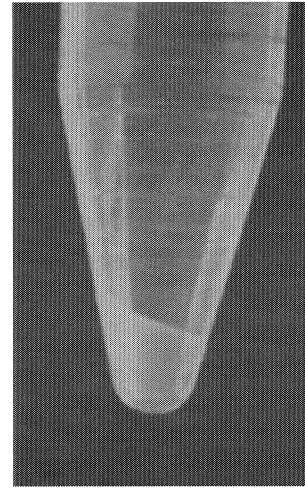


図9 黄色沈殿の写真

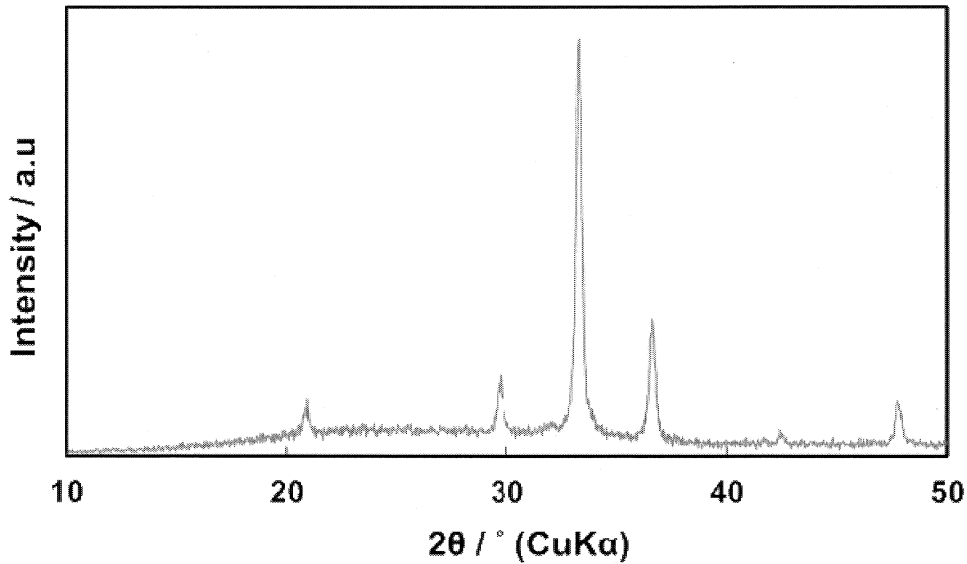


図10 黄色沈殿の XRD パターン

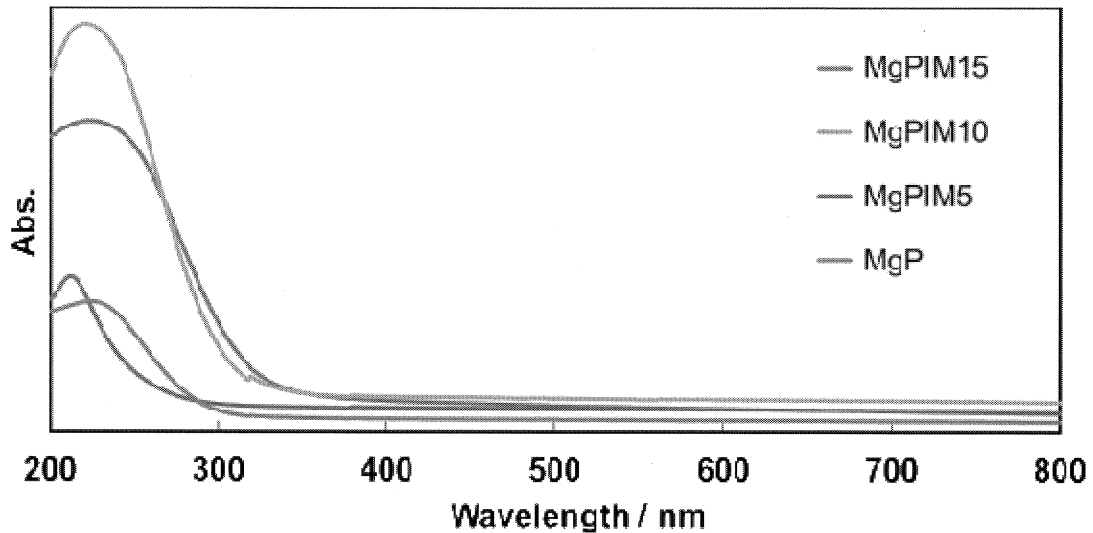


図11 紫外可視吸収スペクトル

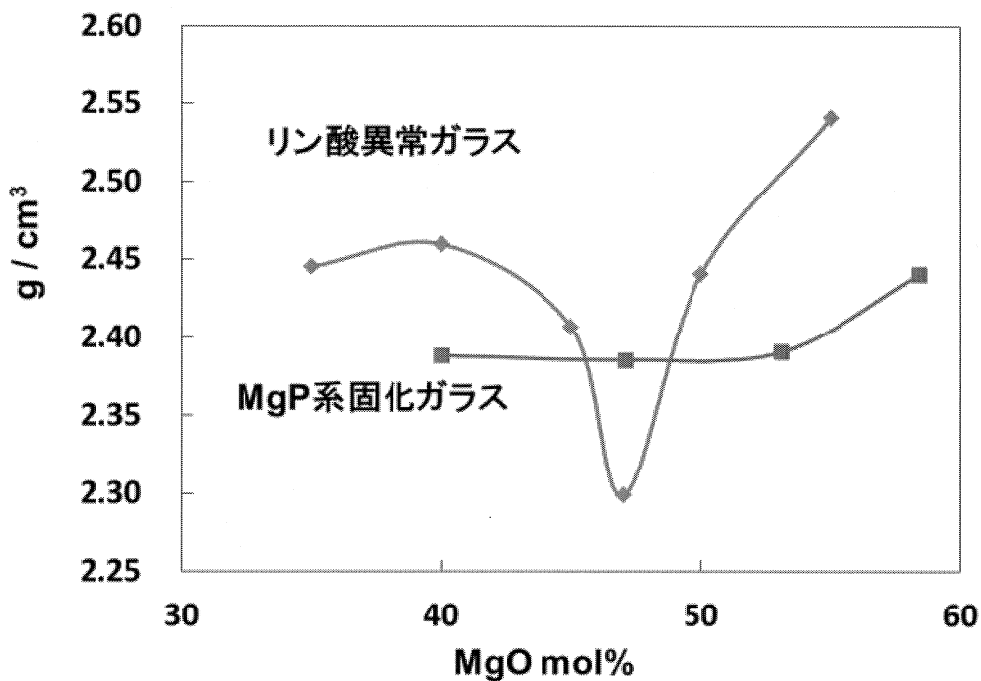


図 12 密度測定結果

参考文献

- (1) Okura, T., Miyachi, T., Monma, H.: Properties and Vibrational Spectra of Magnesium Phosphate Glasses for Nuclear Waste Immobilization, *J. Eur. Ceram. Soc.*, 26[4-5], 831 (2006).
- (2) 大倉利典: ガラスによる高レベル放射性廃棄物の固化処理, *J. Soc. Inorg. Mat., Jpn.*, 13, 448-445 (2006).
- (3) 大倉利典: 放射性廃棄物の固化処理用ガラス, 特許 04129237 (2008).
- (4) Okura, T., Yamashita, K., Kanazawa, T.: A Structural Explanation for the Phosphate Glass Anomaly, *Phys. Chem. Glasses*, 29, 13 (1988).

高品質 In 系窒化物半導体の結晶成長とデバイス製作プロセスの構築 —高品質 In 系厚膜成長技術の開拓—

工学院大学 工学部 情報通信工学科 山口智広

工学院大学 工学部 情報通信工学科 本田徹

情報通信研究機構 未来 ICT 研究所 東脇正高

立命館大学 理工学部 電気電子工学科 荒木努

Growth of High-quality In-based Nitride Semiconductors and Development of Device Fabrication Processes — Development of High-quality Thick In-based Material Growth —

Tomohiro Yamaguchi, Department of Information & Communication Engineering, Kogakuin University
Tohru Honda Department of Information & Communication Engineering, Kogakuin University
Masataka Higashiwaki, National Institute of Information and Communications Technology
Tsutomu Araki, Department of Electrical & Electronic Engineering, Ritsumeikan University

ABSTRACT : Droplet elimination by radical-beam irradiation (DERI) method, which is suitable for the growth of InN, was developed for the growth of thick InGaN films by molecular beam epitaxy (MBE). In this method, Ga-to-nitrogen radical (N*) beam flux ratio was fixed in the entire growth process, and In beam supply was modulated under the condition in which excess In of more than 2-3 monolayer wetting layers always existed on the surface, that is, no precise control of In beam flux during growth was needed. Thick and uniform InGaN films were successfully grown by the developed method. Thus, the growth technology of In-based materials was thus successfully developed.

1. はじめに

AlN、GaN、InN およびそれらの混晶からなる窒化物半導体材料は、緑～青色発光ダイオード (LED: Light Emitting Diode)、白色光源、青紫色レーザダイオード (LD: Laser Diode) などの発光デバイスを次々と実現させ、社会発展に大きく貢献してきた。また、AlGaIn 系材料の高品質化の実現に伴い、実用デバイス適応領域を更に短波長側に広げ、現在では深紫外用 LED を実現させる材料として揺るぎない地位を得ようとしている。

2002 年、InN のバンドギャップが従来の報告値である 1.9 eV よりはるかに小さい約 0.65 eV であることが報告¹⁻³⁾されて以来、InN および高 In 組成の InGaIn をはじめとする混晶を含む In 系窒化物半導体は、赤外域発光デバイ

スや超高効率タンデム太陽電池用の材料として注目されるようになった。しかしながら In 系窒化物半導体は、低い InN の乖離温度、高い窒素の平衡蒸気圧などの本質的な問題⁴⁾により、Ga 系窒化物半導体や Al 系窒化物半導体と比べ、高品質結晶を得ることが困難な材料であることが知られている。現時点での In 系窒化物半導体の実用デバイス適応領域は、せいぜい緑色域までであり、それ以上の長波長域においては未だ結晶成長基盤技術の構築段階にあるといえる。

我々は、この In 系窒化物半導体の高品質結晶実現のための結晶成長技術の開拓、および、この材料を用いたデバイス製作プロセスの構築を図るべく、2012 年 4 月より 3 年間の総合研究所プロジェクト研究をスタートさせた。

2. In系窒化物半導体結晶成長の問題点

分子線エピタキシー (MBE: Molecular Beam Epitaxy) 法を用いた InGaN 結晶成長は、多くの研究機関により研究が進められている⁵⁻¹⁰⁾。MBE 法を用いた高品質 InGaN 結晶を得る上で、最適な成長条件、特に 15 族の窒素と 13 族の In および Ga の原料供給比である V/III 比の制御が非常に重要である。InN、GaN、AlN のような二元化合物の MBE 成長では、金属原子のマイグレーションの促進およびそれに伴う二次元成長の実現の上で、V/III 比をわずかにメタルリッチ (V/III<1) 条件に設定することが必要とされている¹¹⁻¹³⁾。一方で、InGaN の場合には、メタルリッチ条件下での成長は InGaN 結晶の相分離を引き起こす⁸⁾ ため、更に厳密な V/III 比制御が求められる。それゆえ、表面平坦な膜を実現するための二次元成長を犠牲にして、V/III 比をわずかに窒素リッチ (V/III>1) 条件に設定することで、相分離のない組成均一な結晶実現が行われてきた^{9,10)}。

3. In系窒化物半導体結晶成長技術の開拓

我々はこれまで、高品質 InN 成長のための新しい手法として DERI (Droplet Elimination by Radical-beam Irradiation) 法を提案してきた。本手法は、反射高速電子線回折 (RHEED: Reflection High-energy Electron Diffraction)¹⁴⁾や光反射率測定¹⁵⁾などのその場観察を用いて簡便かつ再現性の高い InN 結晶成長を実現している。

DERI 法は、①メタルリッチ成長プロセス (MRGP: Metal-Rich Growth Process)、および、②ドロップレット除去プロセス (DEP: Droplet Elimination Process) の2つのプロセスよりなる。InN 成長の場合、MRGP では In リッチ、つまり V/III<1 の条件下での成長が行われる。この時過剰に供給された In は、2-3ML は wetting layer として結晶表面をカバーし、残りの In はドロップレット状態として表面に偏析する。DEP では、活性窒素である窒素ラジカル (N*) のみが供給される。この時、結晶表面に残った過剰な In が N* と反応し、InN 膜が形成されることになる。驚くべきことに、過剰に供給された In の結晶表面での形態に関わらず、N* と反応後には表面の非常に平坦な InN 結晶が自然と形成される。また、この変化の過程は上記その場観察手法を用いることによりモニタリングできる。この成長手法を用いることにより、成長時の厳密な V/III 比制御を取り除くことができる。

本手法を、InGaN 混晶成長に応用することに成功した。図 1 に InGaN 混晶成長のための DERI 法のプロセス模式図を示す。MRGP では、InN 同様、InGaN を V/III<1 ($N^*/(In+Ga)<1$) の条件下で成長を行う。ただし、InGaN 成長を行うためには、 $N^*/Ga>1$ の条件を追加する必要がある。メタルリッチ条件下にて InGaN 成長を行うと、Ga が優先的に結晶中に取り込まれ、In が結晶表面に吐き出される現象が起こる¹⁶⁾。次に、DEP では、窒素ラジカル

照射に加え、Ga を追加的に照射を行う。この時の Ga の供給量は、MRGP 時の N^*/Ga 供給比と一定になるように制御する必要がある。このようにすることにより、N* はすべての Ga と反応し、過剰となった N* が結晶表面に滞在する In との反応をおこす。作製される InGaN の In 組成は供給された Ga と N* の比のみにより決定される。結果として、MRGP と DEP 間で In 組成揺らぎのない InGaN 結晶が作製されることが期待される。また、Ga と N* の供給比の制御は依然必要とされるものの、In、Ga、N* 間での厳密な V/III 比制御は解消されることとなる。

図 2 に、MRGP と DEP を 20 回繰り返すことにより作製した 500 nm の厚さを持つ InGaN 厚膜結晶の X 線回折 (XRD: X-ray diffraction) 2 θ - θ スキャン測定結果、断面透過電子顕微鏡 (TEM: Transmission Electron Microscopy) 観察写真、オージェ電子分光 (AES: Auger Electron Spectroscopy) 測定結果を示す。XRD 2 θ - θ スキャン測定結果からは、InGaN(0002) の明瞭なピークが観察され、InGaN をメタルリッチ条件下で成長した時に観察されやすい相分離のない、単結晶が作製されていることが分かる。ただし、InGaN(0002) の高角度側に若干のショルダーピークが確認できる。断面 TEM 写真からは、得られた InGaN 結晶の表面が平坦であることが見て取れる。また、MRGP と DEP が 20 回繰り返されているにも関わらず、両成長層間でのあらゆる界面は確認されない。また、DEP では In 照射を行っていないにも関わらず、MRGP、DEP 両プロセス間での In の取り込みに違いは見られず、膜成

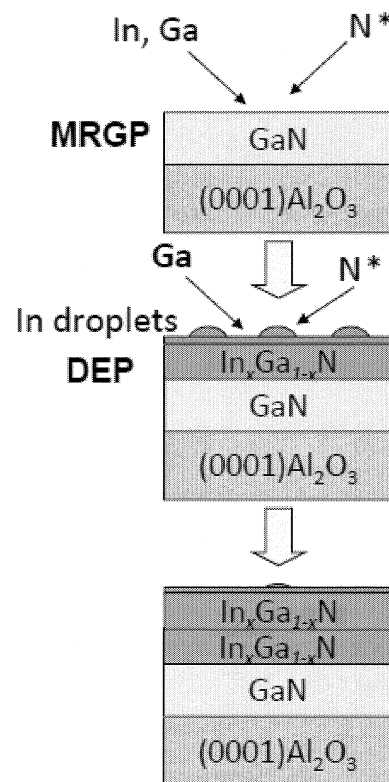


Fig. 1 Schematic diagram of growth model of thick InGaN film using advanced DERI.

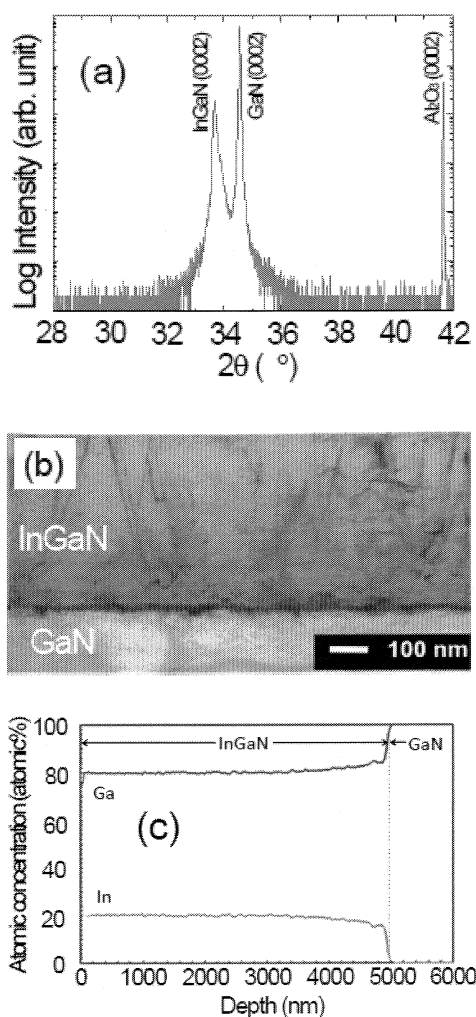


Fig. 2 Results of $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{N}$ film with In molar fraction x of 0.2. (a) XRD 2θ - θ profile, (b) cross sectional TEM image and (c) AES profile.

長方向に In が均一に取り込まれていることが AES 測定結果から見てとれる。ただし、InGaN 成長初期段階でわずかに In 組成の低い領域が確認できる。これは、GaN 上への InGaN 成長において、歪を緩和するために働く In compositional pulling effect¹⁸⁾ の影響を受けているものと考えられる。また、この影響が XRD 2θ - θ スキャン測定結果の InGaN(0002) の高角度側のショルダーピークに起因するものと考えられる。

4. まとめ

以上の結果より、InGaN 混晶の厚膜成長するための基盤技術として DERI 法が有効であることが示された。ただし、下地基板との格子不整合差に起因する歪の影響により、In 取り込み効率がわずかに変化する現象が確認されたことに対しては、新たな制御手法を検討する必要

があることが示された。加えて、本手法を用いることにより、相分離が抑制された結晶が再現性良く得られるメカニズムについてはまだまだ検証の余地がある。

一方で、本技術は、同厚膜結晶上に量子井戸構造を作製することにより実現される発光デバイス構造や厚膜結晶に pn ドーピングを施すことにより太陽電池構造を製作するための基盤技術となることが期待される。

謝辞

本研究の遂行に多大なるご助言を頂きました立命館大学立命館グローバル・イノベーション研究機構 (R-GIRO) および Department of Materials Science and Engineering, Seoul National University の名西徳之教授に厚く御礼申し上げます。

参考文献

- 1) V. Y. Davydov, A. A. Klochikhin, R. P. Seisyan, V. V. Emtsev, S. V. Ivanov, F. Bechstedt, J. Furthmüller, H. Harima, A. V. Mudryi, J. Aderhold, O. Semchinova and J. Graul, *Phys. Status Solidi B* 229, R1 (2002).
- 2) J. Wu, W. Walukiewicz, K. M. Yu, J. W. Ager III, E. E. Haller, H. Lu, W. J. Schaff, Y. Saito and Y. Nanishi, *Appl. Phys. Lett.* 80, 3967 (2002).
- 3) T. Matsuoka, H. Okamoto, M. Nakao, H. Harima and E. Kurimoto, *Appl. Phys. Lett.* 81, 1246 (2002).
- 4) J. B. MacChesney, P. M. Bridenbaugh and P. B. O'Conner, *Mater. Res. Bull.* 5, 783 (1970).
- 5) T. Böttcher, S. Einfeldt, V. Kirchner, S. Figge, H. Heinke, D. Hommel, H. Selke and P. L. Ryder, *Appl. Phys. Lett.* 73, 3232 (1998).
- 6) C. Adelman, R. Langer, G. Feuillet and B. Daudin, *Appl. Phys. Lett.* 75, 3518 (1999).
- 7) H. Selke, M. Amirsawadkouhi, P. L. Ryder, T. Böttcher, S. Einfeldt, D. Hommel, F. Bertram and J. Christen, *Mater. Sci. Eng. B* 59, 279 (1999).
- 8) S.-B. Che, T. Shinada, T. Mizuno, X. Wang, Y. Ishitani and A. Yoshikawa, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 45, L1259 (2006).
- 9) M. Hori, K. Kano, T. Yamaguchi, Y. Saito, T. Araki, Y. Nanishi, N. Teraguchi and A. Suzuki, *Phys. Status Solidi B* 234, 750 (2002).
- 10) H. Komaki, R. Katayama, K. Onabe, M. Ozeki and T. Ikari, *J. Cryst. Growth* 305, 12 (2007).
- 11) Y. Nanishi, Y. Saito and T. Yamaguchi, *Jpn. J. Appl. Phys.* 42, 2549 (2003).
- 12) C. S. Gallinat, G. Koblmüller, J. S. Brown and J. S. Speck: *J. Appl. Phys.* 102, 064907 (2007).
- 13) X. Wang, S.-B. Che, Y. Ishitani and A. Yoshikawa, *Jpn. J. Appl. Phys.* 45, L730 (2006).
- 14) T. Yamaguchi and Y. Nanishi, *Appl. Phys. Express* 2, 051001 (2009).
- 15) K. Wang, T. Yamaguchi, T. Araki, E. Yoon and Y. Nanishi, *Jpn. J. Appl. Phys.* 50, 01AE02 (2011).
- 16) T. Yamaguchi and Y. Nanishi, *Phys. Status Solidi A* 207,

- 18 (2010).
- 17) K. Hiramoto, Y. Kawaguchi, M. Shimizu, N. Sawaki, T. Zheleva, R. F. Davis, H. Tsuda, W. Taki, N. Kuwano and K. Oki, MRS Internet J. Nitride Semicond. Res. 2, 6 (1997).

研究成果

① 発表論文

1. L. Yang, Y. Yamashita, M. Kobata, T. Matsushita, H. Yoshikawa, I. Pis, M. Imura, T. Yamaguchi, O. Sakata, Y. Nanishi, and K. Kobayashi, "Investigation of the near-surface structure of polar InN films by chemical-state-discriminated hard X-ray photoelectron diffraction", Appl. Phys. Lett. 102, 031914/1-3 (2013).
2. T. Yamaguchi, K. Wang, T. Araki, T. Honda, E. Yoon, and Y. Nanishi, "Application of DERI method to InN/InGaN MQW, thick InGaN and InGaN/InGaN MQW structure growth", SPIE Photonics West Proceedings 8625-1 (2013).
3. 荒木 努、上松 尚、阪口 順一、王 科、山口 智広、Euijoon Yoon、名西 徳之、"DERI法を用いた InGaN 系量子ナノ構造の RF-MBE 成長"、信学技報 112, 55-58 (2012).
4. R. Cusco, N. Domènech-Amador, L. Artus, K. Wang, T. Yamaguchi, and Y. Nanishi, "Temperature dependence of Mg-H local vibrational modes in heavily doped InN:Mg", J. Appl. Phys. 112, 053528/1-6 (2012).
5. R. J. Jiménez-Riobóo, R. Cuscó, N. Domènech-Amador, C. Prieto, T. Yamaguchi, Y. Nanishi, and L. Artús, "Surface Acoustic Waves and Elastic Constants of InN Epilayers Determined by Brillouin Scattering", phys. stat. sol. (RRL) 6, 256-258 (2012).

② 国際学会発表

1. T. Yamaguchi, K. Wang, T. Araki, T. Honda, E. Yoon, and Y. Nanishi, "Application of DERI method to InN/InGaN MQW, thick InGaN and InGaN/InGaN MQW structure growth", SPIE Photonic West (Jan. 2013, USA) (*Invited talk*).
2. T. Yamaguchi, T. Araki, T. Honda, and Y. Nanishi, "Growth of InN and related materials using DERI method", Intensive Discussion on Growth of Nitride Semiconductors (Oct. 2012, Japan) (*Invited talk*).
3. R. Cusco, N. Domenech-Amador, L. Artus., K. Wang, T. Yamaguchi, and Y. Nanishi, "T-dependence of local vibrational modes of Mg-H complexes in InN:Mg", The International Workshop on Nitride Semiconductors 2012 (Oct. 2012, Japan).
4. R. Imai, S. Yamamoto, R. Togashi, H. Murakami, Y. Kumagai, T. Yamaguchi, T. Araki, Y. Nanishi, and A. Koukitu, "HVPE growth of InN on InN/sapphire (0001) templates prepared by MBE", The International Workshop on Nitride Semiconductors 2012 (Oct. 2012, Japan).
5. M. Imura, S. Tsuda, T. Nagata, Y. Koide, A. Yang, Y. Yamashita, H. Yoshikawa, K. Kobayashi, M. Kaneko, T. Yamaguchi, N. Uematsu, T. Araki, Y. and Nanishi, "Surface and Bulk Electronic Structure of Mg-doped InN Analyzed by Hard X-ray Photoelectron

6. R. Amiya, T. Yamaguchi, D. Tajimi, M. Hayashi, Y. Sugiura, T. Honda, T. Araki, and Y. Nanishi, "Angled-resolved XPS measurements of InN films grown by RF-MBE", The International Workshop on Nitride Semiconductors 2012 (Oct. 2012, Japan).
7. T. Yamaguchi, T. Araki, T. Honda, and Y. Nanishi, "Growth and Characterization of InN-based Materials", The 11th International Symposium on Advanced Technology (Oct. 2012, Japan).
8. R. Amiya, T. Yamaguchi, D. Tajimi, Y. Sugiura, J. Sakaguchi, T. Araki, Y. Nanishi, and T. Honda, "Angle-resolved X-ray Photoelectron Spectroscopy Measurements of InN Grown by RF-MBE", The 11th International Symposium on Advanced Technology (Oct. 2012, Japan).
9. T. Yamaguchi, N. Uematsu, T. Araki, T. Honda, E. Yoon, and Y. Nanishi, "Growth of thick InGaN films with entire alloy composition using DERI method", 17th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (Sep. 2012, Japan).
10. R. J. Jiménez Riobóo, N. Domènech-Amador, R. Cuscó, C. Prieto, T. Yamaguchi, Y. Nanishi, and L. Artús, "Surface acoustic waves and elastic constants of InN epilayers determined by Brillouin scattering", The Forth International Symposium on Growth of III-Nitrides (Jul. 2012, Russia).
11. T. Araki, N. Uematsu, M. Yutani, T. Saito, J. Sakaguchi, T. Yamaguchi, T. Fujishima, E. Matioli, T. Palacios, and Y. Nanishi, "In-situ monitoring of InGaN growth using DERI method", The Forth International Symposium on Growth of III-Nitrides (Jul. 2012, Russia).
12. T. Yamaguchi, R. Amiya, D. Tajimi, M. Hayashi, Y. Sugiura, T. Honda, N. Uematsu, T. Araki, and Y. Nanishi, "Angle-resolved XPS measurements of GaN and InN grown by RF-MBE", The 17th OptoElectronics and Communication Conference (Jul. 2012, Korea).
13. T. Araki, N. Uematsu, K. Wang, T. Yamaguchi, E. Yoon, and Y. Nanishi, "Growth of InGaN/InGaN MQW structures using DERI by RF-MBE", The Electronic Materials Conference 2012 (Jun. 2012, USA).

③ 国内学会発表

1. 井村将隆、長田貴弘、荒木努、名西徳之、小出康夫、A. L. Yang、山下良之、吉川英樹、小林啓介、山口 智広、武田寛之、津田俊輔、金子昌充、上松尚、"硬 X 線光電子分光法を用いた Mg ドープ In_{0.70}Ga_{0.30}N の表面-バルク電子状態評価"、2013 年 (平成 25 年) 春季 第 60 回応用物理学関係連合講演会 (2013 年 3 月 神奈川)。
2. 荒木 努、上松 尚、阪口 順一、王 科、山口 智広、Euijoon Yoon、名西 徳之、"DERI法を用いた InGaN 系量子ナノ構造の RF-MBE 成長"、2012 年度電子情報通信学会 レーザ・量子エレクトロニクス研究会 (2012 年 11 月 大阪)。
3. 井村将隆、津田俊輔、長田貴弘、小出康夫、Yang Anli、山下良之、吉川英樹、小林啓介、名西やすし、山口 智広、金子昌充、上松尚、荒木努、"硬 X 線光電子分光法を用いた InN の表面電子状態評価"、2012

- 年(平成24年) 秋季 第73回応用物理学会学術講演会(2012年9月 愛媛).
4. 楊安麗, 山下良之, 小島雅明, 松下智裕, 吉川英樹, I. Pis, 山口智広, 坂田修身, 名西徳之, 小林啓介, “Polarity determination of InN films by hard X-ray photoelectron diffraction”, 2012年(平成24年) 秋季 第73回応用物理学会学術講演会(2012年9月 愛媛).
 5. T. Araki, N. Uematsu, J. Sakaguchi, K. Wang, T. Yamaguchi, E. Yoon, and Y. Nanishi, “Growth of InGaN-based heterostructures using DERI by RF-MBE”, 2012年(平成24年) 秋季 第73回応用物理学会学術講演会(2012年9月 愛媛).
 6. R. Amiya, T. Yamaguchi, D. Tajimi, Y. Sugiura, T. Araki, Y. Nanishi, and T. Honda, “Angled-resolved X-ray photoelectron spectroscopy of c-plane InN grown by RF-MBE”, 2012年(平成24年) 秋季 第73回応用物理学会学術講演会(2012年9月 愛媛).
 7. 杉浦洋平, 山口智広, 本田徹, “短波長領域動作 GaInN 系太陽電池の基礎検討”, 第35回光通信研究会(2012年8月 山梨).
 8. 網谷良介, 山口智広, 本田徹, “RF-MBE 法により成長した InN の角度分解 XPS 測定”, 第35回光通信研究会(2012年8月 山梨).
 9. R. Amiya, T. Yamaguchi, D. Tajimi, M. Hayashi, Y. Sugiura, T. Honda, T. Araki, and Y. Nanishi, “Angled-resolved XPS measurements of In-polar and N-polar InN films”, 31st Electronic Materials Symposium (2012年7月 静岡).
 10. T. Yamaguchi, N. Uematsu, K. Wang, T. Araki, T. Honda, E. Yoon, and Y. Nanishi, “Growth of InGaN film and InGaN/InGaN periodic structure using DERI method”, 31st Electronic Materials Symposium (2012年7月 静岡).
 11. M. Imura, S. Tsuda, T. Nagata, Y. Koide, A. Yang, Y. Yamashita, H. Yoshikawa, K. Kobayashi, M. Kaneko, T. Yamaguchi, N. Uematsu, R. Iwamoto, T. Araki, and Y. Nanishi, “Surface and Bulk Electronic Structure of Mg-doped InN Analyzed by Hard X-ray Photoelectron Spectroscopy”, 31st Electronic Materials Symposium (2012年7月 静岡).
 12. 荒木努, 阪口順一, 上松尚, 油谷匡胤, 齋藤巧, 山口智広, 名西徳之, T. Fujishima, E. Matioli, T. Palacios, “DERI 法 InGaN 成長におけるラジカルモニタリング技術応用”, 第4回窒化物半導体結晶成長講演会(2012年4月 東京).

新高精度超音波距離計測法による介護環境等での動き検知システムの研究

工学院大学 グローバルエンジニアリング学部 疋田 光孝

室蘭工業大学工学部情報電子工学系学科 長谷川 弘治

Study on Movement Detection in Care Environment Using Precise Ultrasonic Distance Measurement Method

Mitsutaka HIKITA Faculty of Global Engineering, Kogakuin University
Koji HASEGAWA Faculty of Information & Electronic Engineering, Muroran University

ABSTRACT: Sensor network which connects many sensors via small-scale private wireless network such as ZigBee has been researched all over the world. In the future, it will provide home/office-circumstance monitoring such as taking care of old people, preventing crime and maintaining security. In this paper, we will propose a new care-environment monitoring system using the previously developed novel ultrasonic distance measurement method installed in ZigBee-based sensor network. Simulation results and fundamental experimental results will also be presented.

1. はじめに

移動通信の進歩に伴って、最近提案されたセンサネットワークと言われる新概念がある⁽¹⁾。非常に多数のセンサ(センサノード)を配置し、各センサからの出力信号を主に移動通信と同様の手段により構築したネットワークを介して集約し、それ等のデータに基づき、家庭やオフィスの住環境の制御⁽²⁾⁽³⁾、ビルや市街単位での環境モニタ、大規模な地域単位での自然環境状態の観察や保護などを行うものである。センサネットワークは、21世紀における携帯電話に匹敵するインパクトの大きい新概念であり、産業的にも大きく成長するといわれている。

我々は、センサネットワークをベースに病院や要介護者住宅のモニターを超音波を用いて行う研究を進めている。病室における患者のモニターや独居老人の住状況のモニター等は今後益々重要になる。現在は主に、①起床時前後での家電器具の電源の ON/OFF をモニターするなど極めて間接的な検知方法、②CCD カメラ等により病人や住

人の動きを監視する極めて直接的な手法が採用されている。前者は精度的な面で課題が多く、後者はプライバシーの面で用途は限定される。本研究は、これ等の課題に解決を与えるもので、ON/OFF モニターに比べ精度は極めて高く、CCD カメラに比べるとヒト等の動きは検知するが人物像は示さない。

手段は先に発案した新しい高精度な超音波距離計測法を応用するものである⁽⁴⁾⁽⁵⁾⁽⁶⁾。センサノードの一部として超音波送受信機能を搭載し、一対のノード間でIFFT(Inverse Fast Fourier Transform)周波数に対応したCW超音波を送受信する。送信に対する受信超音波の相対振幅/相対位相を求め ZigBee 等でセンターノード(別電源で動作)へ送る。そこで一括IFFT処理を行うことにより、反射物体を介した送受信トランスデューサ(ノード)間のインパルス応答を導出する。時間が若干異なる上記の2つのインパルス応答間の差を求めることで静止物体の影響を消去し、ヒト等の動きのみを抽出し、フォローする

ものである(7)(8)(9)。

従来のパルスエコー法を用いた超音波距離計測の高精度化には、CDMA 通信と同様に符合拡散方式(10)、レーダーなどに採用されているチャープ信号方式(11)がある。しかし、どちらも送受信側で重い信号処理が必要であり、電池 1 ケで年単位の動作が要求されるセンサノードには採用出来ない。また、上記のようにヒト等の動きの検知には適用出来ない。

20kHz 以上の音波は可聴域の外にあり超音波と言われるが、その波長は 17mm 以下である。良く用いられる 40kHz では、波長は 8.5mm と電波ではミリ波の領域に対応する。超音波の反射、散乱、回折等およびそれらによる減衰に関しては、電波と同様種々の検討が必要と思われる(12)。しかし、現状筆者等は過去の研究例も含めて詳細は把握していない。本論文では、ミリ波の車載レーダーの受信電力の概念を適用し、我々の提案の可能性をシミュレーションした。また、極めて基礎的なレベルの実験ではあるが、提案の基本部分の実験も行い実現性を確認した。本論文では、これ等の結果をまとめた。

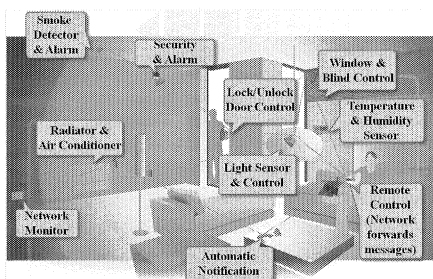


図 1 センサネットワークの将来展望(T.I.の HP 参考)

表 1 ZigBee, Bluetooth, UWB の比較

System	ZigBee (IEEE802.15.4)	Bluetooth (IEEE802.15.1)	UWB (IEEE802.15.13)
Frequency Modulation	2.4 GHz OQPSK/DSSS	2.4 GHz GFSK/FHSS	3.1-10.6 GHz MCOFDM
Output Data Rate	0 dBm 250 kbps	0 dBm 721 kbps	-41.3 dBm/MHz 10 ² -10 ³ Mbps
Number of Nodes	65,535 Nodes /1 Network	7 Slaves /1 Master pico-net.	
Application	Sensor network Home network Temperature /Light/Air con. Security	PC, Printer Key board Audio sets Hands free	

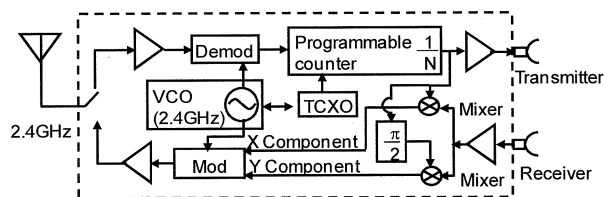


図 2 超音波送受信を付加した ZigBee センサノード

2. センサネットワークと ZigBee

半導体最大手の Texas Instruments (T.I.)社は、センサネットワークの将来展望を非常に大きなマーケットと考え、図 1 に示すような概念を提案しそれ等に用いる半導体 IC の開発計画も明らかにしている。我々は将来これ等の IC を利用したネットワークが安価に構築出来ることを前提に、さらなるネットワークの高度利用として、より快適な住環境、特に介護環境等のモニターを実現する研究を進めている。

センサネットワークの周波数帯は国により種々アサインされているが、日本では 2.4GHz 帯 ZigBee が候補の一つである(13)。表 1 に、2.4GHz 帯 Bluetooth、IEEE802.15.13 で規格化される UWB (Ultra-Wide Band)と比較して示す。低レート伝送のため 250kbps と低いが、最大の特徴は 1 ケのノードは 65,535 ケのノードと接続が可能である。これによりセンサ同士を結びつけたセンサネットワークの構築が可能となる。また、ノード間でデータを橋渡しすることが出来、Star-link、Tree-link、Mesh-link 等のネットワークトポロジーが可能である。

図 2 に本提案である超音波の送受信機能をセンサノードへ付加した場合のノードのブロック図を示す。数~10 数 MHz の TCXO (Temperature-Compensated X'tal Oscillator: 温度補償型基準発振器)の信号を分周、通倍することで数十 kHz の超音波の送信信号を生成することを考える。また、受信波に対しては送信波と混合することで、I(X 軸)、Q(Y 軸)成分を抽出する。これ等の信号データは、ZigBee でセンターノードへ送り、センターノードで後に

説明する IFFT 等⁽¹⁴⁾の処理を一括行う。

3. 新高精度超音波距離計測法

3.1. IFFT 処理に基づく距離計測原理

図 3 に示すように、反射物体を介してトランスデューサ間で超音波を送受する場合を想定する(実際には、各トランスデューサは別々のセンサノードに搭載される)。簡単のため、図 4 に示すようにトランスデューサの周波数特性を矩形で近似する。送信トランスデューサから IFFT に対応する離散的な周波数の CW 超音波を送信すると((a) 図)、受信波は伝搬と反射のため振幅は減少し、位相は回転する((b) 図)。送信波に対する受信波の相対振幅と相対位相は、送受信トランスデューサ間のディスクリート伝達関数 $G(\omega_i)$ 、 $i=1\sim n+1$ となる。従って、IFFT 処理すると送受信トランスデューサ間のインパルス応答が得られる。ここで、IFFT の周波数間隔を Δf とすると、時間軸では $T=1/\Delta f$ を周期に繰り返される。折り返しの影響が無視出来る T すなわち Δf を定める必要がある。

図 2 のセンサノードでは各周波数に対する $G(\omega_i)$ すなわち相対振幅/位相を求め、ZigBee を介してデータをセンターノードへ送る。センターノードでは別電源で IFFT 処理等を行うため、センサノードの消費電力は極めて小さく出来る。

インパルス応答のピーク点から送受信トランスデューサ間の遅延時間が求まる。遅延時間に超音波の速度 ($331.45+0.607\times T_o(^{\circ}C)$ m/s) を掛けると、反射物体を介した送受トランスデューサ間の距離を正確に求めることが出来る⁽⁴⁾⁽⁵⁾⁽⁶⁾。

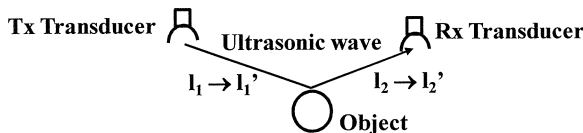


図 3 反射物体を介した超音波の送受信

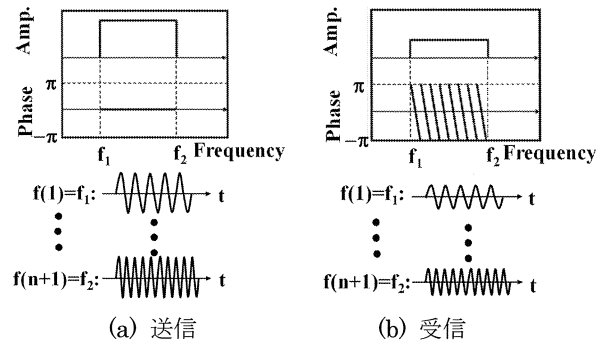


図 4 IFFT 周波数に対応した CW 超音波の送受信

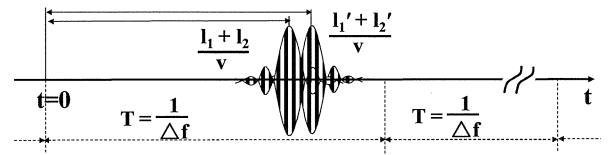


図 5 図 3 の系のインパルス応答(IFFT 処理結果)

3.2. 新計測法による動き検知

上記の測定法は、符合拡散法のようにレプリカとの相関⁽¹⁰⁾やチャープ信号法のようにパルス圧縮⁽¹¹⁾などの処理を必要しない。図 3 で $t=t$ 時の各トランスデューサと反射物体間を l_1, l_2 とし、 $t=t'$ 時には物体が移動し $l_1 \rightarrow l_1', l_2 \rightarrow l_2'$ となるとする。 $t=t$ と $t=t'$ における各インパルス応答の差を求めると、図 5 のような結果が予想される。 $t=t$ から $t=t'$ の間で物体に動きがある場合は動いた先々でのインパルス応答が表れるが、動きがない場合は互いに打ち消しあい出力はない。すなわち、静止物体は消去し動物体のみを表示することが出来るため、介護環境モニターなどで必要な動き検知手段として利用出来る⁽⁷⁾⁽⁸⁾⁽⁹⁾。

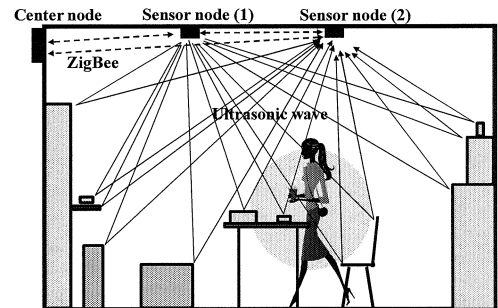


図 6 シミュレーションモデル

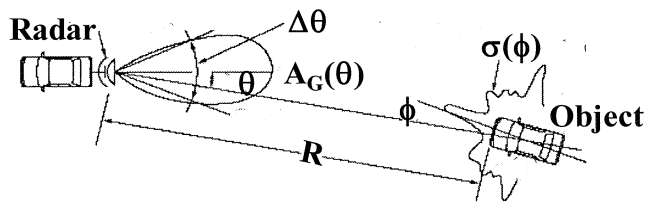


図7 ミリ波車載レーダーの送受信と反射

4. レーダーと類似の散乱を仮定したシミュレーション

4.1. シミュレーションモデル

シミュレーションに用いたモデルを図6に示す。センサノード(1)から超音波を送信、(2)で受信する。送信波に対する受信波の相対振幅/位相を ZigBee 等を介してセンタノードへ送る。センタノードで IFFT 処理等を一括行うことで、(1)、(2)間のインパルス応答を求める。時間の異なるインパルス応答の差より動物体のみを抽出するものである。

良く用いられる 40kHz の超音波を仮定すると、波長は 8.6mm となる。超音波の伝搬には、電波同様空間減衰、反射、回折等⁽¹²⁾⁽¹⁵⁾を考慮した扱いが必要であるが、筆者はこの点に関しては詳細を把握していない。電波ではミリ波帯に匹敵する波長のため、今回は図7に示すミリ波の車載レーダーで良く知られた関係式を準用する。また、反射は1回のみで多重反射は無視する。受信電力 P_r は、以下で与えられる。

$$P_r = \frac{P_t A_G(\theta)^2 \lambda^2 \sigma(\phi)}{(4\pi)^3 R^4} \quad (1)$$

ここで、超音波トランスデューサには指向性があり、アンテナ利得 $A_G(\theta)$ 同様 θ 特性を規定すべきであるが、今回は簡単のため、全 θ に対して 1 とする。送信電力 P_t 、波長 λ 等も簡単のため規格化し、 $P_t \lambda^2 / (4\pi)^3$ を 1 と置く。(1)より、受信電力 P_r は距離 R の 4 乗分の 1 で減衰し、振幅は 2 乗分の 1 で減衰することが分かる(図8)。有効反射断面積 $\sigma(\phi) = \sigma$ は、振幅で考える場合は $\sigma^{1/2}$ として扱う。シミュレーションでは、種々の距離に存在する反射物体の反射

係数として規定する必要がある。図7のモデルでは、反射物体を介したセンサノード(1)、(2)間の距離は最少 3m、最大 8m を仮定する。反射係数は物体の形状、角度 ϕ に依存するため、今回は以下を仮定した。すなわち、3~8m 間に 10cm 間隔で 50 ケの反射物体が存在する。反射係数 $\sigma^{1/2}$ は、0~1 の間の乱数を 50 ケ用い規定した。図9(a)に各距離に仮定した物体の反射係数を示す。図9(b)に、図8の距離による減衰特性を考慮した換算反射係数 $\sigma^{1/2} / R^2$ を示す。

上記の外に、単一周波数信号を送信する場合と異なり、IFFT 周波数に対応した複数周波数の超音波を送受信するため、送受信トランスデューサのディスクリート周波数特性 $G_T(\omega_i)$ 、 $G_R(\omega_i)$ を規定する必要がある。 $G_T(\omega_i)$ 、 $G_R(\omega_i)$ を単独で評価するのは極めて難しい。ここでは、両者の積の絶対値 $|G_T(\omega_i)| \cdot |G_R(\omega_i)|$ として Gauss 関数を仮定する。図10に仮定した特性を示す。比較のため後に示す実験で用いたトランスデューサの実測値も示すが、両者は良く一致していることが分かる。

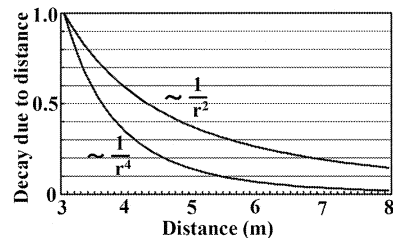
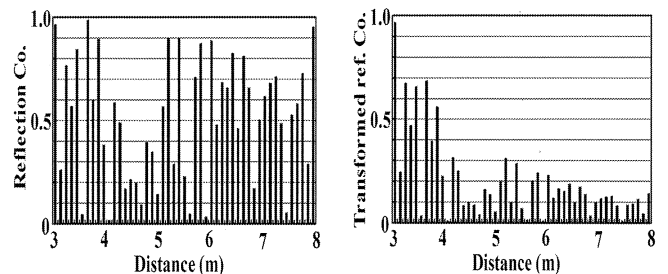


図8 受信電力、振幅の距離による減衰



(a) 反射係数 $\sigma^{1/2}$ (b) 換算反射係数 $\sigma^{1/2}/R^2$

図9 3~8m に存在する反射物体(50 ケ)の反射係数

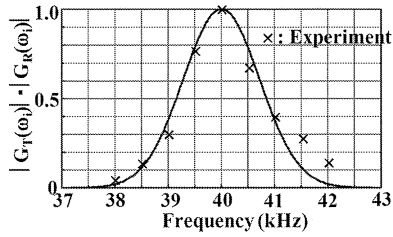
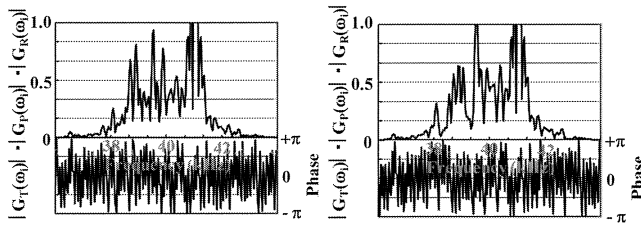
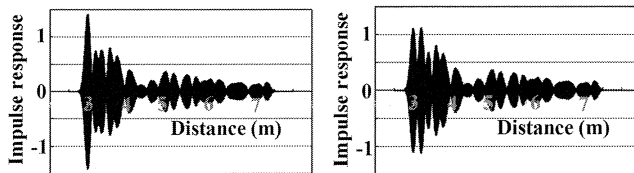


図 10 トランスデューサのディスクリット周波数特性

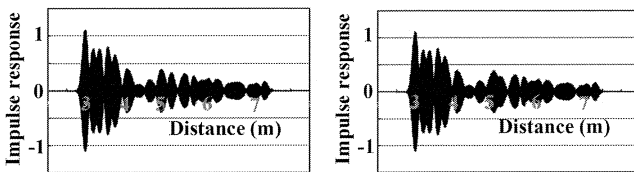


(a) 3.052m の伝達特性 (b) 3.252m の伝達特性

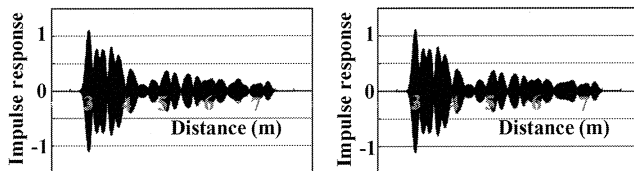
図 11 ヒトの移動とディスクリット伝達特性の変化



(a) 3.052m (b) 3.252m

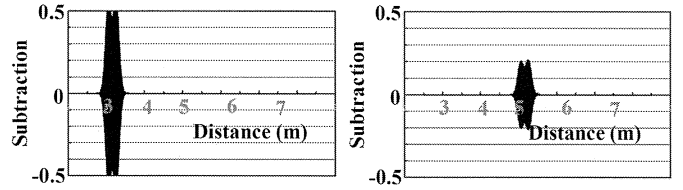


(c) 5.052m (d) 5.252m

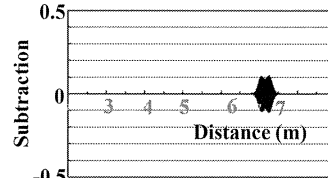


(e) 7.052m (f) 7.252m

図 12 各移動点での IFFT 処理によるインパルス応答



(a) 3.052→3.252m (b) 5.052→5.252m



(d) 7.052→7.252m

図 13 インパルス応答の差によるヒトの動き

4.2. 動き検知のシミュレーション結果

シミュレーションでは、図 6 のモデルでヒトのみが最小距離の 3m から最大距離の 8m まで移動すると仮定する。3m でのヒトの反射係数は 0.5(最大値の半分)と仮定し、距離と共に他の反射物体と同様に R^2 で減衰するとする。 $\Delta f=0.03125\text{kHz}$ を仮定すると、折り返し距離は約 11m である。

前述のように送受信トランスデューサのディスクリット周波数特性(伝達関数)を $G_T(\omega_i)$ 、 $G_R(\omega_i)$ で表わす。超音波の伝搬と前述の反射物体による効果を含めたディスクリット伝達特性を $G_P(\omega_i)$ で表わす。図 11(a)、(b)にヒトが 3.052m と 20cm 移動し 3.252m となった時のセンサノード(1)、(2)間の伝達特性 $G_T(\omega_i) \cdot G_P(\omega_i) \cdot G_R(\omega_i)$ を示す。図 12(a)、(b)に図 11(a)、(b)のデータを IFFT 処理し求めたインパルス応答を示す。同様に、5.052m から 5.252m 移動した場合のインパルス応答を図 12(c)、(d)に、7.052m から 7.252m へ移動した場合を図 12(e)、(f)に示す。ヒトの移動によりインパルス応答自体は若干変化するが、これ等の変化から動きを検知することは難しい。

図 13(a)に図 12(a)、(b)のインパルス応答の差を示す。静止物体の影響は全て消去され、ヒトのみが 3.052m から

3.252m へ移動した様子が分かる。同様に、図 12(c)、(d) のインパルス応答の差、図 12(e)、(f)のインパルス応答の差を図 13(b)、(c)に示す。それぞれ 5.052m から 5.252m へ、7.052m から 7.252m への移動の様子が分かる。以上より、原理的には本手法により静止物体の影響を消去し、ヒトなどの動物体の影響のみを表示出来ることを示した。

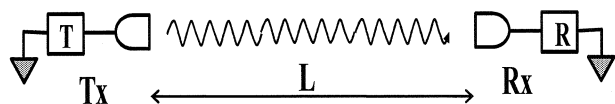
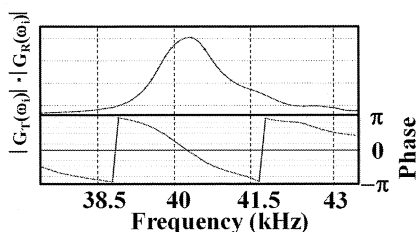
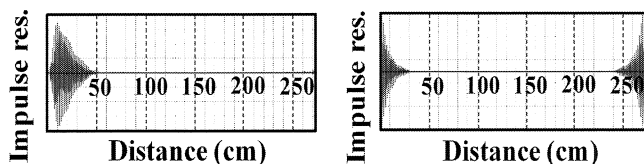


図 14 簡略化した実験系



(a) L=0 のディスクリート伝達関数



(b) $G_T(\omega_i) \cdot G_R(\omega_i)$ の IFFT (c) 補正 $G_T(\omega_i) \cdot G_R(\omega_i)$ の IFFT

図 15 L=0 のディスクリート伝達関数による位相補正

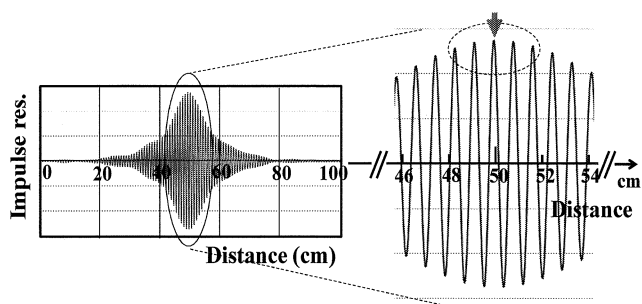


図 16 L=50cm のインパルス応答(1mm 程度の精度で距離測定可能)

5. 基礎実験結果

5.1. 高精度距離測定

初めに図 14 に示す送受信トランスデューサのみで反射物体は存在しない系で実験を行った。図 15(a)に、図 14 で $L=0$ の場合すなわち送受信トランスデューサを直接接続した時のディスクリート伝達関数 $G_T(\omega_i) \cdot G_R(\omega_i)$ を示す。電波のアンテナと異なり、超音波トランスデューサは振動子で形成されるため、振動の慣性に起因し大きな位相傾斜が生ずる。図 15(b)に $G_T(\omega_i) \cdot G_R(\omega_i)$ を IFFT 処理し求めたインパルス応答を示す。約 10cm 程度の遅延と波形の非対称性が明確に表れている。動き検知のベースである高精度な距離計測にはこの点の補正が必須と考えられる。すなわち、

$$G_T(\omega_i) \cdot G_R(\omega_i) = |G_T(\omega_i)| \cdot |G_R(\omega_i)| \cdot \exp\{j(\theta_T(\omega_i) + \theta_R(\omega_i))\} \quad (2)$$

と表わし、後半の位相部分をディスクリート伝達関数から補正(削除)する必要がある。図 15(c)に、 $G_T(\omega_i) \cdot G_R(\omega_i)$ に補正を加え((2)の位相の逆数を掛け)、更に IFFT 処理で求めたインパルス応答を示す。中心は距離ゼロにあり、完全に対称な応答波形が得られた。

図 16 に図 14 で $L=50\text{cm}$ とした系でのインパルス応答波形を示す。この場合送受信トランスデューサ間の伝達関数は、空間伝搬部の伝達関数を $G_p(\omega_i)$ と表すと $G_T(\omega_i) \cdot G_p(\omega_i) \cdot G_R(\omega_i)$ となる。従って補正結果は、

$$G_T(\omega_i) \cdot G_p(\omega_i) \cdot G_R(\omega_i) \cdot \exp\{-j(\theta_T(\omega_i) + \theta_R(\omega_i))\} \quad (3)$$

で与えられる。図 16 よりインパルス応答のピークは $L=50\text{cm}$ にあり、その誤差は 1mm 程度である。本距離計測法が極めて高精度であることが分かる。

5.2. 動き検知

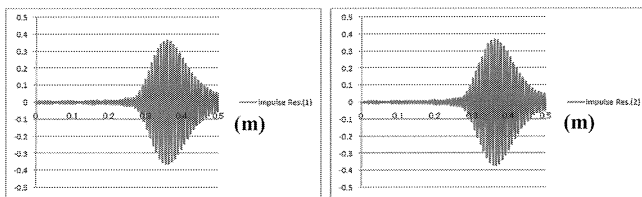
上記の高精度距離計測法を介護環境等でのヒトの動き検知に適用する。図 6 に対応する実験設備はまだ完備されておらず、今報告では極めて基礎的な実験結果に関して記述する。特に、従来の超音波距離計測法であるパルスエコー法と比較して検討結果を示す。

測定は向かい合った 1 対の送受信トランスデューサ間の距離を若干変化させることで、簡易的に反射物体を介し

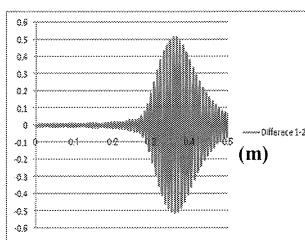
たトランスデューサ間距離の変化を実現することとした。両者のインパルス応答の差を求めることでフィージビリティチェックを行った。

図 17(a)、(b)に 37cm と 37.3cm のインパルス応答を示す。図 17(c)に両者の差を示す。同様に図 18(a)、(b)に従来のパルスエコー法による受信パルスを示す。従来手法では、受信パルスは包絡線検波により求め、その波形に微分演算を施し距離を特定する。図 18(c)に受信パルスの差を示す。

図 17、18 を比較すると、従来手法では包絡線(受信パルス)波形の差で動きを特定するが、包絡線に含まれる情報は極めて少なく正確な動き検知は不可能と言える。一方、本手法は図 17(c)に示すように差の波形が明確に表れ、ヒトの動き等を十分検知出来る可能性があることを示している。

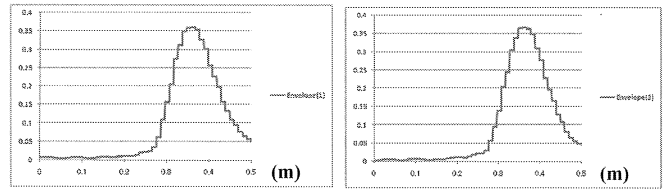


(a) L=37cm のインパルス応答 (b) L=37.3cm のインパルス応答

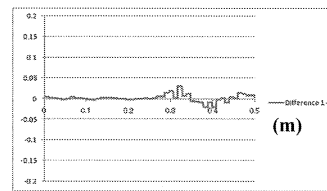


(c) L=37cm と 37.3cm のインパルス応答の差

図 17 インパルス応答の差から動きを検知するための基礎実験結果



(a) L=37cm の受信包絡線波形 (b) L=37.3cm の受信包絡線波形



(c) L=37cm と L=37.3cm の受信包絡線波形の差

図 18 従来のパルスエコー法による動き検知(受信包絡線波形の差から検知)

6. まとめ

将来のセンサネットワークの一部としての導入を目指し、超音波による介護環境等のモニターの研究を進めている。複数のセンサノード間で IFFT 周波数に対応した CW 超音波を送受信し、そのデータを元にセンサノード間のインパルス応答を求める高精度距離計測法を提案した。今回新たに、時間が若干異なるインパルス応答の差よりヒト等の動きを特定する検知法を提案した。シミュレーションと基礎実験により実現の可能性を示した。今後介護環境等を想定した実験系を構築し、更に具体的な評価を行う。

文献

- [1] 小川, “センサネットワーク—総論—,” 電子情報通信学会誌, Vol.89, No.5, pp.362-366, 2006 年.
- [2] 森, 野口, 佐藤, “センサネットワークと生活行動,” 電子情報通信学会誌, Vol.89, No.5, pp.430-435, 2006 年.
- [3] 平澤, 齋藤, “複数センサを用いた居住者の活動把握,”

- 電気学会 MSS 研究会資料, MSS-09-5, pp.25-30, 2009.
- [4] 疋田, “超音波距離計測システム,”特願 2008-125735, 平成 20 年 5 月 13 日出願.
- [5] M.Hikita, T.Watanabe, et al, “Investigation of novel ultrasonic positioning method installed in sensor network,” PIERS Proc. pp.1676-1681, Mar. 2009.
- [6] T.Watanabe, M.Hikita, et al, “Study of accuracy improvement for ultrasonic positioning method installed in sensor network,” Proc. USE, Vol.30, pp.225-226, 2009.
- [7] 疋田, “超音波計測システム,” 特願 2010-269436, 平成 22 年 12 月 2 日出願.
- [8] N.Tobita, M.Hikita, “Basic study of distance measurement and movement detection in sensor network using ultrasonic technique,” Proc. USE, Vol.32, pp.89-90, 2011.
- [9] M.Hikita, N.Tobita, et al, “Study on new ultrasonic positioning and movement detection installed in sensor network,” PIERS Proc. pp.27-30, Mar. 2012.
- [10] Dixon, R.C.: Spread Spectrum Systems, John Wiley & Sons, 1979.
- [11] De Witte, E. and H. D. Griffiths, “Improved ultra-low range side lobe pulse compression waveform design.” Electronics Letters, Vol.40, No.22, pp.1448-1450, 2004.
- [12] 市坪, “移動通信における多重波伝搬の周波数特性,” 信学論(B), Vol.J93-B, pp.1140-1149, 2010.
- [13] IEEE Standard 802.15.4: Wireless Medium Access Control (MAC) and Physical Layer (PHY) Specifications for Low Rate Wireless Personal Area Networks (LR-WPANs), 2003.
- [14] 辻井他, デジタル信号処理の応用, 電子情報通信学会, pp.16-26, 昭和 56 年.
- [15] 奥村他, “陸上移動無線における伝搬特性の実験的研究,”通研実報, Vol.16, No.9, pp.1705-1764, 1967.

3. 総合研究所科学研究費採択奨励研究報告 (2012年度)

疑似 LPE 法による In 系窒化物半導体混晶成長基盤技術の確立と 光デバイス製作への展開

情報通信工学科 准教授

山口 智広

本研究は、研究者が開発した疑似 LPE (liquid phase epitaxy)法である DERI (Droplet Elimination by Radical-beam Irradiation) 法^[1]による In 系窒化物混晶半導体 MBE 結晶成長基盤技術の確立と本基盤技術を用いた光デバイス製作への展開を行うことを研究目的とする。本年度得られた結果として、DERI 法により作製された厚膜 InGaN 混晶の結果を示す。

DERI 法で成長した厚さ約 500nm の $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{N}$ 厚膜 (DERI 成長繰り返し回数 20 回) の断面 TEM (Transmission Electron Microscopy) 像、及び、成長軸方向における In 組成変遷の AES (Auger electron spectroscopy) 測定結果を下図に示す。厚膜 InGaN 成長 DERI 法は、①In、Ga、N^{*}照射および②Ga、N^{*}照射を繰り返し、①にて生じる In ドロップレットを②にて膜中に取り込ませることにより、表面に生じる In ドロップレット量を制御しながら成長を行う手法であるが、断面 TEM 像より、①と②のプロセス周期に対応した成長界面などは形成されておらず、均一な InGaN が形成されていることが分かる。また、青色 LED (Light Emitting Diode) 製作で一般的に用いられる MOCVD (Metal Organic Chemical Vapor Epitaxy) 法で作製した InGaN 厚膜では表面に V ピットが生じてしまい平坦な膜を成長することが困難な状況にあるが、本手法を用いることにより平坦な厚膜成長が可能であることが確認された。また、成長軸方向における In 組成変遷の AES 測定結果より、①と②のプロセス周期に対応した In 組成揺らぎは観察されず、成長軸方向にほぼ均一な In 組成の InGaN が成長されていることが確認された。ただし、InGaN/GaN 界面付近では若干の In 組成の少ない InGaN 領域が確認できる。これは InGaN と GaN の格子定数の違いにより、InGaN が GaN に格子整合しようとして生じる In の取り込み抑制現象が現れているためであると予想される。

[1] T. Yamaguchi and Y. Nanishi, Appl. Phys. Express 2, 051001 (2009).

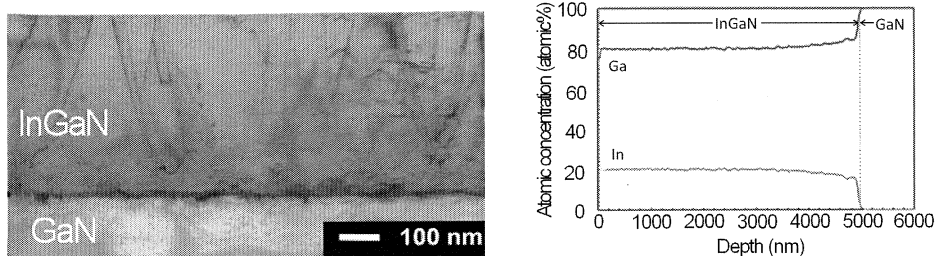


図 $\text{In}_{0.2}\text{Ga}_{0.8}\text{N}$ 厚膜の断面 TEM 像 (左図) 及び AES 測定結果 (右図)

真空放電によるマイクロ部品の表面機能付与に関する研究

機械創造工学科 助教
平尾 篤利

1. 目的

近年、マイクロマニピュレーションシステムが構築されるなどマイクロ機械要素部品などが重要な位置を占めているが、十分に機能しているとは言い難い。放電加工法は、加工反力が小さい加工法のため微細加工の分野においてその効果を発揮している。しかし、放電加工法を用いた軸成形において、直径 $5\mu\text{m}$ 以下の軸を成形するには、実用化されている加工機でも困難を極める。本研究は、マイクロ機械要素部品（軸成形）に対する微細化限界の追及を試みた。

2. 走査放電加工法

本研究では、走査放電加工法を用いた軸の微細成形を実施する。走査放電加工法とは、図 1 に示すように成形軸と対向プレートを配置し、軸を回転させながら成形プレート側へと走査する微細軸成形法である。電源電圧 70V 、コンデンサ容量 47000pF を用いたコンデンサ放電を実施し、粗加工とした。直径 0.5mm のタングステン-カーバイド焼結体を軸に用い、成形プレートには亜鉛合金を用いた。また、軸の回転数は 2400rpm とした。

図 2 に走査距離と成形された軸直径の関係を示す。軸直径が $50\mu\text{m}$ 以下となるまで、粗加工条件にて実施した。その後、放電加工条件を電源電圧 40V 、浮遊容量をコンデンサ容量とし、仕上げ加工条件へ変更した。軸の走査に伴って軸直径がさらに減少していることが確認できる。得られた微細軸の SEM 像を図 3 に示す。軸先端直径で約 $5\mu\text{m}$ 以下の軸を得ることができた。

3. 結言

本研究では、走査放電加工法を用いた微細軸成形を行い、走査距離と軸直径の関係を明らかにした。また、条件を選択することで、軸先端直径約 $5\mu\text{m}$ 以下の軸を容易に成形することが可能となった。今後、この軸に対して機能性を付与することで、マイクロアクチュエータ（マイクロピンセット）として機能させる。

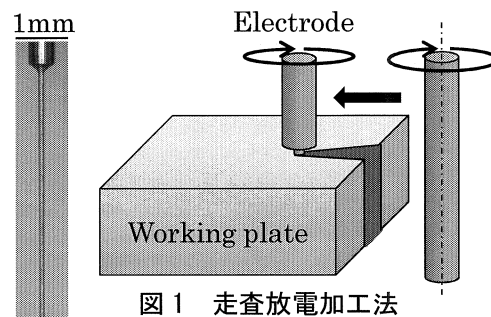


図 1 走査放電加工法

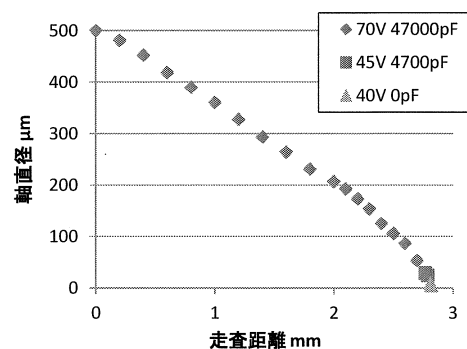


図 2 軸直径と走査距離の関係

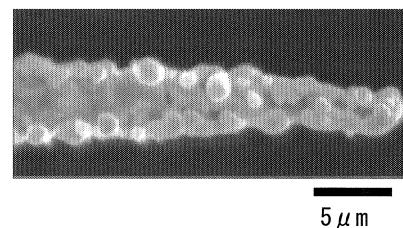


図 3 微細軸 SEM 像

特異な構造と顕著な生理活性を有するマクロライド系天然物の合成研究

応用化学科 教授
南雲 紳史

標的分子に基づく論理的な薬物設計が脚光を浴びるようになった現在でも、新しいリード化合物の探索という観点から天然物化学の重要性は未だ揺るぎない。最近、特に海洋の生物や微生物の大量発酵液から特異な大環状マクロライドが発見されており、それらの生物活性が脚光を浴びている。しかし、これらの微量天然物を自然界から量的に確保することは難しく、詳しい作用機序の解明や新規医薬品開発への展開を行う上でも、これらマクロライドの化学合成による量的供給が強く望まれている。本研究は生物活性試験ならびに作用機序の解明に資することを目的として、アレニコライド A (抗腫瘍活性)、ベンツリシジン X (抗カビ活性)、セコスリキシド (薬剤耐性腫瘍細胞の克服活性) という 3 種の大環状マクロライドを独自の方法論により合成することを目指した。

アレニコライド A に関しては、エポキシビニルスルホンの立体特異的アルコキシ置換反応を開発し、それを鍵反応として検討した。その結果、不斉中心を 3 個有する C9-C18 セグメントを立体選択的に合成することができた。また、その他のセグメント部分もエポキシ不飽和エステルを基質とするアルコキシ置換反応を用いて合成した。

ベンツリシジン X に関しては、その一部に存在する二置換ピラン環及びその周辺の合成を行った。この際に、最近我々が開発したエポキシ不飽和エステルの還元的 SN2' 反応を利用した。本反応は Z 型三置換アルケンを高立体選択的に与えるので、得られた化合物から数工程で目的の部分構造を合成することができた。

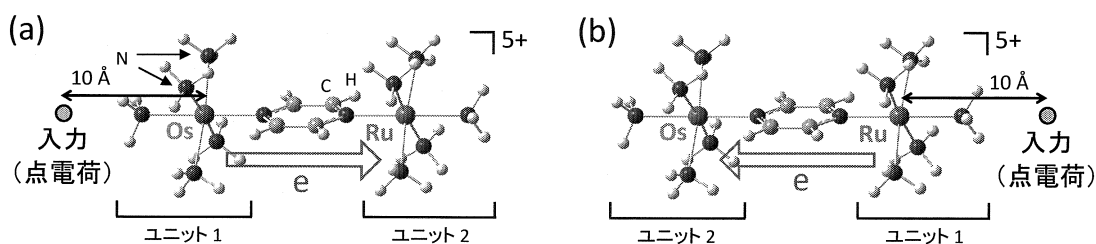
セコスリキシドに関しては、2 級水酸基に隣接したエポキシドの位置選択的アルキル化反応、シリレンの位置選択的開裂反応、閉環メタセシス反応による 14 員環構築などを鍵工程として行った。その結果、提唱構造の合成に成功したが、その構造が誤っていることが判明した。

量子ドットセルオートマトン ～新しい仕組みのデバイスの理論的動作解析と設計～

基礎・教養教育部門 准教授
徳永 健

近年、コンピュータの核となる中央演算処理装置 (CPU) の性能向上は目覚ましい。しかしながら、その根幹をなす電界効果トランジスタ (FET) の微細化の限界や動作原理の破綻のため、その性能は近く上限に到達すると言われている。このため、FET とは異なる仕組みを持つ論理デバイスが数多く提案されてきた。基板上に量子ドットを配置し、入力・出力を付け加えることにより論理演算機能を持たせた量子ドットセルオートマトン (QCA) もその1つである。特に近年、QCA を1分子で代用する分子型 QCA が注目を集めている。本研究課題では、実験に先駆けた分子型 QCA の理論的動作解析を行った。

分子型 QCA を簡略化したモデルとして、Ru-Os 非対称 2 核金属錯体を考えて (図参照)。錯体の左 (a) もしくは右 (b) に、分子型 QCA への入力に見立てた点電荷を置き、入力のスイッチとして点電荷を $+0.5e$ から $-0.5e$ に変化させた。ユニット 1 から 2 への電子移動にかかる時間は 1.6 fs 、ユニットの電荷の変化量は Ru (Os) を含むユニットで $0.20e$ ($0.16e$) であり、(a), (b) に違いは見られなかった。この結果は、信号伝達特性が錯体の非対称性にほとんど影響されないことを意味する。また、この非対称錯体と Ru-Ru および Os-Os 対称 2 核金属錯体の信号伝達特性に差は見られなかった。このことは、対称型・非対称型を問わず、合成しやすい錯体を QCA として利用できることを示唆しており、金属錯体を用いた分子型 QCA デバイスの実現に向けて、非常に有用な知見となる。



図： Ru-Os 非対称 2 核金属錯体を用いた QCA

疑似金属基板を用いた集積化 GaN 系面発光素子の製作検討

情報通信工学科 教授

本田 徹

窒化ガリウム(GaN)を代表とするIII-V窒化物半導体は、青色・緑色・白色発光ダイオード(LEDs)、400nm帯半導体レーザ(LDs)に応用されるとともに、電子デバイスへの応用研究も活発に行われている。これらIII-V族窒化物半導体は、近未来の主力半導体となる可能性を秘めている。また、フラットパネル・ディスプレイ(FPDs)の研究・実用化は、近年著しい進展がある。屋外大型ディスプレイの分野では、窒化物半導体を利用した発光ダイオードによる方法が、大きな市場を獲得している。これは、III-V族窒化物半導体がディスプレイ応用に適していることを意味する。本研究は、2インチ程度の家庭・ビジネス用III-V族窒化物半導体発光素子を集積利用したFPDs(本申請ではマイクロディスプレイと称する)を実現する基礎技術を検討した。特に、GaN系発光素子の集積化方法の一つであるリフトオフ技術実現のため、疑似アルミニウム(Al)基板上GaN薄膜の製作と化学リフトオフについて検討した結果を報告する。

塩酸水溶液に対してアルミニウムは容易に化学エッチングできることから、Al金属中間層を利用したサファイアおよび4H-SiC基板上(疑似Al基板上)へのGaN薄膜の製作を分子線エピタキシャル成長法(MBE法)により試みた。アルミニウム薄膜の結晶成長には250°C程度の低温と低成長速度が必要であることがわかった。さらに、成長条件の検討を行った結果、アルミニウムの融点である660°C以下の成長条件が必要であることがわかった。

発光をRGBに変換する蛍光体を集積化素子に配置することが目標であるので、電極には透明導電膜の使用を想定している。薄膜のリフトオフプロセスでは、透明電極が形成された支持基板上に接着し、化学エッチングを行う必要がある。従来、透明導電膜として一般的に使用されるインジウム錫酸化物(ITO)は、製作検討を行った結果、390nm程度に発光ピークを有するため、今回GaN系近紫外発光ダイオードの透明電極として使用することが難しいことがわかった。そこで、近紫外透明電極の製作検討を行ってきた。従来行われているEB蒸着またはスパッタリングによる方法では、低コスト化にまだ問題があると考え、溶液法による製作検討を行っている。現在、MgZnO薄膜およびGaInO₃薄膜について近紫外領域で透明であり、導電性を有する薄膜製作が実現できている。溶液法の1種である分子プレカーサー法を用いているが、酸化物薄膜形成は、溶液をコーティングした後に熱分解プロセスにより行った。

疑似Al基板の製作を250°C程度の結晶成長温度および低成長速度の実現により達成し、GaN薄膜の成長を試みた結果、Alの融点温度以下であれば、単結晶GaN薄膜を成長できることがわかった。また、分子プレカーサー法で製作したMgZnO薄膜およびGaInO₃薄膜が素子に使用する近紫外透明電極として使用できる可能性が高いことがわかった。

身体的拡張概念に基づいた救助隊員の安全確保に関する研究

機械システム工学科 准教授

羽田 靖史

身体性拡張概念を用いて消防資機材を高度化することで、救助隊員の認識能力を拡張し、災害時の安全確保に資する技術の研究開発を行った。具体的には、現在地域消防に導入されている隊員保護用器具等の消防資機材に、危険を認識する為のセンサ機能とこれを伝える無線通信機能を搭載し、救助隊員が単身では覚知不可能な危険を知り回避可能とする「インテリジェント消防資機材」の概念、仕様を設計し、実機を開発し有効性の検証を行った。

本研究では、まず、災害地で危険を察知するための認識として視覚を選び、センシングするための媒体として遠隔走査型無人移動カメラの基本設計を行った。このカメラの構成要素は、視覚を実現するカメラ、及び、移動機構、操作機構、そして神経にあたる通信機構からなる。この仕様を設定した後、現状の遠隔走査型災害対応ロボットの問題点を調査し、大きな問題が通信機構にあることを確認した。通信機構は遠隔のカメラ情報の取得及び車体等の制御情報の送受信に用いられるが、これは範囲が制限されているものの不可視であり、資機材の制御を行う上での妨げになっている。そのため本研究では①実験システムの構築②情報の取得実験③通信範囲の可視化、の3つに対して具体的な研究開発を行った。①においては研究室で開発中の移動体 Beego に視覚、操縦機構、無線通信機能を付加した。実験システムでは、遠隔視覚情報の獲得と制御デバイスとして iOS デバイスを用いており、直感的に遠隔視覚情報を得ることが出来る。また②においては、実験システムで新宿校舎内の移動実験を行い、16階1665室から16階ラウンジ、16階エレベータホール、エレベータへの乗り込み、1階エレベータホール、1階アトリウムまでの遠隔操縦を実現した。これにより、外部機器等により人間があたかも自らの視覚能力や行動能力を増大または追加したように活動可能となった。③については、無線電波が不可視であることを可視化することが身体性の拡張の重要要素であると考え研究を行ったが、現状は一部の形状情報及び無線電波の簡素なシミュレーションの実現にとどまっている。そこでこれを平成25年度科学研究費助成事業「遠隔操作する災害対応ロボットに資する電界強度マップの動的生成に関する研究」として申請し助成を得ることが出来た。なお本研究の成果は学会・研究会発表4件として発表も行った。

産業コントローラのピーク電力抑制制御

機械システム工学科 准教授

濱根 洋人

本研究は、産業機械のモータ、温度、圧力などの制御器について、省電力化を図る電力抑制制御手法を提案した。成果は、査読論文1本、国際会議2件、特許2件に纏めた。その他、学会発表会と研究会発表等で逐次に成果を報告した。

従来から産業機械の制御は、エネルギー・省エネよりも制御性能の向上を目的に設計されてきた。1980年～2000年までのロバスト・適応制御の理論的發展も、基本的な設計思想は制御性能におけるロバスト制御性能の向上であった。近年に、持続的な社会をめざした省エネルギーを求める制御理論が求められるようになった。そこで、本研究は産業機械を制御する産業用コントローラで省エネルギーを達成することを目的とした。

本研究によるピーク電力制御は、指定した制御入力について複数台の異なる産業機械、入出力間で干渉を伴う制御装置において、制御性能を劣化させることなくピーク電力を抑制する制御手法である。あわせて、制御入力のアクチュエータ・パワーエレクトロニクスの駆動スイッチングを時間分割する手法を提案した。これらの提案法は、モータや熱プロセスの実機システムに広く適用できる。本提案法により、工場におけるピーク電力量を規定でき、電源設備を小さくできる。また、移動型車両に実装することでバッテリーの低容量化が図れる。本研究の成果が、産業界で応用されることを期待する。

腫瘍細胞とコラーゲンとの結合を特異的に阻害する蛇毒タンパク質

応用化学科 准教授

辛 英哲

腫瘍細胞の浸潤および組織内移動（転移）を抑制する事は、日本人の死因第一位である癌を制圧する上で重要な課題となっている。腫瘍細胞が浸潤あるいは転移をする時、コラーゲンを主成分とする細胞外マトリックスに結合し分解する。そこで、蛇毒から腫瘍細胞の細胞外マトリックスへの結合を阻害する因子を探索し、浸潤あるいは転移を抑制する治療薬のシーズを見つけ出すことが本研究の全体構想である。具体的な目標としては、本研究では、蛇毒から腫瘍細胞とコラーゲンとの結合を特異的に阻害するタンパク質を単離し、その構造と阻害機構を調べ、腫瘍細胞の浸潤あるいは転移を抑制する分子の設計を行う。

昨年度までの研究から、CTX4 が細胞接着阻害活性を有することを明らかにした。これまでCTX4 に細胞接着阻害活性がある事は知られておらず、接着阻害作用機構について詳細に解析することにより、インテグリンなどの細胞膜レセプターを介した細胞外基質による細胞の増殖、分化や機能維持の制御機構の一端を明らかにする、また、腫瘍細胞などの特定の細胞の増殖や転移を制御する道具としての可能性を検討することができると考えている。特に本研究では、タイワンコブラ由来の粗毒からCTX4、CTX3の効率良い精製法を確立する事を目指した。一方、マムシ科のヒメハブ粗毒から、細胞外基質であるファイブロネクチンと肉腫細胞の結合を阻害する因子が存在する事を明らかにした。本研究ではこの因子を特定し、接着阻害機構を明らかにする事を目指した。

その結果、コラーゲンとの結合阻害活性が最も強かったタイワンコブラ由来の粗毒から、ゲルろ過クロマトグラフィーと陽イオン交換クロマトグラフィーによって接着阻害タンパク質CTX-4とその類似タンパク質CTX-3を効率よく精製する事に成功した。それぞれのタンパク質の収率はCTX-4が2.7%、CTX-3が7.8%であった。また、CTX4による接着阻害活性がみられた細胞は全て腫瘍化した細胞であり、CTX4は腫瘍細胞によるIV型コラーゲンへの接着を強く阻害すると考えられる。一方、ゲルろ過クロマトグラフィーを用いて、ヒメハブ粗毒を分子量により分画し、細胞と細胞外基質との結合阻害活性を調べた。その結果、分子量30kDa~100kDaのタンパク質が含まれる画分に、肉腫細胞とファイブロネクチンとの結合を特異的に阻害する活性があることが分かった。これまでヒメハブでは、このような活性を示すタンパク質は見つかっておらず、新規なタンパク質であると考えられる。

気生微細藻類を利用した機能性物質生産のための 生理活性物質の探索

応用化学科 助教
油井 信弘

研究目的

気生微細藻類は、陸上で生育する微細藻類であり、厳しい環境に適応するために多くの機能性物質を産生する。これまでに、オイルやカロテノイドなどの機能性物質を生合成する気生微細藻類が見出されてきた。本研究では、気生微細藻類の高い機能性物質産生能をさらに増加させる生理活性物質を探索し、その作用解析までを行うことを目的とした。研究項目は、気生微細藻類の①高オイル産生能並びに②高カロテノイド産生能をさらに向上させる生理活性物質の探索と構造解析、③得られる活性物質の標的分子の同定、の3点であった。

研究方法と結果

1. 気生微細藻類を用いたオイル生産並びにカロテノイド生産評価系の確立。

気生微細藻類 *Scenedesmus* sp. を96穴マイクロプレートに播き、培養条件を検討した。カロテノイドとクロロフィル量の検出にマイクロプレートリーダーを用いた。細胞量、光条件、培養培地を最適化することで、カロテノイド生産評価系を確立した。また、 β -ヨノンを評価し、カロテノイド産生を促進するポジティブコントロールとして用いた。

2. 植物や微生物のメタノール抽出物から生理活性物質のスクリーニング、単離精製、構造解析。

八王子キャンパスより得られた植物をメタノールで抽出し、サンプルを得た。確立したカロテノイド生産評価系を用いて、スクリーニングを行ったところ、いくつかの植物サンプルにカロテノイド産生の促進活性が認められた。今後、候補サンプルより生理活性物質の単離精製を進め、構造解析により、化学構造を明らかにしていきたい。また、得られる活性物質の標的分子を同定することで、その作用を解析していく予定である。

バイオメカトロニクス的手法による 培養細胞の分化・組織化に関する研究

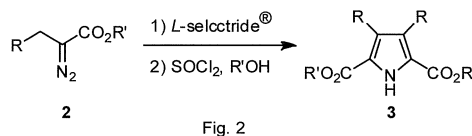
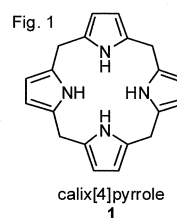
機械工学科 教授
橋本 成広

近年の細胞培養技術の成果を受けて、筋細胞を中心として、細胞の分化・組織化に対するメカトロニクス刺激の効果を、マイクロ加工技術の助けを借りて、実験的に研究する。種々の細胞を、様々な、電磁的（パルス電場・磁場など）・機械的（せん断応力場・過重力場など）な刺激のもとで培養し、分化・組織化を比較し、また、分化・組織化の加速方法を模索する。細胞の分化・組織化のメカニズムを電氣的・機械的という新たな側面から解明することにつながる、再生医療に応用される、などの成果が見込まれる。また、*in vitro*における培養組織計測システムを開発することにより、動物実験代替試験システムへの応用をも視野に入れた基盤研究である。マウス由来の筋芽細胞、繊維芽細胞、ヒト血管内皮細胞などの細胞をマイクロ流路・せん断応力場・過重力場などにおいて培養し、付着・増殖・分化・配向などへの影響を顕微鏡下に観察した。以上の実験的な研究から以下の成果が得られた。平行平板間流路によって、細胞が移動・剥離するときのせん断応力を定量的に評価することが可能である。遠心力を利用した過重力場において、細胞の配向が促進される。せん断流れ場における配向は、細胞種によって異なる。マイクロメートルオーダーの縞状の凹凸は細胞の配向に影響を与える。流路側面に、細胞の直径の数倍の直径の穴を設けることによって、細胞を捕捉できる。マイクロメートルオーダーのスリットを細胞は通過できる。以上の成果を国際学会で発表する予定。

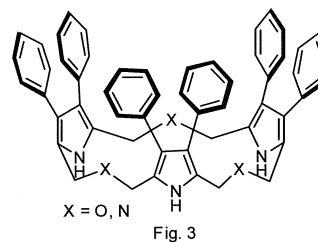
新規カリックスピロールの合成研究

応用化学科 准教授
安井 英子

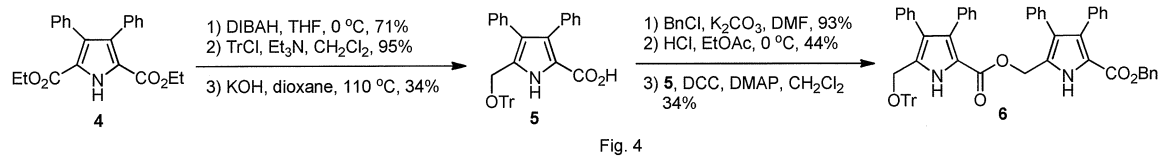
カリックスピロール **1** (Fig. 1) は複数のピロールが環状に繋がった構造をもつ化合物の総称であり、その内側にアニオンや中性分子を捕らえることができる。申請者はこれまでに、 α -アミノ酸エステルより簡便に得られる α -ジアゾエステル **2** を原料とした新規反応を検討し、ピロール **3** の合成法を確立している (Fig. 2)。このピロール **3** は 2 位と 5 位にエステル基が置換されているため、これらを環状構造への変換に役立てることができる。また、3 位と 4 位にアリール基を置換させることができるため、これらを利用してくぼみ構造を作り出すことができると考えられる (Fig.



3)。そこで、申請者が開発したピロール合成法を利用して、これまでに例のない、ヘテロ原子を含むリンカーを有する新規カリックスピロールを合成し、その性質を調べるべく検討を行った。



フェニルアラニンエチルエステルより合成したピロール **4** を用いて検討した。ピロール **4** の 2 つのエステル基は同時に水酸基へ還元することが困難であったため、一方のエステル基のみ還元し、生じた水酸基を保護した後もう一方のエステル基を加水分解してカルボン酸 **5** を得た。これをベンジルエステルとした後にトリチル基を除去し、先に合成したカルボン酸 **5** と共に縮合することでピロール二量体 **6** を得ることができた (Fig. 4)。今後、同様の手法でピロール三量体とし、環化を行う。環化体 (カリックスピロール) が得られた後にその機能を調査したい。



藍藻スピルリナ由来カロテノイドの高生産を目指した 新規培養系の確立

応用化学科 講師
杉山 健二郎

昨今の健康志向の高まりによって、天然物由来カロテノイドの需要が年々増加している。健康補助食品として産業的に生産されている藍藻スピルリナ（学名：*Arthrospira platensis*）はカロテノイドを豊富に含むことから、新規供給源としての利用が期待される。本研究では、スピルリナのカロテノイド生合成経路を遺伝子レベルで解明し、各カロテノイド蓄積量および各生合成遺伝子の発現量をモニターしながら、カロテノイドの高生産に特化したスピルリナの新規な培養システムを構築することを目的とする。

平成 24 年度には、カロテノイド生合成酵素遺伝子と考えられる 6 種類の遺伝子がスピルリナゲノム上に存在することを見出し(図 1)、それらのうち、フィトエン合成酵素遺伝子(*CrtB*)、フィトエン不飽和化酵素遺伝子 (*CrtP*)、 ζ -カロテン不飽和化酵素遺伝子 (*CrtQ*)、およびリコペン環化酵素遺伝子 (*CruA*) の 4 種類の遺伝子のクローニングに成功した。さらに、ゲラニルゲラニルピロリン酸 (GGPP) を生産できるように改良された大腸菌に、スピルリナ由来 *CrtB* 遺伝子を導入し、合成されたカロテノイドを高速液体クロマトグラフ質量分析計で解析することにより、スピルリナの *CrtB* 遺伝子産物が GGPP を基質としてフィトエンを合成することを明らかにした。

今後、その他の遺伝子についても同様の手法を用いて機能解析することで、スピルリナにおけるカロテノイド生合成経路を明らかにすることができると期待される。

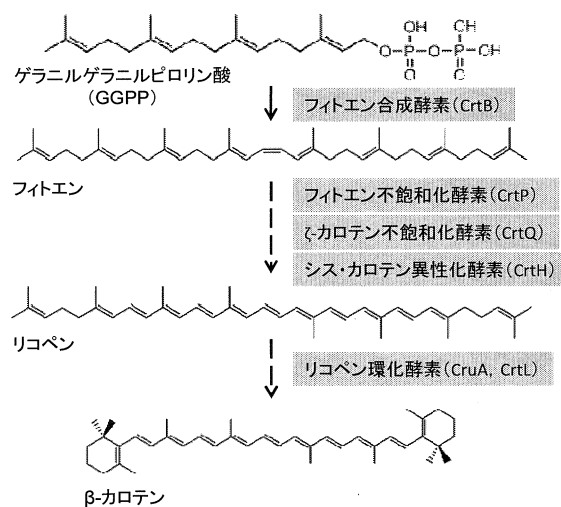


図 1 スピルリナにおけるカロテノイドの推定代謝経路

ナチュラルリソグラフィーに基づく半導体ナノ構造の創製とその応用

応用化学科 教授

小野 幸子

GaAs (111) 基板上に形成したプレピットの形状を三角錐構造にすることで頂点に電流の集中を誘導し、孔の発生位置を制御することでアスペクト比 350 のポーラス GaAs を作製した。また異方性化学エッチングによる三角形状を維持した孔径の拡大によりポーラス構造から三角柱ピラーアレイ構造に変化させることができた。また、等方的な溶解が生じるアノード溶解によって開口形状を円形に拡大することができた。一方、GaAs バルク基板に対してアノード酸化を行った場合、低濃度のクエン酸及びリン酸では緻密なバリアー型酸化皮膜が形成した。高濃度の酸を用いた場合、基板垂直方向にポーラス構造を形成し、孔壁の溶解に伴い GaAs ナノワイヤーを形成した。特にリン酸を用いた場合は基板垂直方向へのエッチングが最も均一であった。電解液に硫酸アンモニウムまたは硫酸カリウムを用いた場合、GaAs 酸化物ナノチューブが形成された。

n 型 GaAs (111) B 基板を硫酸カリウム水溶液とエチレングリコール (EG) を混合した電解液中 (0-5 °C) でアノード酸化を施し生成するナノチューブの集合体からなるポーラス酸化皮膜に関して、皮膜内に含まれる元素の分布をグロー放電分光分析法 (GDOES) またはオージェ電子分光分析法 (AES) を用いて評価した。その結果、ポーラス酸化皮膜は主に Ga, As, O, S, C から構成されており、表層の Ga が皮膜底部に比べ減少し、As と S が表層で有意に多かった。次に、ポーラス酸化皮膜の形態に対する電解液種および硫酸イオン濃度の影響を検討した。その結果、リン酸、硝酸、硫化物イオン含有電解液を用いた場合、ナノチューブが形成されなかったが、硫酸イオンを含む硫酸、硫酸ナトリウム、硫酸アルミニウム電解液を用いた場合にはナノチューブが形成された。以上より、ナノチューブの形成は硫酸イオンに起因していることが明らかとなった。また、硫酸イオン濃度が異なる電解液を用いて作製した皮膜を溶解除去し、基板素地の表面粗さを測定した結果、低濃度硫酸イオン含有電解液は高濃度電解液と比較し、ナノチューブ形成時のドメインによる凹凸構造が顕著に小さかった。以上より、低濃度硫酸イオン含有電解液を用いることで局所的な電流集中を抑制できた。GaAs のアノード酸化によるナノチューブの形成は報告例が無く、新規なリソグラフィ技術として今後の展開が期待される。

介護支援用パワーアシストスーツの開発

機械システム工学科 准教授

中荻 隆

介護従事者の介護作業における腰への負担低減を目的とした装着型のロボットスーツの開発を行った。パワーアシストスーツと呼ばれるカテゴリーに属するロボットであり、モータの駆動力を利用して人の筋力をアシストすることを目指している。本スーツの開発は、2009年からスタートしており、今年度は試作の2機目の機構設計と信号処理を検討した。DDモータを用いて機体を軽量化し、スーツ本体のデザイン性も向上した。また、信号処理においては表面筋電位センサを用いて装着者の動作判定を行う。信号処理の基本的なアルゴリズムは2011年度に完成していたが、本年度はその改良と実装評価を行った。得られた研究成果は、国際会議論文2件（査読付き）、国内発表2件としてまとめた。

本研究は、2つの卒業論文、1つの修士論文に直接関係したため、学生教育という点でも有意義であったと考えている。本助成金がなければ、このような多角的な研究成果の進展はできなかったため、大変感謝しています。

【査読付き国際会議論文】

1. Y. Ikeya, T. Nakakuki: A study on a waist power assist suit for a caregiver to prevent lower back pain, ICCAS2013, Korea, October, 2013 (accepted)
2. H. Tsuzura, T. Nakakuki: A mechanism design of waist power assist suit for a caregiver by using torsion springs, ICCAS2013, Korea, October, 2013 (accepted)

【国内学会】

1. 甘樂、中荻: トーションバネを用いた介護支援向け腰用パワーアシストスーツの機構設計、第13回計測自動制御学会システムインテグレーション部門講演会、福岡、2012年12月。
2. 柏木、中荻: 介護支援用パワーアシストスーツの製作、日本機械学会 2012年度年次大会、富山、2012年9月。

モード損失係数の最大化を目的とした 制振材のトポロジー最適化

機械工学科 准教授

山本 崇史

自動車の室内における静粛性の向上は、乗車中の快適性を高める重要な要素であり、その一方策として車体の鋼板に制振材が貼り付け、振動を減衰させていることが多い。その一方で、環境性能の一つである燃費を向上させるため車両の軽量化も同時に求められている。したがって、静粛性と軽量化を両立させるためには、使用した制振材の質量に対する騒音低減効果の大きさ、いわゆる静粛性に関する質量効率を高めることが重要である。車室内の音圧を直接評価することも考えられるが音響・振動の連成問題を扱う必要があり検討が複雑になる。静粛性に関わる特性として鋼板の振動特性があることから、質量が同等で振動特性を最良に、あるいは振動特性が同等で質量を最小にするという指針にもとづいて制振材の貼付け位置を設計するのが有効と考えられる。

制振材による減衰性能の評価指標としてモード損失係数があり、これを最大化するように貼付け位置を最適化する方法が有効であると考えられる。従来、モード損失係数はモード歪エネルギーにより表現されているが、その設計感度には固有ベクトルの感度が含まれており解析に長時間を要する。そこで本研究では、制振材による固有モードの変化が小さいと仮定し、モード損失係数を実固有値により表現する近似式を導出した。本近似式の場合、モード損失係数設計感度は実固有値の感度のみを用いて効率良く求めることができる。そして最適化手法には性能の抜本的改善が可能なトポロジー最適化手法を適用し、あらかじめ指定した質量制約条件の下、制振材の貼り付け位置を最適化し、モード損失係数を最大化することとした。なお、最適化の繰り返し計算の過程で、Modal Assurance Criterion (MAC) 値を用いてモードトラッキングを行い、対象とする固有モードの次数が変化しても追従できるようにしている。

本手法を自動車の車体で使われることが多い平板、曲面板および波状の板に適用した。一般的にモード歪エネルギーの大きい箇所に貼り付けたほうが良いとされているが、いずれの板の場合も本手法により求めた最適な貼り付け位置も同様の結果となっており、物理的に妥当な解が得られ、提案手法の有効性を検証することができた。

なお、本成果は 2013 年 8 月に開催される一般社団法人日本機械学会機械制御・計測部門年次講演会にて発表する予定である。

ひらがな入力型 BCI と ALS 者への適用

情報デザイン学科 准教授

田中 久弥

これまで我々はアルファベット及びピクトグラムを用いた意思伝達を可能にする走査方式の BCI システムについて研究してきた。本研究はひらがなのシステムを構築し (図 1), その有用性を健常者と ALS 者で実験した。評価の方法については, 正答率, 入力速度の観点から行ない, ALS 者の実験では現場での BCI 使用時の問題点や要望を明らかにした。

健常者の実験では正答率は刺激時間が最小値の 140ms で 90%を超え最良であったことから, ひらがな方式は速く正確に入力できることが分かった。またひらがな入力では 145ms と 245ms において, アルファベット方式, ピクトグラム方式よりも成績が良くいずれも 80%を超えることからひらがな方式が日本語入力に有用であることを示している (図 2)。

一方, ALS 者での実験では BCI の正答率は良くて 67%, 悪くて 0%であった。また適用時の課題が明らかになった。まず BCI は居室の医療機器との併用するために, そこから発せられる電磁ノイズの対策を施さなければならない。なお電磁ノイズをオフラインで除去した後の波形は P300 成分の判別が可能であった (図 3)。

また, 装着時の課題として, 寝る姿勢における電極帽の装着感の向上, すなわち電極と頭皮の間の痛みを軽減するような電極形状または枕素材が検討課題となった。さらに, BCI が普段使用の透明文字盤と同じ画面になるようなカスタマイズ機能が必要とされた。そして, BCI 装着の時間が健常者のそれと比較して長いことが分かった。アクティブ電極によって装着・脱着時間は短くなったものの, ALS 者に装着する場合は, 被験者自身が電極帽を調整することが出来ないため作業療法士と透明文字盤を介して対話しながら装着状態を改善しなければならないので, BCI の仕様を見直すなど装着作業の簡便化をする必要がある。今後はこれらの課題解決方法を調べ, 対策を施し ALS 者への適用実験を続けていく。



図 1 ひらがな入力画面

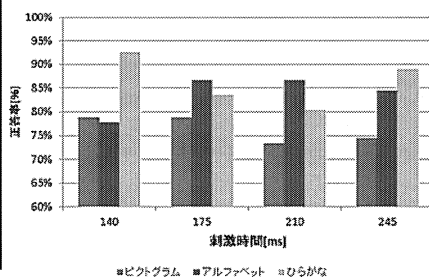


図 2 刺激間隔と正答率 [%]

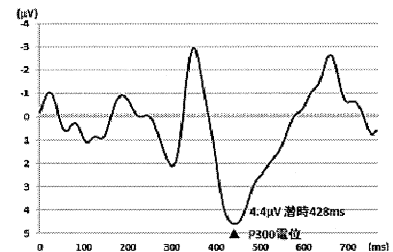


図 3 ALS 者 (50 代女性) の誘発電位

(O2 電極 P300 電位 6.16 μ V 潜時 440ms)